Caractérisation thermique de structures de combustion par les effets de la chauffe sur les minéraux : thermoluminescence et propriétés magnétiques de foyers de la grotte des Fraux (Dordogne)

Aurélie Brodard

▶ **To cite this version:**

Aurélie Brodard. Caractérisation thermique de structures de combustion par les effets de la chauffe sur les minéraux : thermoluminescence et propriétés magnétiques de foyers de la grotte des Fraux (Dordogne). Archéologie et Préhistoire. Université Michel de Montaigne - Bordeaux III, 2013. Français. NNT : 2013BOR30001 . tel-00870483

HAL Id: tel-00870483

https://theses.hal.science/tel-00870483

Submitted on 7 Oct 2013

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.

Université Michel de Montaigne Bordeaux 3

École Doctorale Montaigne Humanités (ED 480)

THÈSE DE DOCTORAT EN

« PHYSIQUE DES ARCHÉOMATÉRIAUX »

Caractérisation thermique de structures de combustion par les effets de la chauffe sur les minéraux : thermoluminescence et propriétés magnétiques de foyers de la grotte des Fraux (Dordogne)

Présentée et soutenue publiquement le 29 Janvier 2013 par

Aurélie BRODARD

Sous la direction de Pierre Guibert et François Lévêque

Membres du jury

Pierre CAMPS, CR CNRS, Université Montpellier 2	Rapporteur
Laurent CAROZZA, CR CNRS, Université de Toulouse 2	Examinateur
Philippe DILLMANN, DR CNRS, CEA	Examinateur
Pierre GUIBERT, IR CNRS, Université Bordeaux 3	Directeur de thèse
François LEVEQUE, MdC, Université de La Rochelle	Co-directeur de thèse
David SANDERSON, Professor, University of Glasgow	Rapporteur

« L'enthousiasme est à la base de tout progrès. »
Henry Ford

Remerciements

Ce travail de doctorat, financé par l'Université de Bordeaux 3, a été principalement accompli au sein de l'IRAMAT-CRP2A (Institut de Recherche sur les Archéomatériaux - Centre de Recherche en Physique Appliquée à l'Archéologie, CNRS - UMR 5060) à Bordeaux avec quelques séjours au laboratoire LIENSs (Littoral, Environnement et Sociétés) à La Rochelle.

Je tiens tout d'abord à remercier les membres du jury, David Sanderson, Pierre Camps, Philippe Dillmann et Laurent Carozza d'avoir accepté d'examiner ce travail.

Au terme de ce doctorat, je remercie particulièrement mes directeurs de thèse, Pierre Guibert pour son encadrement sans faille et son soutien tout au long de ces trois ans, ainsi que François Lévêque pour m'avoir guidée dans les méandres du magnétisme.

Je tiens également à remercier Laurent Carozza ainsi que toute l'équipe attachée à l'étude de la grotte des Fraux pour m'avoir accueillie, aidée et soutenue durant ces trois années. Un merci tout spécial à Albane Burens pour son accueil chaleureux et ses bons petits plats… Merci aussi à M et Mme Goineaud, propriétaires de la grotte des Fraux, sans l'autorisation de qui rien de tout ceci n'aurait été possible.

Mes remerciements s'adressent aussi aux permanents du CRP2A. Un grand merci à Nadia Cantin pour son aide et sa disponibilité.

Merci à mes « collègues » doctorants et docteurs, Laeti, Aurélie, Laure, Marion H. et Marion P., Ziad, Marine, Armel, Sophie, Gwen, Nicolas, Guillaume, pour les discussions les plus sérieuses et surtout pour les bons moments de détente.

Merci aussi à Delphine Lacanette sans qui une partie de ce travail n'aurait pu être mené à bien.

Enfin, merci à mes ami(e)s de Bordeaux, de Pau, du Rock'n'roll et d'ailleurs, ainsi qu'à toute ma petite famille pour leur soutien, leur amitié et leur amour…

Résumé

Les structures de combustion constituent un témoin de la fréquentation humaine et leur étude permet d'appréhender un aspect du mode d'occupation d'un lieu donné. Ainsi, pour compléter les approches classiques qui s'intéressent à la typologie des foyers, à la fréquence des feux, à la nature des combustibles, etc., une caractérisation thermique de ces structures a été proposée. Elle s'appuie sur les impacts thermiques enregistrés par les sédiments soumis aux feux et plus précisément sur les modifications des propriétés de thermoluminescence (TL) et de magnétisme avec la chauffe.

Le site-laboratoire est celui de la grotte de Fraux (Dordogne), occupée à l'Âge du bronze, dont le statut et le mode d'occupation pose question puisqu'elle présente tant des vestiges domestiques (sols de circulation, foyers, mobiliers) que des vestiges symboliques (manifestations pariétales, dépôts de mobilier). La place importante des foyers parmi ces vestiges a induit une étude spécifique de ces structures. En effet, ce site recèle plus d'une soixantaine de structures de combustion et, aspect important pour notre approche archéométrique, présente un état de conservation exceptionnel puisque la grotte est restée fermée depuis l'occupation de l'Âge du bronze.

L'étude de certains foyers de la grotte des Fraux a permis de tester le potentiel de paléothermomètres fondés sur ces deux propriétés indépendantes à savoir la TL des grains de quartz et le magnétisme des oxydes de fer contenus dans les sédiments. Le paléothermomètre TL a été élaboré en comparant les signaux TL d'échantillons provenant de foyers archéologiques à ceux de références thermiques chauffées en laboratoire. Pour le magnétisme deux pistes ont été exploitées : les températures de déblocage de l'aimantation rémanente et l'évolution de la signature magnétique -minéralogie et taille de grain) avec la chauffe. La détermination des paléotempératures atteintes par les sédiments substrats des structures de combustion apporte une première indication sur leur intensité de chauffe. Afin d'étalonner ces informations paléothermométriques en termes d'énergie mise en jeu, des feux expérimentaux ont été réalisés. Ils ont permis de comparer les impacts thermiques entre feux archéologiques et feux expérimentaux, de construire un échantillonnage d'histoire thermique connue, mais aussi d'estimer les températures atteintes, les épaisseurs de sédiments affectés, les quantités de combustibles consommés pendant un temps donné, la quantité d'énergie dégagée par la combustion… Ces expérimentations ont aussi servi de base à une modélisation de la propagation de la chaleur dans les sédiments. Les simulations effectuées dans ce modèle numérique permettent alors d'estimer un temps minimal de fonctionnement des structures de combustion.

Nous disposons ainsi d'un nouvel outil pour la caractérisation thermique de foyers archéologiques.

Mots clés : Foyers ; Paléothermométrie ; Thermoluminescence ; Magnétisme des roches ; Archéologie expérimentale ; Modèle thermique ; Grotte des Fraux ; Age du Bronze.

Abstract

The study of the combustion structures, which are a remaining evidence of the human occupation, can give information about the way of occupation of a site. In this research we decided to complete the classical approaches of combustion structures generally based on typological description of hearths, frequency of fires, nature of fuel, etc. by a

a thermal characterisation. This study deals with the thermal impacts recorded by the fired sediment. More precisely, the modifications of both thermoluminescence (TL) and magnetism properties with heating were investigated.

The laboratory-site is the cave of Les Fraux (Dordogne, France) which was occupied in the Bronze Age. The archaeologists were wandering about the function and the way of occupation of this cave because of the existence of both domestic vestiges (archaeological occupation grounds, hearths, and ceramics) and symbolic evidences (rock art and votive ceramic deposition). A specific study of the combustion structures had started considering the significant number of hearths, more than sixty, and their importance in the human occupation. In addition, as the cave remained closed since the Bronze Age, the hearths are in an excellent state of conservation and that is an important point for our archaeometric study.

The thermal characterisation of some hearths from the cave of Les Fraux firstly consisted in studying the paleothermometer potential of two properties: the thermoluminescence of quartz grains and the magnetism of iron oxides taken from the sediments. The TL paleothermometer was established by comparing TL signals of samples from archaeological hearths and those of thermal references heated in laboratory. Two properties were explored for the magnetic paleothermometer: the unblocking temperatures of the remanent magnetization and the evolution of magnetic signature (mineralogy and grain size) with heating. The paleotemperatures determined for the sediment of the hearths give a first information about the heating intensity of fires.

Then experimental fires were carried out to calibrate paleothermometric data in quantity of energy and wood consumption, to check the suitability of laboratory thermal references, and to characterise the process of heat transfer inside the sediment.

Finally, a numerical modeling of heat propagation within the sediment was implemented from temperatures recorded during fire experimentations. Numerical simulations performed in this model allowed us to estimate a minimal duration of functioning of the combustion structures.

A novel tool for the thermal characterisation of combustion structures is then available.

Key words : Hearths ; Paleothermometry ; Thermoluminescence ; Rock magnetism ; Experimental archaeology ; Thermal model ; Cave of Les Fraux ; Bronze Age.

Table des matières - Aperçu général de la thèse

Remerciements 5
Résumé 7
Abstract 9
Introduction générale 21

Partie I : Les foyers au cœur des interrogations, pourquoi et que faire ? 23
Introduction 25
Chapitre 1 : Etat des connaissances sur l'étude des foyers 27
Objectif, problématique et méthodologie générale de la thèse 51

Partie II : Thermoluminescence et magnétisme : quel potentiel pour la paléothermométrie ? 53
Introduction 55
Chapitre 2 : La thermoluminescence 57
Chapitre 3 : Le magnétisme 63
Synthèse intermédiaire : Partie II 85

Partie III : Foyers archéologiques et expérimentaux : quel matériel d'étude ? 87
Introduction 89
Chapitre 4 : La grotte des Fraux : un site d'exception 91
Chapitre 5 : Du choix des foyers archéologiques aux prélèvements 111
Chapitre 6 : De la réalisation d'un foyer expérimental à l'échantillonnage 127
Synthèse intermédiaire : partie III 133

Partie IV : Thermoluminescence et magnétisme : quels apports pour la paléothermométrie ? 135
Introduction 137
Chapitre 7 : Paléothermométrie par la TL 139
Chapitre 8 : Cartographie des foyers : apports de la susceptibilité magnétique et du géomagnétisme 203
Chapitre 9 : Etude paléothermométrique au travers des propriétés magnétiques 221
Synthèse intermédiaire : partie IV 297

Partie V : Feux expérimentaux et modélisation numérique 301
Introduction 303
Chapitre 10 : Expérimentation de feux 305
Chapitre 11 : Modélisation numérique de la propagation de la chaleur dans le sédiment 321
Synthèse intermédiaire : partie IV 329

Partie VI : Synthèse et perspectives 331

Bibliographie 345
Liste des Figures 363
Liste des Tableaux 377

Annexes 381

Table des matières détaillée

Remerciements **5**

Résumé **7**

Abstract **9**

Introduction générale **21**

Partie I : Les foyers au cœur des interrogations : pourquoi et que faire ? **23**

Introduction **25**

Chapitre 1 : Etat des connaissances sur l'étude des foyers **27**

I. Du feu au foyer 27

I.1. Le feu 27

I.1.1. Le combustible : bois 28

I.1.2. La combustion du bois 28

I.2. Les résidus de combustion 29

I.3. Les impacts du feu sur les matériaux environnants 29

I.4. Bilan 30

II. Approche archéologique des foyers 31

II.1. Le foyer : un témoin de la vie domestique 31

II.2. Typologie des foyers 31

II.3. Reconstitution du mode de fonctionnement des foyers 33

II.4. Bilan 34

III. Approche archéométrique des foyers 35

III.1. Etude des combustibles : la paléobotanique 35

III.1.1. Anthracologie 35

III.1.2. Phytolithologie 35

III.1.3. Carpologie 35

III.1.4. Bilan 36

III.2. Etude des restes de matières organiques 36

III.3. Etude de la structure des foyers 37

III.4. Etude de l'intensité de chauffe 38

III.4.1. Colorimétrie 38

III.4.2. Méthodes thermiques - thermodilatométrie 40

III.4.3. Méthodes structurales et chimiques 40

III.4.4. Méthodes électroniques 43

III.4.5. Méthodes magnétiques 45

IV. Bilan 48

Objectif, problématique et méthodologie générale de la thèse **51**

Partie II : Thermoluminescence et magnétisme : quel potentiel pour la paléothermométrie ? **53**

Introduction **55**

Chapitre 2 : La thermoluminescence **57**

I. Rappels théoriques 57

II. Potentiel paléothermométrique de la TL 59

III. Appareillages 60

III.1. Four de recuit 60
III.2. Mesure de TL 60
III.3. Signal TL 61

Chapitre 3 : Le magnétisme 63
I. Rappels théoriques 63
I.1. Grandeurs magnétiques 63
I.2. Les comportements magnétiques des matériaux 64
I.2.1. Le diamagnétisme 64
I.2.2. Le paramagnétisme 64
I.2.3. Le ferromagnétisme au sens large et l'antiferromagnétisme 65
I.3. Notion d'aimantation 66
I.3.1. Axe de facile aimantation 66
I.3.2. Aimantation d'un ensemble de grains monodomaines 66
I.4. Les domaines magnétiques 67
I.5. Cycle d'hystérésis : observation de l'aimantation en fonction du champ appliqué 68
I.6. Les propriétés magnétiques 70
I.6.1. La susceptibilité magnétique 70
I.6.2. La viscosité magnétique 70
I.6.3. Les différents types d'aimantation rémanente 70
II. Potentiel paléothermométrique 72
II.1. Les minéraux magnétiques : oxydes, oxyhydroxydes et sulfures de fer 72
II.2. Les transformations intervenant avec la chauffe 72
II.2.1. Minéralogie magnétique 72
II.2.2. Taille de grains magnétique 74
II.2.3. En résumé 75
III. Méthodes de caractérisation de la signature magnétique mises en œuvre 76
III.1. Propriétés de l'aimantation induite 77
III.1.1. Susceptibilité magnétique 77
III.1.2. Courbes thermomagnétiques κ(T) 78
III.1.3. Susceptibilité magnétique en dépendance de fréquence 78
III.2. Propriétés de l'aimantation rémanente 79
III.2.1. Les températures de déblocage de l'aimantation rémanente 79
III.2.2. L'aimantation rémanente isotherme (ARI) 80
III.2.3. L'Aimantation rémanente anhystérétique (ARA) 80
III.2.4. L'Aimantation rémanente visqueuse (ARV) 80
IV. Appareillage et paramètre de mesure 81
IV.1. Four 81
IV.2. Susceptibilité magnétique 81
IV.2.1. Mesure in situ 81
IV.2.2. Mesure en laboratoire 82
IV.3. Aimantation rémanente 82
IV.3.1. Désaimantation thermique de l'aimantation rémanente naturelle 82
IV.3.2. ARI, ARA et ARV 83

Synthèse intermédiaire : Partie II 85

Partie III : Foyers archéologiques et expérimentaux : quel matériel d'étude ? 87

Introduction 89

Chapitre 4 : La grotte des Fraux : un site d'exception 91

I. Contextes 91

I.1. Contexte géographique 91

I.2. Contexte topographique 92

I.3. Contexte géologique 93

I.4. Contexte archéologique 94

I.4.1. Conservation de la grotte des Fraux 95

I.4.2. Chronologie de la fréquentation de la grotte des Fraux 95

I.4.3. Etude des vestiges 98

I.5. Bilan 99

II. Les foyers de la grotte des Fraux 100

II.1. Exemples de structures de combustion dans des salles : le secteur 13 101

II.2. Exemples de structures de combustion dans des galeries étroites : le secteur 18 105

II.3. Bilan 105

III. Problématiques archéologiques liées aux foyers 107

III.1. Localisation des foyers 107

III.2. Fonction des foyers 107

III.3. Combustibles 108

III.4. Fonctionnement des feux en milieu souterrain 109

III.4.1. Interprétation archéologique 109

IV. Bilan 110

Chapitre 5 : Du choix des foyers archéologiques aux prélèvements 111

I. Sélection de trois foyers de la grotte des Fraux 111

I.1. Le foyer F4 112

I.2. Les foyers F6 et F8 113

II. Stratégie d'échantillonnage 114

II.1. Foyer F4 114

II.1.1. Cartographie de susceptibilité magnétique 114

II.1.2. Localisation des prélèvements 117

II.2. Foyers F6 et F8 119

II.2.1. Cartographie de susceptibilité magnétique 119

II.2.2. Localisation des prélèvements 121

Chapitre 6 : De la réalisation d'un foyer expérimental à l'échantillonnage 127

I. Expérimentation 127

I.1. Construction du substrat : sole argileuse sur substrat gréseux 127

I.2. Feux 128

II. Localisation des prélèvements 130

II.1. Prélèvements pour la thermoluminescence 130

II.2. Prélèvements pour la minéralogie magnétique 131

Synthèse intermédiaire : partie III 133

Partie IV : Thermoluminescence et magnétisme : quels apports pour la paléothermométrie ?..... 135

Introduction..... 137

Chapitre 7 : Paléothermométrie par la TL 139

I. Signaux TL types et méthodologie générale 140

II. Protocole de préparation des échantillons archéologiques et des références thermiques 144

II.1. Extraction de la fraction 200-500 µm des grains de quartz 144

II.2. Récupération de la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm) 145

III. Mesure de TL sur la fraction grossière du quartz (200 - 500 µm) 147

III.1. Echantillonnage archéologique..... 147

III.1.1. Protocole de mesure TL..... 147

III.1.2. Mesures de TL..... 148

III.2. Construction du référentiel thermique..... 150

III.2.1. Cycle thermique de chauffe : simulation de la chauffe archéologique 150

III.2.2. Irradiation artificielle : simulation de l'irradiation naturelle reçue par les échantillons archéologiques depuis la chauffe 151

III.2.3. Mesure de TL 152

III.3. Détermination des paléotempératures 157

III.3.1. Comparaison visuelle..... 157

III.3.2. Calcul de la variance relative..... 160

III.3.3. Classification hiérarchique..... 162

III.3.4. Corrélation entre les trois méthodes..... 164

III.4. Validation par le foyer expérimental..... 166

III.4.1. Mesures de TL..... 166

III.4.2. Détermination de la paléotempérature..... 168

IV. Mesure de TL sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm)..... 173

IV.1. Echantillonnage archéologique..... 173

IV.1.1. Paramètres de mesure TL..... 173

IV.1.2. Mesure de TL..... 173

IV.2. Construction du référentiel thermique..... 175

IV.2.1. Cycle thermique de chauffe : simulation de la chauffe archéologique 175

IV.2.2. Irradiation artificielle : simulation de l'irradiation naturelle reçue par les échantillons archéologiques depuis la chauffe 175

IV.2.3. Mesure de TL : signal naturel simulé 175

IV.3. Détermination des paléotempératures 179

IV.3.1. Comparaison visuelle..... 179

IV.3.2. Calcul de la variance relative..... 182

IV.3.3. Classification hiérarchique..... 184

IV.3.4. Corrélation entre les trois méthodes..... 186

IV.3.5. Etude de la variabilité des sédiments argileux dans la grotte des Fraux 188

IV.4. Validation par le foyer expérimental..... 193

IV.4.1. Mesures de TL..... 194

IV.4.2. Détermination des paléotempératures 194

V. Paléotempérature et répartition spatiale 198

VI. Bilan..... 201

Chapitre 8 : Cartographie des foyers : apports de la susceptibilité magnétique et du géomagnétisme..... 203

I. Cartographies de susceptibilité magnétique et de champ magnétique 203

II. Couplage de la susceptibilité magnétique et des paléotempératures TL 207

II.1. Susceptibilité magnétique de terrain vs laboratoire..... 207

II.2. Comparaison visuelle : susceptibilité magnétique de terrain et températures TL 211
II.3. Corpus d'étalonnage 213
II.4. Etalonnage en température de la susceptibilité magnétique 215
II.5. Cartes en température des foyers F4, F6 et F8 216
III. Bilan 219

Chapitre 9 : Etude paléothermométrique au travers des propriétés magnétiques 221
I. Désaimantations thermiques de l'aimantation rémanente naturelle 222
I.1. Concernant les prélèvements 222
I.2. Coefficient de Kœnigsberger 223
I.3. Température de déblocage 226
I.3.1. Evolution de la susceptibilité magnétique 227
I.3.2. Analyse des directions et des intensités de l'aimantation rémanente 229
I.4. Bilan 240
II. Signature magnétique des sédiments des Fraux : approche comparée de sédiments provenant d'un foyer archéologique, d'un foyer expérimental et de sédiments chauffés en laboratoire. 241
II.1. Etude préliminaire : courbe thermomagnétique κ(T) : mesure dynamique de la susceptibilité magnétique en fonction de la température 241
II.2. Préparation des sédiments chauffés en laboratoire 250
II.2.1. Mise en forme et séchage 250
II.2.2. Cycle thermique de chauffe 251
II.2.3. Colorimétrie 251
II.3. Signature magnétique 255
II.4. Bilan sur les évolutions observées de la teneur en phases ferrimagnétiques, de la minéralogie et de la taille de grain 284
III. Conclusion 293

Synthèse intermédiaire : partie IV 297

Partie V : Feux expérimentaux et modélisation numérique 301

Introduction 303

Chapitre 10 : Expérimentation de feux 305
I. Construction des substrats expérimentaux 305
I.1. Instrumentation 305
I.2. Objectif et mise en place de chaque substrat 306
I.2.1. Substrat 1 en sédiment argileux : le modèle homogène 306
I.2.2. Substrat 2 : sole argileuse sur substrat argileux 306
I.2.3. Substrat 3 : sole argileuse sur substrat gréseux 308
II. Les feux expérimentaux 310
II.1. Le combustible 310
II.2. Les feux 311
II.3. Analyses des données issues des expérimentations 316
II.3.1. Combustible 316
II.3.2. Températures atteintes 317
II.3.3. Rubéfaction 318
II.3.4. Craquèlement 318
II.3.5. Humidité et vitesse de séchage du sédiment 319
II.3.6. Capacité calorifique 319
III. Bilan 320

Chapitre 11 : Modélisation numérique de la propagation de la chaleur dans le sédiment 321

I. Objectifs des modélisations numériques 321
II. La simulation numérique 321
III. Analyse théorique des données expérimentales de températures 324
IV. Application à un exemple archéologique : le foyer F6 327
V. Bilan 328

Synthèse intermédiaire : partie IV 329

Partie VI : Synthèse et perspectives 331

I. Synthèse des principaux résultats 333
I.1. Détermination des paléotempératures 334
I.2. Estimation d'un temps minimal de fonctionnement 335
I.3. Évaluation de l'intensité de chauffe 335
II. Quels sont les apports pour l'étude des foyers de la grotte des Fraux ? 336
III. Quels sont les apports méthodologiques et les conditions d'application ? 338
IV. Perspectives 341

Bibliographie 345

Liste des Figures 363

Liste des Tableaux 377

Annexes 381

Annexe 1 : Foyer F4 - signaux TL naturel et naturel+dose mesurés sur la fraction 200-500 µm du quartz 383

Annexe 2 : Foyer F6 - signaux TL naturel et naturel+dose mesurés sur la fraction 200-500 µm du quartz 393

Annexe 3 : Foyer F8 - Signaux TL naturel et naturel+dose mesurés sur la fraction 200-500 µm du quartz 401

Annexe 4 : Foyer F4 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz) ... 403

Annexe 5 : Foyer F6 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz) 409

Annexe 6 : Foyer F8 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz) 417

Annexe 7 : Foyer F6 - Signaux TL naturel et naturel+dose mesurés sur la fraction fine polyminérale (3-12 µm) 421

Annexe 8 : Foyer F8 - Signaux TL naturel et naturel+dose mesurés sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm) 431

Annexe 9 : Foyer F6 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale) 433

Annexe 10 : Foyer F8 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale) 441

Annexe 11 : Etude de la variabilité des sédiments argileux de la grotte des Fraux : rapport d'analyses 445

Annexe 12 ..... - 473 -

Introduction générale

La grotte des Fraux se présente comme un site d'exception (Carozza *et al.*, 2009) : la présence conjointe de vestiges domestiques et symboliques en excellent état de conservation témoigne d'une fréquentation humaine sur près de deux siècles et demi autour de 1400 - 1150 BC, soit au moment de la transition entre le Bronze moyen et le Bronze final. Les vestiges domestiques sont principalement des sols de circulation, des structures de combustion et des mobiliers céramiques, métalliques et fauniques. Les vestiges symboliques sont des dépôts de mobiliers ainsi que des manifestations pariétales non figuratives sous la forme de tracés digités, de gravures…

Dans un site tel que la grotte des Fraux, les structures de combustion (foyers) constituent un témoin de la fréquentation de la grotte par l'homme ; l'étude de ces structures comme des éléments occupant une fonction au cœur des activités humaines permet d'appréhender un aspect du mode d'occupation du site (Gascó et Muller-Pelletier, 2004).

Au sein de la grotte des Fraux, il existe une forte concentration de foyers. Grâce à leur état de conservation exceptionnel, des études approfondies ont pu être menées pour appréhender leurs fonctions et leurs liens avec les vestiges mobiliers et les manifestations pariétales. Cependant, à la question récurrente de la fonction principale des foyers aucune réponse incontestable n'a pu être apportée jusqu'à ce jour.

C'est dans ce contexte que se place la présente étude. En établissant une caractérisation thermique des foyers, elle cherche à apporter des informations complémentaires aux observations de typologie et de dimension des structures de combustion pour affiner les analyses des foyers. Plus précisément, ce doctorat propose une méthodologie d'estimation de l'intensité de chauffe des foyers de la grotte des Fraux, méthodologie adaptable et reproductible dans d'autres sites sous certaines conditions.

Les minéraux constituant les sédiments enregistrent les impacts thermiques d'un feu, celui-ci modifiant fortement deux de leurs propriétés : ***la thermoluminescence (TL) et le magnétisme***. Notre protocole d'étude des foyers a donc consisté à mesurer des modifications électroniques (TL) et des modifications minéralogiques (magnétisme sur des phases minoritaires) de sédiments.

L'analyse paléothermométrique entreprise s'appuie sur une étude comparative de trois types de sédiments : des sédiments de foyers archéologiques, des sédiments chauffés en laboratoire et des sédiments issus de foyers expérimentaux. Cette analyse a permis d'une part de tester le potentiel de la TL et du magnétisme comme paléothermomètre, et d'autre part de déterminer les paléotempératures des foyers archéologiques étudiés. L'intensité de chauffe a ensuite été évaluée au moyen d'une modélisation numérique de la propagation de la chaleur dans les sédiments, modèle conditionné à partir des mesures de température sur un foyer expérimental.

Ce mémoire s'organise en cinq parties.

La première partie (*partie I*) explique l'importance de l'étude des structures de combustion et présente les moyens actuels utilisés pour leur caractérisation. Les conclusions permettent de définir précisément la problématique de recherche de la thèse : quelle méthodologie mettre en œuvre pour quantifier l'intensité de chauffe de sédiments, substrats des foyers, dans le contexte de la grotte des Fraux ?

La deuxième partie (*partie II*) aborde les bases théoriques de la luminescence et du magnétisme, l'évolution de ces propriétés avec la chauffe, et la pertinence de leur mesure pour une étude paléothermométrique. Ce sont ensuite les appareils de mesure de la TL et des propriétés magnétiques utilisés au cours des recherches qui sont présentés.

La troisième partie (*partie III*) introduit le site de développement méthodologique et d'application des travaux menés : le réseau de la grotte des Fraux. On peut ainsi comprendre comment l'étude des foyers présentée dans cette thèse s'articule avec le contexte plus général de l'étude de la cavité. Viennent ensuite la description précise des foyers archéologiques étudiés et la stratégie d'échantillonnage retenue. Enfin, le propos s'attache à expliquer comment un feu expérimental a été construit pour produire un échantillonnage d'histoire thermique connu.

La quatrième partie (*partie IV*) est consacrée à l'étude paléothermométrique de trois foyers archéologiques retenus pour leur singularité de typologie et leurs différences de sédiment-substrat. Le protocole d'étude suit plusieurs étapes. On utilise d'abord les mesures de TL pour déterminer des températures équivalentes (paléotempératures). On évalue ensuite la complémentarité entre la TL et une approche de cartographie magnétique (susceptibilité magnétique et géomagnétisme) des foyers. Après avoir validé le couplage entre TL et cartographie de la susceptibilité magnétique, la susceptibilité magnétique est étalonnée en température pour obtenir une carte en paléotempérature des foyers. Enfin on effectue une analyse magnétique d'échantillons chauffés dans diverses conditions (feu archéologique, feu expérimental, en laboratoire) et une étude des températures de déblocage de l'aimantation rémanente (feu archéologique). Ces deux dernières opérations permettent d'évaluer la pertinence de la signature magnétique et des températures de déblocage comme paléothermomètre.

La cinquième partie (*partie V*) présente le cheminement aboutissant à une information sur l'intensité de chauffe des foyers. Il part des résultats obtenus à partir de feux expérimentaux reprenant certaines configurations de foyers archéologiques de la grotte des Fraux, puis passe par la mise en place d'un modèle numérique de la propagation de la chaleur dans les sédiments.

Pour conclure ce travail, une synthèse reprend les apports méthodologiques et archéologiques puis les conditions d'application des méthodes utilisées.

Partie I

Les foyers au cœur des interrogations : pourquoi et que faire ?

Introduction

Grotte des Fraux. © A. Burens

Découverte en 1989 par le propriétaire des lieux, M. Edmond Goineaud, la grotte des Fraux (Dordogne) est un exemple rare de site occupé à l'âge du Bronze où sont présents vestiges archéologiques (dépôts céramiques et métalliques, ossements, foyers, sols de circulation) et art pariétal (incisions, gravures, tracés digités, barbotine, pigments). L'effondrement de l'entrée principale à la fin de la dernière occupation du site au Bronze final a permis une conservation exceptionnelle des vestiges.

Parmi ces derniers, les structures de combustion, par leur nombre important (Figure 1), forment un axe de recherche à part entière puisqu'elles constituent un témoin des activités humaines et de leur organisation.

La grotte des Fraux est d'un intérêt majeur pour mettre en place de nouvelles méthodologies d'étude des foyers.

D'une part, ces structures posent de nombreuses questions : quelle est la répartition de ces structures dans le réseau ? Quelles sont les fonctions de ces foyers ? Quels combustibles ont été utilisés ? Plusieurs feux peuvent-ils fonctionner simultanément dans une galerie ? Quelle est leur influence sur l'environnement ? Quels liens existe-t-il entre les foyers et les manifestations pariétales ?

D'autre part, le contexte souterrain, la conservation du site en l'état depuis la fréquentation humaine et la très faible sédimentation, ont laissé la majorité des structures de combustion apparentes et à leur état d'abandon. Ces conditions de préservation sont nécessaires (1) pour la thermoluminescence pour laquelle la lumière du jour aurait pu perturber les modifications électroniques enregistrées par les sédiments des foyers et (2) pour le magnétisme pour lequel une forte pédogénèse aurait pu entrainer des modifications minéralogiques.

Ainsi, la grotte des Fraux est le site d'application de notre développement méthodologique de caractérisation thermique des foyers.

Avant de poser la problématique et les objectifs de cette thèse, il est important de faire un état des connaissances sur ce qu'est un foyer, l'intérêt archéologique de ce vestige et les méthodes d'ores et déjà appliquées à l'étude des foyers et plus généralement aux matériaux chauffés.

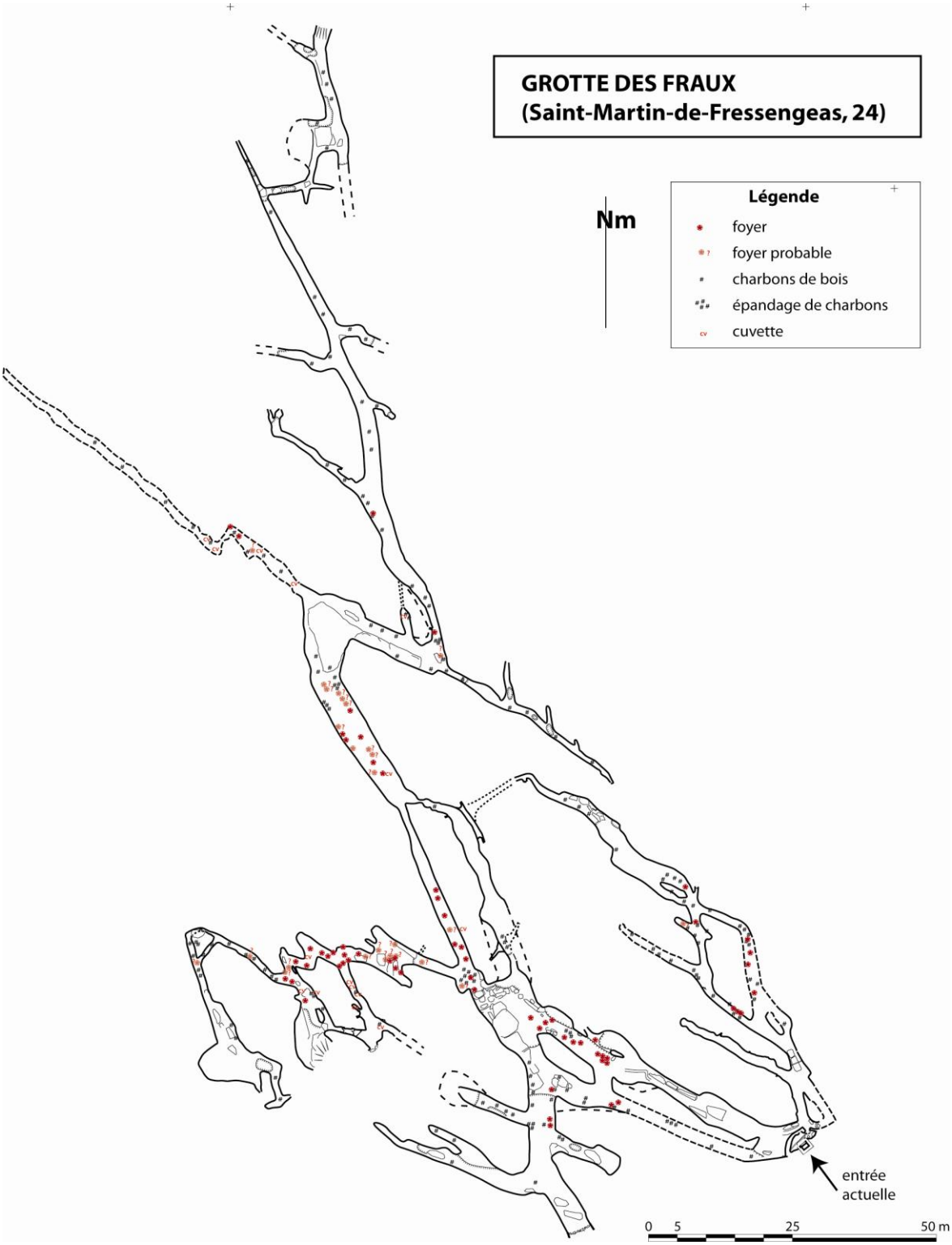


Figure 1 : Cartographie des structures de combustion au sein du réseau de la grotte des Fraux. © A. Burens.

Chapitre 1 : Etat des connaissances sur l'étude des foyers

Une multitude de disciplines contribuent à l'étude des structures de combustion ayant toutes pour objectif une meilleure compréhension de leur fonctionnement et de leur fonction au cœur des occupations humaines.

Après avoir décrit ce qui caractérise un feu ainsi que les traces qu'il laisse (résidus de combustion et impacts thermiques), nous nous intéresserons aux approches archéologiques et archéométriques consacrées aux structures de combustion qui tentent d'appréhender leur mode de fonctionnement et leur relation avec l'environnement.

I. Du feu au foyer

Le feu commence à être domestiqué il y a plus de 300 000 ans (Perlès, 1977). Les premiers foyers aménagés constituent dès lors le cœur des activités domestiques. En effet, un foyer se définit comme « *un espace plus ou moins délimité où l'on fait du feu* » et témoigne de « *l'occupation humaine un certain temps en un lieu donné* » (Leroi-Gourhan, 1997).

Deux questions importantes constituent la base de toute étude sur les foyers :

Qu'est ce que le feu ?
Quelles traces laisse-t-il ?

I.1. **Le feu**

Le feu témoigne de l'existence d'une combustion c'est-à-dire de réactions chimiques exothermiques et émettrices de lumière se produisant dans la flamme (Chevalier, 1996).

Pour qu'une combustion ait lieu, trois éléments, rassemblés sous le nom « triangle du feu », sont nécessaires (Cartault *et al*., 2012) :

- un combustible : bois, charbons de bois, os, tourbe, excréments…
- un comburant : l'oxygène
- une énergie d'initiation : étincelle, obtenue par frottement, qui élève localement la température, initiant ainsi la réaction de combustion.

Dans la grotte des Fraux, le bois semble être la source principale de combustible. Les analyses anthracologiques ont révélé des espèces du type hêtres, chênes et frênes (Thiébault dans Carozza, 2011).

I.1.1. Le combustible : bois

Le bois est un composé organique qui, sous sa forme anhydre, contient en masse 50 % de carbone, 43 % d'oxygène, 6 % d'hydrogène et moins de 1 % d'azote (Rogaume et Autret, 2012). Il est principalement composé de trois substances macromoléculaires à savoir la cellulose (50 % de la masse totale du bois), l'hémicellulose (15 à 30 %) et la lignine (20 à 30 %). Il contient aussi des substances organiques (graisses, résines, tannins…) ou minérales (oxydes et oxalates de silicium, potassium, calcium, magnésium, fer…) que l'on peut retrouver dans les cendres (Borredon *et al*., 2012).

Dans la nature, le bois contient environ 50 % d'humidité en masse (par rapport à la masse du bois sec). Ce paramètre est déterminant pour le pouvoir calorifique de ce combustible : 8 MJ/kg à 50 % d'humidité et 19 MJ/kg à 0% d'humidité (Francescato *et al*., 2008). Pour un état de séchage du bois donné il est donc possible de quantifier l'énergie émise par la combustion.

I.1.2. La combustion du bois

La formule brute moyenne du bois ($CH_{1.44}O_{0.66}$) est utilisée pour écrire l'équation de combustion : $CH_{1.44}O_{0.66} + O_2 \rightarrow CO_2 + 0.72\ H_20$. Ainsi, la combustion d'un kg de bois consomme environ 1 m^3 de dioxygène (O_2) et émet 1 m^3 de dioxyde de carbone (CO_2) et environ 0.5 litre d'eau (volumes donnés à pression et température ambiantes ; Borredon *et al*., 2012).

Une fois la combustion initiée, le feu nécessite donc une alimentation en combustible et un renouvellement de l'air constant pour l'apport d'oxygène. Il faut environ 5 m^3 d'air pour brûler 1 kg de bois sec (Laloy, 1981) et pour que l'air soit un comburant efficace il faut qu'il contienne au moins 15 % d'oxygène (Cartault *et al*., 2012). Dans un foyer, ce renouvellement est généralement assuré naturellement par la mise en place de mouvements de l'air dus aux variations de températures importantes engendrées par le feu : ces mouvements sont appelés « convection thermique » (l'air chaud a tendance à monter, créant un appel d'air froid au sol).

La combustion du bois se déroule en deux phases (Lucquin, 2012) : durant la première phase, dite de pyrolyse, le bois chauffe puis, à partir de 300°C, il produit des gaz combustibles (CO, H_2) ; pendant la seconde phase, ces gaz brûlent au contact de l'atmosphère (21 % d'O_2).

Les produits gazeux de la combustion du bois avec l'air sont multiples. Les principaux sont l'eau, le CO_2, le monoxyde de carbone (CO), et des imbrûlés solides ou gazeux (résines, suies, goudrons, aérosols…)

Les flammes et les fumées constituent deux caractéristiques principales de la combustion du bois :

- la flamme est la partie visible des réactions chimiques exothermiques en phase gazeuse. L'émission de lumière, jaune pour un feu de bois, résulte d'une combustion incomplète (défaut d'oxygène) et provient de particules de carbone incandescentes (Lucquin, 2012).
- les fumées sont constituées de gaz (parfois toxique, CO), de liquide (eau) et de particules solides (carbone imbrûlé). La présence de ces particules, qui diffusent ou absorbent la lumière, rend les fumées visibles. La couleur de la fumée émise peut donner une indication sur sa composition (Cartault *et al*., 2012) : gris-jaunâtre pour des fumées riches en imbrûlés et en CO ; blanche pour des fumées constituées principalement d'aérosols (carbone, nitrate, poussières).

I.2. **Les résidus de combustion**

Les résidus de combustion sont multiples (Beeching et Gascó, 1989) ; on trouve :

- des résidus de combustion incomplète tels que :
    - les suies : carbone imbrûlé et goudrons
    - les charbons de matières végétales (bois, brindilles) ou animales (os, excréments)
    - les brandons : bûches incomplètement brûlées

- des résidus incombustibles c'est-à-dire les cendres à diviser en deux catégories :
    - les cendres blanches : résidus de combustion complète
    - les cendres grises : résidus de combustion mixte (cendres blanches + particules charbonneuses).

Ces résidus constituent, avec les impacts thermiques sur les matériaux, une part des témoins de la combustion en un lieu donné et à une certaine époque. Cependant, leur conservation à travers le temps est variable et dépend des conditions d'enfouissement.

I.3. **Les impacts du feu sur les matériaux environnants**

Le feu repose généralement sur une surface support (ou encaissant). Cette surface est éventuellement entourée de blocs délimitant la structure qui peuvent être de nature variable : calcaires, galets, dalles de schistes, cailloutis… Ces matériaux soumis au feu subissent des modifications importantes et irréversibles qui nous permettent d'identifier les zones de combustion.

Ainsi les impacts le plus souvent identifiés (Beeching et Gascó, 1989) concernent :

- le sédiment encaissant :
    - craquelé, principalement pour des sédiments argilo-limoneux (séchage) ;
    - coloré, rubéfaction due à la présence et à la transformation des oxydes de fer. En condition réductrice / oxydante, une coloration noire / rouge apparaît notamment par la formation de magnétite / hématite.
- les blocs rocheux
    - éclatés, pour les galets et les roches à grains fins (Backhouse et Johnson, 2007) ;
    - altérés : altération de surface pour les roches grenues et tendres ;
    - colorés : rubéfaction et/ou noircissement au contact du combustible et de la fumée, avec des dépôts de suie.

Lorsque les conditions de préservation le permettent, ces stigmates de chauffe, témoins de la présence du feu, peuvent alors être repérés et étudiés. En milieu souterrain, les parois peuvent être affectées par la chauffe et présenter des stigmates similaires à ceux des blocs rocheux.

I.4. **Bilan**

Le feu laisse des témoins incontestables de sa présence tant par son impact sur les matériaux supports et environnants que par les résidus de la combustion qui persistent.

Dans le cas de la grotte des Fraux, le support des foyers est le plus souvent un sédiment argileux. Le substrat est d'une couleur jaune-ocre qui se rubéfie avec le feu (coloration pourpre/lie de vin). Le craquèlement n'est pas particulièrement observé probablement du fait de l'humidité ambiante (100%) en milieu souterrain. Par ailleurs, on trouve des blocs de grès (au sol ou en paroi) affectés par le feu qui présentent des rubéfactions ainsi qu'une altération de surface qui favorise leur désagrégation sous forme de sable. Les résidus de combustion ont pu traverser le temps grâce aux conditions de conservation particulièrement favorables à la grotte des Fraux. On y retrouve ainsi de nombreuses lentilles charbonneuses ou cendreuses associées aux foyers.

L'ensemble de ces témoins peuvent ensuite faire l'objet d'études afin de remonter à la typologie de la structure de combustion, à ses dimensions ainsi qu'à son intensité de chauffe.

II. Approche archéologique des foyers

L'approche première est bien sûr l'approche archéologique permettant la découverte des structures, leur description morphologique, l'étude de leur relation avec l'environnement.

II.1. **Le foyer : un témoin de la vie domestique**

Dès 1972, A. Leroi-Gourhan lance une dynamique de réflexion sur la place des foyers dans les habitats par ses recherches sur le site de Pincevent (Leroi-Gourhan, 1972). En 1973, le séminaire sur « les structures d'habitat, témoins de combustion » marque le début d'une nouvelle démarche dans l'étude des foyers comme partie intégrante de l'habitat (Leroi-Gourhan, 1973). En 1981, J. Laloy propose un bilan tant du point de vue des conditions physiques de combustion, que de la structure des foyers et du vocabulaire utilisé (Laloy, 1981). Ce dernier point est complété en 2003 par J. Gascó lors du colloque intitulé « Le feu domestique et ses structures au Néolithique et aux Âges des Métaux » (Gascó, 2003) dans lequel il pose le problème de la multiplication des dénominations des structures de combustion décrites soit par leurs composants physiques (ex : foyer rectangulaire à pierres chauffées) soit par leur fonction (ex : four enterré pour cuisson à l'étouffée). Il précise aussi que « *chaque modèle est conservé à un instant i de son fonctionnement ou de son abandon, que chaque foyer est une ruine plus ou moins bien conservée et que chaque foyer a été aussi réalisé comme un dispositif original unique. La réutilisation de ces feux complique toutes les situations [...] le temps séparant deux usages étant difficile ou impossible à mesurer.* » La question du temps d'utilisation des structures et de leur réutilisation est en effet une question à part entière qui n'a pour le moment pas trouvé de réponse satisfaisante (Taborin, 1989 ; Gascó, 2003 ; Bentsen, 2007 ; Wadley, 2012).

Cette question est très importante pour la grotte de Fraux, puisque la fréquentation de la cavité s'étale sur plus de deux siècles et demi, laissant de nombreux foyers dont il est difficile de déterminer la réutilisation d'une occupation à l'autre.

En 2004, J. Gascó et C. Muller-Pelletier présentent au Congrès Préhistorique de France un article de synthèse très complet sur l'étude des foyers de la Préhistoire qui reprend l'ensemble des recherches de 1860 à nos jours (Gascó et Muller-Pelletier, 2004). Il montre l'évolution de l'attention portée à ces structures qui va de pair avec des descriptions rigoureuses et le développement de nouvelles techniques d'analyses sur lesquelles nous reviendrons un peu plus loin. Les auteurs concluent par le paragraphe suivant qui résume bien l'intérêt de l'étude des foyers : « *l'étude du foyer couvre effectivement une dimension de plus en plus vaste dans l'espace et le temps. Du vestige-foyer, objet figé au moment de la découverte, l'investigation s'ouvre sur un espace domestique et sur une organisation de la vie quotidienne autour de l'énergie thermique, pour ensuite s'élargir à des modalités d'occupation, témoins des activités et des comportements collectifs d'un groupe et de son organisation.* »

II.2. **Typologie des foyers**

La typologie des foyers fait l'objet de plusieurs études présentées au cours du colloque « Nature et fonction des foyers préhistoriques » en 1987 (Olive et Taborin, 1989). F. Audouze présente ainsi une revue des structures de combustion existantes aux âges des métaux en Europe : foyers à plat délimités par un bourrelet d'argile ou de pierre, fosses à cuire, fours,

cheminées et dispositifs de tirage, foyers mobiles et braseros. L'auteure conclut sur l'importance du foyer d'un point de vue des usages utilitaires et des innovations techniques mais aussi sur son rôle social et symbolique (Audouze, 1989).

De leur côté, A. Beeching et J. Gascó donnent une synthèse sur les foyers de la Préhistoire récente du sud de la France. Ils proposent ainsi une classification typologique des foyers : foyers à plat simples (feux allumés sur le sol), foyers à plat limités (pierres disposées afin de limiter l'extension du foyer), foyers en creux (feux allumés dans une dépression du sol) eux-mêmes divisés en deux types, les foyers en cuvettes (peu profonds et souvent remplis de cendres, avec un éventuel dallage au fond) et les fosses-foyers (emplies de blocs rocheux). Une étude de la taille des foyers leur permet d'estimer à 80 cm le diamètre le plus fréquent d'un foyer en grotte alors qu'en plein air on atteint 120 cm voir 2 m (Beeching et Gascó, 1989).

Plus récemment, une synthèse des foyers domestiques en Egée au Néolithique et à l'âge du Bronze présente une classification morphologique des structures selon leur mode de construction (Prevost-Demarkar, 2002). On y retrouve les foyers à plat simples ou aménagés, les foyers creusés en cuvette ou en fosse (parois verticales et profondeur entre 45 et 80 cm) ainsi que des foyers surélevés (sur des pierres, des dalles, des céramiques). L'auteur y définit cinq utilisations principales : la cuisson des aliments (directe sous l'action des flammes ou indirecte par l'intermédiaire d'un récipient ou d'une pierre) ; l'éclairage et le chauffage ; une fonction sociale ; l'élimination des déchets par combustion ; la fabrication domestique (façonnage d'os, travail des peaux, transformation de matières colorantes).

Dans le même temps, J. Gascó propose un bilan sur l'usage des structures de combustion pour la préparation des végétaux de la Préhistoire récente et de la Protohistoire en France méditerranéenne (Gascó, 2002). L'auteur y décrit très précisément les différentes morphologies existantes et leurs possibles utilisations pour la cuisson de végétaux à des fins culinaires.

Les typologies les plus fréquemment rencontrées dans la bibliographie (citées dans cette partie) permettent de proposer un diagramme récapitulatif (Figure 2) :

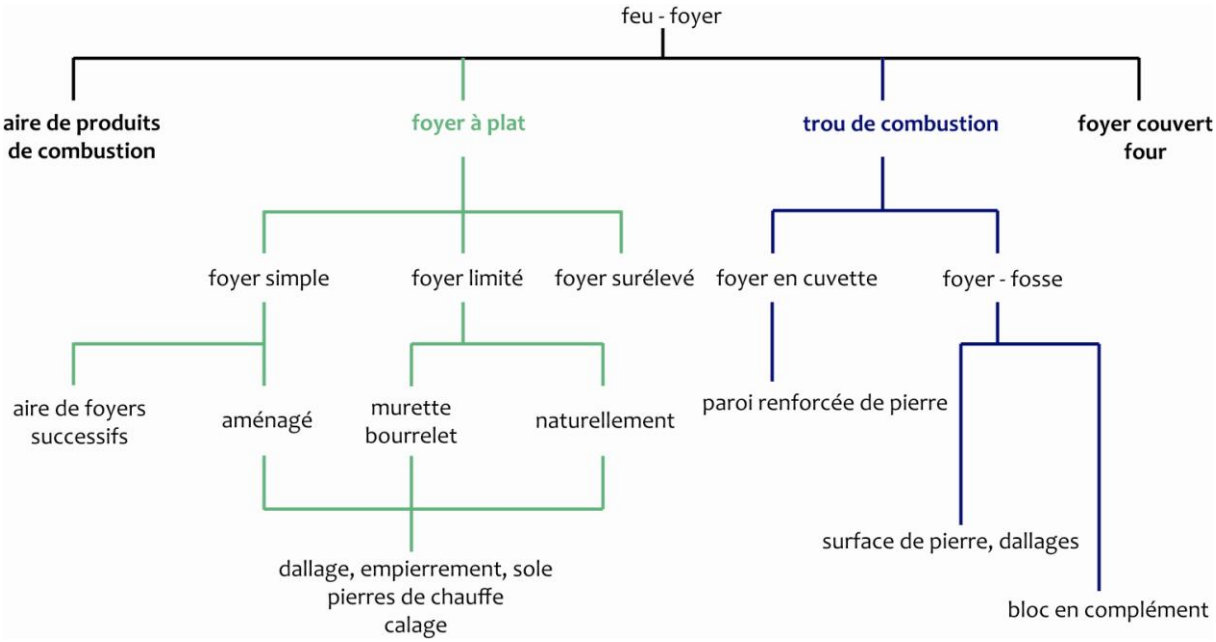


Figure 2 : Principales typologies des foyers.

II.3. **Reconstitution du mode de fonctionnement des foyers**

Dans deux études similaires, une approche de la dynamique de fonctionnement de foyers magdaléniens de deux grands sites du Bassin Parisien (Etiolles et Pincevent) permet aux auteurs (Coudret *et al*., 1989 ; Valentin, 1989) de construire une chronologie d'utilisation de certains foyers avec : l'allumage du feu dans une dépression du sol, l'installation d'une couverture de pierre, la combustion couverte, puis après la fin de la combustion, un curage de la structure avant l'allumage suivant. La description morphologique et l'analyse du fonctionnement des structures de combustion sont deux approches complémentaires, indispensables pour restituer un classement des foyers. Cependant, elles ne permettent pas de remonter à une fonction particulière. De même, M. Olive décrit les foyers d'Etiolles qui présentent des aménagements divers (tailles, cuvettes plus ou moins profondes contenant des quantités variables de pierres) et qui posent des questions sur le choix de tel ou tel type d'aménagement pour telle fonction (Olive, 1989). Son étude ne permet pas d'apporter de réponse claire sur la fonction mais indique qu'il n'y a pas de relation directe entre le type d'aménagement du foyer, l'étendue de l'habitat et l'occupation de l'espace.

Récemment, une étude des sols d'occupation de l'abri sous-roche de Tor Faraj (Jordanie) met en avant l'importance des foyers pour appréhender la fréquentation et l'organisation de l'abri (Henry, 2012). D. Henry exploite tout d'abord l'observation suivante faite par L. R. Binford (Binford, 1996) : le foyer est au centre d'un cercle de 1.8 m de rayon qui définit la zone occupée par les personnes gravitant autour du foyer. Dans ce cercle, il considère qu'il ne peut y avoir un autre foyer. Cette première étape permet de séparer deux occupations de l'abri (superpositions multiples de cercles des foyers). Par la suite, l'auteur analyse la répartition spatiale des artefacts autour des foyers suivant la méthode des anneaux et secteurs développée par D. Stappert (« ring and sector method » ; Stappert, 1989). L'analyse suivant les anneaux consiste à quantifier le nombre d'artefacts contenus dans des cercles de diamètres croissants en partant du centre du foyer (Figure 3, A et B). Au vu de la position des foyers dans l'abri, cette analyse permet d'estimer à quatre le nombre maximum de personnes gravitant autour d'un foyer. De plus, à partir de l'analyse par secteur (découpage en « camembert » de l'espace autour du foyer ; Figure 3, C), il parvient à évaluer la direction la plus probable du vent pendant l'utilisation des feux, en partant de l'hypothèse que les personnes se sont placées dos au vent évitant ainsi fumées et cendres.

Cette étude poussée montre un intérêt certain. Néanmoins, l'hypothèse de base pour la détermination du vent est peut être inopportune puisqu'en se plaçant dos au vent, les personnes entrainent probablement des turbulences et des retours de flammes. On pourrait plutôt supposer que les personnes ne se sont pas placées face au vent. Par ailleurs, cette étude est appliquée dans un abri où la circulation de l'air est importante. La question se pose alors de savoir si, dans une grotte, les mouvements de l'air permettent d'appliquer ce genre d'approche. Les modélisations numériques des écoulements d'air entreprises par Delphine Lacanette à la grotte des Fraux pourront peut-être apporter des éléments de réponse. Enfin, une telle approche nécessite des conditions de conservation des structures, des vestiges matériels et de leurs relations spatiales qui dépendent des processus de sédimentation et des occupations ultérieures, conditions réunies dans cet abri mais aussi à la grotte des Fraux.

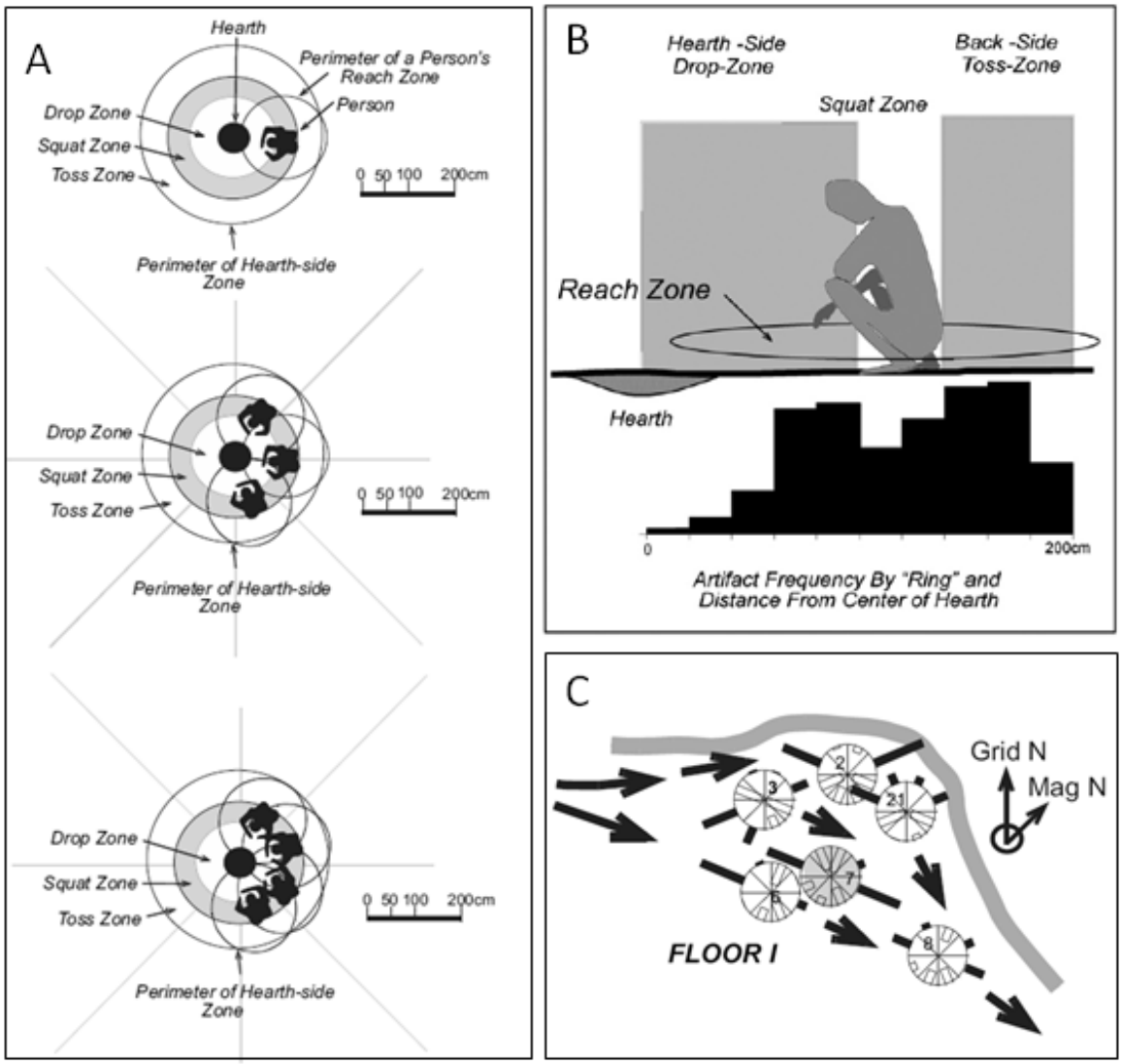


Figure 3 : A- Représentation schématique de la structure de la zone d'occupation autour du foyer, pour une, trois ou quatre personnes ; B- Illustration de la relation entre l'analyse en anneau et l'occupation de la zone autour du foyer ; C- Représentation de l'analyse en secteur montrant la direction des vents (© Henry, 2012).

II.4. **Bilan**

Les études sont nombreuses et appréhendent les structures de combustion comme un élément essentiel pour comprendre le mode de vie et d'occupation des sites. Par les questions qu'ils posent, les foyers ont engendré le développement de techniques spécialisées décrites dans la partie suivante dont l'apport est essentiel pour l'étude des foyers.

III. Approche archéométrique des foyers

L'étude des foyers a permis l'essor de plusieurs disciplines archéométriques qui font aujourd'hui partie intégrante de l'archéologie. Ces démarches s'appuient sur des modifications irréversibles des matériaux (à l'échelle du temps archéologique) sous l'action du feu. Elles peuvent être de nature chimique, structurelle ou électronique et témoignent de l'effet du feu sur les matériaux selon trois principaux paramètres : les températures atteintes, la durée et l'atmosphère de chauffe.

Au préalable, il convient de préciser que chaque résultat acquis par l'une ou l'autre des méthodes décrites ci-après est une donnée non suffisante mais indispensable pour l'élaboration de modèles permettant de trouver des éléments de réponse sur le mode d'occupation de l'espace et d'utilisation des foyers.

III.1. **Etude des combustibles : la paléobotanique**

III.1.1. Anthracologie

Depuis les années 1980, les analyses anthracologiques se sont imposées dans le processus d'étude archéologique. L'anthracologie a pour objectif d'identifier les combustibles retrouvés sous forme de charbons. L'interprétation de ces données peut se faire dans une optique de connaissance du paysage végétal d'une région à une époque donnée ou de restitution des relations homme - milieu (Thiébault, 1989).

Plus récemment, des études étayées d'expérimentations ont été menées sur le mode de collection du bois (mort ou sain, vert ou sec), la combustion simultanée ou non de bois et d'os, les processus de formation et de conservation des charbons (Conedera *et al.*, 2009 ; Théry-Parisot, 2002 ; Théry-Parisot et Texier, 2006 ; Théry-Parisot *et al.*, 2008 ; 2010 ; Théry-Parisot et Henry, 2012). Les résidus provenant d'expérimentations de combustion de divers combustibles (bois, tourbe, bouse de vache) à différents degrés de séchage (un an pour le bois et un mois pour les autres) ont été étudiés (Braadbaart *et al.*, 2012) afin de montrer qu'il est possible de remonter des résidus au combustible initial (cendres par leur composition élémentaire et leur structure sous lumière incidente, et charbons par leur structure en lumière réfléchie).

Ainsi, l'anthracologie est une technique sûre pour déterminer les combustibles employés.

III.1.2. Phytolithologie

Les phytolithes sont des éléments siliceux produits par les végétaux qui se déposent au sol après la décomposition ou l'incinération des végétaux (Thiébault, 2012). Présents dans les cendres, ils peuvent apporter des informations sur le type de végétation utilisée comme combustible (Albert, 2003) quand, par exemple, il n'y a pas de charbons de bois.

III.1.3. Carpologie

La carpologie s'intéresse aux restes de fruits et de graines qui, pour ceux retrouvés dans les foyers, renseignent potentiellement sur l'alimentation végétale voire les préparations culinaires. Une approche expérimentale (Sievers et Wadley, 2008) de la carbonisation de graines montre que celles jetées dans le feu disparaissent (cendres), celles enfouies à 5 cm dans le sédiment sont carbonisées, celles à 10 cm montrent quelques altérations et au-delà les graines n'ont pas été

affectées. Ces observations apportent à l'auteur des éléments de comparaison avec des foyers du site de Sibudu (Afrique du Sud) et lui permettent de privilégier l'hypothèse de carbonisations accidentelles des graines.

Cette étude expérimentale montre de manière claire la propagation de la chaleur dans le sédiment support du feu. Les graines sont assimilables à des thermocouples qui réagissent aux températures et à l'atmosphère de chauffe. Ainsi, il est normal que les graines jetées dans le feu disparaissent puisqu'elles sont consommées comme combustible. Celles enfouies subissent des altérations thermiques qui sont en relation avec les températures atteintes dans le sédiment. Plus la profondeur est importante, plus la température est faible donc plus l'altération thermique des graines est faible. Un autre facteur mis en évidence par cette expérimentation est l'atmosphère de chauffe réductrice puisque les graines situées à 5 cm de profondeur sont carbonisées : le défaut d'oxygène empêche leur combustion.

III.1.4. Bilan

Les analyses paléobotaniques sont des sources d'informations sur les combustibles et l'environnement végétal contemporain au feu. Les données recueillies sont indispensables pour pouvoir estimer le pouvoir calorifique des combustibles qui sont responsables de l'énergie dégagée par la combustion et ainsi de l'intensité de la chauffe enregistrée par les matériaux du substrat.

Dans le cas des Fraux, les analyses anthracologiques (Thiébault dans Carozza, 2011) ont permis de déterminer une ambiance végétale forestière tempérée fraîche, de type chênaie-hêtraie-frênaie. Néanmoins l'état de conservation et de séchage du bois détermine majoritairement le pouvoir calorifique du combustible, bien plus que l'espèce (Francescato, 2008). Ces informations pourraient être obtenues par un complément d'analyse anthracologique (Théry-Parisot et Texier 2006 ; Théry-Parisot et Henry, 2012).

III.2. **Etude des restes de matières organiques**

Quelques études ont été conduites sur la recherche de matières organiques résiduelles après la combustion afin de déterminer la fonction des foyers. Elles présentent par exemple des analyses des matières organiques, après extraction par différents solvants, par chromatographie en phase gazeuse et/ou liquide et spectrométrie de masse (March *et al.*, 1989 ; Cliquet *et al.*, 1989 ; March et Wünsch, 2003) qui permettent de préciser une fonction culinaire des foyers. Cette interprétation est fondée sur la présence de graisses animales dans les sédiments. Néanmoins, il n'est pas à exclure que de tels foyers aient servi seulement à brûler des déchets d'alimentation ou bien que le combustible utilisé ait été des os (qui amènent de la graisse animale). Il est donc nécessaire de modérer ce résultat.

Par ailleurs, M. Conedera s'intéresse à la présence de marqueurs chimiques (molécules organiques) des évènements de combustion (Conedera *et al.*, 2009). Ces traceurs sont produits et volatilisés ou piégés durant la combustion dans les charbons, cendres… Ils peuvent aussi dériver de la décomposition des produits de combustion ou d'un autre phénomène physico-chimique. Plusieurs limites s'opposent à une utilisation routinière de cette méthode : la difficulté à mesurer les faibles quantités de ces marqueurs mais aussi le manque de données sur leur stabilité et les mécanismes de dégradation dans des conditions d'enfouissement (Conedera *et al.*, 2009).

Les analyses des matières organiques offrent pour le moment des résultats difficilement interprétables pour la fonction des foyers. Ces analyses sont en cours de développement pour la détection de feux.

III.3. **Etude de la structure des foyers**

La micromorphologie permet d'étudier au microscope polarisant la structure d'échantillons de sols, après prélèvement, induration et préparation en lame mince (Thiébault, 2012). Cette technique a commencé à être réellement utilisée dans la communauté archéologique dans les années 1980 car elle permet de différencier les sols d'habitation, les couches d'occupation animale (écuries), les phases arides ou humides, les impacts de l'agriculture… (Macphail *et al*., 1990). Dans certains cas, les couches observées ont des épaisseurs infra-centimétriques et sont difficilement identifiables à l'œil nu. La micromorphologie peut alors préciser le contexte archéologique et le nombre de couches d'occupation (Goldberg et Berna, 2010).

Pour l'étude des structures de combustion, la micromorphologie permet de reconstituer l'histoire des foyers, de mettre en évidence, dans les cas favorables, des phases de fonctionnement, les lames minces laissant apparaître une succession de couches cendres - charbons (Wattez, 1988 ; Meignen *et al*., 2000 ; Sordoillet, 2009). De plus, la micromorphologie permet de spatialiser d'éventuelles micro-analyses (MEB, DRX, Raman, analyses réalisables sur des lames polies) afin de combiner ces résultats à la structure des objets étudiés (Courty *et al*., 2012).

Par ailleurs, une approche expérimentale de foyers allumés, balayés, piétinés… montre que les processus anthropiques post-combustion tels que le balayage et le piétinement sont identifiables par la micromorphologie (Miller *et al*., 2010). Cette étude, qui permet par l'observation de lames minces d'appréhender l'intégrité des structures, est reprise dans le cadre de l'étude de structures de combustion du site de Roc de Marsal, en Dordogne (Aldeias *et al*., 2012). Elle indique que les structures sont en place mais que les artefacts (lithiques, os) ont été probablement piétinés (os brisés et mélange d'artefacts brûlés et non brûlés). Par ailleurs, la comparaison de structures de combustion de deux sites néandertaliens voisins (Pech de l'Azé et Roc de Marsal, Dordogne) met en évidence, par leur positionnement dans l'abri et leur structure macro- et micromorphologique, des utilisations différentes. Le premier a probablement servi de manière ininterrompue (pas de couches de sédimentation entre les épisodes de combustion) alors que l'autre est plus probablement un lieu de passage avec des moments d'occupation et d'abandon du site (Goldberg *et al*., 2012).

La micromorphologie peut apporter des éléments essentiels sur le fonctionnement (nettoyage des structures) et la fréquence (réutilisation) des feux. Cette technique d'investigation est donc particulièrement utile. Cependant, il faut pour cela disposer d'une stratigraphie au sein de la structure de combustion, ce qui n'est pas toujours le cas aux Fraux. De plus, la micromorphologie requiert d'importants prélèvements, ce qui n'est pas compatible avec le « cahier des charges » de l'étude des foyers des Fraux.

III.4. **Etude de l'intensité de chauffe**

L'évaluation des températures atteintes lors des combustions passées est un élément qui intéresse plusieurs domaines, que ce soit pour la cuisson des céramiques, l'extraction par le feu dans les mines (Weisgerber et Willies, 2000 ; Ambert, 2002), la chauffe de pièces lithiques et d'os, l'étude des structures de combustion (sédiments substrats, pierres …).

Les paléotempératures sont un paramètre recherché car elles peuvent permettre de distinguer différentes activités pyrotechniques à partir de variation de l'intensité de la chauffe : par exemple, pour des foyers ouverts de l'âge du Bronze et de l'âge du Fer (Israël), des chauffes avec ou sans soufflet atteignent des températures maximales différentes, respectivement de 1300°C ou 800°C (Berna *et al.*, 2007). Il est aussi possible d'évaluer les conditions de cuisson de céramiques, de silex (important par exemple dans la datation par thermoluminescence) et d'os.

Les techniques déjà mises en œuvre, en vue de l'évaluation des températures atteintes par des matériaux chauffés, sont principalement limitées à des sites de plein air.

Par ailleurs, il nous faut bien insister sur le fait que c'est le couple température / durée de chauffe qui importe dans la modification des matériaux. Les paléotempératures obtenues sont des températures équivalentes pour une durée donnée.

III.4.1. Colorimétrie

La colorimétrie a pour but de quantifier la couleur des objets à l'aide de grandeurs physiques mesurables. La couleur mesurée dépend de la source de lumière. La source la plus communément utilisée est la lumière du jour, dénommée D65 (Steen et Dupont, 2012). Chaque couleur est parfaitement déterminée par un ensemble de trois paramètres, par exemple dans l'espace CEILAB 76 (Figure 4), les coordonnées cartésiennes sont :

- L* : luminance (entre 0 et 100)
- a* : position chromatique sur un axe vert-rouge (entre -100 et 100)
- b* : position chromatique sur un axe bleu-jaune (entre -100 et 100)

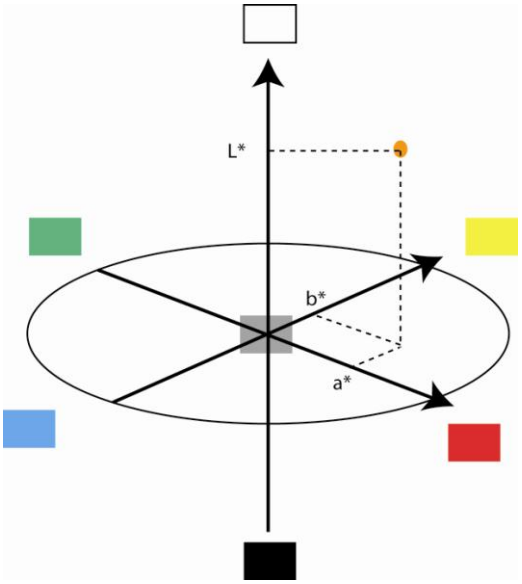


Figure 4 : Représentation des coordonnées colorimétriques dans l'espace CIELAB 76.

En 1998, P. Mirti montre qu'il est possible de retrouver la température de cuisson de céramiques par des mesures de colorimétrie sur des argiles chauffées en laboratoire entre 600°C et 1100°C, pendant des durées variant de 1 à 8 heures et en atmosphère oxydante (Mirti, 1998). Par ailleurs, une étude basée sur des feux expérimentaux sur différents substrats (Canti et Linford, 2000) montre que les changements de couleurs des sédiments ne sont pas systématiques. Les rubéfactions sont dues aux transformations des oxydes de fer et dépendent des températures atteintes, de l'atmosphère de chauffe et de la présence de matière organique.

Les études de colorimétrie sont réalisées sur des prélèvements chauffés en laboratoire ou lors de feux expérimentaux. Tout d'abord, ces chauffes, induisant les transformations des oxydes de fer et donc la rubéfaction, sont récentes et peu de temps s'écoule entre les chauffes et les mesures de colorimétrie. On mesure donc la couleur à un instant t proche de celui de la chauffe et son évolution semble être caractéristique des températures atteintes. Cependant, dans le cas de mesure sur des objets archéologiques, il faudrait pouvoir évaluer l'évolution de la couleur avec des phénomènes tels que le temps et les conditions d'enfouissement. Ensuite, les transformations des oxydes de fer sont très dépendantes des conditions oxydantes ou réductrices de l'atmosphère de chauffe favorisant respectivement la création d'hématite (rouge) et de magnétite (noire) et donc des colorations différentes.

Pour pouvoir utiliser la colorimétrie comme paléothermomètre il faut tout d'abord que le matériau concerné contiennent des oxydes de fer. De plus, il faut créer un référentiel thermique spécifique établi à partir d'un sédiment similaire à celui étudié et chauffé dans des conditions comparables à la chauffe archéologique. La colorimétrie peut toutefois apporter une indication sur la présence ou non d'une chauffe, bien que l'absence de rubéfaction n'implique pas systématiquement l'absence de chauffe (Canti et Linford, 2000).

Un autre aspect de la colorimétrie est la mesure de la réflectance. Cette mesure quantifie la présence de certains chromophores. C'est pour retrouver les températures du sol après un incendie que le potentiel de la réflectance comme thermomètre a été testé (Lugassi *et al*., 2010). Dans cette étude, une série de mesures de la réflectance de sédiment d'un foyer expérimental instrumenté de thermocouples a été effectuée, dans le visible, le proche infrarouge (NIR : near infrared) et l'infrarouge à ondes courtes (SWIR : short wave infrared), soit pour des longueurs d'onde allant de 0.39 à 3 µm. Le spectre montre : des modifications de couleurs dans le visible (dues principalement aux transformations des oxydes de fer) ; des décalages de certaines raies d'absorption dans le visible (transformations des oxydes de fer) et dans le SWIR (déshydroxylation de l'illite) ; des changements dans la forme du spectre (disparition progressive de l'illite) ; des changements de la brillance (suies). À partir des variations du spectre de réflectance avec la température, un modèle de prédiction de la température a été établi.

La réflectance permet ainsi de construire une distribution spatiale des variations de températures et donne aussi des informations intéressantes sur l'effet de la chauffe sur les sols. Cependant, l'étude ne prend pas en compte la durée de chauffe qui est un des paramètres majeurs dans les transformations en jeu. Par ailleurs, pour pouvoir appliquer ce genre d'approche, il est nécessaire de disposer d'un sol « propre » et bien conservé depuis l'épisode de feu.

Cette approche pourrait être envisagée sur les sédiments des foyers de la grotte des Fraux puisque cette dernière présente les conditions de conservation requises. Elle apporterait des informations complémentaires sur les températures atteintes et les transformations

minéralogiques de ces sédiments. De plus, le spectromètre utilisé dans l'étude (Lugassi *et al.*, 2010) possède une sonde de contact qui ne nécessite aucun prélèvement et qui répondrait à la condition de non-destructivité des structures.

III.4.2. Méthodes thermiques - thermodilatométrie

La thermodilatométrie est l'étude des variations de dimensions d'une éprouvette de matériau solide au cours d'un cycle de chauffe. Elle a été testée pour estimer les températures de cuisson de céramiques (Tite, 1969 ; Heimann, 1982). Cette méthode part du principe que les argiles se contractent sous l'effet de la chauffe du fait des réactions de déshydroxylation des argiles, des éventuelles décarbonatations et des réactions entre les espèces minérales qui conduisent à la céramisation des terres cuites. Ainsi, lorsqu'on chauffe une céramique de la température ambiante à une température inférieure à sa température de cuisson, elle montre des expansions thermiques réversibles caractéristiques de sa composition minérale. Par contre, lors du cycle de chauffe, si la température dépasse la température de cuisson, la céramique se contracte de manière irréversible. Il est ainsi possible d'approcher la température de cuisson des céramiques en recuisant les tessons archéologiques. Ceci suppose que, au cours de l'enfouissement, les processus de réhydratation et d'altération des minéraux apparus lors de la cuisson aient une contribution négligeable dans le bilan thermo-dilatométrique.

La thermodilatométrie a aussi été appliquée sur des silex chauffés (Chantret *et al.*, 1989). Des éprouvettes de silex de différentes origines ont été chauffées à 1000°C. Pendant la chauffe et le refroidissement naturel consécutif, l'expansion thermique est mesurée. Les courbes dilatométriques de chauffe montrent une très grande variation dans l'amplitude de la transformation de la structure cristalline du quartz autour de 573°C, dite alpha-beta ; et ceci même au sein d'un unique rognon indiquant l'hétérogénéité du silex. Par contre, les courbes de refroidissement sont superposables. Le chauffage implique dans la plupart des éprouvettes une large fissuration longitudinale, témoin de la fragilité thermique de ce matériau. L'application de la thermodilatométrie sur les silex, basée sur la création de référentiel à partir d'un silex de la même origine géologique, semble cependant quelque peu incertaine, du fait de l'hétérogénéité intrinsèque du matériau, ou d'usage très limité à des silex suffisamment homogènes.

La thermodilatométrie ne s'applique que sur des éprouvettes de matériaux solides. Cette méthode n'est donc pas utilisable pour des sédiments chauffés (cas des foyers des Fraux) puisque ces matériaux sont friables et ne présentent pas la cohésion nécessaire pour pouvoir être étudiés ainsi.

III.4.3. Méthodes structurales et chimiques

Au sein des foyers, une multitude de matériaux sont retrouvés et utilisés pour étudier l'histoire thermique des structures. Ainsi les pierres (de chauffe, de délimitation) et les restes d'os sont aussi bien étudiés que les sédiments et les sols chauffés. L'influence de la chauffe sur leur structure et leur composition chimique peut être quantifiée par plusieurs techniques décrites ci-après. De plus, nous présenterons quelques études sur l'histoire thermique de matériaux argileux cuits tels que les céramiques ou les briques puisque les matériaux sont comparables à certains sédiments chauffés.

- ***Pierres chauffées***

La microstructure de pierres (molasse) chauffées lors de feux expérimentaux a été observée au microscope électronique à balayage (MEB) pour suivre l'évolution de cette structure avec la chauffe à 400°C ou 700°C et le cumul de chauffes (Bazile *et al.*, 1989). L'objectif est de comparer ce référentiel de pierres chauffées expérimentalement à des pierres issues de foyers paléolithiques de Fontgrasse (Gard). Les chauffes impliquent une réorganisation progressive de la microstructure, des transformations et/ou formations de minéraux qui apparaissent comme une évolution du matériau en fonction des températures atteintes et du nombre de chauffes. Les auteurs précisent qu'une chauffe prolongée induira les mêmes effets que plusieurs chauffes successives. Cependant, dans le cas d'étude de pierres de chauffe, il leur semble peu probable que les chauffes aient excédé quelques heures. Ainsi, ils privilégient l'hypothèse d'une succession de chauffes courtes (quelques heures) à celle d'une chauffe prolongée. Ce référentiel permet aux auteurs d'attribuer un couple « température atteinte / nombre de chauffes » aux pierres chauffées des foyers paléolithiques (Fontgrasse, Gard).

Le manque de données sur les durées des chauffes expérimentales effectuées dans cette étude rend difficile les interprétations. On parvient certes à un équivalent température/nombre de chauffes mais la notion de durée reste vague (quelques heures) alors que l'effet cumulatif observé dépend de la durée des chauffes.

- ***Os***

Des restes d'os sont fréquemment retrouvés dans les foyers et peuvent ainsi servir de paléothermomètre. En 1964, G. Périnet étudie la cristallinité d'os chauffés en laboratoire par diffraction des rayons X (Périnet, 1964). Il détermine ainsi deux températures repères : 600°C où le phosphate se transforme en une hydroxyapatite mal cristallisée et 700°C où la cristallinité est bonne. Ainsi les os calcinés à températures supérieures à 600°C présentent des modifications détectables par diffraction des rayons X (DRX) contrairement aux os faiblement chauffés.

Plus récemment, une étude (Lebon, 2010) s'appuie sur un référentiel d'ossements modernes chauffés à différentes températures et pendant différentes durées afin de mieux comprendre les modifications des phases minérales au cours de la chauffe. Cette étude s'appuie sur des mesures de spectrométrie infrarouge, technique qui permet d'étudier la cristallinité, la structure et la composition de phases organiques et minérales. Les variations de la position de certaines bandes du spectre infrarouge permettent d'évaluer la cristallinité des ossements et d'obtenir des informations sur la structure de la phase minérale de l'os, proche de l'hydroxyapatite. Il ressort que la cristallinité ne permet d'identifier que les ossements chauffés au-delà de 500°C alors que l'étude de la structure (par la position des bandes) identifie des os chauffés dès 250°C.

Les altérations des os induites par la chauffe sont similaires à celles provoquées par l'enfouissement. Néanmoins, il semble que dans la dernière étude, les variations de positions des bandes infrarouges d'un groupement particulier permettent de distinguer des ossements chauffés (dès 250°C), d'ossements altérés par l'enfouissement. Cette approche constitue alors un paléothermomètre dont les gammes de températures sont intéressantes pour l'étude de foyers ouverts tels que ceux des Fraux. Cependant, au vu de la faible quantité des restes osseux trouvés dans les structures de combustion des Fraux, cette approche n'est pas envisageable.

- ***Matériaux argileux cuits***

Une étude menée sur des briques couplant diffraction des rayons X (DRX), cathodoluminescence et analyses thermiques montre la corrélation entre la température atteinte et la luminescence des phases néoformées pendant la cuisson (Bechtel *et al*., 1996). La DRX est ici utilisée pour identifier les phases néoformées sur des briques cuites à différentes températures. L'association des températures d'apparition de ces phases avec leur luminescence (observée en cathodoluminescence) permet ensuite, lors de l'observation d'une brique archéologique, d'estimer la température de cuisson à partir de la luminescence.

Par ailleurs, le fer contenu dans des matériaux argileux a été étudié comme paléothermomètre par spectrométrie Mössbauer. Cette technique détermine les états de valence d'un atome tel que le fer. Ce dernier possède des états de valence (Fe^{2+} et Fe^{3+}) qui évoluent avec les transformations minéralogiques intervenant avec la chauffe. Les spectres Mössbauer du fer contenu dans des argiles chauffées en laboratoire sous condition oxydante à 400°C, 600°C, 800°C et 1000°C, montrent une évolution des pics (disparition du doublet associé à Fe^{2+} dès 400°C et variation de celui associé à Fe^{3+}) avec la température de chauffe (Labenski de Kanter *et al*., 1994 ; Heimann, 1982).

Ces mesures restent limitées à une atmosphère oxydante. Il faudrait étudier l'évolution des spectres Mössbauer suite à des chauffes en atmosphère réductrice (plus proche de celle d'un feu) pour voir si le potentiel thermométrique est toujours observable.

- ***Sols et sédiments***

En 1989, R. March étudie la composition et la structure minéralogique des sédiments de foyer par diffraction des rayons X pour évaluer les températures atteintes (March *et al*., 1989). Ainsi, il développe un modèle numérique basé sur l'équation différentielle de la conduction de la chaleur afin d'estimer la durée minimum d'utilisation des foyers (March et Ferreri, 1989). Ce modèle s'appuie sur les altérations thermiques observées ainsi que sur les températures maximales atteintes déterminées par DRX. Il permet d'estimer une durée de fonctionnement d'un foyer d'une heure minimum à plusieurs jours (25).

Ce procédé est équivalent à celui appliqué aux Fraux pour estimer l'intensité de la chauffe en se basant sur des expérimentations de feu, la modélisation de la conduction de la chaleur et la comparaison avec les foyers archéologiques. Ces derniers sont fouillés pour connaitre l'épaisseur de sédiments affectés par la chauffe : plus de 20 cm dans l'étude de R. March, contre 2.5 cm maximum dans notre cas. La conduction de la chaleur étant très dépendante de la nature du matériau encaissant et de son état d'humidité (*cf Chapitre 11*), ces modèles restent spécifiques à un type de sédiment précis.

Dans une étude plus récente, F. Berna évalue les températures atteintes par des sédiments argileux. Pour cela, il compare les spectres infrarouges et les diffractogrammes RX de sédiments chauffés archéologiquement (briques ou sédiments de foyers) avec ceux de références thermiques constituées de sédiments provenant du même site chauffés en laboratoire ou par un feu expérimental (Berna *et al*., 2007). Cinq classes de températures sont différenciées : < 400°C, 500°C - 700°C, 800°C - 900°C, 1000°C - 1200°C et > 1300°C. La gamme de températures couverte par cette méthode permet ainsi de différencier des activités pyrotechniques : dans un feu ouvert, les températures maximales sont de 800-900°C alors que l'utilisation d'un soufflet implique des températures bien supérieures autour de 1100-1300°C.

Cependant le feu, par les températures atteintes et la durée de la chauffe, entraine des modifications irréversibles dans les sédiments qui affectent la quantité d'eau que le sol peut réabsorber (humidité). Or, l'influence du taux d'humidité sur les spectres infrarouges est importante et peut affecter l'estimation des températures atteintes si les échantillons archéologiques et de références n'ont pas le même état de séchage (Arcenegui *et al.*, 2010). En effet, V. Arcenegui montre que les spectres infrarouges varient lorsqu'ils sont enregistrés sur des éprouvettes de sédiments dont l'état d'humidité est variable (séchage à l'air, en étuve à 85°C). Ces variations n'empêchent pas l'estimation de température mais amènent une incertitude sur le résultat. Cependant, les gammes de température différentiables ne sont par pertinentes dans le cas de foyers ouverts où les températures maximales seront soit entre 500 °C et 700°C soit inférieures.

III.4.4. Méthodes électroniques

Nous abordons maintenant les méthodes qui se rapportent directement à notre sujet de recherche. Les études présentées dans la suite font appel à des phénomènes complexes liés à la structure atomique et électronique des matériaux.

- ***Thermoluminescence (TL)*** **:** l'irradiation naturelle environnementale a la capacité d'ioniser la matière. Les électrons et les trous ainsi excités sont piégés dans les défauts du réseau cristallin. Plus le temps passe et plus il y a d'électrons et de trous piégés. Lorsqu'une chauffe survient, l'énergie thermique provoque la libération de certains porteurs de charge (électron ou trou) qui se recombinent en paire électron-trou avec émission d'une luminescence : c'est la thermoluminescence. Plus l'apport d'énergie est important, plus il y a de pièges vidés. Suite à la chauffe, les pièges recommencent à se remplir jusqu'au moment de la mesure effectuée au laboratoire par une nouvelle chauffe. Les minéraux gardent ainsi la mémoire de la chauffe passée.

Plusieurs propriétés de la luminescence ont déjà été exploitées pour l'obtention de températures de chauffe sur différents objets. H. Valladas détermine ainsi la température de grès de foyers préhistoriques par l'étude de la température de saturation du signal TL c'est-à-dire la température à partir de laquelle le signal TL n'augmente plus avec la dose ajoutée. Elle étalonne tout d'abord la méthode par l'étude de grès chauffés en laboratoire : la température du point de saturation est d'un peu plus de 100°C au-delà de la température de chauffe de l'échantillon. Ensuite, elle parvient à déterminer des températures de chauffe de 300°C à 500°C pour des grès chauffés archéologiquement (Valladas, 1980). Suite à la construction d'un foyer expérimental, afin d'obtenir les températures réellement atteintes par les grès suivant le moment de leur introduction dans le foyer, H. Valladas observe également l'effacement progressif du signal géologique en fonction de la température et montre que l'évolution de ce signal dépend plus de la température maximale atteinte que de la durée de la chauffe mais que plusieurs chauffes simulent une chauffe à température plus élevée (Valladas, 1981). Même s'il apparaît ici que la température maximale est le facteur prépondérant aux modifications du signal TL géologique, thermodynamiquement parlant, on sait que pour caractériser un état de chauffe il convient de considérer l'intégralité du cycle thermique (vitesse de montée en température, température maximale, durée de la chauffe…) et pas uniquement la température maximale.

Une autre étude menée sur les sédiments d'un foyer expérimental contenant une matrice de 64 thermocouples indique qu'il existe une relation linéaire entre les variations d'intensité du signal géologique, la température atteinte et la durée de la chauffe (Spencer et Sanderson, 1994).

Cette étude n'a été réalisée que pour des températures inférieures à 350°C puisqu'au-delà le signal géologique résiduel est trop faible.

La variation de la sensibilité du pic à 110°C de TL permet aussi une détermination de la température de chauffe des grains de quartz provenant de matériaux argileux de construction de fours (Becker *et al.*, 1994), d'ocres (Godfrey-Smith et Ilani, 2004), de silex (Godfrey-Smith *et al.*, 2005 ; Göksu *et al.*, 1989 ; 1991), de grès (Lahaye *et al.*, 2006), de céramiques (Koul *et al.*, 1996). Cependant, ce protocole semble ne pas fonctionner sur tous les types de quartz (Watson et Aitken, 1985 ; Koul, 2006).

Par ailleurs, quelques études de la dépendance du signal TL au traitement thermique ont montré que, lorsque des grains de quartz (céramiques, galets) sont chauffés puis ré-irradiés, la forme des courbes TL (intensité et position de pics) évolue avec la température (De Lima *et al.*, 2002 ; Roque *et al.*, 2004a ; 2004b ; Duttine *et al.*, 2005). Ces études montrent que la détermination d'une température équivalente (ou plutôt d'un cycle thermique équivalent) de chauffe est a priori possible et ce en considérant la totalité des pics et l'allure globale des courbes de TL. C'est à partir de ces études que nous avons entrepris notre travail. La durée des traitements thermiques ayant une grande importance (Lahaye *et al.*, 2006), il est plus approprié de parler d'histoire thermique équivalente. Ainsi, lors de la création de références en laboratoire, il faut établir un cycle thermique équivalent (vitesse de chauffe, température maximale et durée du palier) qui produit sur les grains de quartz les mêmes effets que les traitements thermiques archéologiques.

- ***Luminescence optiquement stimulée (OSL)* :** le principe de l'OSL est similaire à celui de la TL sauf que c'est la lumière qui vide les pièges et non la chaleur. Selon G. Polymeris, la sensibilité du signal OSL et du signal TL de quartz provenant de céramiques montre une certaine stabilité en dessous de la température de cuisson et une augmentation au-delà (Polymeris *et al.*, 2007). Cependant, une autre étude montre que la variation de la sensibilité du signal OSL n'est pas un paramètre fiable pour l'estimation des températures puisque les principales variations observées correspondent aux températures de changement de phases du quartz (Koul et Chougaonkar, 2011). Cette hypothèse reste cependant à vérifier.

- ***Résonnance paramagnétique électronique (RPE)* :** l'électron non apparié se comporte comme un barreau aimanté qui, placé dans un champ magnétique, s'aligne sur l'axe du champ. Deux populations existent, une de basse énergie alignée sur le champ et une de plus haute énergie opposée au champ. Deux niveaux énergétiques en résultent, niveaux entre lesquels des transitions peuvent être induites. Le but de la RPE est précisément d'étudier ces transitions afin d'obtenir des renseignements concernant la structure électronique et géométrique des systèmes étudiés, leur comportement dynamique et les mécanismes de réaction.

Des études ont révélé que les spectres RPE du centre E' du quartz (électron piégé dans une lacune d'oxygène) varient avec le traitement thermique de l'échantillon. L'intensité du centre E' augmente lorsque l'échantillon est chauffé à une température inférieure à 300°C, décroit entre 300°C et 450°C et les centres E' disparaissent totalement au-delà de 450°C (Dunnell *et al.*, 1994 ; Toyoda *et al.*, 1993). En 1984, G. V. Robins étudie l'évolution du signal RPE avec la température sur des silex (Robins, 1984). En 2005, M. Duttine montre que dans les silex, en plus du centre E', d'autres centres peuvent être utilisés dans le cadre de l'étude des températures (Duttine *et al.*,

2005) : les radicaux organiques (méthyle, périnaphthényle, carbone), et d'autres centres associés à des défauts de réseau (lacune d'oxygène, centre aluminium).

Les méthodes électroniques et plus particulièrement la TL et la RPE sont des méthodes appropriées pour étudier l'histoire thermique de matériaux chauffés (Inizan et Tixier, 2000). De plus, les études existantes mettent en avant l'importance de considérer une température équivalente qui correspond à un cycle thermique de référence.

III.4.5. Méthodes magnétiques

L'augmentation de température produite par le feu induit des transformations minéralogiques parmi les oxydes de fer (création de nouvelles phases magnétiques et évolution de la taille des grains magnétiques) et permet l'acquisition d'une aimantation thermorémanente (ATR). Ces modifications dépendent des conditions de combustion, température et atmosphère, de la minéralogie magnétique préexistante et plus généralement de la nature de l'encaissant. Ces modifications présentent des différences notables entre le cœur et la périphérie du foyer et se situent principalement dans les premiers centimètres de sédiment (Carrancho et Villalaín, 2011 ; Morinaga *et al.*, 1999), puisque ce sont là les sédiments affectés par l'onde thermique.

Dès la seconde moitié du XX^{e} siècle, le feu et ses effets sur les sédiments sont l'objet de recherches. Ainsi, E. Le Borgne observe que le feu implique une augmentation de la susceptibilité magnétique dans les sols par une création de minéraux ferrimagnétiques fins (ou ultrafins) qui dominent le signal (Le Borgne, 1955 ; 1960). Plus récemment, A. Herries s'intéresse à la répartition des structures de combustion et au mode d'occupation de la grotte Pinacle Point Cave 13B en Afrique du Sud (Herries et Fisher, 2010). Les auteurs montrent, par une étude approfondie de l'évolution avec la chauffe de l'ensemble des propriétés magnétiques des sédiments locaux, que la susceptibilité magnétique est un bon estimateur pour repérer les structures de combustion. Ils observent de plus une corrélation entre (1) la densité d'occupation, estimée par la quantité de matériel archéologique retrouvé et la fréquence des feux (observations stratigraphiques en lame mince), et (2) les variations de susceptibilité magnétique mesurée en surface. L'approche expérimentale utilisée pour définir l'évolution magnétique des matériaux avec la chauffe montre que le cumul des chauffes implique une augmentation de susceptibilité magnétique. Les auteurs en déduisent que de fortes valeurs de susceptibilité magnétique correspondraient à des durées d'occupation plus longues.

Dans cette étude, la susceptibilité magnétique est utilisée comme outil de cartographie pour localiser les structures de combustion et estimer la longévité de l'utilisation des foyers. L'application cartographique montre le potentiel de la susceptibilité magnétique pour repérer les structures. Cette approche a d'ailleurs été utilisée aux Fraux car elle présente l'intérêt majeur de mesures rapides, non destructives et non invasives. Le second résultat est peut être à modérer puisque selon notre expérience (feux expérimentaux, *partie IV*) il est possible d'observer une diminution de susceptibilité magnétique après plusieurs chauffes.

Certaines études sont aussi fondées sur des comparaisons entre des objets archéologiques et des références créées en laboratoire ou lors de feux expérimentaux. Elles sont menées pour prouver l'existence ou non de chauffes passées.

En 1989, une première étude du cycle d'hystérésis de l'aimantation de silex crus puis chauffés à différentes températures (de 100°C à 600°C) en laboratoire montre que seuls les silex chauffés au-delà de 600°C sont distinguables des autres (Chantret *et al*., 1989). Plus tard, G.J. Borradaile s'intéresse à une technologie lithique précise (Paleoindian Lakehead Complex, Thurnder Bay, Northern Ontario) pour savoir si la chauffe de silex était utilisée (Borradaile *et al*., 1993). Pour cela, des silex ont été chauffés pendant 2h30 à des températures allant de 425°C à 500°C dans un four électrique. Certaines propriétés magnétiques ont été étudiées avant et après chauffe : la susceptibilité magnétique, l'aimantation rémanente maximale pouvant être induite en laboratoire (aimantation rémanente isotherme à saturation, ARIs), l'aimantation naturelle inhérente au matériau (aimantation rémanente naturelle, ARN) et le cycle d'hystérésis. Elles montrent des différences notables qui permettent de différencier les silex chauffés.

Par ailleurs, une série de feux expérimentaux a été menée sur différents substrats (sable sec, sédiment argileux très humide et un sédiment intermédiaire de terre sableuse) pendant 2h chaque jour durant 4 jours pour étudier l'influence du sédiment et de la durée de chauffe sur les propriétés magnétiques (Linford et Canti, 2001). Il apparaît que la nature du sédiment importe puisqu'elle implique des différences de conductivité thermique et d'évolution des propriétés magnétiques (pas les mêmes précurseurs magnétiques). De plus, même si un feu court (2h) suffit pour altérer le sédiment, plus le temps d'exposition à la chaleur sera long, plus il y aura de changement dans les propriétés magnétiques. D'autres expérimentations de feux ont été réalisées sur des sédiments de sites paléolithiques japonais (cendres volcaniques, terre cendreuse et silt) pendant 6h pour tester le potentiel de la susceptibilité magnétique et de l'aimantation rémanente pour détecter la présence d'un foyer (Morinaga *et al*., 1999). Il en ressort que les cendres sont un très bon isolant et les températures atteintes, même en surface, ne dépassent pas les 100°C, alors que pour la terre cendreuse elles atteignent 350°C et 650°C pour le silt. Les auteurs montrent que la susceptibilité magnétique et l'aimantation rémanente sont de bons estimateurs de la présence d'un feu pour le silt et la terre cendreuse (cette dernière ne présentant pas de changement de couleur de la surface), mais que pour les cendres, les faibles températures atteintes et l'absence de précurseur magnétique (type goethite) ne permettent pas l'identification des feux.

Une autre étude réalisée sur les structures de combustion de la grotte du Mirador (Sierra de Atapuerca, Espagne) à partir d'échantillons prélevés en stratigraphie permet d'identifier des épisodes de feux successifs dans des conditions environnementales similaires (Carrancho *et al*., 2009).

En 1993, R. Bellomo présente une synthèse de l'étude de sédiments chauffés par des feux expérimentaux pour tenter de différencier un feu accidentel d'un feu résultant d'une activité humaine (Bellomo, 1993). Cette étude s'appuie sur une observation macroscopique des structures, des mesures d'intensité du champ magnétique *in situ* et une étude magnétique d'échantillons en laboratoire (minéralogie magnétique et taille des grains par la susceptibilité magnétique, l'aimantation rémanente isotherme et la coercivité). La première observation est qu'un feu d'origine anthropique engendre des températures dans le sédiment bien plus élevées (400-600°C) qu'un feu accidentel (type feu d'herbe, 225°C maximum, ou de forêt, 250°C maximum ; Bellomo, 1993 ; Trabaud, 1979). Ainsi, les feux résultant d'une activité humaine créent une anomalie magnétique plus forte et entraînent des différences de propriétés magnétiques les plus importantes. Pour compléter cette étude, deux foyers archéologiques attestés ont été

prélevés et leurs propriétés magnétiques correspondent bien à celles d'un feu résultant d'une activité humaine.

Une autre étude montre que les températures de chauffe de sédiments de foyers archéologiques peuvent être estimées à partir de la comparaison des cycles d'hystérésis de l'aimantation d'échantillons de référence chauffés (24h, de 100°C à 500°C) en laboratoire avec ceux d'échantillons archéologiques (Linford et Platznam, 2004). Cette comparaison passe par la création d'un modèle mathématique qui décrit le cycle d'hystérésis d'un échantillon archéologique comme le mélange des cycles d'hystérésis des références dont la température de chauffe est connue. La température associée est calculée en fonction de la proportion de chaque référence (si le cycle archéologique est décomposé en 50 % de la référence chauffée à 100°C et 50 % de la référence à 200°C, la température de l'échantillon archéologique est de 150°C).

Enfin, très récemment, K. L. Rasmussen a cherché à déterminer les températures de cuisson de céramiques à partir de mesures de la susceptibilité magnétique à la suite de recuits à différentes températures (Rasmussen *et al.*, 2012). La méthode consiste à chauffer le tesson à 400°C pendant 24h puis à mesurer sa susceptibilité magnétique (après refroidissement) et ainsi de suite tous les 20°C jusqu'à 1000°C en réduisant au fur et à mesure le temps de chauffe (30 min pour les températures supérieures à 900°C). La première phase de cette étude est un travail sur des sédiments argileux chauffés à l'air suivant des cycles thermiques connus. Ces « tessons » de référence servent à tester la méthode. L'évolution de la susceptibilité magnétique montre une discontinuité marquée quand la température de cuisson est dépassée. Ensuite, l'application sur une cinquantaine de tessons archéologiques est effectuée pour estimer leur température de cuisson.

Pour pouvoir appliquer une telle méthodologie, il faut bien évidemment que la céramique contienne des oxydes de fer. Leur présence et leurs transformations (minéralogiques et granulométriques) avec la chauffe sont responsables des modifications de la susceptibilité magnétique. Dans cette étude, les cuissons des tessons de référence ainsi que les recuits sont effectués à l'air et en cumulant les chauffes ce qui peut avoir une influence sur les phases créées ainsi que sur la taille des grains magnétiques. Le passage aux tessons archéologiques présente une incertitude qui correspond à l'atmosphère de cuisson du tesson archéologique. Cette première chauffe peut avoir entrainé la création des phases différentes. Ces dernières vont alors se transformer à des températures différentes de celles observées sur le référentiel créé à l'air.

Un des apports principaux des propriétés magnétiques est la délimitation de structures de combustion mais aussi le repérage d'anomalies magnétiques pouvant correspondre à des structures de combustion non visibles à l'œil nu. De plus, la minéralogie magnétique et la taille des grains magnétiques, quantifiables par l'étude des propriétés magnétiques, varient fortement avec l'histoire thermique des matériaux.

Le sédiment des Fraux montrent de fortes variations de la susceptibilité magnétique entre les zones chauffées et non chauffées permettant l'utilisation de cette approche pour délimiter les structures. Ces variations résultent de changements dans la minéralogie magnétique dépendants des températures atteintes et de l'atmosphère de chauffe. L'analyse de ces changements pourrait renseigner sur les conditions de chauffe, température et atmosphère.

IV. Bilan

Les structures de combustion sont étudiées d'une part à partir de leur morphologie et d'autre part à partir de l'analyse de l'ensemble des témoins de la combustion qui nous sont parvenus à savoir les sédiments chauffés, les pierres de chauffe, les os, les charbons de bois…

Dans le tableau ci-dessous (Tableau 1) sont reportées les informations que peut apporter chaque discipline. Il apparaît alors clairement que ces informations sont complémentaires et nécessitent un travail interdisciplinaire pour être obtenues, croisées et être interprétées comme un élément intégré dans l'occupation de l'espace.

	typologie	**dimension**	**localisation**	**mode de fonctionnement**	**combustible**	**histoire thermique**
Fouilles et observations archéologiques	x	x	x	x		
Paléobotanique					x	
Analyse des matières organiques				?		
Micromorphologie				x		
Paléothermométrie						x

Tableau 1 : Informations apportées par chaque discipline ayant trait aux structures de combustion.

La paléothermométrie a été appréhendée sous divers aspects. La majorité des études des témoins de combustion (pierres, os, sédiments) est fondée sur une comparaison entre des matériaux chauffés en laboratoire ou dans des feux expérimentaux, et dont les évolutions structurales, minérales, électroniques et magnétiques sont ensuite comparées à celles des matériaux archéologiques.

La construction de référentiel présente l'avantage de pouvoir appréhender les modifications en jeu et les températures auxquelles elles interviennent. Par contre, cela suppose de disposer de matériaux dont l'origine est comparable à celles des matériaux archéologiques. En effet, même si les modifications sont universelles (déshydroxylation des argiles, création de phases de hautes températures, transformations des oxydes de fer…) elles ne sont observées que si certaines phases minérales sont présentes dans les matériaux considérés.

Ensuite, les conditions de chauffe (température, durée et atmosphère) sont les paramètres déterminant pour que les transformations aient lieu. Ainsi les risques, pour ces comparaisons entre références et objets archéologiques, sont les différences de conditions de chauffe.

D'une part, pour ce qui est des températures atteintes, il est trop rarement précisé que les températures obtenues sont souvent des températures équivalentes qui dépendent des cycles thermiques utilisés pour construire les références. Ces dernières ont été établies suivant une vitesse de montée en température, une durée à la température maximale et une vitesse de refroidissement qui ne sont que trop peu précisées alors que ce sont les paramètres qui permettent de définir l'équivalence de la température obtenue par comparaison entre les références et les objets archéologiques.

D'autre part, l'atmosphère de chauffe est particulièrement déterminante dans toutes les approches concernant les oxydes de fer. Les comparaisons entre un sédiment chauffé en laboratoire à l'air et des sédiments chauffés archéologiquement par un feu (engendrant des

conditions plutôt réductrices) ne sont pas cohérentes. Nous en avons d'ailleurs fait la mauvaise expérience (cf. *chapitre* 9). Par contre l'utilisation de référentiels créés lors de feux expérimentaux semble plus judicieuse puisque l'atmosphère de chauffe est comparable à celle d'un feu archéologique.

Parmi l'ensemble de ces études, peu d'entre-elles se sont intéressées à des contextes souterrains (Carrancho *et al*., 2009 ; Carrancho *et al*., 2012 ; Goldberg *et al*., 2012 ; Herries et Fisher, 2010 ; Ontañón, 2003) alors que le confinement du milieu a probablement une influence sur la combustion, et que l'emplacement des feux et leur fonctionnement résultent certainement d'un choix réfléchi dépendant du mode de vie au sein d'une grotte. L'étude des structures de combustion comme partie intégrante de l'occupation de ces milieux souterrains est donc d'un intérêt majeur.

C'est uniquement par une étude interdisciplinaire réunissant des observations macroscopiques et microscopiques de typologie, de composition, d'emplacement des structures de combustion et la caractérisation des états de chauffe que la compréhension des occupations souterraines pourra être améliorée.

Objectif, problématique et méthodologie générale de la thèse

La grotte des Fraux, par la présence de vestiges associés à des activités domestiques et symboliques, interroge sur son statut et son mode d'occupation. La multitude de foyers repérés dans le réseau a suscité une étude spécifique de ces structures. Cependant, la fonction de ces foyers étant difficilement déterminable, l'étude des structures de combustion s'est orientée vers une classification des foyers selon leur typologie, leur dimension et leur intensité de chauffe. Cette classification permettra d'observer la répartition des différents « types » de structures au sein de l'espace occupé pour pouvoir ensuite appréhender leurs relations avec les vestiges mobiliers et les manifestations pariétales.

La conservation exceptionnelle de la grotte des Fraux permet d'accéder aux structures de combustion, inaltérées depuis l'Âge du bronze ; nous nous devions donc de respecter au maximum leur intégrité.

L'objectif spécifique de cette thèse est d'étudier les impacts thermiques du feu sur les sédiments substrats afin de déterminer l'intensité de chauffe des structures de combustion. Aussi tentons-nous de répondre à la problématique suivante :

Quelle méthodologie mettre en œuvre pour quantifier l'intensité de chauffe de sédiments, substrats des foyers, dans le contexte de la grotte des Fraux ?

Afin d'estimer l'intensité de chauffe des foyers, il est d'abord nécessaire de déterminer les paléotempératures atteintes par les sédiments chauffés.

Dans un premier temps, des paléothermomètres sont construits au moyen de deux approches :

1. la thermoluminescence (TL) fondée sur les modifications électroniques des grains de quartz ;
2. le magnétisme basé sur les modifications minéralogiques des oxydes de fer contenus dans les sédiments.

Ces deux approches sont indépendantes et la corrélation des résultats obtenus permet d'étudier leur potentiel comme paléothermomètre.

1. La thermoluminescence du quartz nécessite quelques prélèvements et exige la création de références thermiques spécifiques à la grotte des Fraux, avec des cycles thermiques bien définis. La comparaison entre les signaux TL des références thermiques et ceux des sédiments chauffés provenant de trois foyers archéologiques permet de déterminer des paléotempératures. Ces paléotempératures sont alors des températures équivalentes dépendantes du cycle thermique utilisé pour construire le référentiel.

2. Le magnétisme des oxydes de fer contenus dans les sédiments est étudié à partir de certaines de ses propriétés :

- La susceptibilité magnétique mesurée *in situ* est non invasive et non destructive. Elle est employée pour tenter d'obtenir une carte en température équivalente des foyers par une fonction de transfert à partir (1) des données de températures déterminées par TL et (2) des cartes de susceptibilité magnétique mesurées *in situ*. Cette approche est complétée par des cartographies du champ magnétique qui renseignent sur le positionnement primaire ou le déplacement des sédiments chauffés.
- Deux autres propriétés magnétiques sont exploitées pour tenter d'élaborer un second paléothermomètre : les températures de déblocage de l'aimantation rémanente et la signature magnétique des oxydes de fer. La première est habituellement utilisée pour la datation par archéomagnétisme qui s'appuie sur la comparaison du champ magnétique enregistré dans les matériaux chauffés par rapport à des courbes de référence de variation séculaire du champ magnétique. La seconde est utilisée par exemple dans l'environnement pour des études de changements climatiques, la détection de polluants… Les données issues de l'analyse d'un foyer de la grotte des Fraux et de sédiments chauffés en laboratoire ou par un feu expérimental sont comparées dans l'espoir d'établir un deuxième paléothermomètre.

Dans un second temps, grâce à une série de feux expérimentaux nous appréhendons les vitesses de propagation de la chaleur dans les sédiments, les températures atteintes à différentes profondeurs, les quantités de combustible nécessaire pour une durée de combustion fixée... Les données recueillies lors de ces feux expérimentaux permettent entre autre la construction d'un modèle numérique de la propagation de la chaleur dans le sédiment.

Dans un troisième temps, l'intégration dans le modèle numérique des paléotempératures des foyers archéologiques conduit à une estimation de l'intensité de chauffe. Cette intensité correspond à l'énergie dégagée par la combustion qui se propage dans les sédiments. Suivant l'éloignement de la source de chaleur, les sédiments sont affectés par une certaine température pendant un temps donné. La mise en synergie de ces paramètres, température et durée de chauffe, définit ce qu'on appelle l'intensité de chauffe.

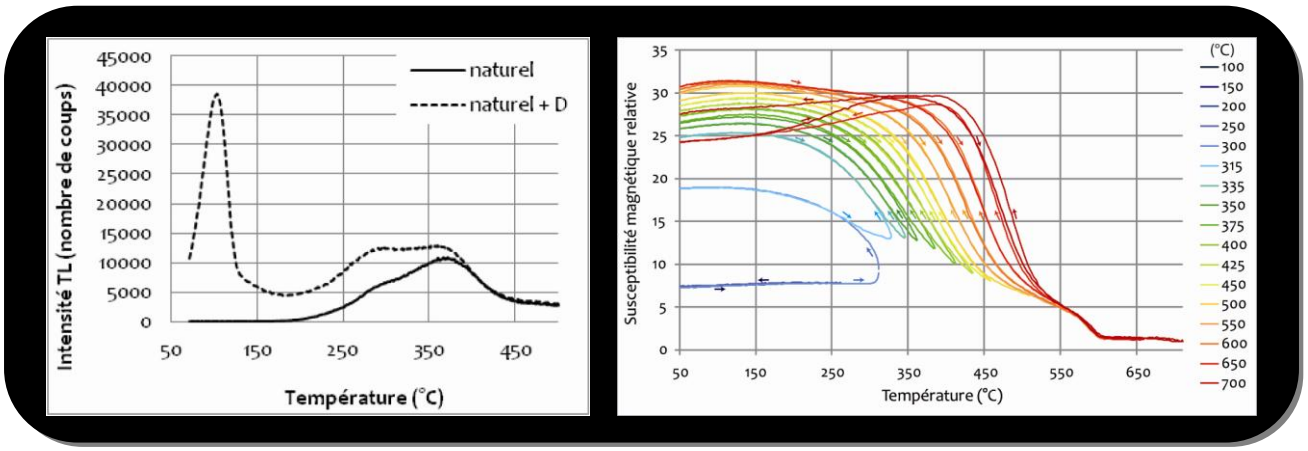
* *
*

Avant de présenter le potentiel de la thermoluminescence et du magnétisme pour l'élaboration de paléothermomètres, la partie suivante s'attache à poser les fondements théoriques nécessaires pour l'étude des phénomènes observés.

Partie II

Thermoluminescence et magnétisme : quel potentiel pour la paléothermométrie ?

Introduction



Comme nous l'avons déjà évoqué dans la partie précédente, la thermoluminescence et les propriétés magnétiques montrent un potentiel certain pour la caractérisation des états de chauffe et particulièrement ceux des sédiments chauffés par le feu. En effet, l'une comme l'autre présentent des modifications significatives avec la chauffe.

Cette double approche a été envisagée puisque les variations de ces deux propriétés sont fondées sur des mécanismes différents (modification électronique pour la TL ou minéralogique pour le magnétisme) et sur des minéraux différents constituant le sédiment (le quartz pour la TL et les oxydes de fer pour le magnétisme). Ainsi ces approches sont indépendantes et pourraient permettre de comparer les résultats de paléothermométrie obtenus.

L'objectif de cette partie est, pour chacune des propriétés étudiées, de définir les notions théoriques nécessaires à la compréhension des phénomènes observés lors des analyses entreprises sur les sédiments chauffés des foyers des Fraux. Nous détaillerons aussi quels sont les apports potentiels de chacune de ces propriétés pour la paléothermométrie. Enfin, les appareillages utilisés seront décrits.

Chapitre 2 : La thermoluminescence

La TL est une propriété couramment utilisée, dans la communauté archéométrique, à des fins de datation. Ici nous nous intéressons à cette propriété en vue d'une caractérisation d'un état de chauffe.

I. Rappels théoriques

La TL est un phénomène basé sur les effets cumulatifs des irradiations par des particules et des rayonnements ionisants sur des cristaux. En effet, depuis sa formation géologique, le matériau est soumis à des radiations ionisantes provenant de la désintégration des noyaux radioactifs naturels présents dans le cristal lui-même et dans son environnement ainsi qu'aux rayons cosmiques. Sous l'effet de ces irradiations, le solide est ionisé et des électrons sont éjectés des atomes. La plupart retournent à l'état fondamental mais certains se retrouvent capturés durablement par des centres pièges. Ces derniers correspondent à des défauts à l'échelle atomique du matériau irradié tels que, entre autres, une lacune d'oxygène, ou la présence d'une impureté, par exemple un ion d'Al^{3+} en substitution d'un ion Si^{4+} pour le quartz (Visocekas, 1979 ; Jani *et al.*, 1983 ; Katz et Halperin, 1988 ; Mc Keever et Chen, 1997).

Pour extraire les électrons de ces centres pièges, il est nécessaire d'apporter de l'énergie au solide sous forme de chaleur. La plupart du temps, l'âge géologique des minéraux est tel que l'irradiation naturelle a induit une saturation complète des charges piégées dans les défauts ponctuels (Figure 5). ***Seul un chauffage beaucoup plus récent, comme dans le cas des foyers de la grotte des Fraux, peut libérer partiellement ou en totalité ces charges piégées, selon la température atteinte et la durée de la chauffe.*** En effet, en fonction de la nature des défauts en jeu dans les processus de thermoluminescence, des énergies d'activation thermique plus ou moins importantes sont requises pour extraire les électrons piégés (Randall et Wilkins, 1945 ; Mc Keever et Chen, 1997 ; Figure 6). Ainsi au cours d'une chauffe, des électrons capturés par les pièges peuvent être libérés sous l'effet de l'agitation thermique du réseau cristallin et passent dans la bande de conduction (Braunlich et Scharmann, 1964). Ils peuvent alors se recombiner avec des trous piégés au niveau de centres dits de recombinaison, avec une émission de photons lumineux : c'est la thermoluminescence.

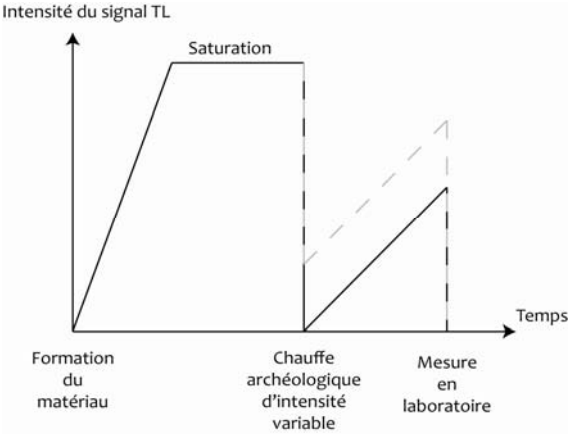


Figure 5 : Intensité du signal TL en fonction du temps et des évènements enregistrés par le matériau.

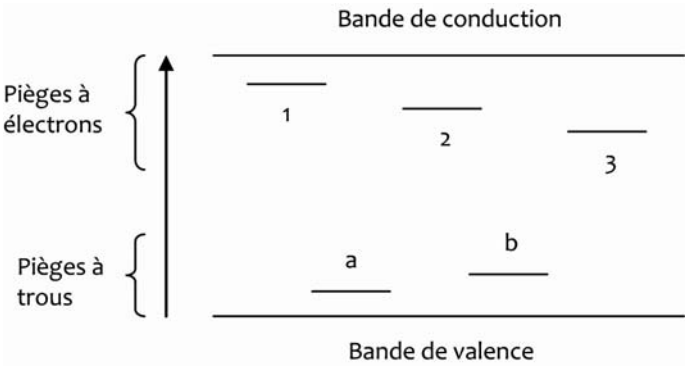


Figure 6 : Représentation énergétique des pièges des grains de quartz (Mc Keever et Chen, 1997) :
1 : ensemble des pièges peu profonds qui se remplissent et se vident constamment grâce à l'agitation thermique à température ambiante qui est suffisante.
2 : ensemble des pièges utilisés en TL dits stables dont la durée de rétention des charges est très supérieure à l'âge de la dernière chauffe.
3 : ensemble des pièges profonds non-vidés lors d'un chauffage à 500°C (température maximale atteinte lors de l'expérimentation).
a et b : centres de recombinaison radiatifs ou non-radiatifs.

A l'issue du chauffage par les anciens, le quartz des sédiments (ceci est transposable à tout autre minéral) se trouve donc dans un état électronique tel que des charges en nombre variable restent piégées dans des défauts spécifiques selon la température et la durée de la chauffe. Le processus de libération des charges obéit à une cinétique de type Arrhenius (Randall et Wilkins, 1945) et, pour un centre piège donné p, la probabilité P_p de sortie pour une charge piégée suit le formalisme suivant :

$$P_p(T, E_p) = s_p . exp\left[\frac{-E_p}{kT}\right]$$

où T est la température absolue en Kelvin, E_p l'énergie d'activation thermique spécifique du centre considéré, s_p une constante dénommée facteur de fréquence, et k la constante de Boltzmann.

Pour une population N_0 de charges initialement piégées, à l'issue d'un chauffage à la température effective T_{eff}, durant une durée t, on considère que le reliquat de charge vaut :

$$N(t, T_{eff}) = N_0 . exp\left[-P_p(T_{eff}) . t\right]$$

en supposant une cinétique monomoléculaire pour le fonctionnement du centre selon l'un des modèles les plus simples (Randall et Wilkins, 1945) qui offre un cadre de réflexion suffisant. La notion de température effective, vient du fait qu'il est impossible pratiquement de passer instantanément de la température ambiante à une température supérieure T, où le dépeuplement est mesurable, et inversement pour le refroidissement (pour geler l'état de charge). Aussi nous convenons de considérer l'effet global comme lié au maintien du système à une température effective T_{eff} de durée t.

II. Potentiel paléothermométrique de la TL

On conçoit que, quantitativement, l'effet d'une chauffe va être variable selon la nature du centre, la température atteinte et la durée du chauffage. L'équation est, bien entendu, très complexe car de nombreux centres-pièges avec des énergies d'activation distinctes existent dans le quartz. Aussi, la thermoluminescence est-elle une technique particulièrement appropriée car la chauffe en laboratoire au moment de la mesure va atteindre les centres-pièges par ordre d'énergies d'activation croissantes et libérer les charges correspondantes.

Pour des cristaux de quartz de même composition mais pour des états de chauffe archéologique différents, on observera donc une variation de la forme des courbes de TL.

Cependant ces variations, si elles sont uniquement observées sur des échantillons archéologiques, ne fournissent pas d'information sur la température. C'est pourquoi la création d'un référentiel thermique dont on connait l'histoire thermique est nécessaire, référentiel sur lequel on observe les modifications électroniques engendrées. C'est ensuite par comparaison entre les signaux TL des références et ceux des échantillons archéologiques que la détermination de température s'effectue.

Deux conséquences de ce procédé sont importantes :

- les températures obtenues sont des ***températures équivalentes ou paléotempératures*** qui dépendent du cycle thermique de référence choisi : l'objectif n'est pas de reproduire ou de retrouver l'ensemble des conditions physico-chimiques exactes des foyers archéologiques mais de caractériser leur état de chauffe en déterminant ce que nous appelons des températures équivalentes, fonction du cycle thermique de référence.

- pour avoir un référentiel thermique adéquat, il faut le réaliser à partir de ***grains de quartz de même origine géologique***, c'est-à-dire dont les défauts cristallins (donc les émissions de luminescence) sont comparables à ceux des échantillons archéologiques. Ainsi, pour chaque nouveau site, l'étude des paléotempératures par TL nécessitera la création d'un nouveau référentiel thermique à partir de grains de quartz locaux.

Par ailleurs, chaque structure de combustion sera étudiée comme équivalente à un foyer à usage unique, attendu qu'il n'est pas possible de quantifier l'effet cumulatif de chauffes successives engendrées par de possibles utilisations récurrentes du foyer. Sur ce point, deux précisions sont à apporter : (1) il n'est pas possible aux Fraux d'estimer la réutilisation des foyers par la micromorphologie du fait de la faible sédimentation caractéristique de la grotte. Les mesures de TL sont donc effectuées sur des sédiments qui ont subi une ou plusieurs chauffes sans que l'on puisse en déterminer l'existence et le nombre ; (2) H. Valladas indique que plusieurs chauffes peuvent simuler une chauffe à température plus élevée (Valladas, 1981). Néanmoins, H. Valladas précise que pour simuler une chauffe à 250°C par exemple, il faudrait une centaine d'heures à 200°C. En conséquence, pour chaque foyer les paléotempératures sont estimées comme si le foyer n'avait servi qu'une seule fois.

III. Appareillages

Comme expliqué dans le paragraphe précédent, la paléothermométrie TL est fondée sur la comparaison des signaux TL entre des références thermiques et les échantillons archéologiques. Les références thermiques ont été créées par chauffage dans un four électrique. Les signaux TL ont, quant à eux, été mesurés dans un appareillage « home made » de l'IRAMAT-CRP2A. Après avoir présenté ces appareillages, les principaux types de signaux TL mesurables seront détaillés.

III.1. **Four de recuit**

Un four à chambre (Eurotherm 2416CG, CARBOLITE, Figure 7), pour lequel il est possible de sélectionner la vitesse de chauffe, la température maximale atteinte, la durée du palier à température maximale et la vitesse de refroidissement, a été utilisé pour créer les références thermiques. Les protocoles thermiques utilisés seront détaillés dans le chapitre consacré à la paléothermométrie TL (*Chapitre 7*).

III.2. **Mesure de TL**

Un appareillage du laboratoire de Bordeaux (IRAMAT-CRP2A) a été utilisé pour les mesures de la TL (Figure 8). Il s'agit d'un bâti sur lequel sont fixés les différents éléments nécessaires à la réalisation d'une expérience. Ainsi, des nacelles (24 au maximum) sont placées sur un plateau tournant qui permet de les positionner tour à tour sous la source β de strontium 90 (pour l'irradiation) puis sur l'élément chauffant du four (pour la mesure du signal TL). Le four est lui-même surmonté par un jeu de filtres optiques (deux filtres Schott BG12 et un filtre réflecteur d'infrarouge ; fenêtre optique de 350 à 475 nm). La détection de la luminescence est assurée par un tube photomultiplicateur (EMI 9813 QA). Le tout est relié à un système d'amplification et d'enregistrement du signal. L'expérience se réalise sous atmosphère d'azote pour éviter l'oxydation des parties métalliques du four et la superposition de signaux de luminescence liés à la réaction chimique résultante.

Figure 7 : four à chambre (Eurotherm 2416CG, CARBOLITE).

Figure 8 : appareillage de mesure de TL © C. Lahaye.

III.3. **Signal TL**

Une lecture de TL consiste à chauffer des minéraux (aliquote) de la température ambiante à 500°C, à vitesse constante (de l'ordre de quelques degrés par seconde, ici 4°C/s) en enregistrant simultanément la luminescence. Une telle mesure vide l'ensemble des pièges en commençant par ceux de faible énergie d'activation c'est-à-dire ceux qui sont vidés par une température faible.

La courbe obtenue (Figure 9) est constituée de pics dont la position dépend de l'énergie d'activation thermique ainsi que de la durée de vie des porteurs de charges capturés. L'intensité du signal dépend de l'état de remplissage des pièges. Un signal TL est donc un nombre de coups par unité de temps de comptage, c'est-à-dire de photons reçus par le photomultiplicateur, en fonction de la température de chauffe. Pour un nombre de photons N émis, l'incertitude sur le comptage est de √N (loi de Poisson).

L'appareillage permet de récupérer un fichier de données constitué de couples « température (en °C) - intensité TL (en nombre de coups par unité de temps de comptage) ». Les points de mesure sont acquis tous les 0.25 s (4 points de mesure par seconde) c'est-à-dire environ tous les degrés.

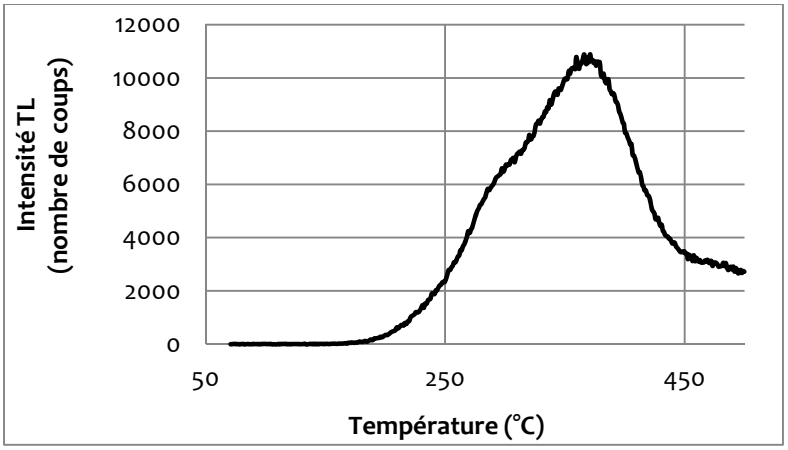


Figure 9 : Exemple d'un signal TL (vitesse de chauffe 4°C/s).

Plusieurs types de signaux TL peuvent d'ores et déjà être définis :

- le ***signal géologique*** correspond au nombre d'électrons piégés depuis la formation du matériau considéré (grains de quartz par exemple) sous l'influence de la radioactivité naturelle ;
- le ***signal de TL dit « naturel »*** correspond au nombre d'électrons piégés depuis la dernière chauffe, toujours sous l'influence de la radioactivité naturelle. Cette chauffe a vidé totalement ou partiellement les pièges et donc a effacé tout ou partie du signal géologique.
- le ***signal de TL dit « artificiel »*** correspond au nombre d'électrons piégés sous l'influence d'une irradiation artificielle en laboratoire par une source radioactive.

Les signaux TL utilisés ainsi que le détail de la méthodologie de détermination de paléotempérature seront présentés au début du *chapitre 7*.

* *
*

Passons maintenant à la seconde propriété étudiée dans ce doctorat : le magnétisme.

Chapitre 3 : Le magnétisme

Certains oxydes de fer (phases ferromagnétiques au sens large à température ambiante) possèdent des propriétés magnétiques qui sont couramment employées dans les études de paléomagnétisme, d'archéomagnétisme mais aussi des études des matériaux. Ainsi, la capacité de mémoriser un champ magnétique passé et la signature minéralogique de ces phases magnétiques sont deux propriétés habituellement exploitées mais pas dans un objectif thermométrique.

Dans ce chapitre, après avoir rappelé les notions relatives au magnétisme, nous présenterons les potentiels éventuels de deux paléothermomètres appréhendables au travers des propriétés magnétiques : l'évolution de la signature minéralogique (minéralogie magnétique et taille de grains magnétique) et les températures de déblocage de l'aimantation rémanente. Nous terminerons en décrivant les méthodes mises en œuvre et les appareillages utilisés.

I. Rappels théoriques

I.1. **Grandeurs magnétiques**

Les grandeurs magnétiques fondamentales sont :

- le champ magnétique appliqué H (en A/m)
- l'induction magnétique B (en Tesla, T)
- le moment magnétique m (en A.m²)
- l'aimantation M (en A/m) : moment magnétique par unité de volume.

La relation liant ces grandeurs est :

$$B = \mu_0 \times (H + M) \; avec \; \mu_0 = 4\pi 10^{-7} \; Henry/m$$

De plus, lorsque qu'on place un objet dans un champ magnétique (H) de faible intensité, il acquiert une aimantation induite M proportionnelle au champ appliqué. L'aimantation et le champ appliqué sont en effet directement reliés par la susceptibilité magnétique caractéristique du matériau concerné :

$$\kappa = M/H$$

où κ est la susceptibilité magnétique volumique, sans dimension dans le système international (SI). On définit aussi la susceptibilité magnétique spécifique χ (exprimée en m^3/kg). La susceptibilité magnétique traduit la capacité d'un matériau à porter une aimantation lorsqu'il est soumis à un champ magnétique faible. Sa mesure (réalisée en champ faible) est non destructive.

I.2. **Les comportements magnétiques des matériaux**

On peut considérer, en première approximation, que les propriétés magnétiques des matériaux dépendent du mouvement des électrons sur eux-mêmes (moment cinétique de spin) et autour des atomes (moment cinétique orbital). Les moments cinétiques induisent un champ magnétique élémentaire aussi appelé moment magnétique élémentaire.

Il existe trois types de comportements magnétiques définis par leur réaction lorsqu'ils sont soumis à un champ faible. Ils sont fonction de l'intensité et du comportement de la susceptibilité magnétique. On retrouve ainsi : le diamagnétisme, le paramagnétisme et le ferromagnétisme au sens large (regroupant le ferromagnétisme, le ferrimagnétisme et le ferromagnétisme faible).

I.2.1. Le diamagnétisme

Ce comportement magnétique est le plus couramment rencontré. L'application d'un champ magnétique entraine une déviation des trajectoires électroniques et pour minimiser les variations d'énergie résultantes, l'aimantation induite par le mouvement orbital des électrons s'oppose aux variations du champ magnétique extérieur (Figure 10). Ainsi, la susceptibilité magnétique est négative et de l'ordre de $\kappa \approx - 10^{-6}$ SI (Hunt *et al.*, 1995). Elle dépend principalement de la nature des éléments considérés puisque la susceptibilité magnétique traduit la déformation du nuage électronique. Parmi les minéraux diamagnétiques, on trouve le quartz, la calcite et les feldspaths.

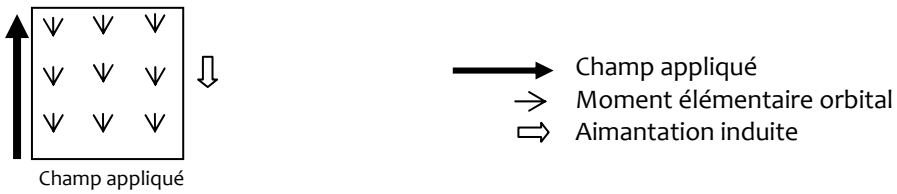


Figure 10 : Illustration du comportement diamagnétique. En champ magnétique nul, les moments élémentaires ne sont pas individualisés et toute aimantation disparaît.

I.2.2. Le paramagnétisme

Ce comportement magnétique concerne les éléments dont la configuration électronique au sein du minéral montre un ou plusieurs électrons célibataires (c'est-à-dire non appariés avec un électron de spin opposé) sur des couches électroniques profondes. Lorsqu'on applique un champ magnétique (Figure 11), les moments de ces électrons ont tendance à s'aligner sur le champ appliqué. La susceptibilité paramagnétique est donc positive et de l'ordre de $\kappa \approx 10^{-4}$ à 10^{-3} SI (Hunt *et al.*, 1995). Les contributions paramagnétiques sont principalement dues à la présence du fer et du manganèse, on les retrouve entre autres dans la lépidocrocite et dans les argiles (au sens minéralogique du terme).

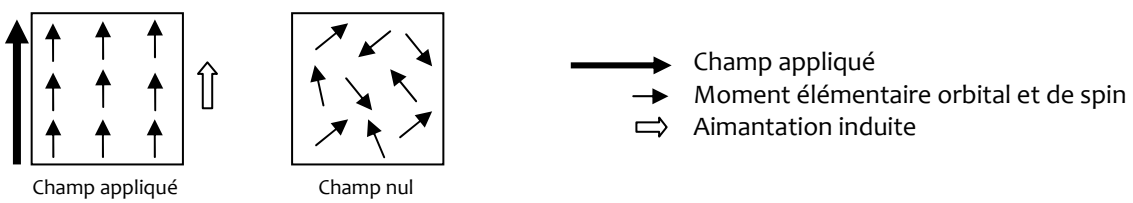


Figure 11 : Illustration du comportement paramagnétique. Les moments élémentaires s'alignent sur le champ magnétique appliqué. Après coupure du champ, aucune aimantation rémanente ne subsiste.

I.2.3. Le ferromagnétisme au sens large et l'antiferromagnétisme

Dans les minéraux à fortes concentrations en atomes paramagnétiques, les moments ne sont plus indépendants. La proximité des couches électroniques permet des interactions (couplages de spin) qui tendent à aligner les moments voisins parallèlement (ferromagnétisme) ou antiparallèlement (antiferromagnétisme).

Cependant, ce comportement n'existe qu'en dessous d'une température seuil (ou température d'ordre) : la température de Curie T_C pour les ferromagnétiques et la température de Néel T_N pour les antiferromagnétiques. Au dessous de la température d'ordre (Figure 12), les matériaux ferromagnétiques au sens large possèdent une aimantation spontanée contrairement aux matériaux antiferromagnétiques (du fait de l'orientation parfaitement antiparallèle des moments magnétiques). Il existe cependant des matériaux antiferromagnétiques imparfaits (antiferromagnétiques canté) qui possèdent une faible aimantation spontanée. Le ferromagnétisme au sens large regroupe alors le ferromagnétisme au sens strict, le ferrimagnétisme et l'antiferromagnétisme canté (Figure 12).

L'ordre complet n'est atteint qu'à 0 K. Entre cette température et la température seuil (T_C ou T_N), l'ordre diminue progressivement. Autour de la température d'ordre, l'énergie d'agitation thermique est du même ordre que l'énergie d'interaction entre les moments : la susceptibilité magnétique diverge et marque la transition entre l'état ordonné et le paramagnétisme. Au-delà de la température d'ordre, l'agitation thermique domine et les moments magnétiques fluctuent engendrant un comportement paramagnétique des matériaux.

On notera ici que la présence de défauts ponctuels (insertion, substitution) a parfois pour effet de diluer les ions paramagnétiques. La nature et l'intensité des interactions sont alors modifiées et peuvent provoquer une diminution de la valeur de la température d'ordre.

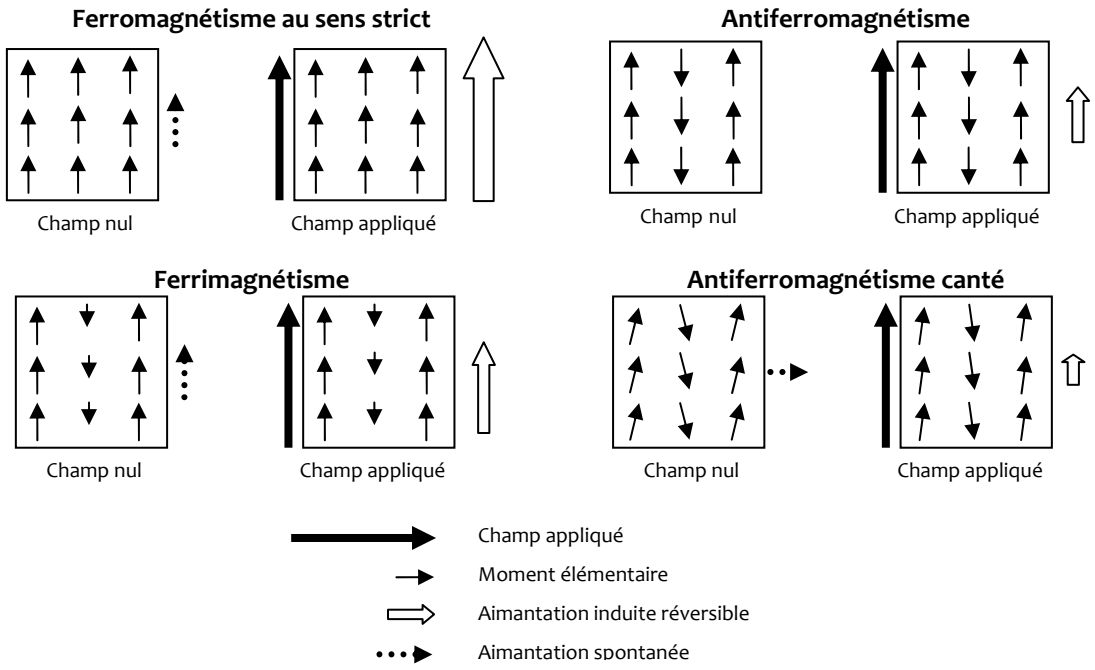


Figure 12 : Illustration du comportement ferromagnétique au sens strict, ferrimagnétique, antiferromagnétique et antiferromagnétique canté.

Parmi les minéraux ferrimagnétiques, on trouve au sein du groupe des spinelles des minéraux qui ont une aimantation spontanée très forte. Ils peuvent être détectés dans une roche par leur caractéristique magnétique, même à l'état de trace, là où d'autres techniques échouent. Ce groupe comprend les oxydes de fer et de titane tels que la magnétite (Fe_3O_4), la maghémite

(γ-Fe_2O_3) et leurs dérivés substitués en titane (titanomagnétites et titanomaghémites) dont la susceptibilité magnétique forte est de l'ordre de $\kappa \approx 1$ SI (Hunt *et al.*, 1995).

L'hématite (α-Fe_2O_3, $\kappa \approx 10^{-2}$ SI ; Hunt *et al.*, 1995) et la goethite (α-FeOOH, $\kappa \approx 10^{-3}$ SI ; Hunt *et al.*, 1995) sont tous deux des minéraux dont le comportement est l'antiferromagnétisme canté.

I.3. Notion d'aimantation

Seule une faible proportion des minéraux ferromagnétiques au sens large sont responsables des propriétés magnétiques des sols et des sédiments. Ces minéraux se présentent sous la forme de grains dont la nature, la taille et la forme influent sur les propriétés magnétiques.

Pour les grains de taille élevée, le volume du grain se scinde en plusieurs domaines où les moments magnétiques sont de sens opposé afin de minimiser l'énergie magnétostatique du grain. Ces grains sont alors appelés polydomaines par opposition aux grains monodomaines qui ne présentent qu'un seul domaine.

I.3.1. Axe de facile aimantation

Dans les grains ferromagnétiques au sens large, les moments magnétiques élémentaires (spins) sont parallèles ou antiparallèles. En l'absence de champ appliqué, ces moments sont spontanément orientés suivant un ou plusieurs axes dits ***axes de facile aimantation*** qui correspondent à des directions cristallographiques privilégiées ([111] pour la magnétite par exemple ; Dankers, 1978). Ceci peut induire des anisotropies dans les propriétés magnétiques (susceptibilité magnétique, aimantation) puisque, par exemple, un champ magnétique appliqué selon un axe de facile aimantation entraînera une saturation plus facile de l'aimantation que si le champ est appliqué selon un axe différent.

I.3.2. Aimantation d'un ensemble de grains monodomaines

Un ensemble de grains, constituant un sédiment par exemple, soumis à un champ magnétique va acquérir une aimantation non nulle (M_0). Si on place ce sédiment en champ nul, l'aimantation (M) va décroître au cours du temps (t) car les grains s'orientent alors aléatoirement. Pour un ensemble de grains monodomaines, cette décroissance suit la relation :

$$M = M_0 \exp(-t/\tau)$$

où τ est une constante appelée ***temps de relaxation*** qui dépend du volume du grain (v), de son champ coercitif (Hc : champ magnétique à appliquer pour annuler l'aimantation) et de la température (T) :

$$\tau = \frac{1}{C} \exp\left(\frac{v \,.\, Hc \,.\, Ms}{2\, k\, T}\right)$$

où C est la constante de Curie ($\approx 10^{-10}$ s^{-1}), k est la constante de Boltzmann et Ms l'aimantation à saturation. Ainsi, le temps de relaxation d'un grain diminue lorsque le volume du grain ou son champ coercitif diminue. De plus, lorsque la température augmente, le temps de relaxation diminue.

L'aimantation acquise ou perdue par un matériau constitué d'un ensemble de grains magnétiques dépend ainsi du temps, du volume du grain, de son champ coercitif et de la température mais aussi de la direction des axes de facile aimantation par rapport au champ magnétique ambiant.

I.4. Les domaines magnétiques

Les grains magnétiques se divisent (ou non) en plusieurs domaines de façon à minimiser l'énergie magnétostatique, qui dépend du volume du grain. Au sein d'un domaine, appelé domaine de Weiss, les moments magnétiques ont la même orientation. Un grain peut ainsi être monodomaine (un domaine de Weiss) ou polydomaine. Dans ce dernier cas, chaque domaine est limité par des parois, dites parois de Bloch au sein de laquelle l'orientation des spins tourne progressivement (Figure 13).

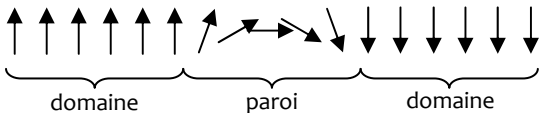


Figure 13 : Rotation progressive des spins entre deux domaines au sein de la paroi de Bloch.

Les différents types de grains magnétiques existant et leurs principales propriétés sont présentés ci-dessous classés par taille de grains décroissante (Morris, 2003) :

- ***Polydomaines (MD : multi-domain)*** : ils sont constitués de plusieurs domaines et ont des caractéristiques qui varient avec la taille du grain. Chaque domaine porte une aimantation forte mais l'aimantation totale du grain est faible en l'absence de champ du fait de la compensation presque totale des aimantations des différents domaines (aimantation rémanente faible). Ainsi, de manière générale, les grains polydomaines ont un champ coercitif (champ magnétique à appliquer pour annuler l'aimantation) faible, une aimantation rémanente faible et une susceptibilité magnétique moyenne (Peters et Dekkers, 2003 ; Thompson et Oldfield, 1986 ; Figure 14).

- ***Pseudomonodomaines (PSD : pseudo-single-domain)*** : ces grains sont de taille intermédiaire entre poly- et monodomaines. Ils ont de 2 à 10 domaines d'aimantation opposée. Ils présentent des caractéristiques similaires aux monodomaines (Thompson et Oldfield, 1986 ; Figure 14).

- ***Monodomaines (SD : single-domain)*** : dans ce cas, le grain possède une aimantation uniforme. L'aimantation est alors plus forte et plus stable que celle des polydomaines. En appliquant un champ magnétique supérieur au champ coercitif Hc, une inversion de l'aimantation est possible. Pour des valeurs de champ magnétique inférieures à Hc, la susceptibilité magnétique est nulle. Les caractéristiques d'un monodomaine sont un champ coercitif élevé, une forte aimantation rémanente et une faible susceptibilité magnétique (Peters et Dekkers, 2003 ; Thompson et Oldfield, 1986 ; Figure 14).

- ***Superparamagnétisme (SP)*** : ces grains sont des monodomaines de très petites tailles. Leurs moments magnétiques possèdent un temps de relaxation τ, soit le temps nécessaire au moment magnétique pour s'aligner sur le champ magnétique appliqué, très faible. Le temps de relaxation suit une loi exponentielle [$\tau = (1/C) \exp (v.Hc.Ms / 2kT)$] de sorte que la transition ferromagnétique - superparamagnétique, qui correspond au déblocage de l'aimantation, peut s'observer pour des grains de faible volume (inférieur au volume de blocage v_b) ou pour une température suffisamment forte (supérieure à la température de blocage T_b). Dans le cas des grains superparamagnétiques, le temps de relaxation très court induit alors une susceptibilité magnétique forte mais un champ coercitif et une aimantation rémanente nuls (Thompson et Oldfield, 1986 ; Figure 14).

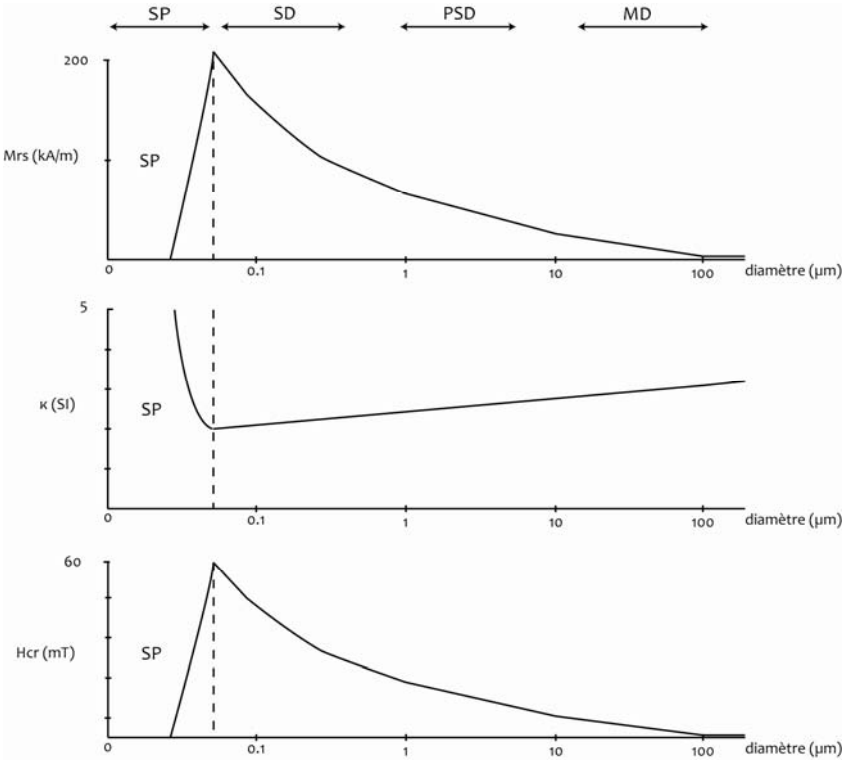


Figure 14 : Variation de l'aimantation rémanente à saturation (Mrs), de la susceptibilité magnétique (κ) et du champ coercitif rémanent (Hcr) en fonction du diamètre des grains ferromagnétiques (d'après Thompson et Oldfield, 1986). SP : Superparamagnétique ; SD : *single-domain* ; PSD : *pseudo single domain* ; MD : *multi-domain*.

La distinction entre les différentes tailles de grains n'est pas toujours aisée, néanmoins, elle reste un paramètre déterminant dans l'étude des sédiments chauffés pour lesquels la création de grains SP a souvent été notée (Herries *et al*., 2007 ; Jordanova *et al*., 2001 ; Oldfield et Crowther, 2007). L'une des méthodes la plus couramment utilisée pour l'appréhender est l'étude de l'évolution de l'aimantation d'un matériau en fonction du champ magnétique appliqué soit le cycle d'hystérésis.

I.5. Cycle d'hystérésis : observation de l'aimantation en fonction du champ appliqué

Lorsqu'on applique un champ magnétique (H) sur un échantillon naturel, l'aimantation totale (M) mesurée correspond à la somme de l'aimantation induite et de l'aimantation rémanente. Le cycle d'hystérésis est une courbe qui suit l'évolution de l'aimantation en fonction de la valeur du champ appliqué (Figure 15). Lorsque la valeur du champ augmente, l'échantillon acquiert une aimantation de plus en plus importante jusqu'à ce qu'il y ait saturation de l'aimantation (Ms). Lorsqu'on supprime le champ appliqué, une aimantation dite rémanente persiste (Mrs). Pour annuler cette aimantation, il faut appliquer un champ de même intensité et de même direction mais de sens opposé. Pour H = - Hc (Hc, champ coercitif) l'aimantation induite compense l'aimantation rémanente et l'aimantation apparente est nulle. Pour annuler l'aimantation rémanente, il faut appliquer le champ coercitif rémanent (Hcr) mais l'aimantation apparente sera alors non nulle et égale à l'aimantation induite. Si à partir de Hcr on supprime le champ appliqué, l'aimantation revient à zéro.

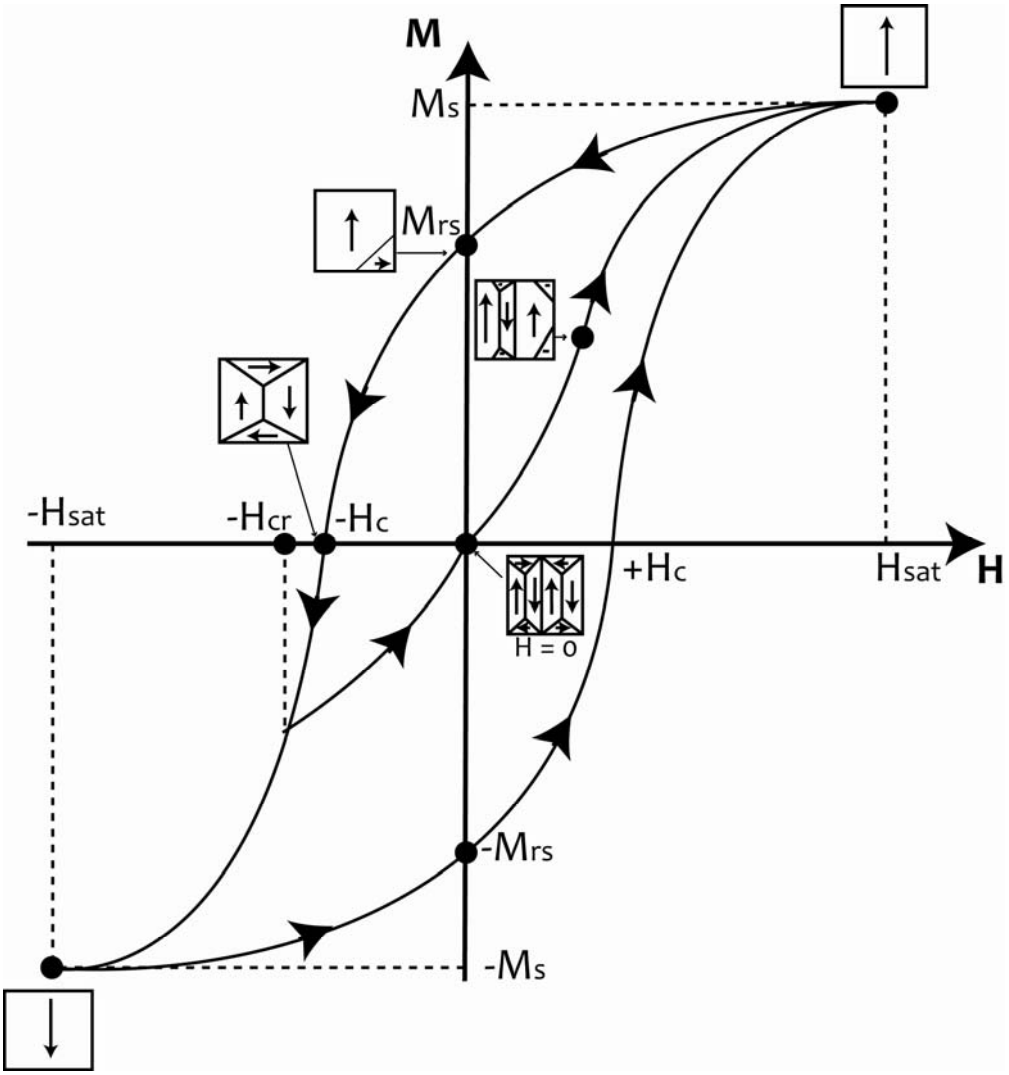


Figure 15 : Courbe d'aimantation M et état des domaines magnétiques en fonction du champ appliqué H pour un matériau ferromagnétique au sens large : courbe de première aimantation et cycle d'hystérésis.
Ms : aimantation à saturation pour une valeur de champ Hsat ; Mrs : aimantation rémanente à saturation ; Hc : champ coercitif ; Hcr champ coercitif rémanent. (d'après O'Reilly, 1984)

Dans le cas des polydomaines, l'application d'un champ magnétique (H) va modifier le volume des domaines : ceux orientés dans le sens du champ verront leur volume augmenter par un déplacement des parois de Bloch (Figure 15). Une aimantation résultante apparaît qui augmente progressivement jusqu'à saturation (Ms pour Hsat) où ne persiste qu'un unique domaine. Le déplacement des parois de Bloch n'est pas totalement réversible et laisse une aimantation rémanente Mrs une fois le champ appliqué nul (H=0). Les grains polydomaines présentent donc un cycle d'hystérésis lié à la mobilité des parois qui est plutôt étroit par rapport aux grains monodomaines. En effet, le cycle d'hystérésis de grains monodomaines est plus large du fait que le sens de leur rémanence ne peut changer que par retournement des spins (Hc plutôt élevé) c'est à dire que seules deux positions de l'aimantation sont possibles.

Les valeurs de coercivité renseignent ainsi sur la nature des grains de forte coercivité, de 1.5 à 4 T pour l'hématite par exemple (Dankers, 1978), ou de faible coercivité, de 20 à 30 mT pour la magnétite ou la maghémite (Dankers, 1978). Les rapports Mrs/Ms et Hcr/Hc sont quant à eux des indicateurs de la taille des grains (Day et al., 1977 ; O'Reilly, 1984 ; Hunt et al. 1995).

I.6. **Les propriétés magnétiques**

I.6.1. La susceptibilité magnétique

Nous avons rappelé auparavant que la susceptibilité magnétique représente la capacité d'un matériau à acquérir une aimantation lorsqu'il est soumis à un champ magnétique faible. C'est une propriété qui dépend de la concentration, de la nature et de la taille des minéraux magnétiques présents (Thellier, 1951). La susceptibilité magnétique est ainsi un paramètre global qui nécessite souvent d'être complétée par l'étude de la viscosité magnétique et des aimantations rémanentes pour caractériser la signature minéralogique d'un matériau.

I.6.2. La viscosité magnétique

La viscosité magnétique représente la part instable de l'aimantation c'est-à-dire celle acquise dans un champ magnétique faible ou celle perdue lorsque le matériau est placé en champ magnétique nul.

Cette viscosité peut avoir des origines diverses :

- pour les grains polydomaines, la viscosité se traduit par un déplacement des parois de Bloch, phénomène lent et appréhendable uniquement par un trainage magnétique (échantillon placé dans un champ faible).

- pour les grains fins, la viscosité dépend du temps de relaxation des grains c'est-à-dire du volume du grain, de la température et du champ appliqué. Cette fois, le trainage magnétique et la dépendance de fréquence sont utilisables.

Les grains ayant un temps de relaxation ou de mouvement de parois supérieur au temps de l'expérience ne seront pas affectés. Par contre, l'ensemble des grains possédant un temps de relaxation ou de mouvement des parois inférieur seront concernés par la mesure. De plus, les grains SP, de temps de relaxation très court, donneront l'impression d'un changement instantané de l'aimantation.

La viscosité magnétique est généralement proportionnelle au logarithme du temps (Néel, 1951 ; Dunlop, 1981). Ainsi, on peut définir un paramètre appelé coefficient de viscosité (S) qui correspond à la pente de l'augmentation de l'aimantation rémanente en fonction du logarithme du temps : $S = dM / d(\log t)$

Il existe aussi un traînage de diffusion (Néel, 1952) lié à des défauts de réseau cristallin des matériaux magnétiques (diffusion réversible d'atomes).

I.6.3. Les différents types d'aimantation rémanente

Nous avons vu précédemment que l'aimantation rémanente est une aimantation qui persiste quand le champ magnétique devient nul, par opposition à l'aimantation induite. Ces aimantations rémanentes ne persistent d'un point de vue macroscopique que si les matériaux qui l'ont acquise gardent leur cohérence physique. Ainsi, un remaniement des particules d'un sol ou

d'un sédiment peuvent induire l'absence d'aimantation rémanente alors que sa présence implique une immobilité des matériaux.

- ***Aimantation thermorémanente (ATR) :*** elle s'acquiert lorsque les grains ferromagnétiques (au sens large) sont refroidis depuis des températures supérieures à la température de Curie (ou de Néel) en présence d'un champ magnétique. Autour de la température dite température de blocage (T_b), le matériau passe d'un état paramagnétique à ferromagnétique. En deçà de T_b, les moments magnétiques élémentaires ne peuvent plus fluctuer et se bloquent préférentiellement dans la position d'équilibre la plus proche du champ magnétique appliqué. Comme expliqué précédemment, le temps de relaxation τ à une température T donnée dépend du volume v du grain, de son champ coercitif Hc :

$$\tau = \frac{1}{C}\exp\left(\frac{v\,.\,Hc\,.\,Ms}{2\,k\,T}\right)$$

L'aimantation ainsi acquise est forte, stable et dans la direction du champ magnétique ambiant pendant le refroidissement.

- ***Aimantation rémanente isotherme (ARI)*** : l'ARI s'obtient par l'application d'une impulsion de champ magnétique. Sont affectés les minéraux qui ont un spectre de coercivité inférieur à l'intensité du champ magnétique appliqué. L'aimantation acquise persiste dans la direction du champ appliqué qui, s'il est suffisant, permet d'atteindre la saturation. On parle alors d'aimantation rémanente isotherme à saturation (ARIs).

- ***Aimantation rémanente anhystérétique (ARA)*** : une ARA est acquise lorsqu'un matériau est soumis à un champ magnétique de l'ordre du champ magnétique terrestre (CMT) combiné à un champ magnétique alternatif évanescent. Pour un champ stationnaire donné (CMT par exemple), l'intensité d'ARA augmente avec l'intensité du champ alternatif appliqué. Cependant, elle est facilement détruite en appliquant un champ alternatif d'intensité supérieure ou égale à celle du champ utilisé lors de l'acquisition.

- ***Aimantation rémanente visqueuse (ARV)*** : cette aimantation est la partie instable de l'aimantation rémanente qui résulte de la viscosité magnétique. Comme nous l'avons dit, la stabilité de l'aimantation rémanente dépend du temps de relaxation τ des grains magnétiques. Si un champ magnétique est appliqué pendant un temps t dans une direction différente à celle initiale, les moments magnétiques tels que $\tau << t$ ont tendance à se réorienter dans la direction du champ. A l'inverse, si $\tau >> t$ alors l'ARV apparaît comme stable. Un traînage magnétique dans un champ magnétique connu et pendant un temps déterminé permet de quantifier les ARV.

- ***Aimantation rémanente chimique ou cristalline (ARC)*** : lorsqu'un minéral se forme à une température inférieure à sa température d'ordre, il peut acquérir une aimantation (ARC de croissance) dont la direction n'est pas forcément parallèle à celle du champ appliqué. Il existe aussi une ARC d'altération concernant les modifications chimiques des minéraux déjà aimantés.

- ***Aimantation rémanente détritique (ARD)*** : Dans un processus de sédimentation, les grains ferromagnétiques ont tendance à s'orienter afin d'aligner leurs moments dans la direction du champ magnétique ambiant : ils acquièrent alors une ARD.

II. Potentiel paléothermométrique

II.1. Les minéraux magnétiques : oxydes, oxyhydroxydes et sulfures de fer

Les matériaux étudiés dans ce mémoire sont issus d'un environnement supergène, c'est-à-dire en surface de la Terre, à des conditions de basse pression et basse température par rapport aux conditions de formation des roches endogènes, avec une présence importante de l'eau. De nombreux oxydes - parmi lesquels la magnétite, la maghémite et l'hématite - et oxyhydroxydes de fer - entre autres la goethite et la lépidocrocite - ainsi que de nombreuses autres phases minérales contenant du fer (Cornell et Schwertmann, 2003) sont présents.

Dans le tableau ci-dessous, sont présentés les principaux oxydes, oxyhydroxydes et sulfures de fer et certaines de leurs propriétés (Tableau 2) :

Phase	Formule	Couleur	Etat magnétique [RT]	T_C ou T_N (°C)	κ (SI)	Mrs [RT] (A.m²/kg)	Hc (mT)
Oxyde							
Magnétite	α-Fe_3O_4	noir	ferri-	580°C	1 - 5.7	90-92	< 300
Maghémite	γ-Fe_2O_3	marron-brun	ferri-	600 - 645°C	2 - 2.5	70-80	< 300
Hématite	α-Fe_2O_3	rouge	antiferro-canté	675°C	0.5 - 40 x 10^{-3}	0.4	1500 - 5000
Oxyhydroxyde							
Goethite	α-FeOOH	jaune	antiferro-canté	127°C	1 .1 - 12 x 10^{-3}	< 1	> 5000
Lépidocrocite	γ-FeOOH	orange	para-	- 196°C	2 x 10^{-3}		
Feroxyhyte	δ-FeOOH	marron-rouge	ferri-	180°C		< 10	
Sulfure							
Pyrite	FeS_2	noir-brun	para-		0.035 - 5 x 10^{-3}		
Pyrrhotite	Fe_7S_8	gris-noir	ferri-	320°C	3.2	20	500 - 1000
Greigite	Fe_3S_4	noir	ferri-	333°C		25	< 300

Tableau 2 : Principaux oxydes, oxyhydroxydes et sulfures de fer associés à quelques unes de leurs propriétés magnétiques (Mrs : aimantation rémanente à saturation ; Hc : champ coercitif) ; RT = *room temperature*. (Cornell et Schwertmann, 2003 ; Dunlop et Özdemir, 1997 ; Hunt *et al*., 1995 ; Mathé et Lévêque, 2005 ; Özdemir et Banerjee, 1984).

II.2. Les transformations intervenant avec la chauffe

Comme nous l'avons déjà évoqué, l'élévation de température induite par le feu produit des transformations minéralogiques, en particulier parmi les oxydes de fer. Ces transformations de la minéralogie magnétique s'accompagnent aussi de modifications de la taille des grains magnétiques qui dépendant elles aussi des températures et des conditions de chauffe.

II.2.1. Minéralogie magnétique

Les transformations des oxyhydroxydes et oxydes de fer, dues à une augmentation de la température, sont présentées dans un schéma récapitulatif faisant apparaître les températures et les types de transformations opérées (Figure 16).

Pour ce qui concerne les sulfures de fer, les principales transformations sont les suivantes : la pyrrhotite se transforme en magnétite à partir de 500°C (Dunlop et Özdemir, 1997) et en hématite à des températures plus élevées ; la greigite se transforme en pyrite à partir de 250°C, en pyrrhotite à partir de 320°C, en magnétite au-delà de 400°C (Robert, 1995), en hématite à 700°C.

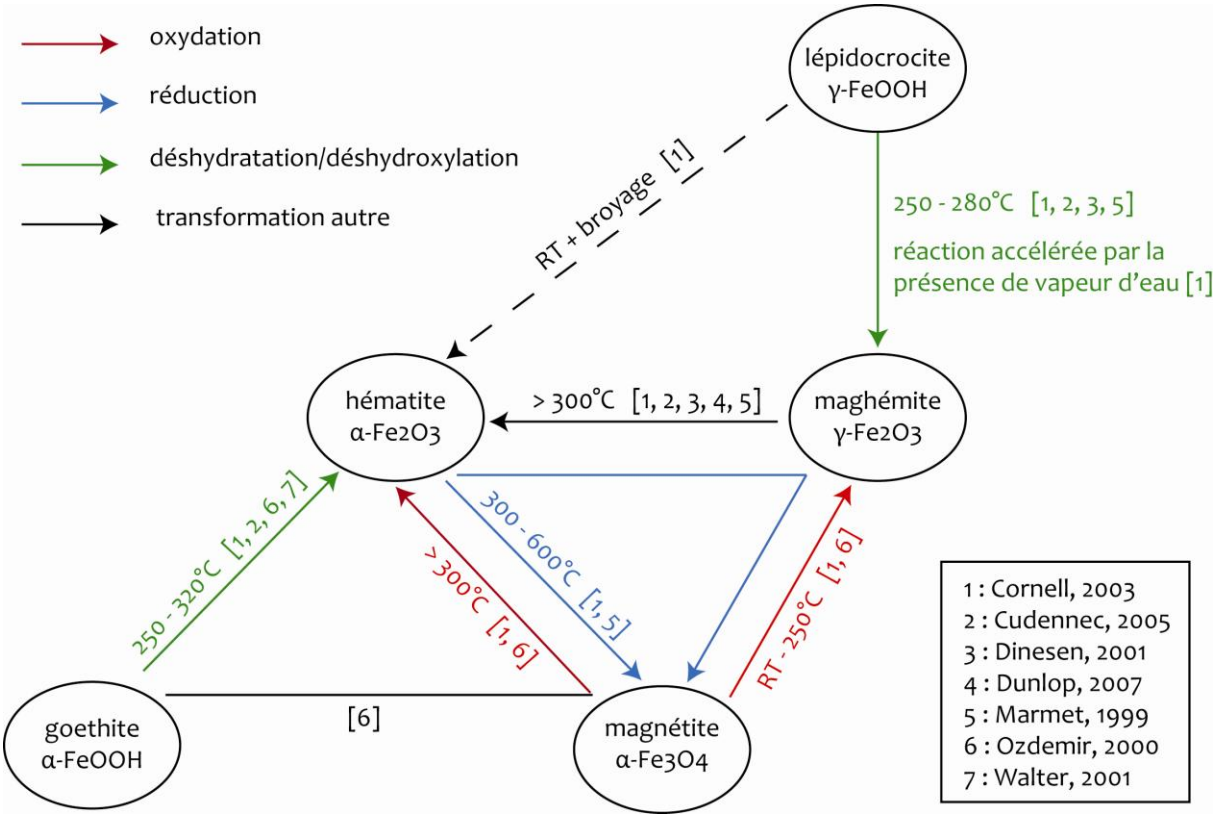


Figure 16 : Transformations des oxyhydroxydes et oxydes de fer possibles suivant les conditions de température et d'atmosphère de la chauffe. RT : *room temperature*. (Cornell et Schwertmann, 2003 ; Cudennec et Lecerf, 2005 ; Dinesen *et al*., 2001 ; Dunlop et Özdemir, 2007 ; Marmet *et al*., 1999 ; Özdemir et Dunlop, 2000 ; Walter *et al*., 2001).

Cependant, les transformations de la Figure 16 dépendent de la nature des sédiments et de la quantité de précurseurs, des températures atteintes ainsi que des conditions redox.

- ***Influence de la nature des sédiments : précurseurs (nature et quantité) :*** Dans un milieu où l'eau est fortement présente, tel que celui de la grotte des Fraux, l'hématite, la goethite et la lépidocrocite constituent les principaux oxydes et oxyhydroxydes de fer présents (Cornell et Schwertmann, 2003). Les oxyhydroxydes sont les principaux précurseurs des transformations de la minéralogie magnétique et se transforment, dès 200-250°C et suivant les conditions redox, en magnétite, maghémite ou hématite (Figure 16). La quantité de ces précurseurs déterminera la quantité des produits (magnétite, maghémite et hématite) à l'issue de la chauffe (Cudennec et Lecerf, 2005).

- ***Influence de la température de chauffe :*** Pour que les transformations aient lieu, il faut atteindre une température minimale à partir de laquelle la goethite (> 250°C ; Özdemir et Dunlop, 2000 ; Gialanella *et al*., 2010) et la lépidocrocite (> 250°C ; Gehring et Hofmeister, 1994 ; Dinesen, 2001) se déshydratent pour respectivement former de l'hématite ou magnétite (milieu oxydant ou réducteur) et de la maghémite. Ces oxydes de fers néoformés peuvent aussi subir des transformations en particulier la maghémite (> 250°C, Maki, 2006 ; > 475°C, Dinesen 2001 ; > 500°C, Özdemir et Banerjee, 1984) et la magnétite (> 270°C, Sanders et Gallagher, 2003 ; > 400°C, Özdemir et Dunlop, 2000) peuvent se transformer en hématite en atmosphère oxydante. La transformation magnétite / hématite est particulièrement visible lors de mesure de la susceptibilité magnétique en fonction de la température où, après une chauffe à 600°C, la susceptibilité magnétique chute du fait de l'oxydation de la magnétite en hématite (notre expérience, *cf*. Chapitre 9). A l'inverse, l'hématite peut être transformée en magnétite en

atmosphère réductrice (> 400°C, Marmet, 1999). Il est donc difficile de dissocier les températures atteintes des conditions redox de la chauffe. Par ailleurs, les températures de transformation dépendent aussi de la taille et de la forme des grains (Özdemir et Banerjee, 1984 ; Schwertmann, 1984 ; Walter, 2001).

- ***Influence des conditions redox :*** Ces conditions sont dépendantes de la quantité d'oxygène dans le milieu (pression partielle d'O_2). Dans le cas d'une chauffe des sédiments par un feu, la combustion de bois (matière organique) consomme l'oxygène et dégage entre autres du CO_2, de la vapeur d'eau et du CO (réducteur). Cela engendre une atmosphère réductrice qui conditionne les transformations possibles. De plus, les sédiments eux-mêmes peuvent contenir de la matière organique qui renforce ce phénomène (Marmet, 1999). Sont ainsi favorisées les réactions donnant lieu à la maghémite (à partir de lépidocrocite) et la magnétite (à partir de la goethite et de l'hématite). Les deux phases créées sont alors ferrimagnétiques et possèdent une signature magnétite identifiable par les propriétés magnétiques.

En parallèle des transformations de la minéralogie, s'opèrent aussi des transformations de la taille de grains magnétiques.

II.2.2. Taille de grains magnétique

Plusieurs études indiquent que l'augmentation de température entraîne la création de grains fins à ultrafins (SD à SP) de magnétite, maghémite et hématite suivant les conditions de chauffe (Jordanova *et al*., 2001 ; Herries *et al*., 2007 ; Oldfield et Crowther, 2007). N. Jordanova *et al*. (2001) montrent que des sédiments argileux chauffés (briques, fours et sols provenant de 212 sites en Bulgarie) ont une concentration importante en grains superparamagnétiques ferrimagnétiques. Oldfield et Crowther (2007), par une étude comparée entre des sédiments chauffés en laboratoire et des sédiments chauffés archéologiquement, montrent que ces sédiments chauffés ont des propriétés magnétiques dominées par la présence de grains SD (single-domain) à SP (superparamagnétique) de magnétite et de maghémite.

Par ailleurs, quelques études s'intéressent à la création de maghémite à partir de lépidocrocite (Gehring et Hofmeister, 1994 ; Gendler *et al*., 2005) et montrent que la transformation s'effectue en deux étapes. Dans un premier temps, à des températures de 175-200°C, la lépidocrocite forme des grains SP de maghémite pour ensuite, à des températures de 300°C former de la maghémite SD. Ainsi deux populations de grains de maghémite sont créées par la chauffe de la lépidocrocite. Ce phénomène peut s'expliquer par le processus même de la transformation qui se déroule comme suit (Cudennec et Lecerf, 2005) : perte de l'eau, contraction de la structure cristalline, effondrement de la structure, déplacement d'une partie (3/8) des ions Fe^{3+} des sites octaédriques vers des sites tétraédriques. On voit ainsi qu'entre le moment où l'eau disparait et celui où la structure finale de la maghémite apparaît, il peut se former des grains SP de maghémite.

L'atmosphère oxydante ou réductrice ainsi que les températures atteintes sont déterminantes pour ces transformations. Ainsi une atmosphère réductrice engendre la création de grains SP et SD de magnétite mais pas d'hématite (Coey *et al*., 1979). Dans une autre étude, Herries *et al*. (2007) montrent que pour des sédiments chauffés en atmosphère plutôt oxydante, il y a une création de grains SD à SP de magnétite, maghémite et hématite. Par contre, en atmosphère réductrice, sont créés des grains SD de magnétite et les créations d'hématite et de grains SP sont inhibées en deçà d'une certaine température. Des chauffes en laboratoire sur ces

sédiments indiquent la création de grains SP à SD ferrimagnétiques et d'hématite à 700°C. Au-delà de 700°C, les chauffes entraînent une destruction des grains SP et l'apparition de grains plus gros d'hématite.

II.2.3. En résumé

Les températures atteintes et les conditions redox de la chauffe semblent être les deux paramètres déterminant pour les transformations de la minéralogie et de la taille de grains magnétiques. En supposant que les sédiments soient homogènes, des différences dans la signature magnétique devraient pouvoir refléter les variations de températures et d'atmosphère de chauffe auxquelles ont été soumis les sédiments. La taille de grain et la nature des précurseurs définira la taille de grain et la nature des produits puisqu'il y a des relations directes de structure cristalline entre précurseur et produit (Cudennec et Lecerf, 2005). Ce dernier point explique en partie la diversité des comportements cités précédemment puisqu'aucune étude n'est menée sur des sédiments identiques ou des phases de synthèse de taille de grains comparable. Ainsi, il est important d'étudier le sédiment spécifique à chaque site (site archéologique par exemple) pour pouvoir déterminer les précurseurs présents, leurs températures de transformation, les produits formés et les tailles de grains associées.

Il faut aussi ajouter que le temps peut avoir une influence. En effet, comme le montre la Figure 16, certaines réactions peuvent avoir lieu à température ambiante. De plus, étant donnée l'omniprésence de l'eau dans la grotte des Fraux, il est aussi possible que des phases minérales telles que la goethite se forment après l'occupation de la cavité et le fonctionnement des feux.

III. Méthodes de caractérisation de la signature magnétique mises en œuvre

Comme nous venons de le voir, le feu, par l'augmentation de température et le changement d'atmosphère qu'il engendre, entraine des modifications de minéralogie et de taille de grain magnétiques. De nombreuses méthodes de mesures des propriétés magnétiques existent parmi lesquelles celles utilisées dans ce travail (Tableau 3) :

- la susceptibilité magnétique : χ
- la mesure dynamique de la susceptibilité magnétique avec la température : $\kappa(T)$
- la susceptibilité magnétique en dépendance de fréquence : $df\chi$ et $\chi fd\%$
- l'aimantation rémanente isotherme : ARI ; ARI partielle (ARIp) et ARI à saturation (ARIs)
- l'aimantation rémanente visqueuse : ARV
- l'aimantation rémanente anhystérétique : ARA ; ARA partielle (ARAp) et ARA à saturation (ARAs)

Certaines d'entres elles sont principalement dépendantes de la teneur en phase ferrimagnétique : χ, ARIs et ARAs. D'autres sont surtout gouvernées par la minéralogie magnétique $\kappa(T)$ et ARIp. Enfin, χfd, $df\chi\%$, ARAp et ARV sont des propriétés dépendantes de la taille de grains magnétiques. C'est la combinaison de l'ensemble de ces propriétés d'aimantations induite (susceptibilité magnétique) ou rémanente (ARI, ARA, ARV) qui mène à la caractérisation de la signature magnétique. La question est de savoir si cette signature magnétique permet d'aboutir à un paléothermomètre.

En parallèle, une autre question abordée concerne le potentiel des températures de déblocage (T_b) de l'aimantation rémanente comme paléothermomètre.

propriété	χ	$\kappa(T)$	$\chi_{fd}\%$	$df\chi$	ARIp	ARIs	ARV	ARAp	ARAs	T_b
Teneur en phase magnétique	x					x			x	
Minéralogie magnétique	(x)	x			x			(x)	(x)	
Taille des grains magnétiques	(x)	(x)	x	x	(x)		x	x		
Température	x ?									x ?

Tableau 3 : Apport des propriétés magnétiques à la détermination de la taille de grain et/ou de la minéralogie magnétique en vue d'une estimation de température.

Cette partie s'attache donc à présenter chaque propriété magnétique et son apport potentiel en vue de l'établissement d'un paléothermomètre.

III.1. **Propriétés de l'aimantation induite**

III.1.1. Susceptibilité magnétique

La susceptibilité magnétique est une grandeur intéressant au premier plan les minéraux ferrimagnétiques (magnétite et maghémite ; Tableau 2) du fait de la supériorité de leur valeur de susceptibilité magnétique. Elle dépend aussi de la taille des grains ferrimagnétiques puisque les grains SP possèdent une très forte susceptibilité magnétique comparée aux grains SD à MD. Néanmoins la présence de minéraux diamagnétiques de susceptibilité magnétique négative tels que le quartz ou la calcite induira des valeurs de susceptibilité magnétique mesurée plus faible, par effet de dilution du signal magnétique.

L'évolution de la susceptibilité magnétique avec la chauffe dépend de nombreux processus et sa variation nécessite d'être explicitée par une analyse minéralogique plus poussée. En effet, lors d'une chauffe, la susceptibilité magnétique peut soit (1) augmenter par l'effet d'une création de minéraux ferrimagnétiques (magnétite/maghémite) et/ou de grains SP à partir de précurseurs (lépidocrocite/goethite), augmentation qui perdurera après le refroidissement, ou (2) diminuer par la destruction des particules ferrimagnétiques les plus fines (de forte susceptibilité magnétique) et la création de minéraux de moindre susceptibilité magnétique (hématite). Par ailleurs, la susceptibilité magnétique peut aussi augmenter avec la pédogénèse (Le Borgne, 1955 ; Maher, 1998) par néoformation de phases magnétiques. Ces processus bio-physico-chimiques interviennent principalement dans les sols et surtout en présence d'eau, de matière organique et à des températures ambiantes de 25-35°C. Néanmoins dans un milieu souterrain, bien que l'eau soit présente, les sédiments ne sont pas dans des conditions similaires à celles d'un sol (matière organique, saisonnalité…) et les altérations engendrées sont probablement moindres (Djerrab *et al*., 2000).

Mesure de susceptibilité magnétique in situ

La susceptibilité magnétique volumique κ permet une mesure rapide, non destructive et non invasive, réalisable *in situ*. Compte tenu de la susceptibilité magnétique dominante des minéraux ferrimagnétiques, cette mesure renseigne sur les variations de leur teneur. Les minéraux ferrimagnétiques (magnétite et maghémite) étant produits par la chauffe de précurseurs (goethite et lépidocrocite) contenus dans les sédiments, on peut considérer que les zones de forte valeur de susceptibilité magnétique sont associées à des zones chauffées.

Cependant, si la susceptibilité magnétique traduit principalement la variation de la teneur en magnétite/maghémite, elle est aussi dépendante de la présence d'autres minéraux tels que le quartz. Nous insistons sur ce point puisque dans les sédiments constituant l'encaissant des Fraux, il y a d'une part des sédiments argileux de susceptibilité magnétique faible et positive, et d'autre part des grès de susceptibilité magnétique proche de zéro sous la forme de blocs ou de sables (grès en décomposition). Ainsi, la présence de sable gréseux ou de blocs intégrés dans le substrat argileux impliquera des valeurs plus faibles de la susceptibilité magnétique par une dilution du signal magnétique. Une prudence particulière devra alors être observée dans l'interprétation des valeurs de susceptibilité magnétique mesurées et leur variation spatiale : une augmentation de la susceptibilité magnétique peut indiquer soit une plus forte concentration en magnétite/maghémite, soit une diminution de la concentration en quartz ; inversement des

valeurs faibles de la susceptibilité magnétique peuvent être associées soit à une forte concentration en quartz, soit à une faible concentration en magnétite/maghémite. Cependant, les variations liées aux teneurs en minéraux ferrimagnétiques sont bien supérieures à celles induites par la dilution du signal par le quartz.

III.1.2. Courbes thermomagnétiques κ(T)

Cette mesure permet de suivre l'évolution de la susceptibilité magnétique avec la chauffe du matériau dans une atmosphère d'air ou d'argon jusqu'à une température maximale pouvant atteindre 700°C. La réalisation d'une courbe κ(T) permet de vérifier s'il y a eu transformation minérale ou non en effectuant une chauffe partielle puis un refroidissement (Hrouda *et al.*, 2003) : si la courbe est réversible, il n'y a pas eu de transformation, par contre s'il y a une augmentation/diminution de la susceptibilité magnétique lors du refroidissement c'est que certaines phases magnétiques ont été créées/détruites.

Les courbes κ(T) mettent en évidence les phases minérales par une variation brutale de susceptibilité magnétique autour de leur température de Curie. Cette variation peut prendre la forme d'un phénomène appelé « effet Hopkinson ». Cet effet est marqué par un accroissement de la susceptibilité magnétique du à l'agitation thermique dont le maximum du pic à la température d'Hopkinson précède de peu la température de Curie du minéral concerné (Figure 17). A la température de Curie, la susceptibilité magnétique décroît rapidement et le comportement magnétique devient paramagnétique.

Ainsi, cette mesure permet d'identifier certaines phases minérales ainsi que les températures auxquelles elles apparaissent/disparaissent.

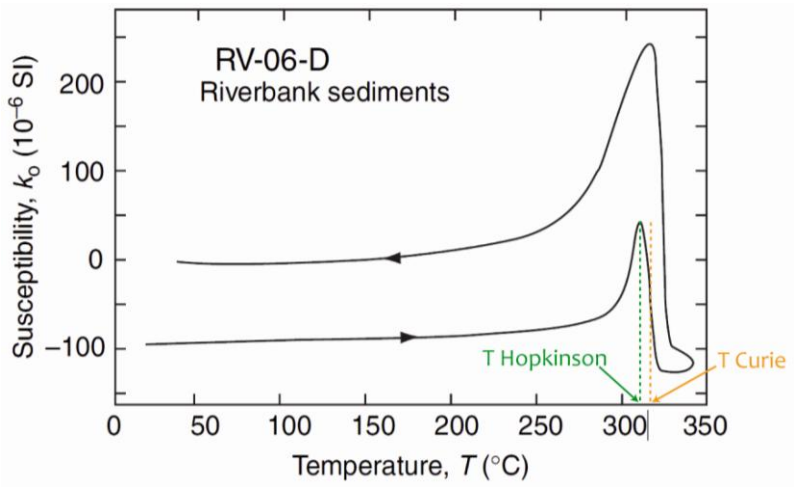


Figure 17 : Effet Hopkinson (© d'après Dunlop et Özdemir, 2007).

III.1.3. Susceptibilité magnétique en dépendance de fréquence

La grandeur mesurée est toujours la susceptibilité magnétique mais cette fois la fréquence du champ appliqué pour la mesure peut être modifiée. Deux paramètres permettent de définir la dépendance de fréquence en fonction de la mesure de la susceptibilité magnétique à basse fréquence (BF) et à haute fréquence (HF) :

- $df\chi = \chi_{BF} - \chi_{HF}$ (df : différence de fréquence)
- $\chi fd\% = df\chi / \chi_{BF}$ (fd : « *frequency dependance* » ; dépendance de fréquence)

La différence entre les deux mesures effectuées (dfχ) concerne les grains ferromagnétiques au sens large (s.l.) pour lesquels le temps de relaxation τ est supérieur à t_{HF} mais inférieur à t_{BF} (t = 1/fréquence d'excitation). Cette mesure est un indicateur de la concentration en minéraux ferromagnétiques s.l. dont la taille de grain va du SP à la limite SP-SD. La présence de ces grains entraîne une forte susceptibilité magnétique et de fortes valeurs de dfχ et χfd%. Pour des sédiments naturels, la valeur maximale de χfd% observée est de 15%.

En représentant dfχ en fonction de χ_{BF}, on peut estimer la susceptibilité magnétique, dite « susceptibilité magnétique background », correspondant à la matrice diamagnétique et paramagnétique du matériau étudié (Forster *et al.*, 1994 ; Figure 18). En effet, dfχ ne prend en compte que les particules ferromagnétiques s.l. alors que χ_{BF} contient les contributions ferro+dia+paramagnétiques. L'abscisse à l'origine correspondra alors aux contributions dia+paramagnétiques de la matrice du matériau.

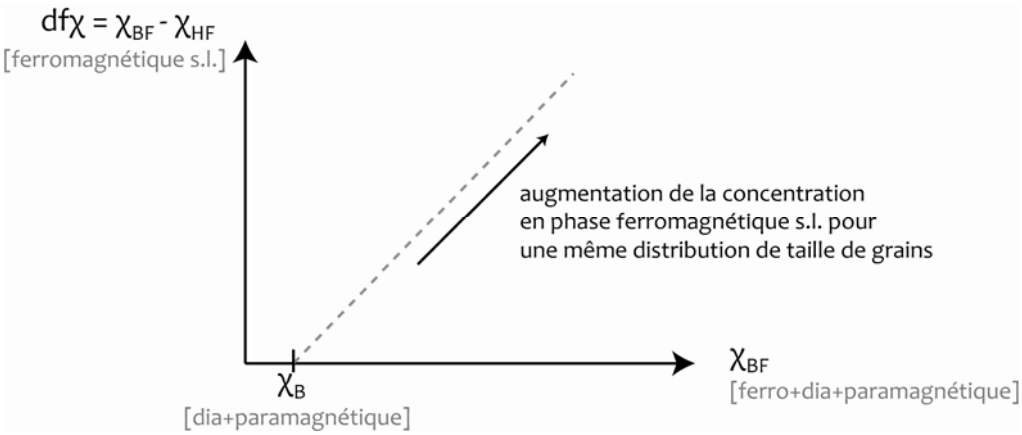


Figure 18 : Mise en évidence de la susceptibilité magnétique background χ_B de la matrice diamagnétique et paramagnétique d'un matériau. Ferromagnétique s.l. : ferromagnétique au sens large qui regroupe ferromagnétique au sens strict, ferrimagnétique et antiferromagnétique canté.

III.2. **Propriétés de l'aimantation rémanente**

III.2.1. Les températures de déblocage de l'aimantation rémanente

La température de déblocage de l'aimantation rémanente est une donnée qui s'acquiert au cours de désaimantations thermiques par cycles de chauffe/refroidissement à palier de température croissante et en champ nul. La mesure de la variation de l'aimantation restante permet de déterminer les composantes d'aimantation portées par le matériau caractérisées par exemple par leur inclinaison, déclinaison et intensité. Elle permet aussi de définir le spectre de températures de déblocage de l'aimantation rémanente totale.

Si une composante correspond uniquement à une aimantation thermorémanente (ATR), la température de déblocage maximale de cette composante pourrait être une indication thermométrique, même si un biais dû aux différences de cinétique de refroidissement (archéologique) et de chauffe (laboratoire) est à attendre (Dunlop, 1981 ; Dunlop et Özdemir, 2007). Par contre, si une partie de l'aimantation correspond à une aimantation rémanente chimique (ARC), il faut s'attendre à un biais important (Fabian, 2009).

L'apport paléothermométrique de la donnée de température de déblocage sera évalué par comparaison avec les températures déterminées par TL.

III.2.2. L'aimantation rémanente isotherme (ARI)

En appliquant un champ magnétique croissant (impulsion) dans la direction opposée (back-field, BF) à une impulsion d'un champ magnétique intense, on peut construire un spectre de coercivité et déterminer le champ coercitif de rémanence (Hcr).

Ainsi, l'ARI permet d'identifier la présence de phases magnétiques grâce à leur spectre de coercivité : la magnétite et la maghémite sont saturées en-deçà de 300 mT, l'hématite vers 3 T et la goethite au-delà de 5 T (Tableau 2). Par exemple, on sait qu'il y a de la goethite lorsqu'à 3 T la saturation de l'aimantation n'est pas atteinte. Par ailleurs, la décroissance temporelle d'une ARI à 3 T permet d'évaluer la taille des grains magnétiques en analysant la vitesse de décroissance de l'aimantation.

III.2.3. L'Aimantation rémanente anhystérétique (ARA)

L'acquisition de l'ARA peut se faire progressivement en augmentant l'intensité du champ alternatif. La désaimantation de l'ARA s'effectue, en l'absence de champ magnétique continu, en appliquant un champ magnétique alternatif évanescent. Une telle désaimantation est appelée désaimantation AF (alternative-field). Pour désaimanter complètement un matériau, l'amplitude initiale du champ alternatif doit être supérieure à celle du champ coercitif des grains magnétiques considérés.

Cette mesure apporte des informations sur la minéralogie puisque les minéraux ferromagnétiques sont principalement affectés par cette mesure. Leur teneur détermine principalement l'ARA à saturation. Par ailleurs, la mesure d'ARA renseigne sur la taille des grains ferrimagnétiques (Banerjee *et al.*, 1981) puisque les grains SD sont les plus efficaces à l'acquisition de l'ARA (Özdemir et Banerjee, 1982) et qu'ils possèdent des coercivités les plus élevées (Thompson et Oldfield, 1986).

III.2.4. L'Aimantation rémanente visqueuse (ARV)

Le principe du trainage magnétique, permettant d'évaluer l'ARV est le suivant : les échantillons sont mis en champ nul pendant un temps relativement long (une semaine par exemple) pour que les aimantations labiles s'orientent aléatoirement. Ces mêmes échantillons sont ensuite placés pendant un temps plus court (24 h dans notre cas) dans le champ magnétique terrestre (CMT) de manière à ce qu'ils soient soumis à ce champ suivant une unique direction. La différence d'aimantation rémanente entre la mesure en champ nul et la mesure après exposition au CMT permet d'estimer l'ARV et représente la viscosité magnétique des échantillons sur une gamme de temps de relaxation, ou équivalent pour les polydomaines, de 30 s (temps de la mesure) à 24 h.

Deux populations de grains sont alors concernées par le trainage magnétique : les SP dont les temps de relaxation sont supérieurs au temps de manipulation et les polydomaines (MD) dont les parois de Bloch se déforment pour créer une aimantation dans le sens du champ.

***

L'étude et la mise en parallèle des variations des propriétés présentées ci-dessus permettent d'analyser la signature minéralogie (minéralogie et taille de grain ; Tableau 3) et son évolution avec la chauffe.

IV. Appareillage et paramètre de mesure

Chacune des propriétés précitées nécessite un appareillage spécifique décrit ci-dessous. Les mesures des propriétés magnétiques ont été réalisées sur un ensemble de trois séries d'échantillons : des prélèvements d'un foyer archéologique, des prélèvements d'un foyer expérimental ainsi que sur des échantillons de sédiment chauffés en laboratoire.

IV.1. **Four**

Pour chauffer les sédiments en laboratoire, nous avons utilisé un four (MMTD18, Magnetic Measurement ; Figure 19) qui permet aussi de créer des ATR. On peut choisir la vitesse de chauffe, la température maximale et la durée d'un éventuel palier à cette température. Cependant, il n'est pas possible de définir la vitesse de refroidissement : une soufflerie se met en route au moment du refroidissement qui entraîne une vitesse de refroidissement proche de 20°C/min.

Figure 19 : Four à désaimantation MMTD18 (Magnetic Measurement).

IV.2. **Susceptibilité magnétique**

IV.2.1. Mesure in situ

Pour les mesures de susceptibilité magnétique *in situ*, le susceptibilimètre KT-9 de la société EXPLORANIUM a été utilisé (Figure 20). C'est un capteur de contact qui possède un capteur de 66 mm de diamètre externe, et le volume d'intégration peut être approximé par un demi-tore planaire de 2 à 3 cm de rayon (paramètres analogues à ceux du KT-5 ; Lecoanet *et al.*, 1999). La sensibilité du KT-9, de 10^{-5} SI, est suffisante compte tenu de la forte dynamique du signal observé aux Fraux. De plus cet appareil de mesure est rapide et permet de mesurer des surfaces assez importante dans en temps raisonnable (environ 1 m²/heure soit avec un pas de mesure de 5 cm 400 points/heure).

Figure 20 : Susceptibilimètre KT-9 (Exploranium). © cliché : A. Burens.

IV.2.2. Mesure en laboratoire

- ***Susceptibilité magnétique et courbes κ(T) :***

Les mesures de susceptibilité magnétique sont effectuées manuellement avec le susceptibilimètre KLY-4S (AGICO, Figure 21), sur des échantillons de l'ordre de 10 cm^3. La sensibilité de l'appareil est de 0.2 10^{-7} SI pour un volume de 10 cm^3.

Les courbes κ(T) sont construites par des mesures de susceptibilité magnétique dans le susceptibilimètre KLY-4S (AGICO) qui est alors couplé au four interne CS-4 (AGICO, Figure 21). Les mesures de κ(T) sont réalisées sur une poudre (≈ 500 mg) alors placée dans un tube de quartz. Différentes vitesses de chauffe sont disponibles : 6.5°C/min, 8.5°C/min, 11°C/min, 35°C/min.

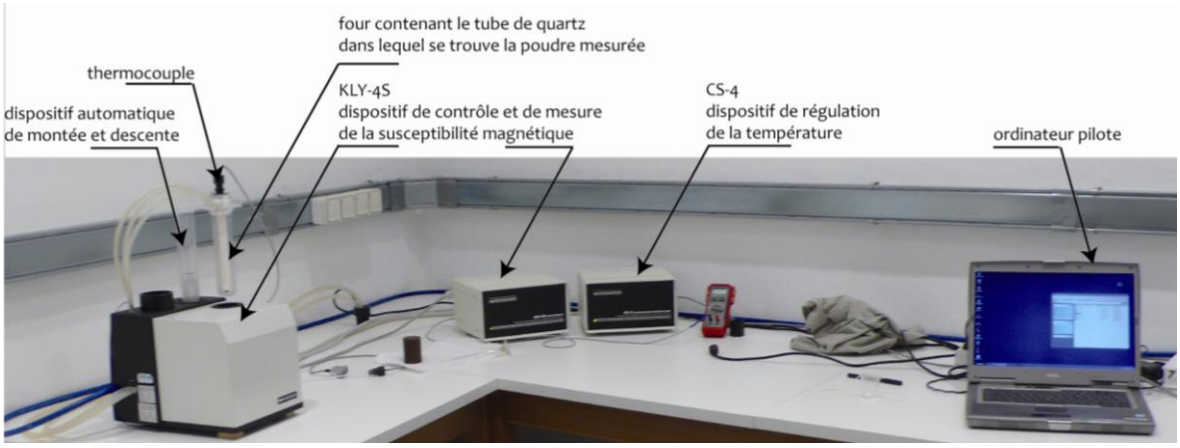


Figure 21 : Susceptibilimètre KLY-4S associé au CS-4, AGICO. L'appareillage est ici en configuration de mesure de κ(T).

- ***Susceptibilité magnétique en dépendance de fréquence :***

Les mesures ont été effectuées pour des fréquences entre 500 Hz et 8000 Hz avec le susceptibilimètre SM100 (ZHinstruments ; Figure 22). Cet appareil permet de mesurer la susceptibilité magnétique pour les fréquences suivantes : 500 Hz, 1 kHz, 2 kHz, 4 kHz et 8 kHz avec une première bobine (SM100), 16 kHz, 32 kHz, 64 kHz, 128 kHz et 256 kHz avec la seconde (SM105). La sensibilité de l'appareil (SM100) est de 2.10^{-6} SI pour un volume de 10 cm^3.

Figure 22 : SM100-SM105, ZHinstruments.

IV.3. **Aimantation rémanente**

IV.3.1. Désaimantation thermique de l'aimantation rémanente naturelle

Les désaimantations thermiques ont été réalisées par G. Hervé dans le cadre de son doctorat au laboratoire Géosciences de Rennes (Hervé, 2012). Les données ont été acquises non pas dans le but d'une datation archéomagnétique mais dans celui d'obtenir un nouveau point pour établir la courbe de référence. En effet, les sédiments des foyers possèdent la capacité d'enregistrer le champ magnétique ambiant au moment du dernier refroidissement (Calvo-Rathert *et al.*, 2012).

Les traitements ont été effectués dans un four Schonstedt en une dizaine d'étapes entre 100°C et 565°C, sur des échantillons indurés de 25 mm de diamètre par 22 mm de longueur.

IV.3.2. ARI, ARA et ARV

Dans notre étude, l'ARIs est créée en appliquant un champ magnétique de 3 T sur l'échantillon dans une direction. On applique ensuite dans la direction opposé une impulsion de champ magnétique d'intensité croissante de 5 mT à 3 T (BF-ARI) en mesurant à chaque étape l'aimantation rémanente. L'ARAs quant à elle est acquise par l'application d'un champ magnétique continu de 0.1 mT et d'un champ alternatif évanescent d'intensité maximale de 200 mT.

Les désaimantations AF (alternative-field) de l'ARIs et de l'ARAs sont obtenues en appliquant un champ magnétique évanescent dont l'intensité maximale augmente à chaque étape de la désaimantation de 5 mT à 200 mT.

L'ARV est mesurée par la différence entre l'aimantation rémanente après une semaine en champ nul (Figure 23, gauche) et après 24 h sous l'influence axiale du CMT (Figure 23, droite).

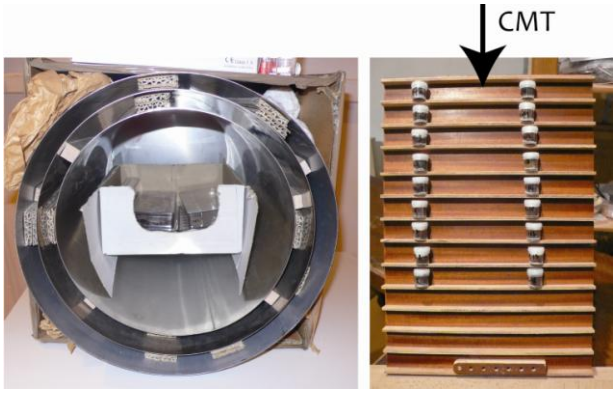


Figure 23 : A gauche, blindage en mumetal (interne) et fer doux (externe) permettant une atténuation du champ magnétique externe ; à droite, support placé dans la pièce de manière à ce que les échantillons soient placés axialement au champ magnétique terrestre (CMT) local.

Les aimantations rémanentes sont mesurées à chaque étape de modification de l'aimantation rémanente avec le magnétomètre JR-6A, AGICO (de type spinner ; Figure 24). La précision du JR-6A est de 2.4 µA/m pour des échantillons de l'ordre de 8 cm^3 (cubes ou cylindres).

Les impulsions de champ magnétique (ARI, BF-ARI) sont réalisées avec le Pulse Magnetiser MMPM 10 (Figure 24).

Enfin, l'ARA et les désaimantations AF sont réalisées avec le DTECH 2000 (Figure 24).

Figure 24 : Chambre à champ magnétique atténué où sont effectuées les mesures d'aimantation à l'aide du magnétomètre spinner JR-6A (AGICO), les impulsions de champ magnétique (MMPM 10) et les désaimantations en champ alternatif (DTECH 2000).

Synthèse intermédiaire : Partie II

La thermoluminescence - par sa sensibilité à la température et à la durée de la chauffe - ainsi que les propriétés magnétiques - par leur propension (1) à détecter les évolutions de la minéralogie magnétique et de la taille de grain magnétique en fonction de la température, de la durée et de l'atmosphère de chauffe, et (2) à évaluer les températures de déblocage de l'aimantation rémanente - semblent toutes deux être de possibles estimateurs de paléotempérature.

De plus, elles constituent deux approches indépendantes puisque fondées sur deux phases minérales différentes : le quartz pour la thermoluminescence et les oxydes de fer pour le magnétisme. L'avantage d'une telle combinaison est de pouvoir comparer entre elles les informations paléothermométriques obtenues.

Dans les deux approches, l'utilisation de sédiments locaux est nécessaire (1) pour construire un référentiel thermique en TL et (2) pour étudier les propriétés magnétiques de sédiments chauffés en laboratoire. La similitude de l'origine géologique de ce sédiment avec celui des foyers archéologiques est indispensable pour que (1) les centres-pièges donc la luminescence émise soit comparable entre le référentiel et les échantillons archéologiques et (2) les précurseurs magnétiques qui se transforment avec la chauffe soient semblables.

* *
*

Dans cette partie, nous nous sommes attachés à exposer la théorie (nécessaire) des propriétés de luminescence et de magnétisme afin d'expliciter leur potentiel pour la paléothermométrie. La partie suivante est consacrée à la présentation du site archéologique unique qu'est la grotte des Fraux et du matériel étudié qu'il soit archéologique ou issu d'expérimentations.

Partie III

Foyers archéologiques et expérimentaux : quel matériel d'étude ?

Introduction

L'importance des structures de combustion au sein du réseau de la grotte des Fraux a incité l'équipe scientifique à développer un axe de recherche spécifique à ces structures. Néanmoins, ce travail entre dans une étude globale de la grotte. Le premier chapitre de cette partie (*chapitre 4*) va s'attacher à présenter ce site d'étude et les axes de recherches qui y sont développés. Ensuite, on se concentrera sur les structures de combustion et les problématiques archéologiques qu'elles posent afin de positionner notre travail dans le contexte d'étude des foyers.

Parmi les foyers présents dans la grotte, trois ont été étudiés dans le cadre de ce doctorat. Le second chapitre de cette partie (*chapitre 5*) détaillera tout d'abord les raisons de ce choix ainsi que les structures concernées. Puis, la stratégie d'échantillonnage des foyers fondée sur des mesures de susceptibilité magnétique de terrain sera explicitée. La nature des prélèvements archéologiques effectués sera finalement décrite.

En complément de l'étude de foyers archéologiques, un foyer expérimental instrumenté (thermocouples) a été construit à partir de matériaux provenant de la grotte des Fraux afin de disposer d'un échantillonnage d'histoire thermique connue. Le dernier chapitre de cette partie (*chapitre 6*) présentera la construction de ce foyer ainsi que les chauffes réalisées. Enfin, nous décrirons les prélèvements effectués sur cette structure.

Chapitre 4 : La grotte des Fraux : un site d'exception

La grotte des Fraux, par la présence combinée de manifestations pariétales et de vestiges archéologiques multiples, forme un ensemble complexe, « un tout indissociable » (Aujoulat et Chevillot, 1991), un objet d'étude unique (puisque sans point de comparaison en France) dont l'étude interdisciplinaire a débuté depuis 2007 sous la direction de Laurent Carozza (UMR 5602 GEODE, Toulouse).

La présentation de la grotte des Fraux et les informations relatives à son étude qui sont explicitées dans ce chapitre sont principalement fondées sur les rapports de fouille de la grotte des Fraux : Carozza, 2008 ; 2009 ; 2010 et 2011.

Les grottes et abris ont toujours été occupés par l'homme que ce soit à des fins fonctionnelles (abri temporaire, habitat, bergerie, refuge…) ou symboliques (sanctuaire, nécropoles, lieu de sépultures). Selon Gascó (2000), on observerait une augmentation de la fréquence d'occupation du milieu souterrain durant l'âge du Bronze. De nombreuses hypothèses pourraient expliquer ce phénomène : changements climatiques, mutations sociales, nouveaux codes culturels…

Le site de la grotte des Fraux constitue un élément nouveau puisque regroupant des aménagements domestiques synonymes de lieux de vie ainsi que des manifestations pariétales et dépôts de mobilier qui pourraient être le reflet de pratiques symboliques. Les recherches conduites à la grotte des Fraux visent ainsi à étudier le mode d'occupation et à réévaluer les hypothèses d'explication de ce repli temporaire vers les milieux souterrains.

I. Contextes

I.1. **Contexte géographique**

La grotte des Fraux est située au nord du département de la Dordogne, en la commune de Saint-Martin-de-Fressengeas au lieu-dit « Les Fraux » (Figure 25). Elle est située aux coordonnées suivantes (projection en Lambert 2 étendu) :

x = 484,030 km
y = 2050,670 km
z = 240 m

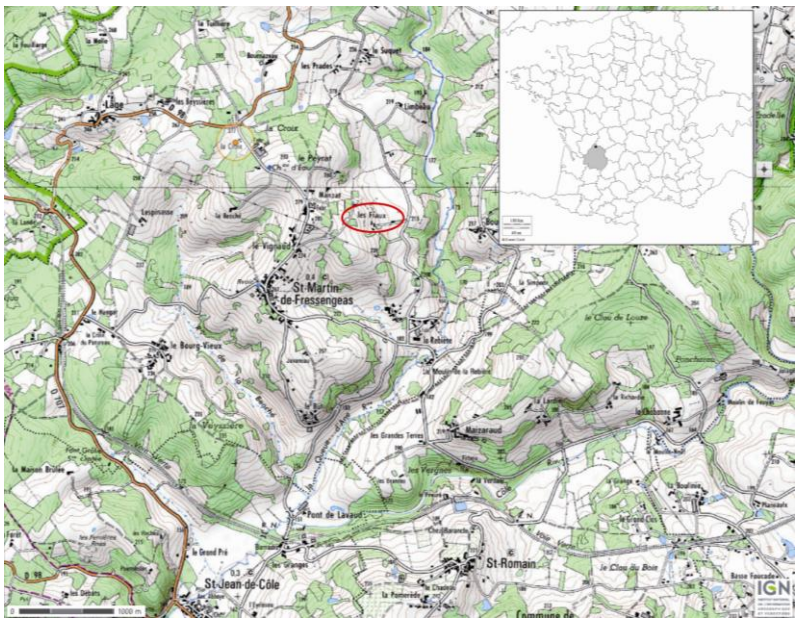


Figure 25 : Localisation géographique de la grotte des Fraux, Saint-Martin-de-Fressengeas, Dordogne. © IGN et D. Dalet.

I.2. **Contexte topographique**

Le réseau karstique s'étend sur près de 1200 m de longueur en de multiples galeries orientées Nord-Ouest/Sud-Est (Figure 26). Deux branches principales (« réseau droit » et « réseau gauche ») se ramifient horizontalement en de nombreux diverticules et galeries. Par commodité, chaque réseau a été subdivisé en secteur (secteurs 1 à 10 pour le réseau droit et 11 à 48 pour le réseau gauche) permettant une localisation aisée au sein de la cavité.

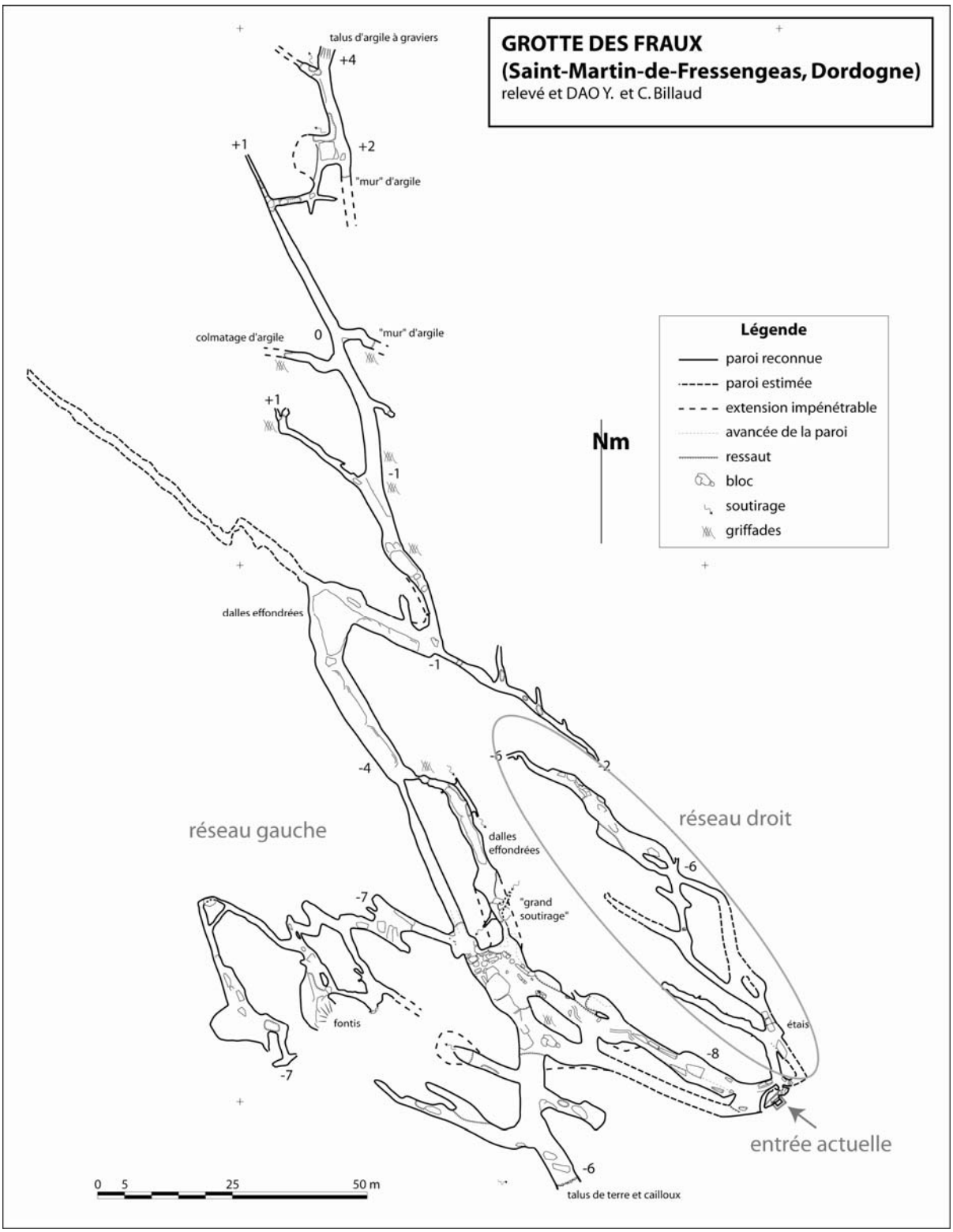


Figure 26 : Grotte des Fraux, topographie du réseau.

I.3. Contexte géologique

L'encaissant des Fraux est constitué de sédiments du Jurassique inférieur (Guillot, 1979), issus d'un dépôt fluviatile et principalement constitués, au niveau des Fraux, d'argiles, de marnes et de grès (Figure 27). Le réseau gauche, réseau principal, correspond exactement à l'une des failles figurées sur la carte géologique (Figure 27). Le réseau droit par contre ne coïncide pas avec un accident tectonique repéré sur la carte géologique. Mais il est possible que, au niveau des Fraux, le relais entre les deux accidents tectoniques soit un peu plus complexe que ce que montre l'échelle de la carte géologique.

L'étude du karst est réalisée par Yves Billaud (EDYTEM / DRASSM) et Stéphane Jaillet (EDYTEM). Elle vise à étudier la genèse, l'évolution et le fonctionnement du réseau karstique de la grotte des Fraux. La compréhension du processus qui a conduit à l'obturation du réseau est une des questions principales à laquelle ils s'intéressent afin de reconstituer le réseau tel qu'il était à la fin de l'âge du Bronze et de resituer son entrée originelle. Cependant, il n'est pour le moment pas possible de recaler dans le temps la mise en place du réseau et son évolution jusqu'à nos jours (Carozza, 2011).

© IGN

Figure 27 : Carte géologique illustrée par un extrait de la légende spécifique aux Fraux (Thiviers XIX-33).

I.4. Contexte archéologique

La grotte des Fraux présente une succession de galeries et de salles qui regroupent en leur sein de nombreux témoins de l'occupation des lieux par l'homme (Figure 28). L'équipe scientifique a souhaité mettre en place une approche intégrée de ces vestiges, dans le temps et dans l'espace, que ce soient les sols de circulation, le mobilier, les structures de combustion et les manifestations pariétales.

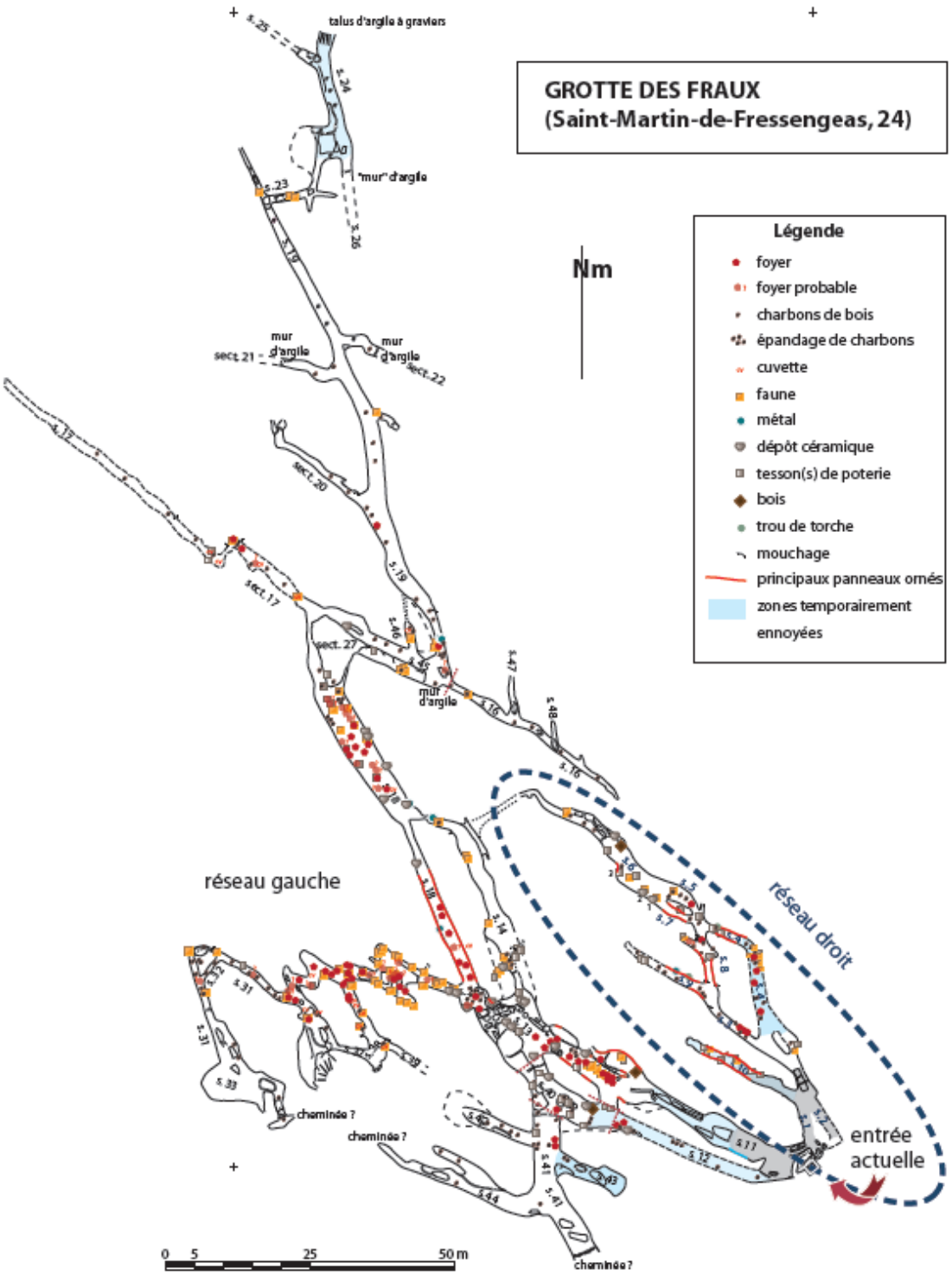


Figure 28 : Localisation de l'ensemble des vestiges liés à fréquentation humaine dans la grotte des Fraux. © A. Burens (Carozza, 2011 : p. 79)

Afin de rattacher et d'archiver, dans un système commun et cohérent, toutes les données acquises par chacun, la grotte est géoréférencée dans le système de coordonnée Lambert II étendu. De plus, la numérisation 3D de la cavité dans sa totalité est en cours (Figure 29), ceci dans l'objectif de créer un fichier (« PDF 3D ») interactif dans lequel seront insérés les résultats de l'équipe (photographies, relevés de fouille, cartographies de susceptibilité magnétique ou du champ magnétique…). La numérisation 3D s'effectue en partenariat avec Pierre Grussenmeyer et Samuel Guillemin de l'INSA de Strasbourg (UMR 7005, Laboratoire des Sciences de l'Image, de l'Informatique et de la Télécommunication) et la société FARO (fabricant de scanner).

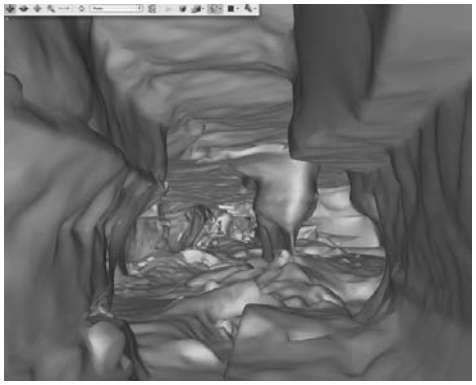


Figure 29 : Restitution 3D de l'entrée dans le secteur 13 de la grotte des Fraux. © INSA Strasbourg.

I.4.1. Conservation de la grotte des Fraux

La grotte des Fraux présente un état exceptionnel de conservation de l'ensemble des vestiges de l'occupation humaine. D'une part, la sédimentation postérieure à la dernière occupation est faible voire inexistante selon les secteurs et permet un accès aisé aux mobiliers, sols de circulations et structures de combustion. D'autre part, les manifestations pariétales ont été remarquablement conservées, certaines parois étant mêmes encore malléables.

La préservation de la grotte des Fraux dans son intégrité est une condition essentielle à son étude. Ainsi, les dépôts de mobilier ont été laissés en place et les prélèvements de mobiliers et sédiments sont réduits au minimum nécessaire. Néanmoins, des passerelles de circulation facilitant le travail de l'équipe scientifique ont été posées. Pour éviter qu'elles ne dégradent ou masquent certains vestiges, les secteurs de la grotte concernés ont été fouillés. Toutefois, afin de garder la mémoire de la grotte des Fraux telle qu'elle nous est parvenue, c'est-à-dire fossilisée après la dernière occupation, un modèle virtuel 3D reproduisant la grotte des Fraux est en cours de réalisation. Ainsi, les secteurs touchés par la pose de passerelle et/ou la fouille ont d'abord été numérisés.

I.4.2. Chronologie de la fréquentation de la grotte des Fraux

L'étude du mobilier archéologique indique que la fréquentation de la grotte des Fraux s'inscrit dans la durée puisque sont retrouvées des céramiques attribuables au Bronze moyen et au début du Bronze final (Carozza, 2010). Cependant, une difficulté réside dans le fait qu'une partie des mobiliers est déposée en surface sans lien stratigraphique avec les sols et structures de combustion. De même il n'existe pas de lien direct entre les manifestations pariétales et les horizons d'occupation.

Afin de cadrer chronologiquement la fréquentation des Fraux, onze datations ^{14}C ont été entreprises (Carozza, 2011). Elles ont été réalisées sur des charbons provenant de divers secteurs de la grotte (Figure 30) et prélevés sur différents supports : trous de torche, tracés digités, sols et structures de combustion (Tableau 4). Les résultats obtenus permettent de préciser le cadre chronologique (Figure 31, Tableau 4). Ils montrent par exemple que les deux réseaux ont probablement fonctionné simultanément. De plus, la datation réalisée sur un charbon prélevé dans un tracé digité (*Lyon : SacA 15773*) est cohérente avec celles de certains foyers et sols (Tableau 4), amenant ainsi un lien chronologique à ces manifestations pariétales.

Ainsi la fréquentation de la grotte s'inscrit dans la durée : l'occupation initiale de la grotte des Fraux se situe à la fin du Bronze moyen (à la fin du 15ème siècle et au 14ème siècle avant notre ère), période pendant laquelle l'ensemble du réseau semble accessible (droit et gauche). La datation obtenue à proximité de la sole foyère F4 indique que cette structure a fonctionné entre le 12ème siècle et le début du 10ème siècle avant notre ère, période qui correspond à l'étape médiane du Bronze final. Enfin, la date obtenue pour le secteur 10 (*Lyon-5565 : SacA-18603*), échantillon provenant du remplissage d'un gour, semble indiquer que le lieu-dit des Fraux serait occupé au premier âge du Fer, même si la cavité ne l'est plus : des charbons de l'occupation de surface se seraient probablement infiltrés avec les eaux de percolation (Carozza, 2011).

De plus amples datations sont prévues de manière à couvrir l'ensemble des secteurs de la grotte des Fraux pour affiner la chronologie de la fréquentation des Fraux, les simultanéités ou non de fonctionnement des structures de combustion, de réalisation des manifestations pariétales, de fréquentation de tel ou tel secteur… Il convient aussi de confirmer les dates obtenues étant donné le risque possible d'intrusion de charbons plus récents (exemple du secteur 10, *Lyon-5565 : SacA-18603*).

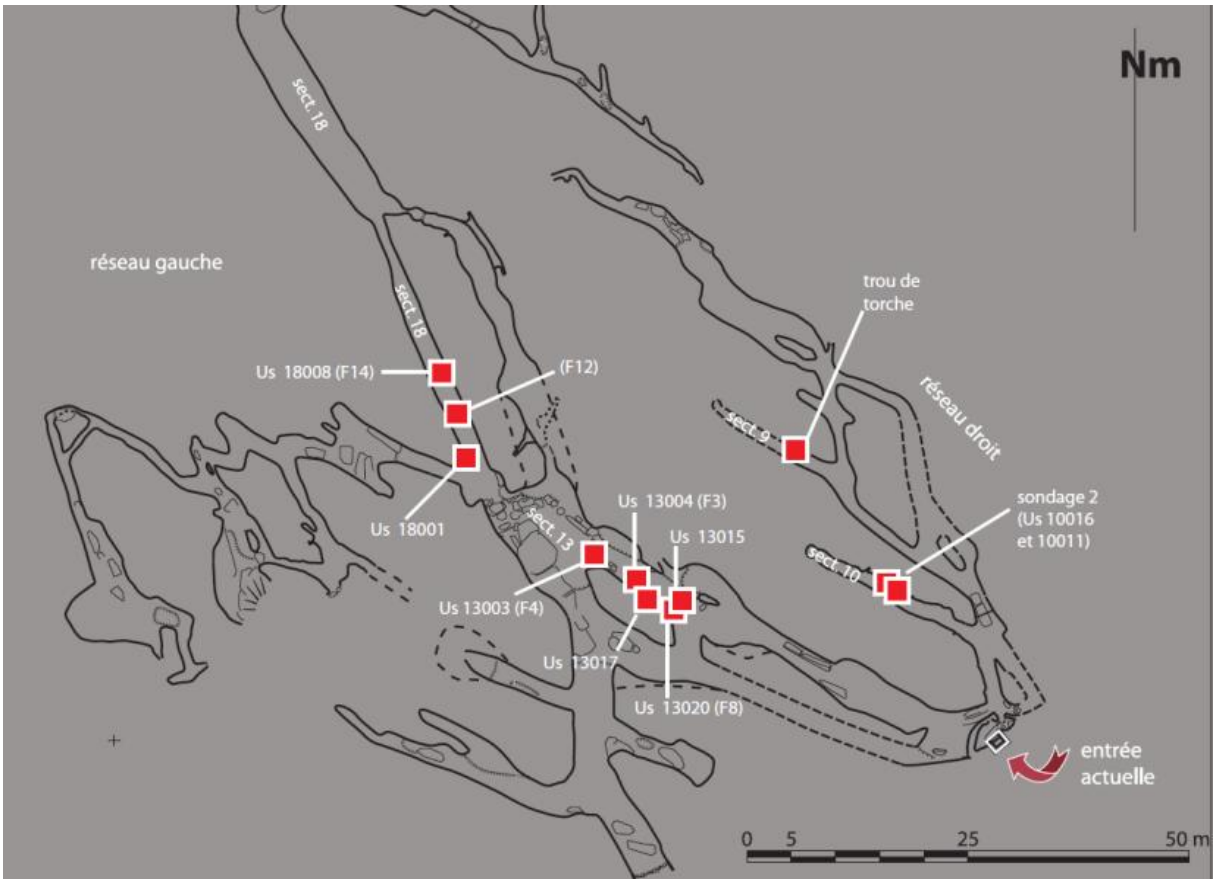


Figure 30 : Localisation des prélèvements datés par radiocarbone. © L. Carozza (Carozza, 2011 : p. 19)

	Âge BP	Date calibrée à 68.2 %	Date calibrée à 95.4 %
secteur 9 - charbon (trou de torche) ***Poz-32890***	3105 ± 35 BP	1430 BC - 1370 BC (50.0 %) 1350 BC - 1310 BC (18.2 %)	1450 BC - 1290 BC
secteur 13 - carporeste ***Poz-44008***	3075 ± 30 BP	1401 BC - 1314 BC	1416 BC - 1267 BC
secteur 13 - sol de circulation carporeste (F6) ***Poz-44009***	3075 ± 35 BP	1404 BC - 1313 BC	1425 BC - 1263 BC
secteur 18 - charbon (F14) ***Poz-44010***	3080 ± 35 BP	1408 BC - 1368 BC (32.3 %) 1361 BC - 1314 BC (35.9 %)	1425 BC - 1266 BC
secteur 18 - charbon (F12) ***Poz-44014***	3065 ± 35 BP	1396 BC - 1302 BC	1420 BC - 1259 BC (94.1 %) 1230 BC - 1220 BC (1.3 %)
secteur 18 - charbon (tracé digité) ***Lyon (SacA 15773)***	3035 ± 35 BP	1381 BC - 1335 BC (28.0 %) 1323 BC - 1261 BC (40.2 %)	1408 BC - 1208 BC (94.0 %) 1203 BC - 1195 BC (0.8 %) 1139 BC - 1135 BC (0.5 %)
secteur 13 - carporeste (F3) ***Poz-44012***	3035 ± 35 BP	1381 BC - 1335 BC (28.0 %) 1323 BC - 1261 BC (40.2 %)	1408 BC - 1208 BC (94.0 %) 1203 BC - 1195 BC (0.8 %) 1139 BC - 1135 BC (0.5 %)
secteur 13 - carporeste (F4) ***Poz-44011***	2890 ± 35 BP	1124 BC - 1013 BC	1211 BC - 974 BC (93.8 %) 956 BC - 941 BC (1.6 %)
secteur 10 - charbon ***Lyon-5566 (SacA-18604)***	3010 ± 35 BP	1370 BC - 1340 BC (9.5 %) 1320 BC - 1210 BC (58.7 %)	1390 BC - 1120 BC
secteur 10 - charbon ***Lyon-5565 (SacA-18603)***	2515 ± 35 BP	780 BC - 740 BC (13.2 %) 690 BC - 660 BC (12 %) 650 BC - 550 BC (43 %)	800 BC - 520 BC

Tableau 4 : Récapitulatifs des dates ^{14}C obtenues après calibration (logiciel OxCal v4.1.7 Bronk Ramsey (2010) ; r5 Athmosphéric data from Reimer *et al.* 2009)

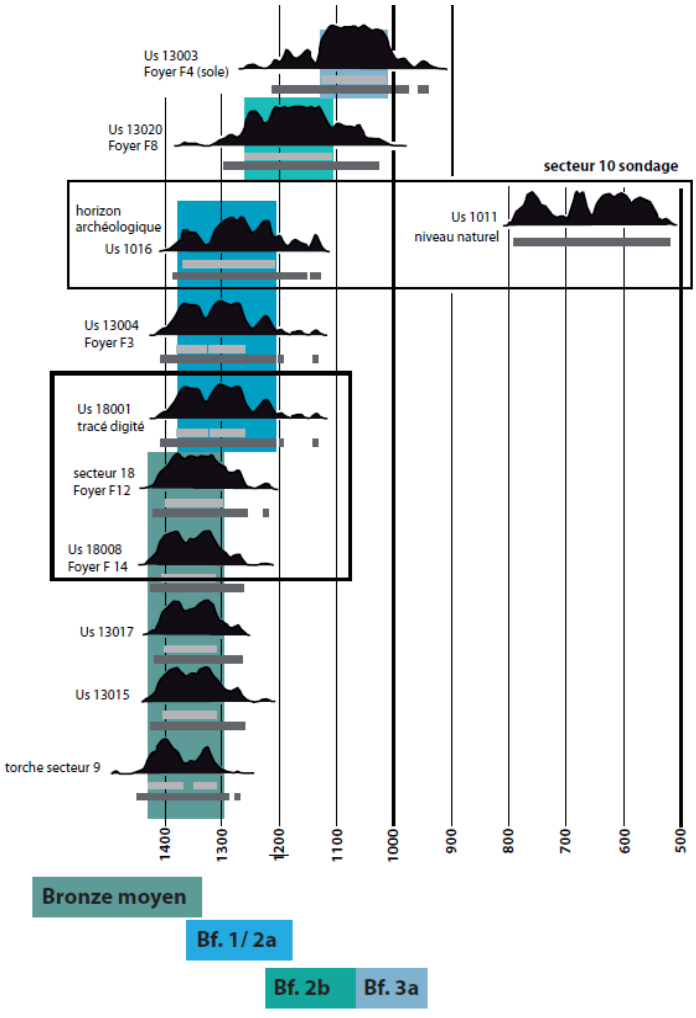


Figure 31 : Synthèse des données chronologiques.
© L. Carozza (Carozza, 2011 : p. 25).

I.4.3. Etude des vestiges

Comme le montre la Figure 28, les traces anthropiques se répartissent sur une grande partie de la cavité. Ces vestiges reposent (1) sur et dans les sols, constitués de sédiments argileux souvent associés à des grès sous une forme désagrégée (sable) ou de petits blocs ; (2) sur de grands blocs de grès détachés des parois ou du plafond qui forment parfois des éboulis importants (Figure 26). Les vestiges inventoriés (Figure 28) sont principalement des céramiques (dépôts et tessons), de la faune et des structures de combustion (foyers, épandage de charbons) ainsi que quelques objets métalliques. Enfin, les manifestations pariétales ornent de manière importante certains secteurs. Chacun de ces témoins anthropiques fait l'objet d'une étude spécifique.

I.4.3.1. *Manifestations pariétales*

L'étude des parois ornées est réalisée par Raphaëlle Bourillon (TRACES, UMR 5608) et Stephane Petrognani (ARSCAN, UMR 7041). Elle s'effectue en enregistrant et en analysant les manifestations anthropiques afin d'en définir l'origine, la chronologie et d'établir des comparaisons avec d'autres sites possédant le même style de motif.

Dans la grotte des Fraux, certaines parois sont ornées, principalement de tracés digités et de gravures non figuratives (Figure 32). La première synthèse (Carozza, 2010) réalisée à partir des œuvres des secteurs 11 et 13 ouvre des questionnements sur l'ancrage culturel de ces réalisations schématiques plus que sur leur signification, les sites de comparaison étant peu nombreux. Le rapprochement avec certains sites ibériques est une des pistes actuellement étudiées.

Par ailleurs, la numérisation de certains panneaux ornés a été réalisée à très haute résolution. Les résultats obtenus sur les tracés sont de bonne qualité et augurent d'une utilisation future pour réduire le temps des relevés pariétaux. En complément des relevés à très haute résolution ont aussi été effectués sur des tracés expérimentaux réalisés avec différents outils sur un support argileux. L'objectif est d'obtenir un référentiel tracéologique auquel comparer les tracés repérés sur les parois de la grotte des Fraux.

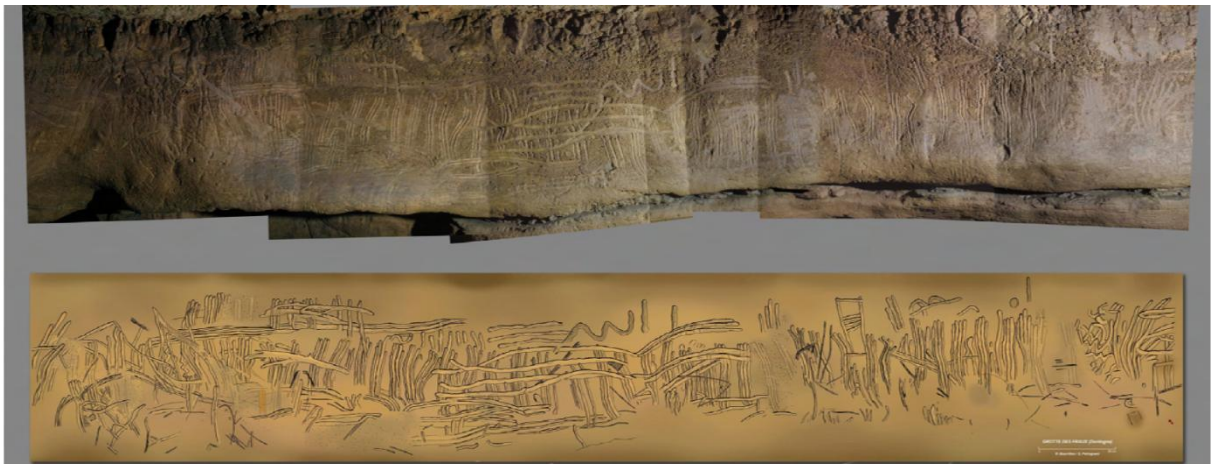


Figure 32 : Grand panneau, Secteur 13, grotte des Fraux. © R. Bourillon et S. Petrognani (Carozza, 2010 : p.81).

I.4.3.1. *Restes végétaux*

La grotte des Fraux, par sa préservation, constitue un conservatoire de la biodiversité à l'âge du Bronze. L'étude carpologique[1] (Carozza, 2011, p. 27) réalisée par Laurent Bouby (CBAEE,

[1] La carpologie est l'étude des restes de fruits et de graines.

UMR 5059) revêt un intérêt majeur car les ressources agricoles de l'âge du Bronze dans le Sud-ouest de la France sont mal connues. Ici, les restes carpologiques ont été conservés grâce à leur carbonisation. Une grande diversité taxonomique est observée et est dominée par les restes céréaliers, éléments au rôle alimentaire connu.

L'étude anthracologique réalisée par Stéphanie Thiébault (MNHN, UMR 7209) sur les charbons de la grotte des Fraux révèle des combustibles provenant d'une ambiance végétale forestière tempérée fraîche, de type chênaie-hêtraie-frênaie (Carozza, 2011, p. 29).

I.4.3.2. *Restes animaux*

L'analyse archéozoologique (Carozza, 2011, p. 30) des refus de tamisage des secteurs 13 et 18 a été effectuée par Jean-Denis Vigne (MNHN, UMR 7209). Elle contribue à la reconstitution des conditions environnementales associées aux occupations humaines. L'assemblage microfaunique identifié provient de pelotes de réjection de rapaces nocturnes, accumulées à l'entrée de la grotte et acheminées vers les secteurs 13 et 18 par les ruissellements et/ou le passage de l'homme. Les espèces identifiées apportent ainsi des informations fiables sur les paysages de l'époque. Cette étude indique un couvert végétal boisé, assez dense correspondant probablement à la période d'occupation de la grotte au Bronze moyen/final.

Par ailleurs, J.-D. Vigne a analysé trois ensembles fauniques en connexion anatomique (Carozza, 2009) situés à proximité d'une structure de combustion (F6) et interprète leur présence comme des déchets de repas mais un doute persiste pour l'un d'entre eux qui pourrait être un dépôt de viande à valeur symbolique.

I.4.3.3. *Mobilier archéologique et structure anthropique*

L'étude des dispositifs anthropiques et des ensembles mobiliers est conduite par Laurent Carozza et Albane Burens (GEODE, UMR 5602). Elle a été entreprise (1) sur les vestiges visibles et accessibles directement mais aussi (2) sur les zones fouillées au préalable de la pose des passerelles de circulation. Un nettoyage des zones concernées, un relevé au 1/5ème des surfaces, une cartographie des faciès sédimentaires ainsi que le prélèvement du mobilier ont été opérés. Plusieurs secteurs ont fait l'objet d'une étude poussée (Carozza, 2008 à 2011) qui permet la description des sédiments et des structures rencontrés.

I.5. **Bilan**

La grotte des Fraux, fréquentée durant l'âge du Bronze, constitue un site d'exception par la mise en correspondance de vestiges des domaines domestique (mobiliers, structures de combustion) et symbolique (dépôts de mobilier et art pariétal). La compréhension du statut de la grotte et de son mode d'occupation passe par une étude intégrée de chacun d'entre eux.

Parmi ces vestiges, les structures de combustion constituent un axe important de recherche. En effet, au vu de l'importance des restes liés au feu (Figure 28), une part de l'étude de la grotte passe par la compréhension de la répartition et du mode de fonctionnement des foyers. C'est dans cet axe de recherche qu'intervient le travail effectué dans cette thèse.

II. Les foyers de la grotte des Fraux

Dans la grotte des Fraux, les observations de terrain ont permis de cartographier l'ensemble des structures de combustion apparentes (Carozza, 2011 ; Figure 33).

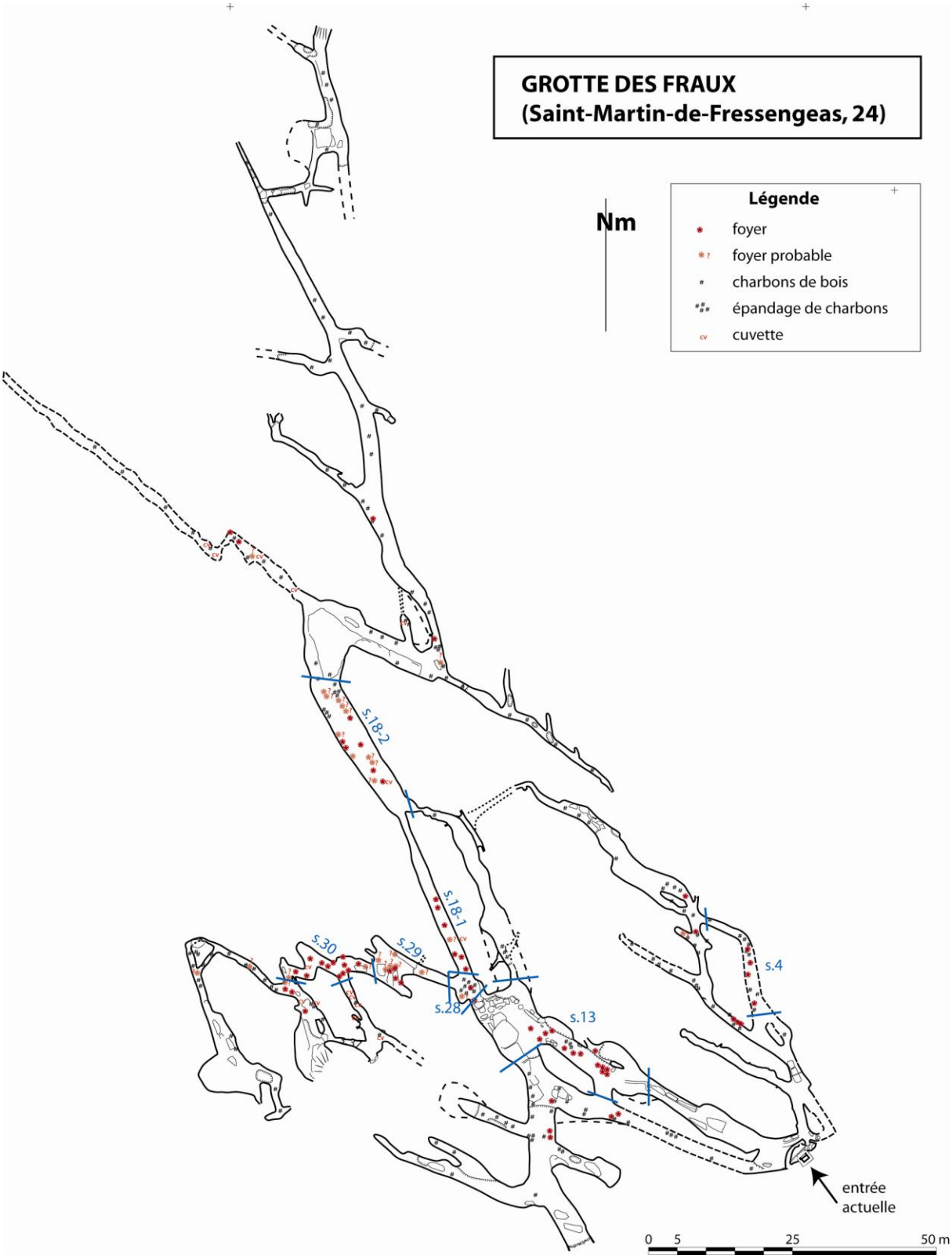


Figure 33 : Cartographie des foyers ; Grotte des Fraux. © A. Burens.

Au total 88 indices de foyers ont été repérés parmi lesquels 64 foyers. Ils sont sous la forme de paléosols et/ou blocs rubéfiés, souvent associés à des lentilles charbonneuses plus ou moins denses. Pour certains d'entre eux, des blocs de délimitation sont présents. 24 indices de foyers potentiels ont aussi été localisés. Ils sont caractérisés par de riches épandages de charbons de bois sans qu'une rubéfaction du substrat soit visible à l'œil nu.

Ces structures apparaissent sous une grande diversité typologique : des soles de cuisson construites dont l'usage domestique est indéniable ; de petits foyers aménagés sur des blocs, au sol ou en hauteur, qui peuvent s'apparenter à des feux d'éclairage ; des foyers à plat non délimités ou, pour quelques uns, avec des délimitations supposées (blocs de grès). S'ajoutent à cela une douzaine de cuvettes dont on ne peut exclure un usage plus ou moins lié au feu puisque certaines d'entre elles sont associées à des sédiments rubéfiés par la chauffe.

Les structures de combustion se concentrent pour la plupart dans quelques secteurs de la cavité (secteurs 4, 13, 18, 28, 29, 30 ; Figure 33). Leur densité diminue dans les secteurs les plus éloignés de l'entrée originelle, supposée proche de l'entrée actuelle. Cependant, les foyers sont aussi bien présents dans des salles (exemple du secteur 13) que dans des espaces réduits (exemple du secteur 18).

II.1. Exemples de structures de combustion dans des salles : le secteur 13

Le secteur 13 (Figure 33) est constitué d'une salle, dite « salle du pilier » (Figure 34) et d'une galerie (Figure 37). La salle fait environ 10 m de largeur et est organisée autour du pilier auquel fait face l'un des plus grands panneaux ornés de la grotte (Figure 32).

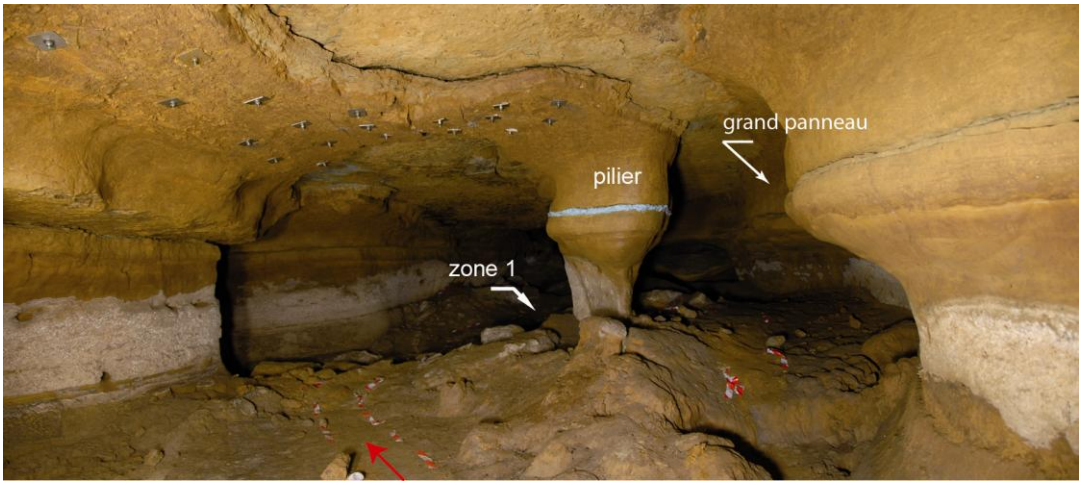


Figure 34 : Secteur 13, salle du pilier, grotte des Fraux. © cliché : A. Burens

Si on suit le chemin de rubalise de gauche sur quelques mètres (Figure 34), on arrive à une cuvette naturelle, d'environ 6m de long par un peu plus de 2m de large, adossée à un talus (zone 1). Dans cette zone, fouillée préalablement à la pose de passerelles de circulation, plusieurs structures de combustion ont été retrouvées (Figure 35 et Figure 36). La stratigraphie atteint jusqu'à 4.5 cm d'épaisseur au bout desquels on atteint le substrat : un sédiment argileux de couleur ocre-jaune incluant de petits blocs de grès. Les structures sont majoritairement des foyers à plat (F6, F7, F8, F17) sous la forme d'une surface rubéfiée souvent entourée par des produits de combustion, de petits blocs de grès altérés par la chauffe ainsi que des restes fauniques. On trouve aussi un petit foyer en cuvette (F9) de 35 cm de diamètre et contenant de nombreux petits blocs de grès altérés par la chauffe.

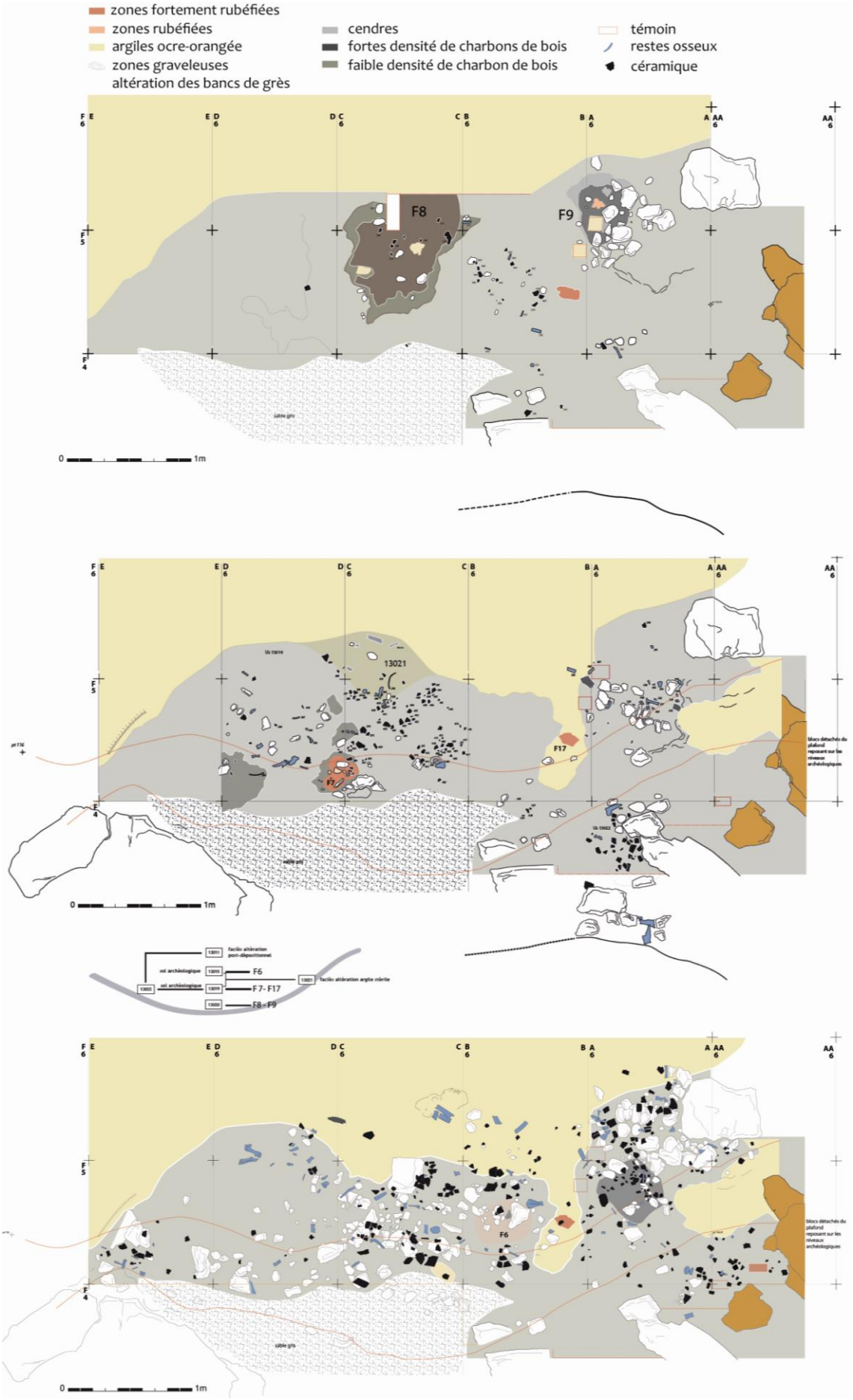


Figure 35 : Relevés archéologiques de la zone 1, secteur 13, grotte des Fraux. © relevés : L. Carozza.

Figure 36 : Structures de combustion, zone 1, secteur 13, grotte des Fraux. © cliché : A. Burens.

S'amorce ensuite une remontée du sol sur près de 6m de long (Figure 37). Là encore, quelques structures de combustion sont sous la forme de zones rubéfiées aménagées sur le substrat argileux jaune.

Figure 37 : Secteur 13, galerie dont le sol monte progressivement, grotte des Fraux. © cliché : A. Burens.

On arrive enfin à un replat (Figure 38) d'une dizaine de mètres carrés, où la station debout redevient possible, qui se singularise par un sédiment très sableux. Une grande jarre est déposée contre des blocs de grès dont l'empilement est manifestement anthropique. Certains d'entre eux portent des stigmates de chauffe (rubéfaction) en lien avec le foyer F4 (Figure 38 et Figure 39). Celui-ci est apparu après un faible décapage. Il se caractérise par la présence d'une sole de cuisson construite autour de laquelle se développent deux zones rubéfiées et des zones charbonneuses denses. La sole est aménagée selon un plan subcirculaire dont la partie rectiligne est marquée par un bourrelet en élévation de 2 à 3 cm.

Le secteur 13 se finit ensuite dans une zone caractérisée par de très nombreux blocs de grès, dont certains sont de très gros modules (éboulis).

Ce secteur montre ainsi un nombre important de structures présentant des typologies variées (foyers à plat, en cuvette ou sole construite) dans un espace assez vaste (à l'échelle de la grotte des Fraux).

Figure 38 : Replat du secteur 13 où se situe le foyer F4, grotte des Fraux. © cliché A. Burens.

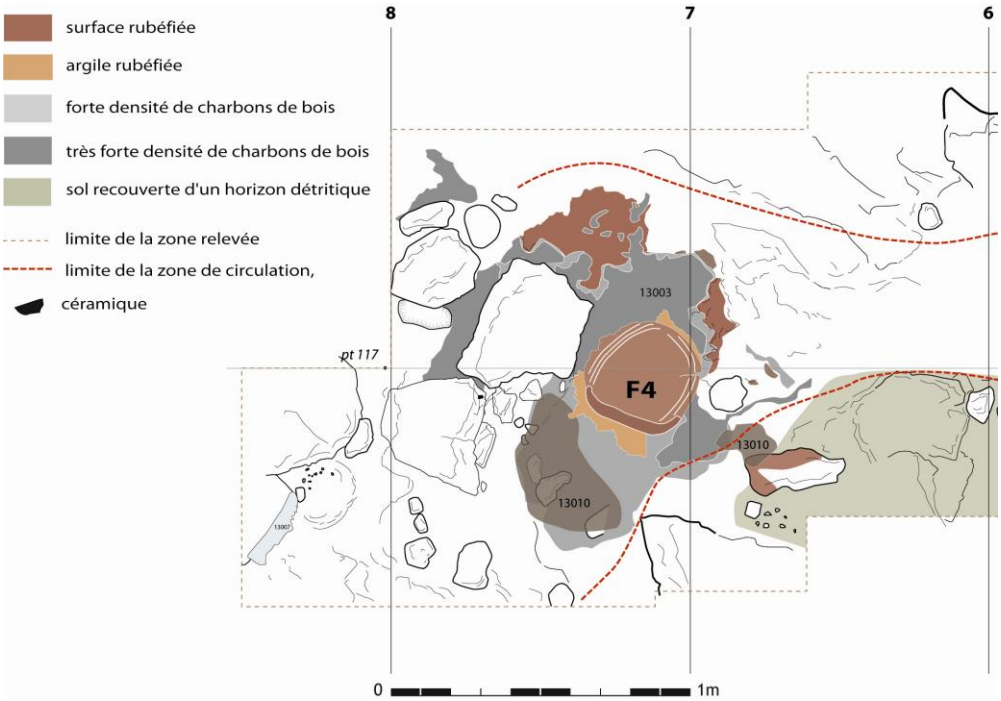


Figure 39 : Foyer F4, secteur 13, grotte des Fraux. © relevé : L. Carozza.

II.2. **Exemples de structures de combustion dans des galeries étroites : le secteur 18**

Le secteur 18 se découpe en deux galeries d'une trentaine de mètre de long chacune (Figure 33). La première partie du secteur 18 est une galerie étroite (1 m de large) et basse de plafond (1 m 20 environ ; Figure 40). Pourtant, elle ne contient pas moins de sept structures de combustion (Figure 41) : trois foyers à plat (F11, F12 et F14), deux foyers à plat avec de possibles délimitations (F10 et F13) et deux cuvettes ou foyers installés dans une cuvette (CV3 et F15).

La seconde partie du secteur 18 est une galerie qui s'élargit avec une hauteur de circulation toujours faible. Dans cette partie de nombreux foyers ont été repérés (Figure 33), dont une partie est installée dans des dépressions naturelles. Ce secteur est très éloigné de l'entrée originelle supposée et la ventilation y est actuellement très faible.

Pour ces structures de combustion situées dans des espaces réduits et/ou loin de l'entrée originelle, la question se pose sur la conduite de feux dans un environnement aussi contraignant et sur leur influence sur l'environnement (chaleur, atmosphère).

II.3. **Bilan**

La présence et l'abondance de structures de combustion de typologies variées dans une grande partie du réseau de la grotte des Fraux ont incité l'équipe scientifique à mettre en place une étude spécifique des foyers. Ils constituent en effet un élément important pour la compréhension du statut de la grotte et de son occupation. Ainsi, différentes problématiques archéologiques liées à ces structures ont émergé et sont détaillées dans la partie suivante.

Figure 40 : Secteur 18, première partie ; Grotte des Fraux. © cliché : A. Burens.

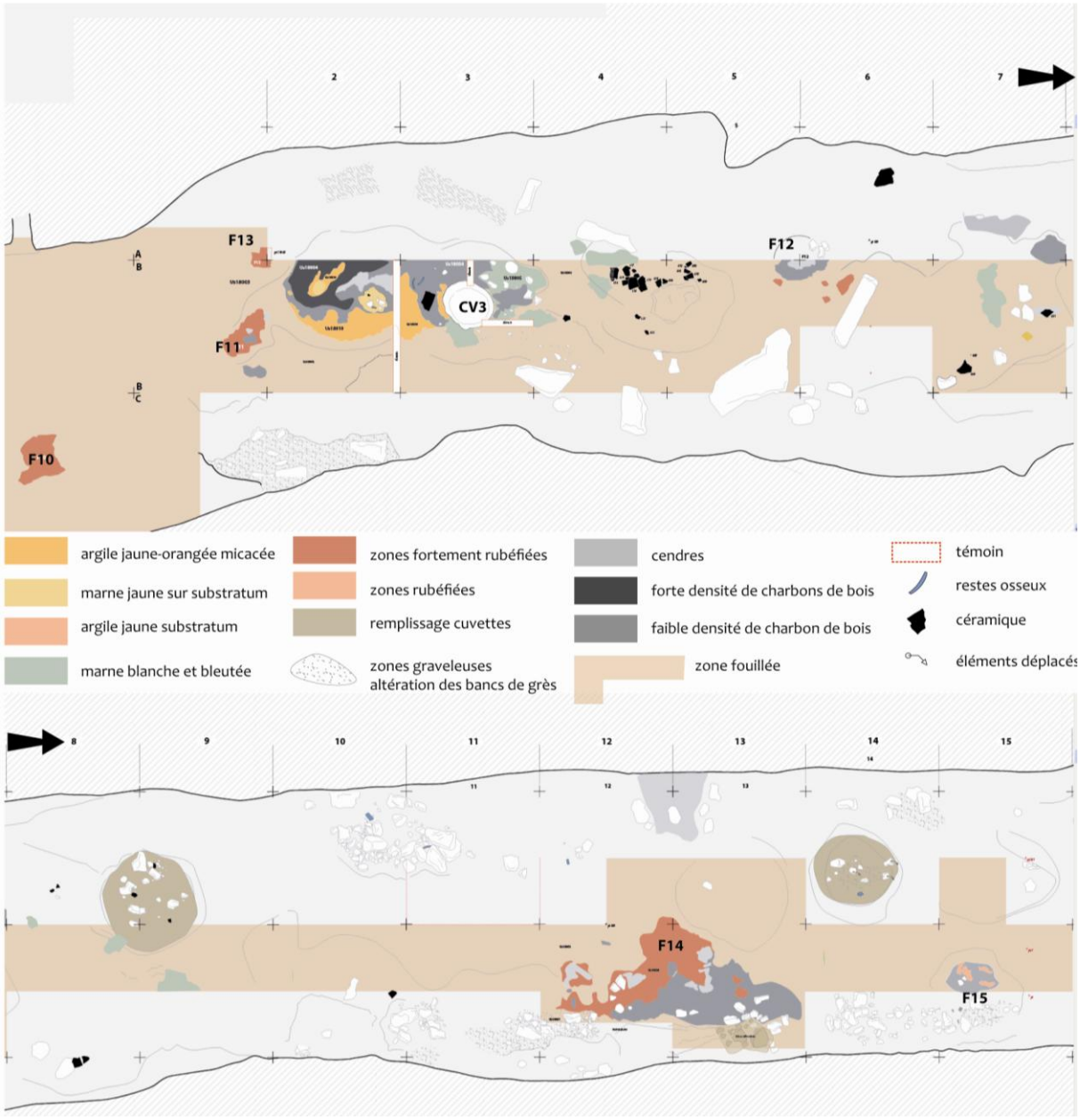


Figure 41 : Secteur 18, première partie ; grotte des Fraux. © relevés : L. Carozza.

III. Problématiques archéologiques liées aux foyers

III.1. **Localisation des foyers**

Le nombre de structures de combustion repérées au sein de la grotte des Fraux a suscité une approche cartographique des foyers, c'est-à-dire un relevé systématique des structures, fondé sur la microtopographie des zones rubéfiées et la cartographie du faciès d'altération des matériaux. Cependant, les matériaux « support » des foyers sont multiples : les paléosols sont souvent constitués de sédiments argileux dans lesquels sont intégrés de petits blocs de grès et des grès désagrégés (sable) ; certains foyers sont aussi directement posés sur des blocs de grès. Ces matériaux possèdent des comportements au feu différents. Ainsi, leur coloration et/ou degré d'altération ne peut constituer l'unique base d'une approche spatialisée.

Quels moyens est-il possible de mettre en œuvre pour compléter cette approche cartographique des structures de combustion ?

Une approche cartographique des structures de combustion par prospection magnétique est en cours. En effet, un matériau ayant chauffé présente une augmentation de sa capacité d'aimantation induite et rémanente par la création de nouvelles phases magnétiques, et porte une aimantation thermorémanente (ATR).

Une cartographie de la susceptibilité magnétique identifie les variations de la capacité d'aimantation et permet la localisation de zones fortement magnétiques pouvant correspondre à des structures de combustion dans les premiers centimètres de sédiment seulement. Par ailleurs, un matériau chauffé crée une forte déformation locale du champ magnétique autour de lui. Cette déformation du champ magnétique peut être mise en évidence par la mesure de l'intensité du champ magnétique (champ total exprimé en nT). François Lévêque et Vivien Mathé (LIENSs, UMR 6250) développent un protocole permettant un enregistrement continu de l'intensité du champ magnétique avec un positionnement des points de mesure grâce à une poursuite laser par une station totale (localisation de chaque point de mesure dans un système de coordonnées choisi par l'utilisateur), pour obtenir une cartographie 3D de l'emplacement des anomalies magnétiques (Carozza, 2011, p. 65-76).

III.2. **Fonction des foyers**

Au vu de la multitude de foyers et de leur répartition inégale au long des galeries, se pose la question de la fonction de ces feux. Peu d'éléments matériels ont été retrouvés qui nous permettent de préciser leurs fonctions.

Quelles fonctions pour les foyers de la grotte des Fraux ?

Les fonctions d'un feu dans une grotte sont multiples : il permet de s'éclairer que ce soit pendant la vie de tous les jours, pour la réalisation d'art pariétal, pour l'exploration de la caverne. Il a aussi une fonction de cuisson (viandes, végétaux) et de séchage, de chauffage de l'air mais aussi de transformations des matériaux (ocres, outils), de protection contre d'éventuels prédateurs. Cependant, à moins d'obtenir des indices univoques de la fonction d'un feu, il n'est

pas réaliste de vouloir attribuer une fonction unique aux foyers. Il est à supposer que, bien souvent, les foyers étaient multifonctionnels.

En effet, dans un feu, il existe deux phases principales de combustion, chacune pouvant être associée à des fonctions différentes (Meignen *et al.*, 2000). La première phase, de combustion vive, avec des flammes, est idéale pour l'éclairage, le chauffage, la cuisson directe. La seconde phase, de combustion incandescente, avec des braises, est plus appropriée pour la cuisson indirecte ou la transformation de matières premières. Un même foyer peut donc servir pour plusieurs activités en utilisant les différentes phases de combustion. De plus, ce même foyer peut aussi avoir été utilisé plusieurs fois. Ce dernier paramètre n'est cependant pas quantifiable à la grotte des Fraux puisque la très faible sédimentation qui la caractérise, ne permet pas d'utiliser les approches classiques (micromorphologie) pour préciser la rythmicité des feux. On observe donc un état final, conséquence d'un ou plusieurs feux.

Déterminer la fonction d'un foyer est donc un objectif difficile à atteindre au stade actuel. Néanmoins, sans déterminer leurs fonctions, il est intéressant de classifier les foyers pour étudier leur répartition dans la grotte afin de mieux appréhender le mode d'occupation de la cavité. Cette classification peut se faire selon les critères suivant : (1) la typologie des structures de combustion (foyer à plat, foyer construit), (2) les dimensions du foyer (diamètre) et (3) leur intensité de chauffe. Cette dernière correspond à l'énergie dégagée par la combustion et dépend du combustible utilisé (sa quantité et son état physique), de la durée de la combustion et des températures atteintes. L'intensité de chauffe est ainsi un paramètre indispensable pour étudier les structures de combustion.

De nombreuses techniques ont été mises en œuvre pour étudier les foyers et leur histoire thermique. Néanmoins, dans le cas de la grotte des Fraux, la condition de non-destructivité est une contrainte importante qui nécessitait le développement d'une nouvelle méthodologie.

La méthodologie mise en place dans cette thèse vise à d'appréhender l'intensité des feux tout en respectant au maximum l'intégrité des structures de combustion.

III.3. **Combustibles**

Les phases de combustion définies précédemment dépendent principalement de l'approvisionnement en combustible. Ainsi l'espèce, l'état physique (altération et humidité), la quantité, la longueur, le diamètre et la disposition du bois introduit, produisent des foyers de taille et de durée variable.

Quels combustibles ont-été utilisés pour alimenter les foyers de la grotte des Fraux ?

L'étude anthracologique en cours sur les charbons de la grotte des Fraux indique, aux premières analyses, des combustibles de type chêne, hêtre et frêne (S. Thiébault dans Carozza, 2011, p. 29).

III.4. **Fonctionnement des feux en milieu souterrain**

L'environnement particulier d'une cavité, par son espace restreint et son confinement, implique des contraintes qui doivent être prises en compte dans l'approche fonctionnelle des feux.

Plusieurs feux peuvent-ils fonctionner simultanément dans une galerie ?
La conduite des feux est-elle la même dans les différents points de la grotte ?
Quelles est l'influence des feux sur l'environnement ?

Ces aspects vont être abordés à travers la simulation numérique au sein du modèle en 3D de la grotte des Fraux actuellement en cours d'acquisition (INSA, Strasbourg). Cette recherche est conduite par Delphine Lacanette (I2M, Bordeaux).

Le code numérique de mécanique des fluides utilisé (Thétis) permet de simuler les écoulements thermoaérauliques en milieu souterrain (Lacanette *et al*., 2007 ; 2009). Cependant, il est au préalable indispensable de connaître le fonctionnement climatique de la grotte : variations annuelles des températures, de l'humidité ainsi que des vitesses de déplacement de l'air. La grotte a été pourvue des capteurs nécessaires qui mesurent ces paramètres essentiels pour la construction de simulations. Les écoulements naturels peuvent ainsi être simulés.

L'étape suivante est la simulation de l'influence d'un ou plusieurs feux sur l'environnement. Dans un premier temps, les feux pourraient être simulés simplement par une source de chaleur (opération possible avec le code numérique actuel). Il serait ainsi possible de voir leur influence sur les écoulements de l'air (sens, vitesse…). Dans un second temps, l'intégration d'un module supplémentaire dans le code numérique sera nécessaire pour simuler la combustion avec ses émissions de particules et de fumées. Il sera ainsi possible d'appréhender les conditions d'évacuation des gaz et fumées émises par les feux et par là même, d'approcher les conditions de vie dans la grotte.

Pour le moment, le relevé 3D de la grotte n'est pas complet. Cependant de premières simulations pourraient être réalisées dans des zones qui ont pu être circonscrites naturellement (réseau droit/réseau gauche). De plus, certaines configurations présentes dans la grotte soulèvent des points intéressants du point de vue climatique (Lacanette dans Carozza, 2011) : (1) des piliers qui peuvent potentiellement induire des écoulements particuliers et (2) des étroitures mettant en relation de grands volumes de part et d'autre (secteur 18).

III.4.1. Interprétation archéologique

Enfin, en replaçant les foyers dans le contexte de la grotte, considérée comme un tout indissociable :

Quels liens existe-t-il entre la position des foyers, leur fonction et l'emplacement des panneaux ornés ?

A long terme, en recoupant les informations obtenues par l'archéologie, l'étude des manifestations pariétales ainsi que l'analyse des structures de combustion (emplacement par rapport aux parois ornées, typologie, intensité de chauffe) et leur influence sur l'environnement (chaleur, lumière, fumées…), on peut espérer obtenir des éléments sur le choix des emplacements des foyers et sur leur finalité, artistique ou domestique.

IV. Bilan

Les structures de combustion de la grotte des Fraux nécessitent une étude approfondie pour appréhender l'ensemble de ces questions et ainsi comprendre le mode d'occupation de la cavité.

Nous nous sommes intéressés à la problématique de l'intensité de chauffe de ces structures afin d'apporter un élément pour l'étude des foyers comme témoins de la fréquentation humaine. Ce doctorat est toutefois un développement méthodologique pour atteindre le paramètre température et intensité de chauffe. Il ne sera pas ici question de répondre aux problématiques archéologiques dans leur ensemble mais bien de tenter de mettre en place une méthodologie qui fournira une information complémentaire sur les foyers afin de contribuer à leur étude.

* *
*

Le site de la grotte des Fraux et le contexte de notre travail ayant été présentés, le corpus d'étude, constitué de trois foyers archéologiques et d'un foyer expérimental, sera développé dans les deux chapitres suivants.

Chapitre 5 : Du choix des foyers archéologiques aux prélèvements

Parmi les structures de combustion présentes dans le réseau de la grotte des Fraux, trois foyers ont été choisis pour développer et tester notre méthodologie d'étude thermométrique des foyers.

Dans un premier temps, les cartographies de susceptibilité magnétique *in situ,* dont la réalisation est instantanée et non destructive, ont permis la délimitation des structures de combustion étudiées.

Dans un second temps, l'emplacement des prélèvements sur chaque foyer a été fixé en tenant compte des variations de la susceptibilité magnétique. Le choix, la position et la nature de chaque prélèvement seront précisés.

I. Sélection de trois foyers de la grotte des Fraux

Les trois foyers étudiés sont situés dans le secteur 13 (Figure 42). Ils ont été choisis pour plusieurs raisons détaillées ci-après.

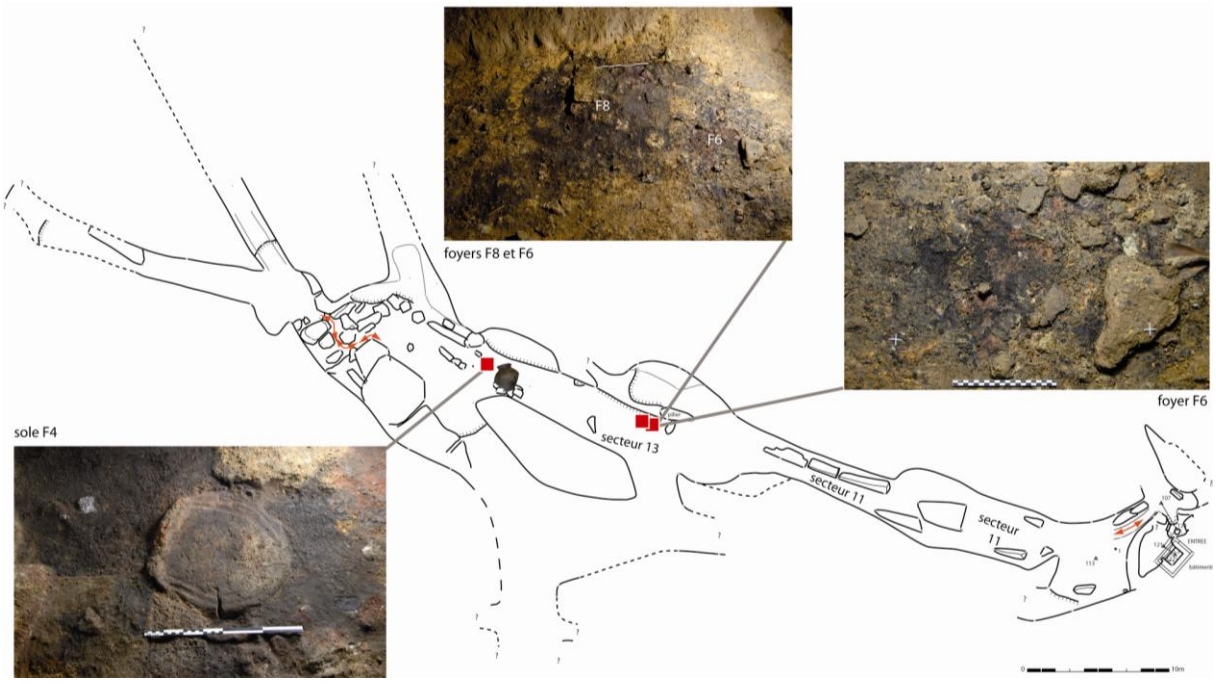


Figure 42 : Localisation des trois foyers étudiés F4, F6 et F8 dans le secteur 13, grotte des Fraux. (d'après A. Burens).

I.1. Le foyer F4

Le premier foyer choisi et étudié (chronologiquement parlant) est le foyer F4 (Figure 42). Cette structure, d'un caractère exceptionnel dans la grotte des Fraux (sole construite associée à une grande jarre à col), très accessible et en excellent état de conservation, était une zone de chauffe avérée sur un sédiment majoritairement gréseux. Nous étions ainsi certains d'avoir des grains de quartz avec des états de chauffe variables à mesurer par TL. En conséquence, le foyer F4 a été sélectionné pour mettre en place notre méthodologie de paléothermométrie par TL.

Cette structure de combustion (Figure 43) est constituée d'une sole construite, probablement une sole de cuisson ou sole foyère, modelée avec un sédiment argileux. Elle est de plan subcirculaire dont la partie rectiligne est marquée par un bourrelet en élévation de 2 à 3 cm. Elle présente des fissurations visibles sur la surface (Figure 43, droite).

Figure 43 : Foyer F4, secteur 13 - zone 3, grotte des Fraux. © cliché : A. Burens.

Le substratum de cette zone est constitué de blocs de grès jaune désagrégés encore sous la forme de bloc (dalle de grès au devant de la sole ; Figure 43, gauche) ou bien sous la forme d'un sédiment sablo-argileux jaune. La sole est au centre d'une zone rubéfiée composée principalement de grès désagrégés, de lentilles charbonneuses et de blocs de grès dressés le long de la paroi qui présentent des stigmates de chauffe (Figure 44).

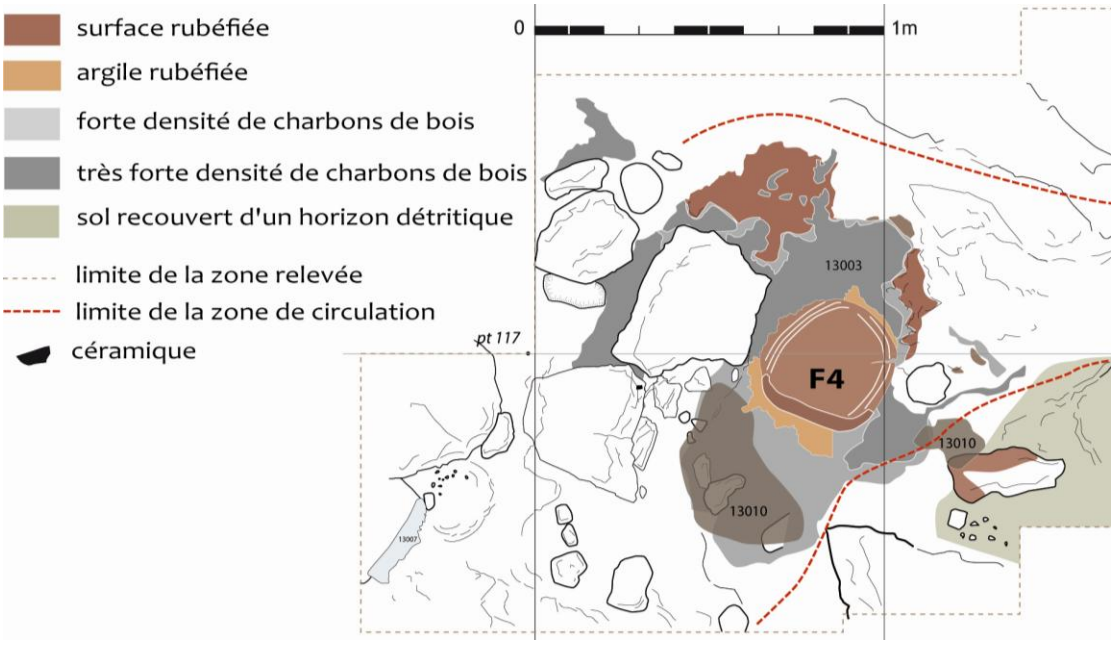


Figure 44 : Relevé du foyer F4, secteur 13, grotte des Fraux. © relevé : L. Carozza

I.2. **Les foyers F6 et F8**

A l'issue de l'étude du foyer F4, nous avons souhaité tester notre méthodologie sur une autre structure de combustion. Une partie du secteur 13 avait été fouillée (zone 1, Figure 35) et avait laissé apparaître plusieurs structures de combustion. Parmi elles, deux ont été choisies pour notre étude, les foyers F6 et F8 (Figure 42), car elles présentaient un changement de typologie et de substrat, variations intéressantes pour éprouver le protocole mis en place. De plus, le foyer F6 avait été sélectionné par l'équipe scientifique pour une étude archéomagnétique afin de constituer un point de référence sur les courbes de variation du champ magnétique (Hervé, 2012). Ainsi, le foyer F6 étant « sacrifié », il nous a semblé judicieux d'effectuer des prélèvements jumeaux pour l'étude TL et l'étude magnétique.

Ces deux structures sont des foyers à plat qui reposent sur un sédiment argileux de couleur ocre-jaune lorsqu'il n'est pas affecté par la chauffe et rouge (pourpre/lie de vin) lorsqu'il est rubéfié (Figure 45). De petits blocs de grès reposent sur ou sont intégrés dans ce substrat et présentent parfois des stigmates de chauffe (rubéfaction). Le foyer F6 est repéré par une zone rubéfiée d'environ 30 cm de diamètre. Le foyer F8 est surtout visible par une lentille charbonneuse de 1 m de diamètre associée à quelques zones rubéfiées.

Figure 45 : Foyers F6 et F8, grotte des Fraux. © cliché : A. Burens.

II. Stratégie d'échantillonnage

La contrainte première du développement méthodologique est de minimiser la destruction des foyers et donc de réaliser le moins de prélèvements possible et dans des quantités minimales (juste ce qui est nécessaire aux mesures). La stratégie de prélèvement mise en place repose sur des cartographies de susceptibilité magnétique. Elles permettent en effet de délimiter les structures de combustion à l'affleurement (profondeur d'investigation du KT-9 de 2 cm environ) par une mesure instantanée et non destructive. Les cartographies ont été réalisées avec un pas de mesure de 5 cm en accord avec la dimension d'intégration spatiale du capteur du KT-9.

L'hypothèse sur laquelle nous avons bâti notre raisonnement est que les variations de susceptibilité magnétique sont représentatives des variations de températures atteintes par les sédiments (plus la susceptibilité magnétique est élevée, plus la température est élevée). Les prélèvements ont alors été réalisés sur des radiales de gradients de susceptibilité magnétique donc *a priori* de température.

II.1. **Foyer F4**

II.1.1. Cartographie de susceptibilité magnétique

Trois cartographies de susceptibilité magnétique (Figure 46 et Figure 47) ont été réalisées lors de deux campagnes (2008 et 2010). Le géoréférencement, dans le système de coordonnées Lambert 2 étendu, de points particuliers de chaque carte a permis une superposition des données pour le foyer F4.

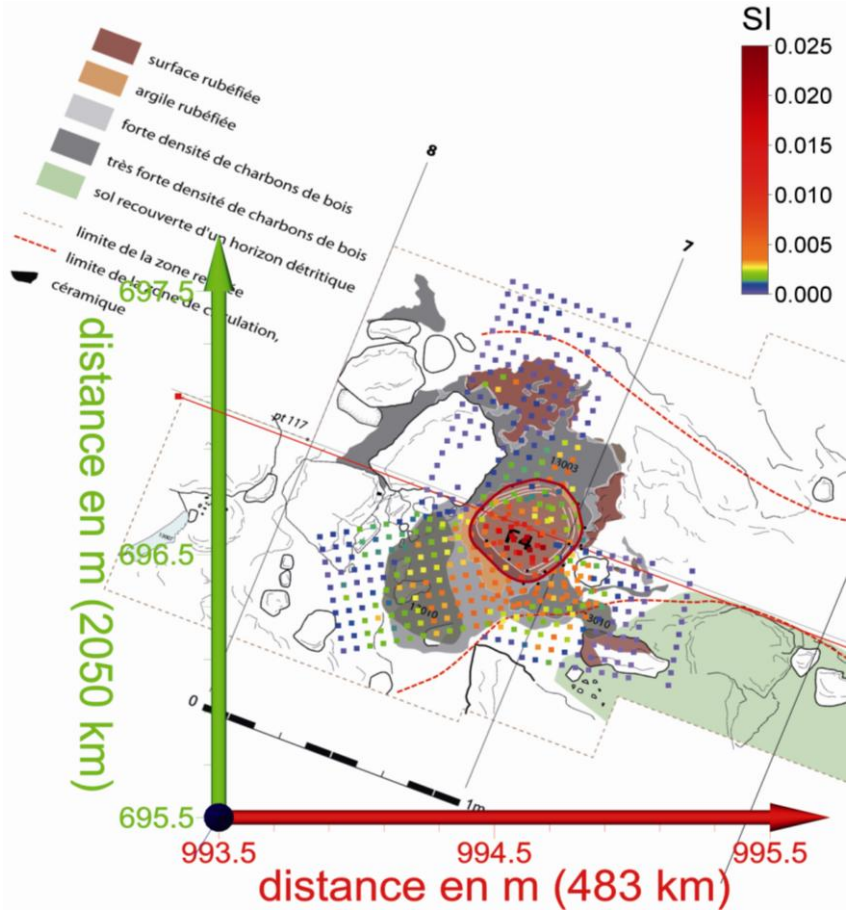


Figure 46 : Cartographie de susceptibilité magnétique superposée au relevé archéologique du foyer F4, secteur 13, grotte des Fraux. © relevé : L. Carozza.

Sur les axes, on a retiré l'amorce kilométrique associée pour des raisons de lisibilité :
483 km sur X
2050 km sur Y

La superposition des données est effectuée (1) à l'aide de points géoréférencés au moment de la réalisation des cartographies et (2) avec l'axe entre deux points fixes dans la grotte des Fraux (points topographiques 116 et 117) qui correspond à la ligne rouge sur la Figure 46. Le décalage entre le relevé et la carte de susceptibilité magnétique (décalage entre la ligne rouge et la ligne pointillé du relevé) est de l'ordre de 2 à 3 cm. On a donc une erreur centimétrique sur le positionnement des points de mesures. La sole est bordée d'un trait rouge de manière à la garder comme point de repère sur toutes les figures.

De plus, deux modes de représentations ont été utilisés pour la carte de susceptibilité magnétique : un mode point par point (Figure 47) lorsque plusieurs cartes sont superposées afin de pouvoir observer les recouvrements ou en continu lorsqu'il n'y a qu'une carte (Figure 48).

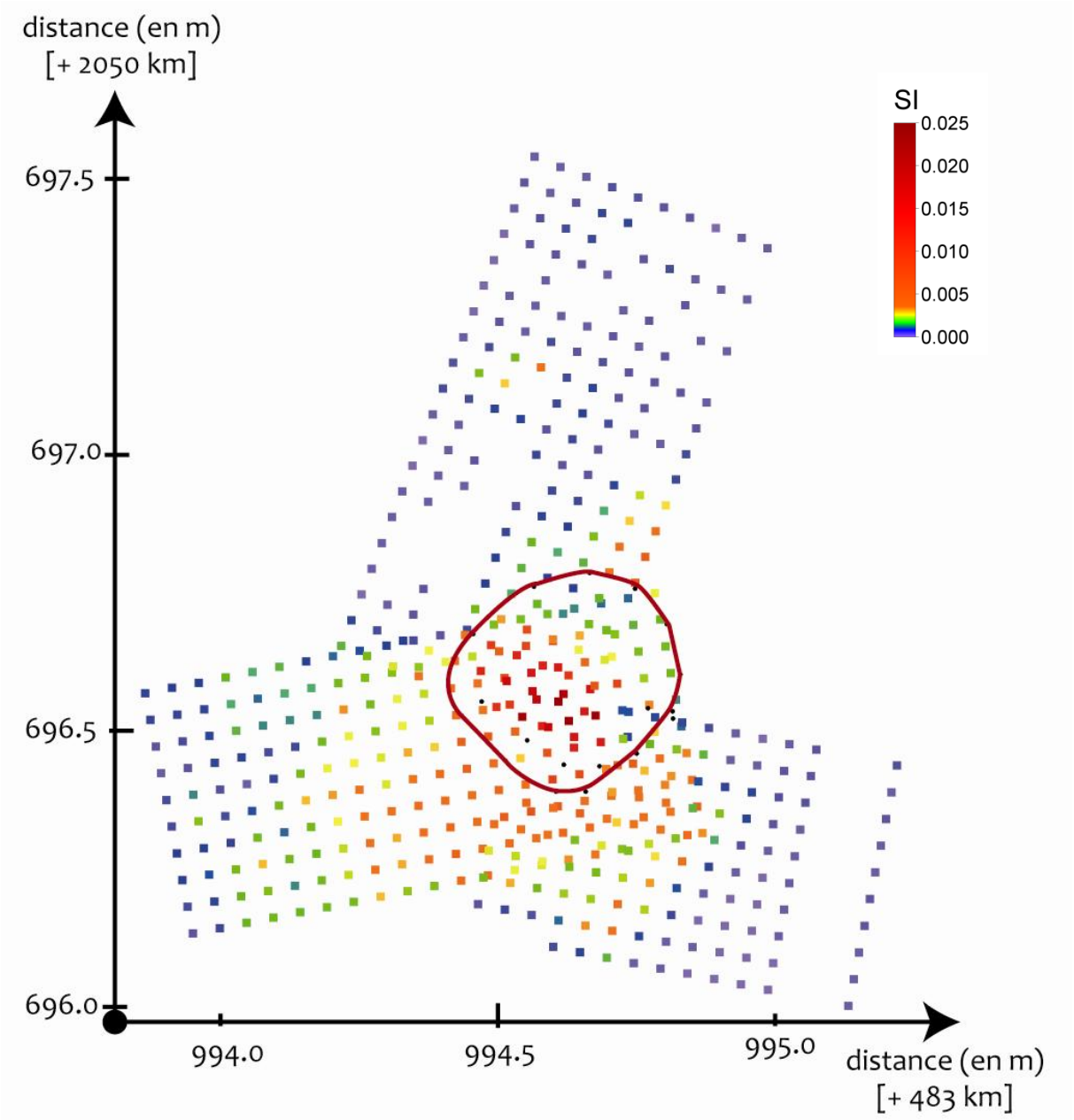


Figure 47 : Cartographie de susceptibilité magnétique (en SI) du foyer F4, secteur 13, grotte des Fraux.

La superposition des trois cartes de susceptibilité magnétique est cohérente puisque deux points jumeaux (ou presque) mesurés dans deux cartes différentes ont des valeurs de susceptibilité magnétique proches. Cette cartographie de susceptibilité magnétique laisse ainsi apparaître plusieurs comportements :

- la sole foyère, constituée d'un sédiment argileux, possède les valeurs de susceptibilité magnétique les plus élevées (22 x 10^{-3} SI au maximum) qui sont concentrées dans la moitié du côté du bourrelet. L'interprétation la plus simple est de considérer que la sole a été soumise à plusieurs chauffes intenses, ce qui paraît en accord avec sa fonction.

- avec des valeurs de susceptibilité magnétique plus faibles (entre 1 et 5 x 10^{-3} SI), viennent ensuite les zones rubéfiées de sédiments sablo-argileux autour de la sole, la zone rubéfiée au dessus de la sole (Figure 46) et les lentilles charbonneuses en s'éloignant de la sole derrière le bourrelet. Cette dernière zone, recouverte d'une couche charbonneuse, laisse parfois apparaître la présence de sédiments rubéfiés qui pourraient expliquer les valeurs de susceptibilité magnétique assez fortes.

- les valeurs les plus faibles (< 1 x 10^{-3} SI ; 10^{-5} SI au minimum) sont associées soit à des blocs de grès désagrégés, soit à des sédiments sablo-argileux recouverts ou non de lentilles charbonneuses. Il est possible, étant donnée la nature sablo-argileuse des sédiments riches en grès désagrégés que le signal magnétique soit dilué par la présence du quartz ce qui entraine une susceptibilité magnétique plus faible. Pour les zones où le sédiment (sablo-argileux) non rubéfié semble identique à celui situé à proximité et rubéfié (et de plus forte susceptibilité magnétique), on pourrait penser qu'il n'y a pas eu de chauffe (ou tout du moins pas assez intense pour rubéfier le matériau et augmenter la susceptibilité magnétique). Ainsi, les zones concernées par les valeurs les plus faibles sont (1) plutôt gréseuses et/ou (2) probablement non chauffées.

II.1.2. Localisation des prélèvements

Lors de la phase de prélèvements (en 2008), la cartographie de susceptibilité magnétique était assez restreinte (Figure 48). Les 21 premiers échantillons ont été prélevés en utilisant cette cartographie. Puis 12 autres prélèvements ont été effectués, principalement suivant une grande diagonale qui traverse la structure (Figure 49). Le n°20 n'existe pas car son prélèvement aurait été trop visible sur la surface de la sole.

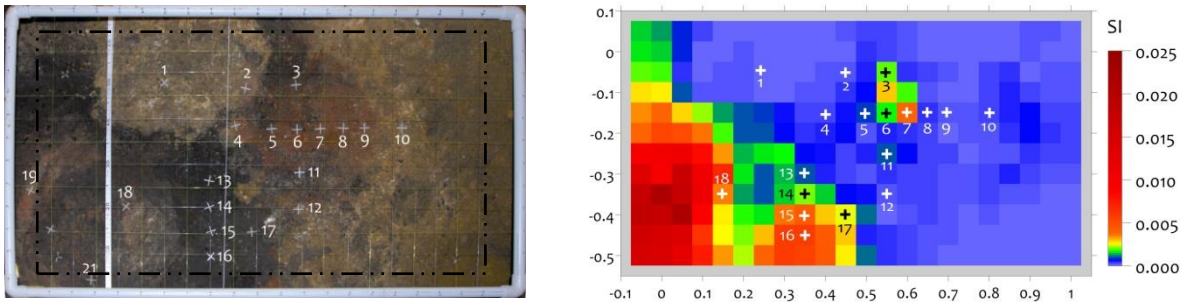


Figure 48 : Localisation et cartographie de susceptibilité magnétique du foyer F4 ainsi que emplacement des prélèvements. © cliché : A. Burens

Chaque échantillon consiste en un prélèvement réalisé avec une spatule, en surface et jusqu'à 1 cm de profondeur au maximum et de quelques grammes (< 2 g) de matériaux, quantité minimale permettant de faire les mesures de TL après extraction des grains de quartz. Chaque prélèvement est décrit dans le Tableau 5. On y distingue quatre types de matériaux prélevés :

- ceux provenant de la dalle de grès (au dessus de la sole, Figure 48), qui sont du grès non rubéfié au cœur de la dalle (n°1) et rubéfié sur les bords (n° 2 et 4) ;

- ceux provenant de la sole foyère, qui sont un sédiment argileux rubéfié (n°18, 19 et 21) ;

- ceux qui sont un sédiment sablo-argileux issu de la désagrégation de grès rubéfiés (n°5 à 9, 11 et 22 à 24), avec la présence de quelques charbons (n°25 et 26) ou non rubéfié (n°10 et 12) ;

- ceux qui sont issus des zones très charbonneuses entourant la sole dont les prélèvements sont un sédiment sablo-argileux fortement charbonneux (n°13 à 17 et 27 à 34).

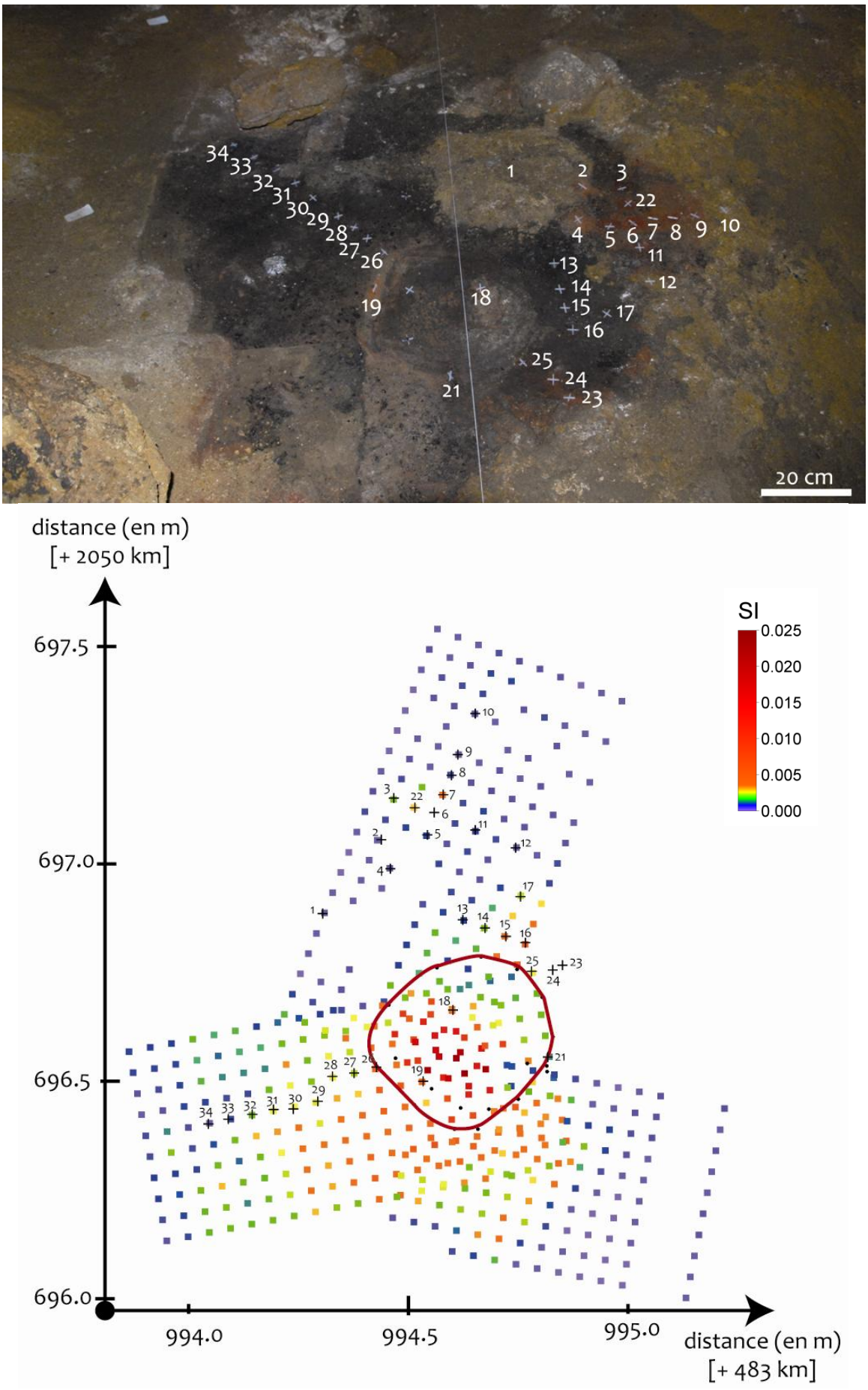


Figure 49 : Prélèvements réalisés sur le foyer F4 localisés par les croix sur un cliché du foyer F4 (© A. Burens) et sur la cartographie de susceptibilité magnétique.

n°	BDX[2]	description
1	12619	dans la dalle de grès, non rubéfié
2	12620	sur le bord de la dalle de grès, rubéfié
3	12621	sédiment sablo-argileux, rubéfié
4	12622	sur le bord de la dalle de grès, rubéfié
5	12623	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié
6	12624	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié
7	12625	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié
8	12626	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié
9	12627	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié
10	12628	sédiment sablo-argileux cru, non rubéfié
11	12629	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié
12	12630	sédiment sablo-argileux cru, non rubéfié
13	12631	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
14	12632	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
15	12633	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
16	12634	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
17	12635	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
18	12636	surface de la sole : sédiment argileux, rubéfié
19	12637	bourrelet de la sole : sédiment argileux, rubéfié
21	12638	bord fendu de la sole : sédiment argileux rubéfié
22	12639	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié
23	12640	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié
24	12641	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié
25	12642	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié, quelques charbons
26	12643	sédiment sablo-argileux cuit, rubéfié, quelques charbons
27	12644	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
28	12645	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
29	12646	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
30	12647	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
31	12648	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
32	12649	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
33	12650	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon
34	12651	sédiment sablo-argileux, beaucoup de charbon

Tableau 5 : Numéros et descriptif des prélèvements du foyer F4.

II.2. **Foyers F6 et F8**

II.2.1. Cartographie de susceptibilité magnétique

La cartographie de susceptibilité magnétique réalisée sur la zone fouillée met en évidence les deux foyers F6 et F8 repérés archéologiquement (Figure 50, Figure 51) : le foyer F6 présente les valeurs de susceptibilité magnétique les plus fortes (9 x 10^{-3} SI) qui correspondent à la zone de sédiments argileux rubéfiés. Ces valeurs fortes, très localisées, sont entourées par des valeurs plus faibles (autour de 2 x 10^{-3} SI). Le foyer F8, bien visible à l'œil nu par son épandage de charbons de bois, n'est apparent en susceptibilité magnétique que dans par sa moitié gauche et

[2] : Le numéro de BDX (Bordeaux) correspond au numéro d'inventaire des prélèvements à l'IRAMAT-CRP2A.

légèrement en haut à droite (x = -0.8 m, y = 0.95 m), zones qui laissent apparaître des rubéfactions, avec des valeurs plus faibles de susceptibilité magnétique (autour de 2 x 10^{-3} SI).

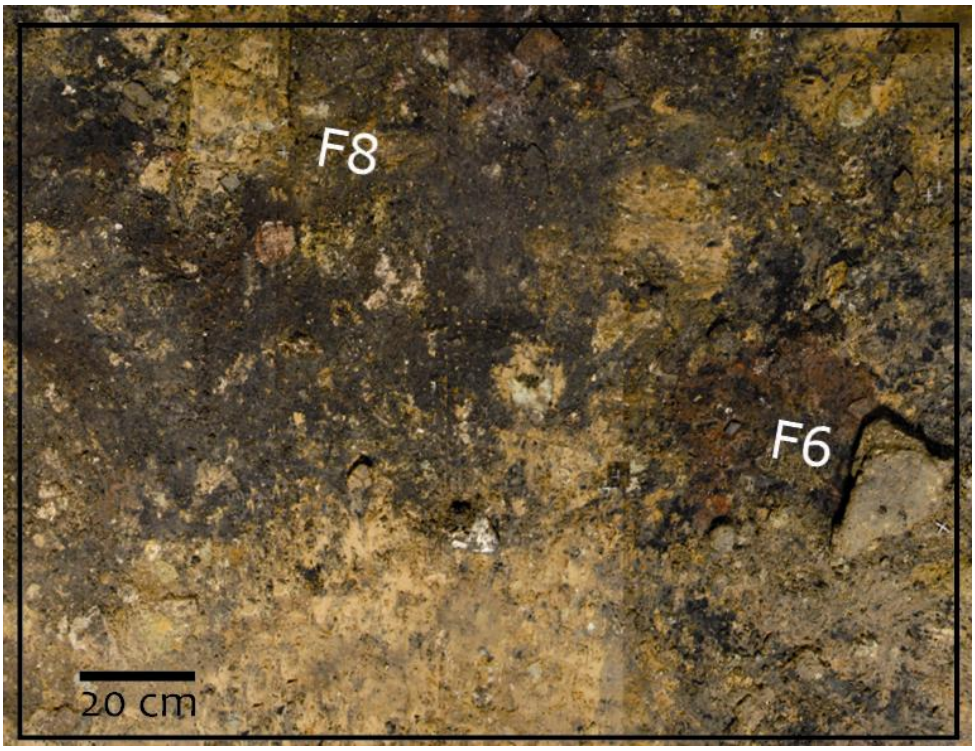


Figure 50 : Vue d'ensemble de la zone de cartographie de susceptibilité magnétique et état des foyers avant les prélèvements. © cliché : A.Burens.

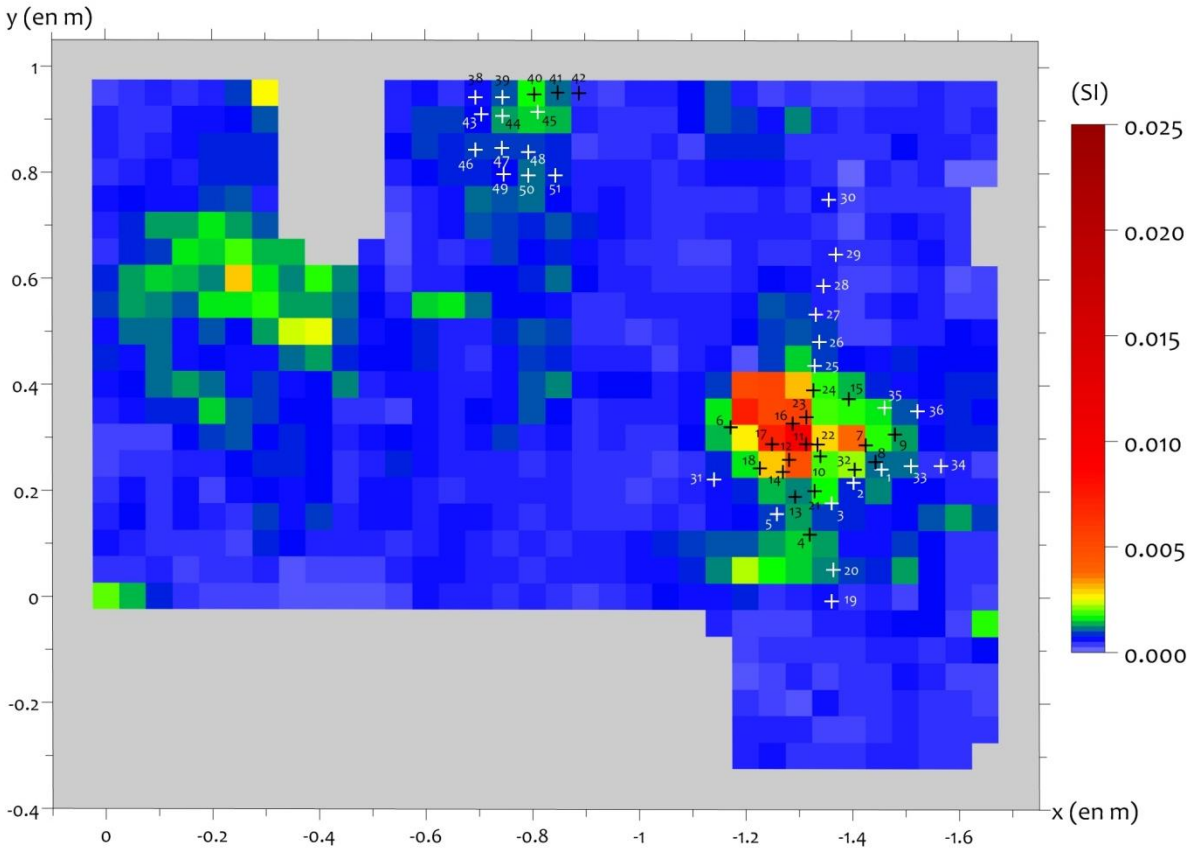


Figure 51 : Cartographie de susceptibilité magnétique des foyers F6 et F8 et emplacement des prélèvements. Les zones grisées sont des points non mesurés. © cliché : A. Burens.

Si on considère l'hypothèse que les valeurs de susceptibilité magnétique sont une fonction monotone des températures atteintes, alors les sédiments du foyer F6 semblent plus chauffés que ceux du foyer F8. Les sédiments argileux entourant les deux foyers présentent des valeurs de susceptibilité magnétique faibles (≤1 x 10^{-3} SI ; 10^{-4} SI au minimum).

Comparaison avec le foyer F4

Les valeurs maximales de susceptibilité magnétique mesurées sur les deux foyers F6 et F8, (9 x 10^{-3} SI sur le foyer F6) sont :

- inférieures à celles mesurées **sur la sole** du foyer F4 (22 x 10^{-3} SI). Là encore, l'hypothèse la plus simple est que la sole du foyer F4 a été soumise à des chauffes plus intenses ou plus nombreuses que le foyer F6.
- supérieures à celles mesurées **autour de la sole** du foyer F4 (5 x 10^{-3} SI). Deux hypothèses dont les effets sont probablement combinés peuvent expliquer cette observation : (1) les sédiments ont été soumis à des chauffes d'intensité et de durée variables entrainant des transformations d'ampleur différentes et (2) il y a moins de précurseurs magnétiques (qui se transforme en magnétite/maghémite) et plus de quartz (minéral diamagnétique) dans le sédiment sablo-argileux du foyer F4 que dans le sédiment argileux du foyer F6 induisant des valeurs de susceptibilité magnétique plus faibles.

De même, les valeurs minimales de susceptibilité magnétique mesurées sur les sédiments non affectés par la chauffe sont inférieures pour le foyer F4 (1 x10^{-5} SI) que pour les foyers F6 et F8 (10 x 10^{-5} SI). La présence plus importante de quartz dans le premier sédiment est certainement l'une des principales causes de cette différence.

II.2.2. Localisation des prélèvements

II.2.2.1. *Le foyer F8*

Le foyer F8 a fait l'objet de 14 prélèvements (n°38 à 51, Figure 52) pour une étude par TL. Ils sont regroupés sur une petite partie qui apparaissait rubéfiée et dont les valeurs de susceptibilité magnétique étaient faibles à moyennes (Figure 51). Ces prélèvements sont décrits dans le Tableau 6.

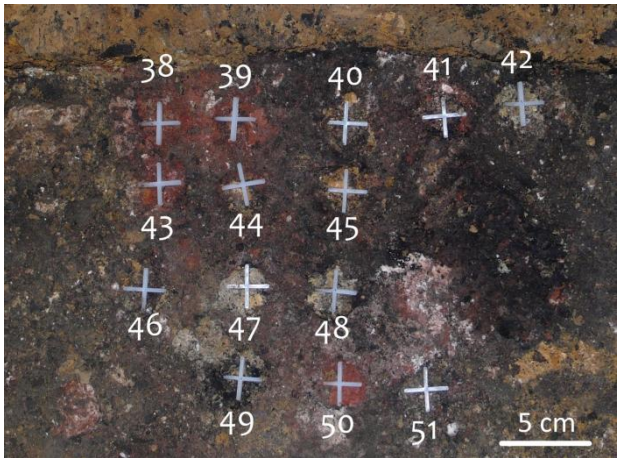


Figure 52 : Localisation des prélèvements sur le foyer F8.

n°	BDX	descriptions
38	14556	sédiment argileux, rubéfié
39	14557	sédiment argileux rubéfié en surface puis jaune avec quelques charbons
40	14558	sédiment sableux (grés jaune) avec quelques charbons
41	14559	sédiment argileux rubéfié en surface puis jaune, quelques charbons et un dépôt blanc
42	14560	sédiment argileux rubéfié sur un grès blanc-jaune très dur
43	14561	sédiment argileux rubéfié, quelques fragments de grès
44	14562	sédiment argileux rubéfié, quelques charbons (2 à 5 mm) sur du grès jaune
45	14563	sédiment argileux très charbonneux sur du grès jaune
46	14564	sédiment argileux non rubéfié et très charbonneux
47	14565	dans un grès blanc - jaune
48	14566	sédiment argileux avec quelques charbons sur un grès blanc-jaune
49	14567	dans un grès jaune avec beaucoup de charbon
50	14568	sédiment argileux très rubéfié
51	14569	dans un grès jaune avec quelques charbons

Tableau 6 : Numéro et description des prélèvements du foyer F8.

II.2.2.2. *Le foyer F6*

Le foyer F6 a été soumis à un prélèvement triple (Figure 53) afin de pouvoir comparer les résultats paléothermométriques obtenus par chaque méthode :

- 18 carottes de sédiments pour l'étude archéomagnétique ;
- 18 prélèvements pour l'étude de la minéralogie magnétique ;
- 36 prélèvements pour l'étude TL.

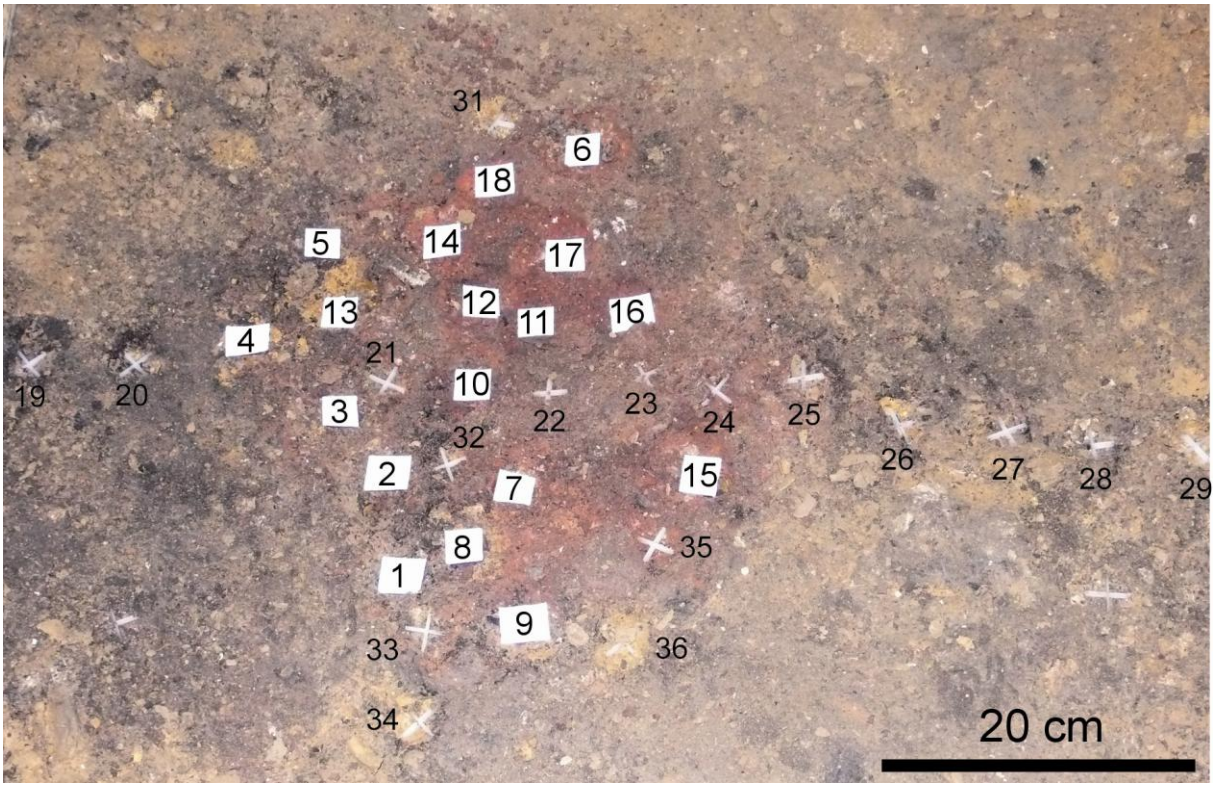


Figure 53 : Localisation des prélèvements sur le foyer F6. Les échantillons 1 à 18 (carrés blancs) correspondent à l'emplacement des carottes (archéomagnétisme) et des prélèvements jumeaux pour la TL et la minéralogie magnétique. Les prélèvements 19 à 36 (croix blanches) ont été mesurés en TL.

- ***Prélèvements pour l'archéomagnétisme :***

18 carottes de 25 mm de diamètre (n°1 à 18, Figure 53) ont été prélevées pour l'étude archéomagnétique (Hervé, 2012) à l'aide d'un matériel développé pour l'occasion (Figure 54). Leur description dans le Tableau 7 indique que ces carottes possèdent des épaisseurs de rubéfactions variables qui apportent des informations sur l'épaisseur de sédiment affectée par la chauffe. Au-delà de cette épaisseur de rubéfaction, se trouve le sédiment argileux jaune-orangé non chauffé, substrat argileux des Fraux. Les échantillons n°11, 16 (carotte sur la Figure 54) et 17 ont les épaisseurs les plus importantes soit plus de 23 mm de sédiment rubéfié.

Figure 54 : Matériel de prélèvement des carottes et prélèvement n°16. © cliché : G. Hervé.

n° prélèvement	longueur de la carotte (mm)	épaisseur de rubéfaction (mm)	Remarques sur les prélèvements
1	36	10	ok
2	46	12	ok
3	40	9	ok
4	10	10	superficiel du à une mauvaise stabilité du dispositif de prélèvement
5	34	5	ok
6	38	15	ok
7	34	11	ok
8	42	5	ok
9	24	7	prélèvement à la limite de la zone rubéfiée visible en surface présence d'un caillou rendant le dispositif de prélèvement instable
10	"fondu" à l'induration		peu de matière prélevée
11	32	25	ok
12	19	19	ok
13	38	7	présence de petits cailloux sous la surface rendant difficile le prélèvement
14	22	16	ok
15	29	14	ok
16	36	26	très tendre en surface (aspect "beurre")
17	26	23	ok
18	"en miette" dans le carottier		peu de matière et difficulté à enfoncer

Tableau 7 : Descriptif des carottes prélevées pour l'étude archéomagnétique, données recueillies par G. Hervé.

- ***Prélèvements pour la minéralogie magnétique :***

18 prélèvements ont été réalisés à l'aide d'une spatule sur le pourtour du trou laissé par les carottes (n° 1 à 18, Figure 53). Ces prélèvements présentent des différences dans la couleur du sédiment (Figure 55) en particulier le prélèvement n°13 de couleur jaune-orangée, typique du sédiment des Fraux non chauffé. On voit aussi une forte concentration générale en charbon. Certains échantillons sont très rubéfiés (n°7, 10 à 12 et 15 à 18) et d'autres ont une forte concentration en charbon mélangée au sédiment de couleur plutôt orangée-rouge (1 à 6, 8, 9, 14).

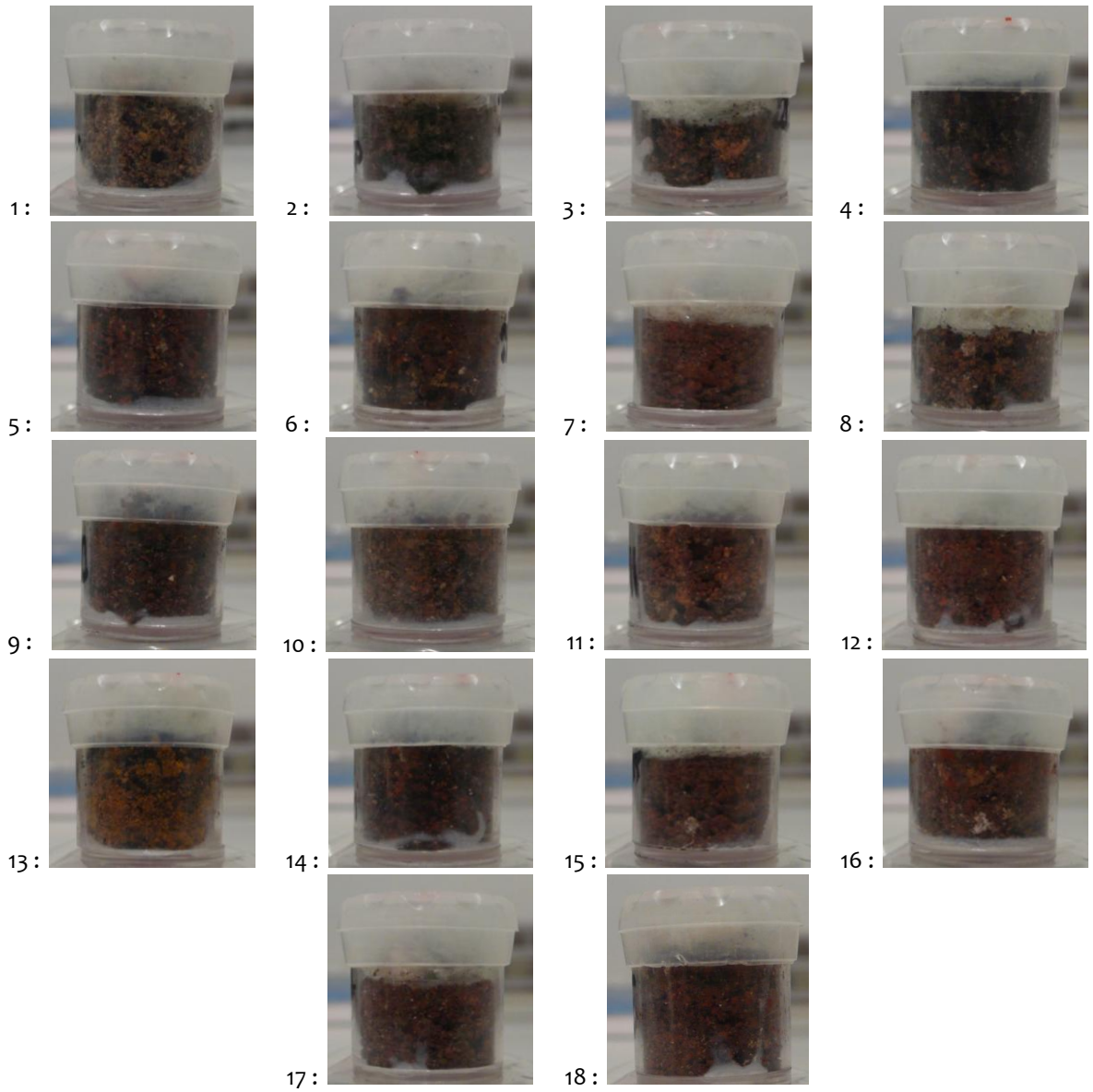


Figure 55 : Prélèvements réalisés pour l'analyse de la minéralogie magnétique.

- ***Prélèvements pour la thermoluminescence :***

Les 36 prélèvements, décrits dans le Tableau 8, ont été réalisés avec une spatule (premiers centimètres de sédiment) : 18 ont été prélevé sur le pourtour du trou laissé par les carottes (n°1 à 18, Figure 53) pour comparaison et 18 autres uniquement pour la TL (n° 19 à 36, Figure 53).

n°	BDX	description
1-a	14511	sédiment argileux rubéfié avec quelques charbons, e < 5 mm
1-b	14512	sédiment argileux rubéfié, e > 5 mm
1-bord	14657	sédiment argileux rubéfié
2	14513	sédiment argileux légèrement rubéfié avec quelques charbons
3	14515	sédiment argileux légèrement rubéfié avec quelques charbons
4	14516	sédiment argileux légèrement rubéfié avec quelques charbons
5	14518	sédiment argileux légèrement rubéfié avec quelques charbons
6	14519	sédiment sablo-argileux rubéfié, e < 10 mm
7	14520	sédiment argileux très rubéfié
8	14522	sédiment argileux rubéfié et quelques charbons, e < 5 mm
9	14523	sédiment argileux peu rubéfié, e < 5 mm
10	14524	sédiment argileux rubéfié avec quelques charbons
11	14525	sédiment sablo-argileux, e < 15 mm
12	14527	sédiment sablo-argileux
13-a	14528	sédiment argileux rubéfié avec quelques charbons
13-b	14529	sédiment argileux jaune
14	14530	sédiment argileux rubéfié avec quelques charbons
15-a	14531	sédiment sablo-argileux
15-b	14656	sédiment sablo-argileux
16-b	14534	sédiment sablo-argileux
17	14535	sédiment sablo-argileux, e < 15 mm
18	14536	sédiment argileux rubéfié, e < 10 mm
19	14537	sédiment argileux avec beaucoup de charbons
20	14538	sédiment argileux avec beaucoup de charbons
21	14539	sédiment argileux rubéfié avec quelques charbons
22	14540	sédiment sablo-argileux avec quelques fragments de grès altéré et charbons
23	14541	sédiment sablo-argileux rubéfié avec quelques charbons
24	14542	sédiment sablo-argileux rubéfié avec quelques charbons
25	14543	prélèvement en limite de foyer, sédiment argileux avec quelques charbons
26	14544	sédiment argileux jaune avec quelques charbons et fragments de grès
27	14545	sédiment argileux jaune avec quelques charbons et grès désagrégé, e < 10 mm
28	14546	sédiment argileux jaune avec quelques charbons et fragments de grès altéré
29	14547	sédiment argileux jaune et quelques fragments de grès altéré
30	14548	sédiment argileux avec quelques charbons et grès désagrégé
31	14549	sédiment argileux jaune et quelques fragments de grès
32	14550	sédiment argileux rubéfié superficiel avec quelques charbons et grès désagrégé
33	14551	sédiment argileux jaune-rouge avec quelques charbons, e < 5 mm
34	14552	sédiment argileux jaune-noire avec quelques charbons
35	14553	sédiment argileux rubéfié et grès désagrégé, e < 10 mm
36	14554	sédiment argileux jaune et grès désagrégé, avec quelques charbons

Tableau 8 : Numéros et descriptif des prélèvements du foyer F6.

Bilan :

C'est dans un objectif de comparaison des résultats de paléothermométrie que ces prélèvements « jumeaux » ont été effectués. Néanmoins, la carotte a un diamètre de 25 mm et les autres prélèvements ont été faits autour du trou de la carotte. Les sédiments prélevés n'ont donc pas forcément subi exactement la même chauffe par le feu. Par exemple, la carotte n°13 possède 7 mm de sédiment rubéfié alors que le prélèvement pour l'étude de la minéralogie magnétique est jaune-orangé (couleur du sédiment substrat des Fraux). Il faudra donc être prudent sur les comparaisons des températures obtenues.

* *
*

Afin de compléter cet échantillonnage archéologique et de pouvoir tester notre méthodologie sur des prélèvements d'histoire thermique connue, un foyer expérimental a été construit à partir de matériaux (grès et sédiment argileux) provenant de la grotte des Fraux.

Chapitre 6 : De la réalisation d'un foyer expérimental à l'échantillonnage

Parmi la série de feux expérimentaux instrumentés réalisés afin d'étudier la propagation de la chaleur dans les sédiments et d'appréhender la notion d'intensité de chauffe (*Partie V*), un des foyers expérimentaux, construit avec des sédiments des Fraux, a fait l'objet de prélèvements. Ces prélèvements ont ainsi permis de tester les approches paléothermométriques par TL et magnétisme sur un échantillonnage d'histoire thermique connue et chauffé dans des conditions de feu.

Je remercie ici Albane Burens, Laurent Carozza, Pierre Guibert et François Lévêque pour leur aide dans la réalisation des foyers expérimentaux.

I. Expérimentation

Le substrat du foyer expérimental, prélevé pour une étude TL et magnétique, est constitué de sédiments (gréseux et argileux) extraits de la grotte des Fraux. Ce substrat reprend la configuration du foyer F4 (secteur 13) avec une sole de cuisson modelée dans un sédiment argileux peu dégraissé reposant sur un encaissant de grès très altérés. Il a été construit en plusieurs couches afin de pouvoir positionner des thermocouples à diverses profondeurs de manière à mesurer les températures atteintes dans les sédiments et évaluer l'évolution du gradient thermique (pour le détail de l'instrumentation voir Chapitre 10).

Cette configuration, qui est dans une certaine mesure la réplique du foyer F4, a été entièrement conçue en matériau de la grotte des Fraux. Elle constitue la structure expérimentale de comparaison pour l'ensemble des méthodes utilisées.

D'une part, des mesures de thermoluminescence ont été effectuées sur des échantillons de grès broyés de l'encaissant et de sédiments argileux de la sole expérimentale. Ces prélèvements d'histoire thermique connue ont été utilisés afin de confirmer la validité des référentiels et la réalité des températures équivalentes attribuées. De plus, il a ainsi été possible de comparer le comportement de la TL du quartz entre la chauffe au laboratoire et la chauffe *in situ*.

D'autre part, la minéralogie magnétique de fragments de la sole foyère expérimentale a été analysée pour la comparer à celle de prélèvements d'un foyer archéologique, et à celle de sédiments chauffés en laboratoire.

I.1. **Construction du substrat : sole argileuse sur substrat gréseux**

Conformément au modèle archéologique, la sole, constituée d'un sédiment argileux de la grotte prélevé dans le secteur 10 (environ 2 kg), a été façonnée avec un bourrelet d'argile (haut de 2.5 cm) sur un des côtés. Un décor de deux cannelures digitées, semi-circulaire, a été tracé en périphérie de la structure (Figure 56). La sole a été modelée la veille de sa première utilisation, afin qu'elle présente une consistance plastique facilitant sa dépose sur l'encaissant gréseux, irrégulier. Cet encaissant est constitué d'un lit de blocs de grès de tailles diverses (au fond du

cadre de 1 m de côté) recouvert par deux couches de grès broyé grossièrement puis plus finement. Ces grès proviennent de zones touchées par les travaux de stabilisation du plafond. La sole a été aménagée sur l'horizon de grès le plus finement broyé.

Des thermocouples ont été placés à chaque étape de construction (Tableau 9, Figure 57) : un au fond du cadre (n°119), quatre au cœur des blocs de grès (n°107, 108, 110, 112), cinq au sein de l'horizon de grès broyé grossièrement (n°102, 104, 109, 111,1 20), cinq sur le grès fin (n° 101, 103, 106, 117, 118), enfin quatre ont été insérés à l'intérieur de la sole (n°105, 113, 114, 116) et un dernier disposé en surface de la sole (n°115).

Figure 56 : Préparation de la sole expérimentale, reproduction de la sole du foyer F4 : dégraissage par un mélange sédiment argileux + grès broyé ; mise en forme suivie d'un séchage d'un jour ; réalisation des tracés sur l'argile de consistance « cuir ».

n°	x	y	z	n°	x	y	z	n°	x	y	z
101	42.0	55.8	-2.0	108	47.0	44.0	-8.0	115	44.6	53.0	-0.4
102	50.2	53.2	-6.9	109	50.0	37.0	-7.0	116	52.0	64.0	-1.3
103	46.0	69.5	-1.8	110	55.5	45.5	-8.1	117	47.6	49.4	-2.8
104	38.0	59.5	-6.2	111	35.8	48.7	-6.3	118	39.2	41.2	-2.0
105	38.2	64.5	0.0	112	41.5	42.5	-8.2	119	47.5	48.0	-11.3
106	48.7	58.9	-2.8	113	44.5	54.5	-1.3	120	61.0	49.2	-7.3
107	47.5	73.5	-7.0	114	55.0	49.0	-1.3				

Tableau 9 : Coordonnées des thermocouples n°101 à 120 dans le substrat 3. x et y sont pris à partir du coin intérieur en bas à gauche. z est une coordonnée relative par rapport à un point extérieur et ramené à zéro pour le point le plus haut (n°105).

I.2. **Feux**

Quatre chauffes successives de durée variable ont été réalisées. Les températures enregistrées sont présentées Figure 58.

L'analyse des courbes de température interviendra dans le *chapitre 10*.

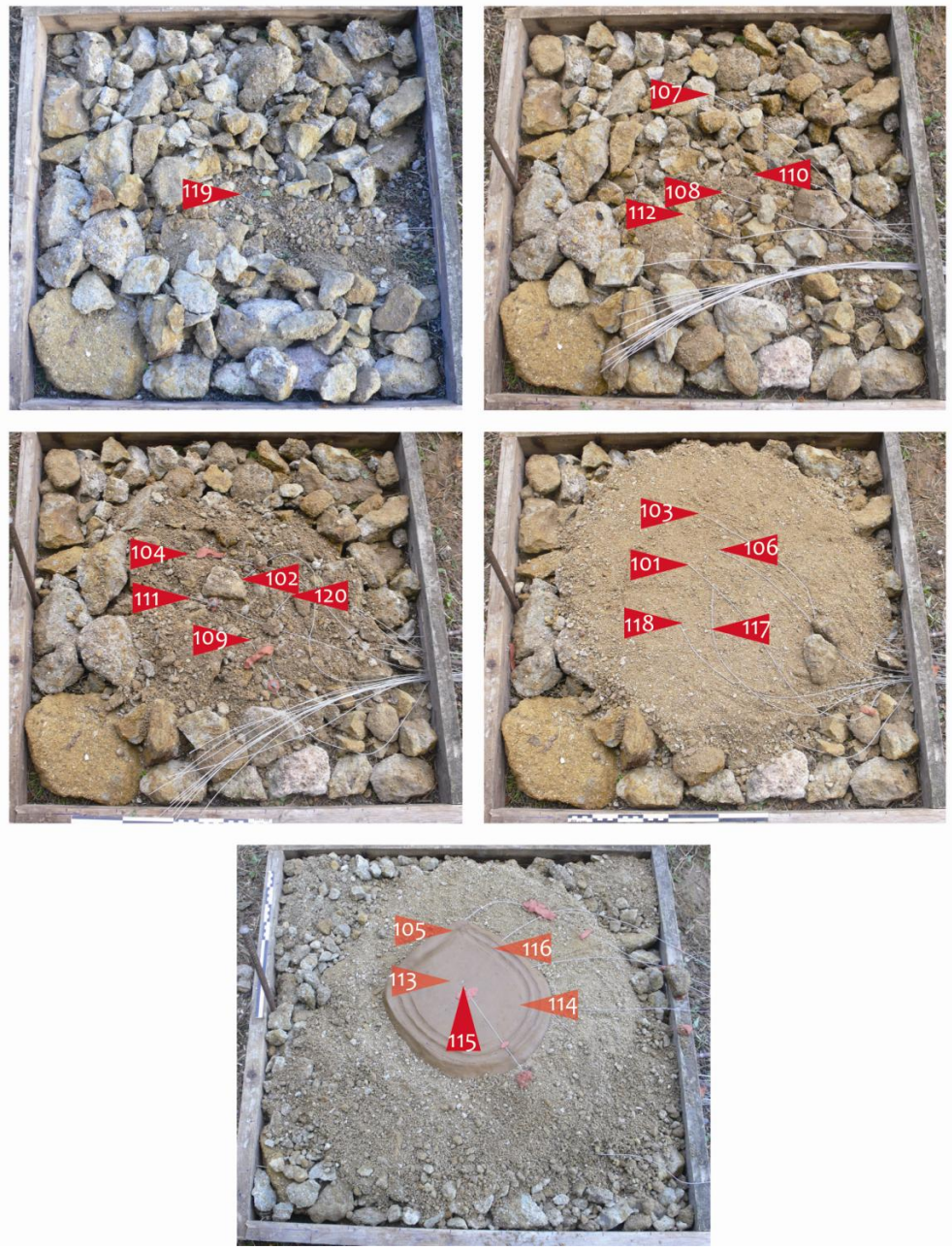


Figure 57 : Positionnement des thermocouples n°101 à 120 dans le foyer expérimental.

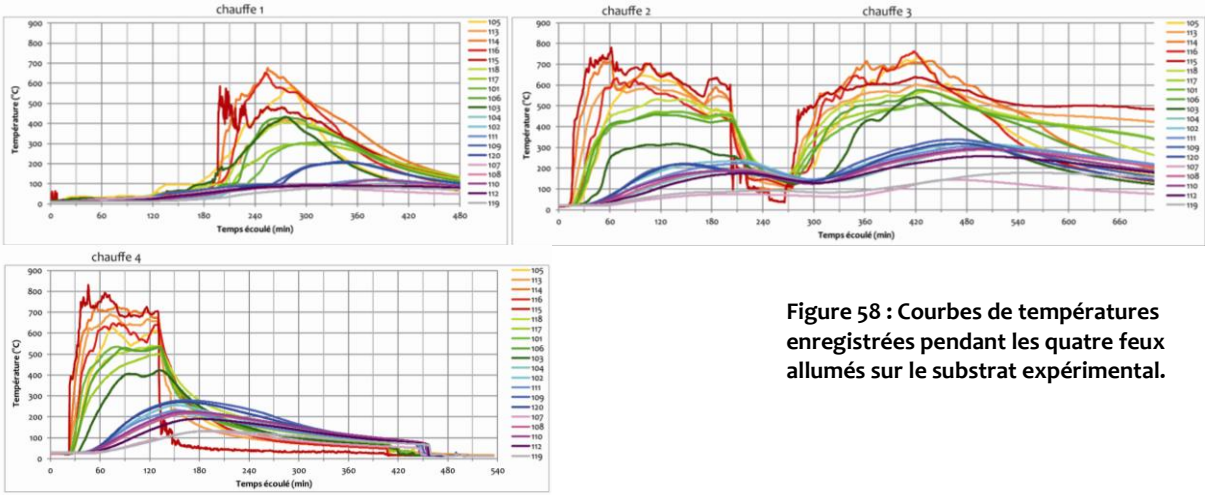


Figure 58 : Courbes de températures enregistrées pendant les quatre feux allumés sur le substrat expérimental.

II. Localisation des prélèvements

II.1. **Prélèvements pour la thermoluminescence**

Afin d'étudier l'équivalence entre l'histoire thermique réelle et la paléotempérature associée par TL à un échantillon, quelques prélèvements ont été réalisés.

Cinq échantillons ont été prélevés dans les grès broyés à l'emplacement de thermocouples qui ont enregistré leur histoire thermique (Figure 59) :

- BDX 14909 : entre les grès finement broyés et la sole, thermocouple n°101
- BDX 14910 : entre les grès finement broyés et la sole, thermocouples n°118
- BDX 14911 : entre les grès grossièrement et finement broyés, thermocouple n°111
- BDX 14912 : entre les grès grossièrement et finement broyés, thermocouple n°120
- BDX 15300 : dans les grès grossièrement broyés, thermocouple n°119

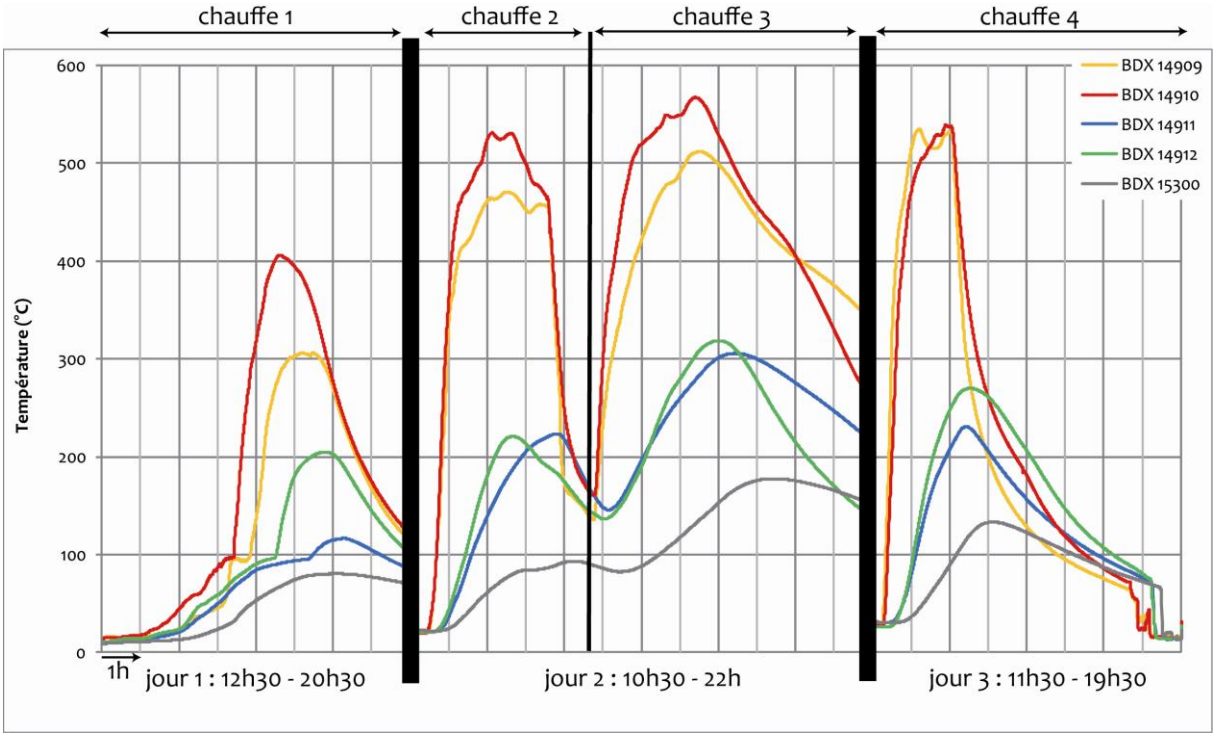


Figure 59 : Récapitulatif de l'histoire thermique des prélèvements choisis dans les grès broyés pour les mesures de TL. Pour une meilleure lisibilité, les couleurs choisies ne correspondent pas à celles des courbes des thermocouples.

De plus, six échantillons ont été prélevés dans la sole foyère (Figure 60) :

- BDX 15324 : sur toute l'épaisseur de la sole
- BDX 15325 : dessous de la sole
- BDX 15326 : dessus du bourrelet
- BDX 15327 : bord de la sole
- BDX 15328 : au cœur de la zone noire, (a) dessus de la sole et (b) dessous de la sole.

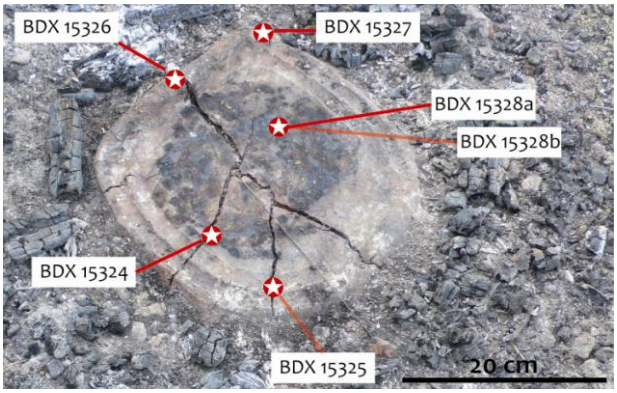


Figure 60 : Localisation des prélèvements de la sole foyère expérimentale pour les mesures de TL.

II.2. **Prélèvements pour la minéralogie magnétique**

La sole expérimentale a fait l'objet d'une cartographie de viscosité magnétique (Figure 61) réalisée par des mesures ponctuelles de contact afin de choisir les prélèvements à étudier. L'appareil utilisé, MVM1 (Magnetic Viscosity Meter), affiche une valeur qui est équivalente à dfχ obtenue en soustrayant à une mesure acquise pour un temps long (basse fréquence) une mesure acquise pour un temps court (haute fréquence) et renseigne ainsi sur la concentration de grains SP ferrimagnétiques (Pétronille, 2009).

Quelques mesures (viscosité et susceptibilité magnétique) ont été effectuées sur le dessus et le dessous de la sole. Ces grandeurs varient du simple (dessous) au double (dessus) traduisant des différences importantes au niveau des transformations minéralogiques.

Ainsi, six prélèvements ont été réalisés, suivant des valeurs de viscosité représentatives de la surface (valeur maximale en rouge, valeur minimale en bleu et valeur intermédiaire en vert) et en prélevant séparément pour chaque emplacement le dessus et le dessous de la sole (Figure 61). Cette sélection s'est faite en fonction des changements de couleurs marqués entre les deux côtés (Figure 62).

Ces prélèvements ont fait l'objet de mesures de susceptibilité magnétique, de dépendance de fréquence (susceptibilité magnétique et viscosité) et d'aimantation rémanente (anhystérétique, isotherme, visqueuse) pour quantifier la minéralogie magnétique et la comparer à celle du foyer F6.

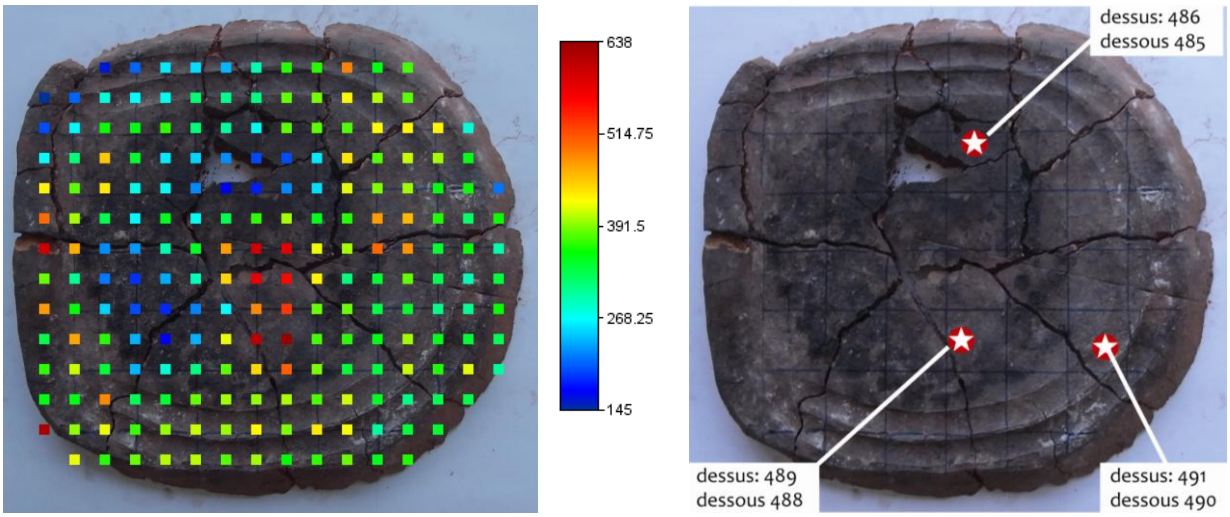


Figure 61 : Cartographie de viscosité magnétique de la sole expérimentale et emplacement des prélèvements

R35	P71	R35	R70	P35	P50
brun rouge	gris	brun rouge	brun foncé	brun rouge	brun rouge

Figure 62 : Variation des couleurs des prélèvements de la sole expérimentale (code des couleurs des sols, Cailleux).

Synthèse intermédiaire : partie III

La grotte des Fraux constitue un site tout à fait adapté à l'étude des foyers puisqu'ils sont en très bon état de conservation et que leur présence en grand nombre pose question.

Les trois foyers archéologiques choisis reposent sur des substrats différents, majoritairement un sédiment sablo-argileux issu de grès désagrégés pour le F4 et un sédiment argileux pour F6 et F8. Ces foyers présentent aussi des morphologies diverses pour lesquelles il est intéressant d'étudier les variabilités de températures atteintes et d'intensité de chauffe.

Les cartographies de susceptibilité magnétique ont été utilisées pour choisir l'emplacement des prélèvements en faisant l'hypothèse que plus la susceptibilité magnétique est forte plus la température a été élevée. Cette hypothèse va être testée par la suite lorsque les paléotempératures déterminées par TL seront mises en relation avec les mesures de susceptibilité magnétique de terrain. Toutefois, les échantillons archéologiques ont été prélevés en essayant d'avoir la dynamique complète des valeurs de susceptibilité magnétique c'est-à-dire de ce qui semble aller du sédiment non chauffé à du sédiment très chauffé.

La structure expérimentale construite apporte un échantillonnage qui a été soumis à des cycles thermiques connus et chauffés dans une atmosphère de combustion de bois probablement similaire à celle des foyers archéologiques, mais dans un espace non confiné. Les mesures de TL réalisées sur ces prélèvements permettront d'évaluer la validité du protocole mis en place pour déterminer les paléotempératures. On pourra aussi comparer l'histoire thermique et la température équivalente TL de ces prélèvements. Par ailleurs, la minéralogie magnétique après plusieurs chauffes dans des conditions de feu sera comparée à celle qui sera évaluée pour le foyer F6.

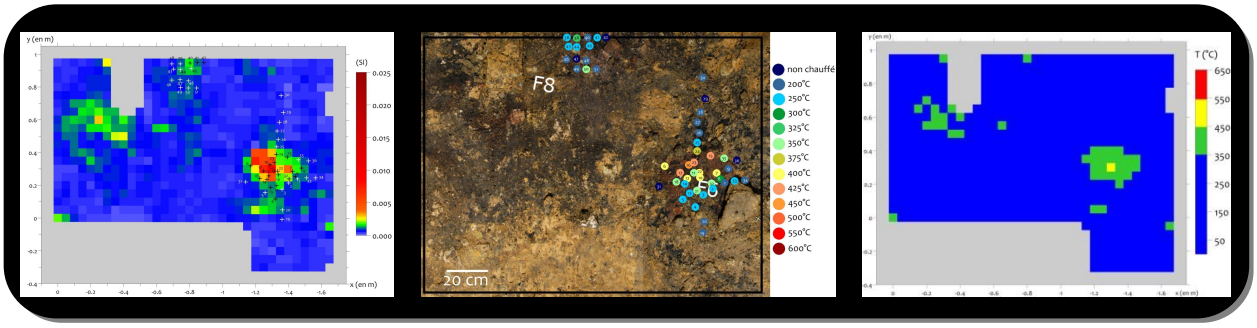
* *
*

Après cette présentation du matériel d'étude archéologique et expérimental, nous allons maintenant nous intéresser à son étude thermométrique par les méthodes de thermoluminescence et de magnétisme.

Partie IV :

Thermoluminescence et magnétisme : quels apports pour la paléothermométrie ?

Introduction



Cette partie présente l'ensemble des résultats obtenus depuis le développement méthodologique jusqu'aux paléotempératures lorsque les paléothermomètres élaborés le permettent.

Cette étude s'appuie sur les trois foyers archéologiques et le foyer expérimental présentés dans la *partie III* ainsi que sur des sédiments chauffés en laboratoires. Ces derniers constituent des référentiels thermiques indispensables pour l'approche paléothermométrique par TL sans lesquels la détermination de température est impossible. Par contre, ils ne constituent qu'un échantillonnage de comparaison pour l'analyse magnétique d'histoire thermique connue au même titre que les échantillons de la sole expérimentale. Les conditions de chauffe en laboratoire de ces sédiments vont être détaillées au cours de cette partie.

Pour commencer (*chapitre 7*), nous nous intéresserons à la paléothermométrie par TL qui s'appuie sur la comparaison des signaux TL des échantillons archéologiques avec ceux d'un référentiel thermique créé en laboratoire. Cette comparaison permettra d'aboutir à des paléotempératures pour chacun des prélèvements archéologiques effectués et la méthodologie sera testée sur un échantillonnage d'histoire thermique connue.

Nous nous attacherons ensuite (*chapitre 8*) à estimer l'apport des cartographies de susceptibilité magnétique et de champ magnétique. Nous tenterons d'étalonner les cartes de susceptibilité magnétique en température (cartes utilisées pour le choix des prélèvements) afin d'étendre les surfaces étudiées et d'éventuellement développer une approche non destructive des structures de combustion.

Dans le dernier chapitre de cette partie (*chapitre 9*), le potentiel paléothermométrique des propriétés magnétiques sera étudié au travers tout d'abord des températures de déblocage de l'aimantation rémanente et ensuite au moyen de l'évolution de la signature magnétique avec la chauffe.

Chapitre 7 : Paléothermométrie par la TL

Cette approche est fondée sur les effets de la chauffe sur la TL. Elle utilise la variation des signaux de TL de références thermiques auxquels on compare ceux de prélèvements archéologiques.

La création de référentiels thermiques est une étape indispensable de notre méthodologie puisque les signaux TL de ces références, leur forme et leur intensité, seront utilisés comme éléments directs de comparaison avec les signaux TL des échantillons archéologiques. Ainsi, deux référentiels thermiques ont été créés, un pour la fraction grossière du quartz (200-500 µm) et un pour la fraction fine polyminérale (3-12 µm). Ils ont été réalisés à partir de sédiments (argileux ou gréseux) de la grotte des Fraux puisque l'origine géologique définit la nature du quartz (défaut cristallin donc luminescence). Elle doit donc être identique à celle des prélèvements archéologiques étudiés.

Des mesures TL seront aussi réalisées sur des échantillons d'histoire thermique connue (feu expérimental) pour valider les référentiels thermiques construits.

Nous allons tout d'abord détailler le protocole de préparation de l'ensemble des échantillons (archéologiques, références thermiques, expérimentaux) à savoir l'extraction des grains de quartz et la récupération de la fraction fine polyminérale.

Ensuite, nous effectuerons l'étude paléothermométrique spécifique aux grains de quartz d'une part et à la fraction fine polyminérale d'autre part. Dans chaque cas, seront présentées les mesures TL sur les échantillons archéologiques, la construction du référentiel thermique et les mesures de TL associées, puis la détermination des paléotempératures et enfin l'étude des échantillons du foyer expérimental.

Finalement, l'ensemble des paléotempératures acquises seront mises en commun et la répartition spatiale de ces résultats sera observée pour s'assurer de la cohérence des structures thermiques obtenues.

I. Signaux TL types et méthodologie générale

Depuis sa formation géologique, le matériau est soumis à l'irradiation naturelle qui a continument rempli les centres pièges. Les matériaux, s'ils n'ont pas été soumis à une chauffe, sont dans un état de saturation et le signal TL mesuré est appelé ***signal géologique***. On dit qu'un signal est en « état de saturation » lorsque les pièges sont remplis au maximum de leur capacité et que l'ajout d'une dose d'irradiation n'entraîne pas d'augmentation d'intensité du signal (Figure 63).

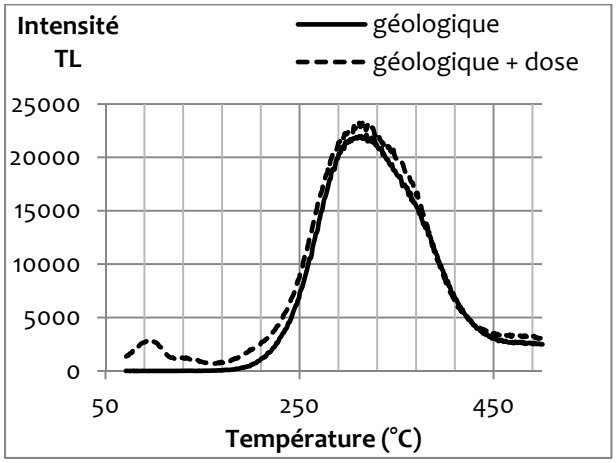


Figure 63 : Signal TL géologique pour lequel l'ajout de dose n'entraine pas d'augmentation du signal. On parle de saturation.

Les signaux décrits ci-après sont synthétisés sur le diagramme de la Figure 64 qui présente la méthodologie de traitement des échantillons archéologiques et des références thermiques. Les Figure 65 et Figure 66 présentent les différents types de signaux TL associés aux étapes de traitement.

Lorsque le matériau est soumis à une chauffe, tout ou partie des pièges sont vidés. Le signal restant après cette chauffe est appelé ***signal résiduel***, sous-entendu le reste du signal géologique.

Dans le cas des échantillons archéologiques, la chauffe a eu lieu dans le passé et depuis lors, le matériau a été soumis à l'irradiation naturelle et une partie de ses pièges se sont re-remplis. Le signal mesuré se nomme alors ***signal naturel***.

Dans le cas des références thermiques, la chauffe est récente et pour pouvoir comparer les signaux TL des références thermiques avec ceux des échantillons archéologiques, il nous faut simuler sur les références thermiques l'irradiation reçue par les échantillons archéologiques. Pour cela, une irradiation artificielle (dose d'irradiation β) est d'abord appliquée suivie d'un « *cut-heat*[3] » afin d'effacer les composantes TL de basse température instables dans le temps (« pic à 110°C »). Le signal TL résultant est appelé ***signal naturel simulé***.

Pour chacun des trois signaux précédents et de la même manière que pour le signal géologique, on peut faire une mesure de TL après une irradiation artificielle en laboratoire (dose

[3] Le « *cut-heat* » correspond à une chauffe et refroidissement immédiat (pas de palier) exercés dans l'appareillage de mesure de TL.

d'irradiation β équivalente à la dose naturelle). Cette mesure renseigne sur l'état de saturation du matériau et permettra de discriminer les échantillons chauffés des échantillons non chauffés : soit le signal est à saturation et il n'y a pas eu de chauffe, soit l'inverse. On mesure ainsi le ***signal naturel + dose***, le ***signal résiduel + dose*** et le ***signal naturel simulé + dose***.

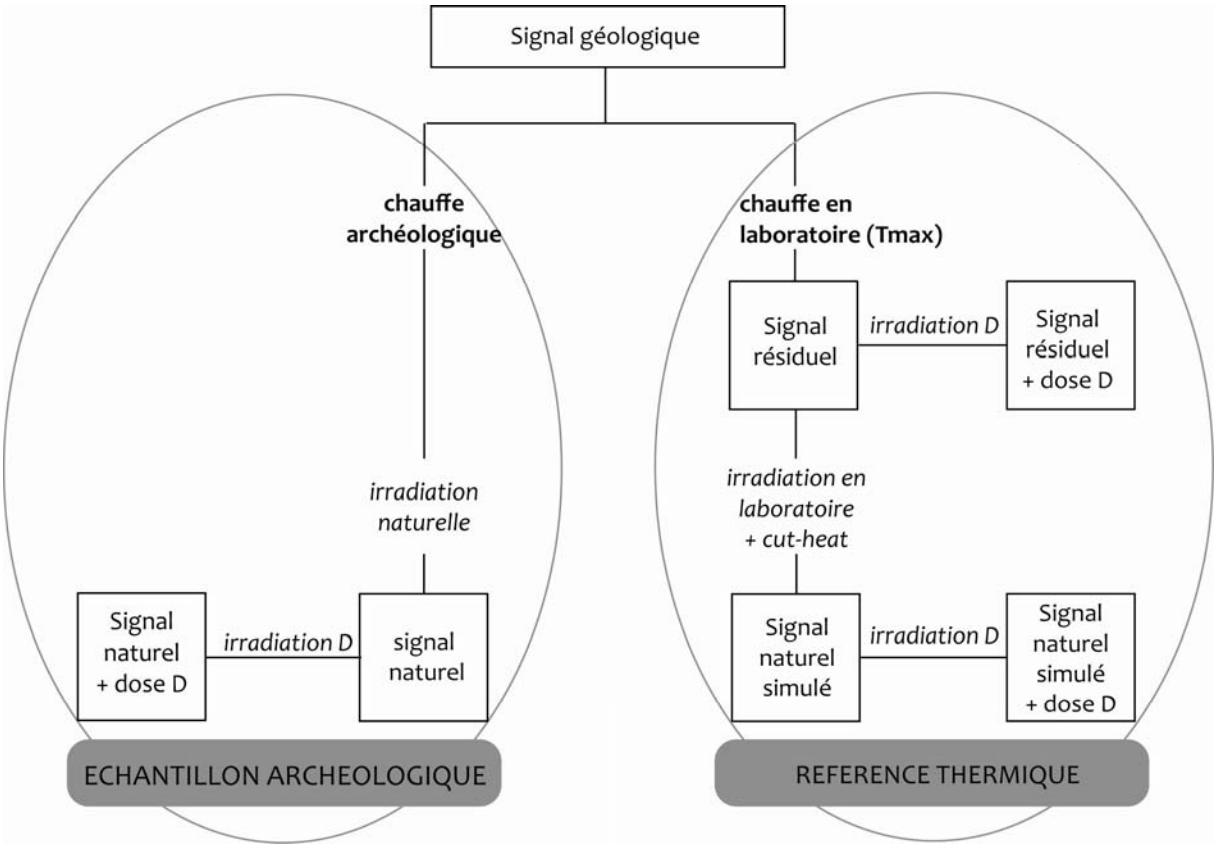


Figure 64 : Synthèse des signaux TL mesurés sur les échantillons archéologiques et les références thermiques avec les correspondances entre les différentes étapes.

Enfin, deux signaux sont systématiquement mesurés après chaque mesure de l'un des signaux précités :

- le ***bruit de fond*** : rappelons qu'une lecture TL nécessite de chauffer une aliquote[4] jusqu'à 500°C. A cette température les pièges sont vides. Une mesure de luminescence est systématiquement effectuée après chaque mesure TL afin de vérifier que le résidu du signal est d'intensité négligeable c'est-à-dire dans le bruit de fond de la mesure (quelques dizaines de coups). Ce bruit de fond, correspondant au niveau zéro de la TL, est ensuite soustrait à la mesure de TL qui précède.

- le ***signal de normalisation*** : après la lecture du bruit de fond, une dose d'irradiation β est appliquée sur chaque aliquote suivie d'une mesure TL. Cette mesure permet de vérifier que les aliquotes d'un même échantillon sont équivalentes en termes de luminescence et que l'on peut comparer entre eux les signaux issus des aliquotes d'un même échantillon. Dans le cas où les différences seraient notables il serait possible d'appliquer un facteur de correction.

[4] Une aliquote est la quantité de grains de quartz nécessaire à une mesure du signal TL qui est ici disposée dans une nacelle.

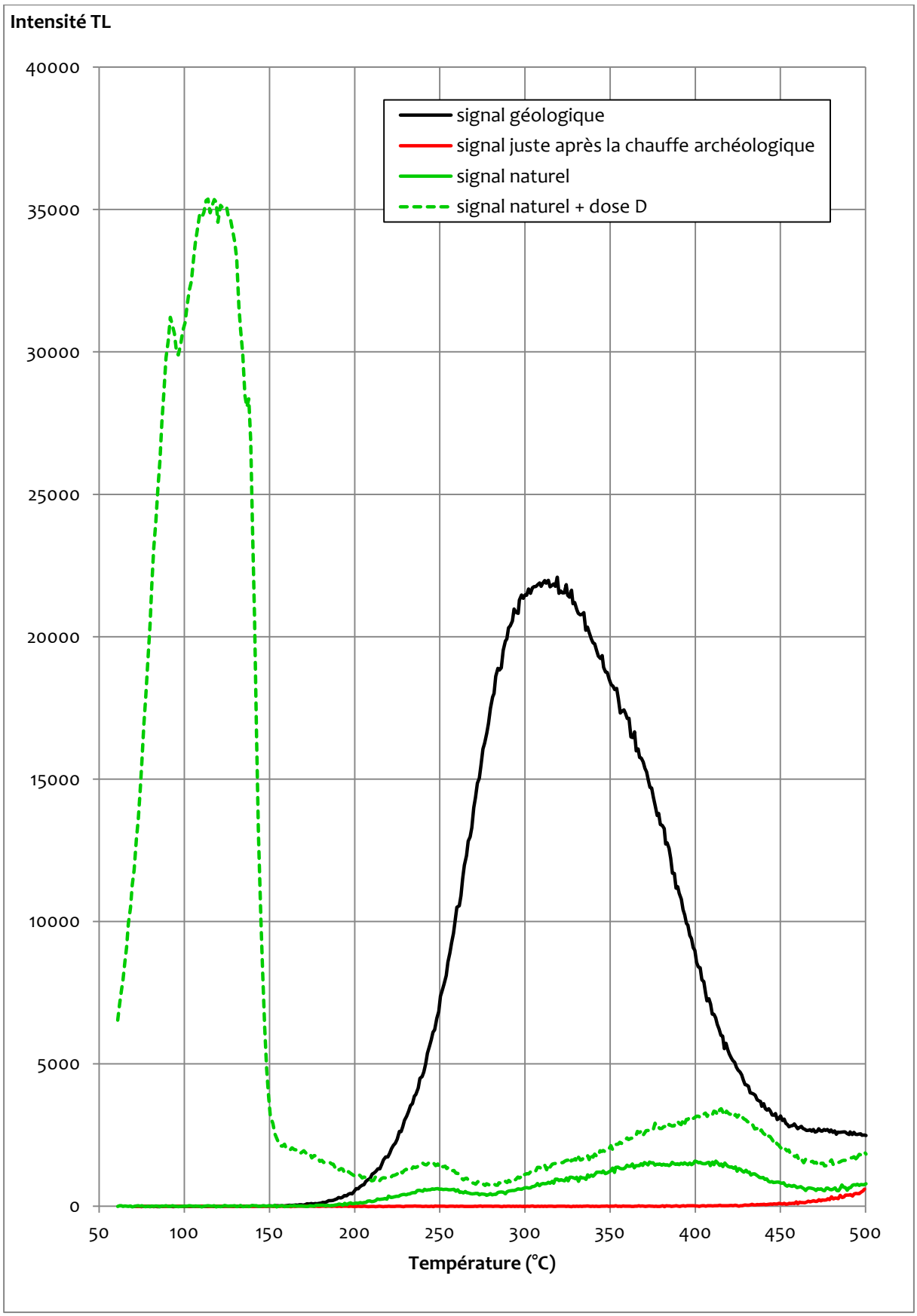


Figure 65 : Signaux TL types aux différentes étapes d'évolution d'un échantillon archéologique (cf. Figure 64). Le signal « juste après la chauffe archéologique » est un signal TL virtuel car inaccessible aux mesures.

A noter : l'apparition du pic à 110°C ainsi que l'augmentation d'intensité TL sur le signal naturel + dose.

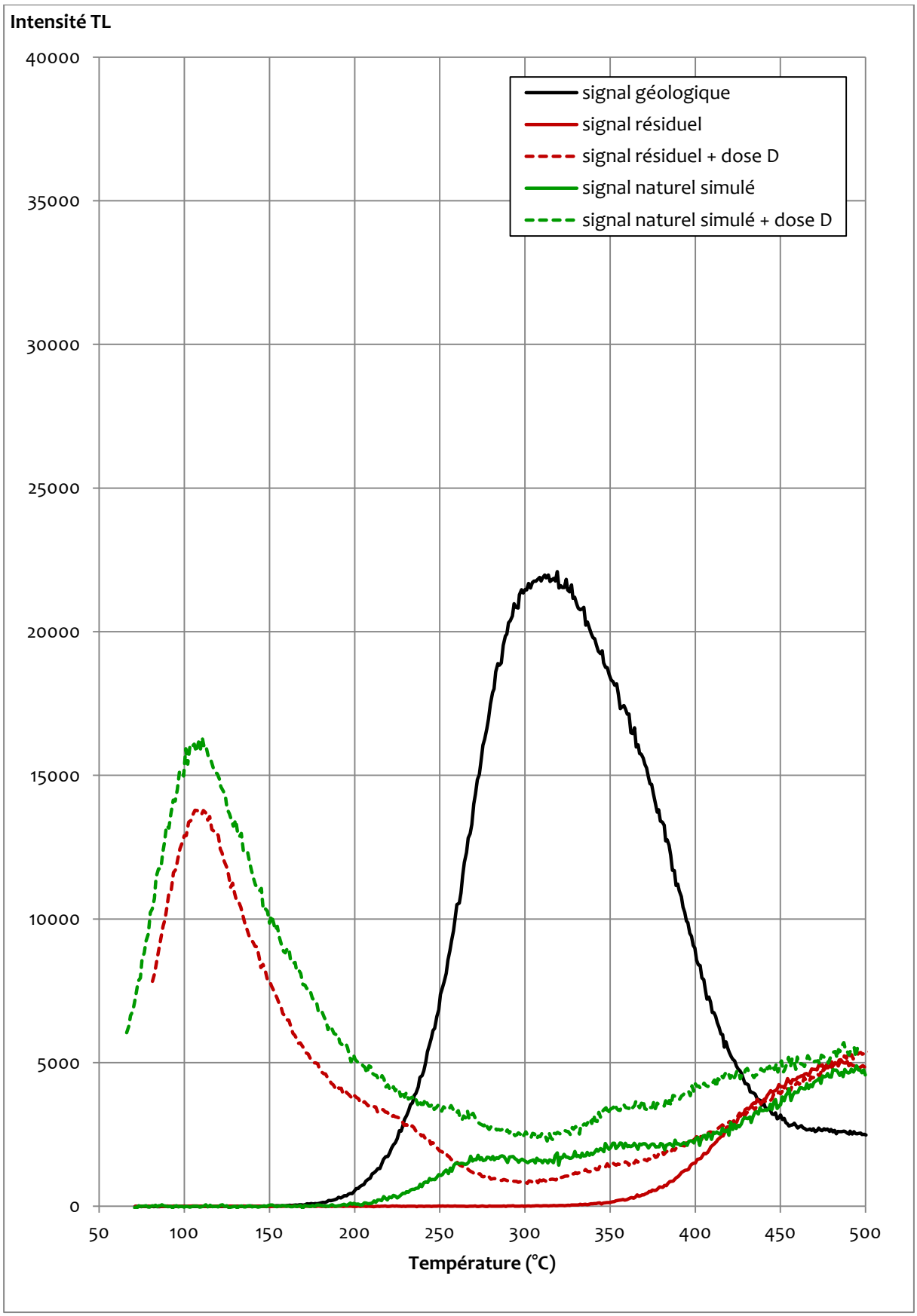


Figure 66 : Signaux TL types aux différentes étapes de traitement des références thermiques (cf. Figure 64).

A noter :

- **sur le signal naturel simulé, l'effacement par le « *cut-heat* » du pic à 110°C consécutif à l'irradiation β simulant l'irradiation naturelle reçue par les échantillons pendant 3300 ans ;**
- **l'apparition du pic à 110°C ainsi que l'augmentation d'intensité TL sur les signaux « + dose ».**

II. Protocole de préparation des échantillons archéologiques et des références thermiques

Deux fractions granulométriques ont été étudiées par TL, choisies pour leur correspondance aux deux principaux sédiments gréseux et argileux présents à la grotte des Fraux. Ainsi, les sédiments gréseux ont été étudiés sur la fraction grossière des grains de quartz comprise entre 200 et 500 µm, fraction choisie du fait de son abondance dans les sédiments gréseux des Fraux. Les sédiments argileux ont, quant à eux, été étudiés sur la fraction fine polyminérale comprise entre 3 et 12 µm, fraction classiquement utilisée pour les sédiments argileux.

Ainsi, le foyer F4 (mise à part la sole de cuisson), les foyers F6 et F8 ainsi que les prélèvements de grès broyés du foyer expérimental ont été étudiés sur la fraction grossière du quartz (200 - 500 µm) et comparés au référentiel thermique correspondant de sédiment gréseux.

La faction fine polyminérale (3 - 12 µm) a quant à elle été étudiée pour la sole de cuisson du foyer F4, les foyers F6 et F8 ainsi que la sole de cuisson du foyer expérimental et les comparaisons de TL ont été effectuées par rapport au référentiel de sédiment argileux.

L'extraction de ces deux fractions à partir des sédiments prélevés nécessite une succession d'étapes détaillées ci-après.

II.1. **Extraction de la fraction 200-500 µm des grains de quartz**

Le protocole suivant a été appliqué pour les références thermiques du quartz, tous les prélèvements du foyer F4 (excepté les n°18, 19 et 21, provenant de la sole, sédiment argileux), l'ensemble des prélèvements des foyers F6 et F8 ainsi que les prélèvements du foyer expérimental :

- broyage léger pour dissocier les grains
- tamisage à 80-200-500 µm : récupération de la phase 200-500 µm, la plus abondante
- attaque HCl 1M (3.7 % massique) pendant 1h30 : élimination des carbonates présents et susceptibles de provoques des luminescences parasites lors des mesures TL
- deux rinçages à l'eau

- *pour les prélèvements du foyer F4 et les références thermiques :* attaque HF (40 % massique) pendant 40 min à température ambiante :

ou

pour les prélèvements des foyers F6 et F8 : attaque par un mélange d'acide hexafluorosilicique (H_2SiF_6, 31 % massique) et d'acide nitrique (HNO_3, 68 % massique) dans des proportions volumiques respectives de 90 % et 10 % pendant trois jours :

nettoyage des grains de quartz des restes d'argile
et suppression préférentielle des feldspaths

- deux attaques HCl 1M (3.7 % massique) pendant 1h30 : dissolution des éventuels fluorures formés
- rinçages à l'eau et séchage
- dépôt des grains de quartz sur les nacelles de mesure à l'aide d'un répartiteur volumique (environ 10 mg par prise d'essai) permettant de disposer d'aliquotes dont la quantité de grains de quartz est identique.

II.2. **Récupération de la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm)**

Le protocole suivant a était utilisé pour extraire la fraction 3-12 µm polyminérale des sédiments de la sole foyère et des prélèvements des foyers F6 et F8.

- tamisage à l'eau à 40 µm : récupération de la fraction < 40 µm
- attaque HCl 1M (3.7 % massique) : élimination des carbonates présents et susceptibles de provoquer des luminescences parasites lors des mesures TL
- deux rinçages à l'eau
- bain d'eau oxygénée pendant cinq jours : suppression des matières organiques
- deux rinçages à l'eau
- décantation et fractionnement granulométrique : dépôt de la fraction 3-12 µm sur les nacelles de mesures

III. Mesure de TL sur la fraction grossière du quartz (200 - 500 µm)

Les mesures de TL ont d'abord été effectuées sur les échantillons archéologiques afin de connaître l'allure des courbes TL, certains paramètres tels que la position des pics de luminescence étant nécessaire pour la construction des références thermiques. Ensuite, le protocole de création du référentiel thermique (chauffe et irradiation) sera détaillé. La comparaison des signaux TL du référentiel thermique avec ceux des échantillons archéologiques permettra de déterminer des paléotempératures. Finalement, les mesures de TL sur les échantillons du foyer expérimental viendront étayer la méthodologie mise en place.

III.1. **Echantillonnage archéologique**

III.1.1. Protocole de mesure TL

Chaque prélèvement a fait l'objet de quatre aliquotes afin de mesurer le signal naturel et le signal naturel + dose. Le signal naturel (aliquotes 1 et 2) est le signal TL de chaque échantillon obtenu par une lecture c'est-à-dire par une chauffe de la température ambiante à 500°C qui vide l'ensemble des pièges.

La mesure de ce signal est complétée par la mesure d'un signal dit naturel + dose (aliquotes 3 et 4) qui correspond à une lecture du signal TL après un ajout de dose à l'aliquote brute (donc au signal naturel). La mesure de ce signal permet d'observer l'influence de l'ajout de dose sur le signal TL. En effet, nous le verrons sur les références thermiques, lorsque l'ajout de dose n'entraine pas ou que peu d'augmentation de l'intensité du signal TL, on parle de saturation du signal. Ceci résulte du fait que le signal géologique domine le signal TL et que la chauffe archéologique a été faible. *A contrario*, lorsque l'ajout de dose entraîne une augmentation du signal c'est que la chauffe archéologique a été assez intense.

Le cycle de mesure appliqué est donc le suivant :

Aliquote 1 et 2 :

- Lecture du signal naturel
- Bruit de fond
- Irradiation : dose d de normalisation
- Lecture du signal TL de normalisation
- Bruit de fond

Aliquote 3 et 4 :

- Irradiation : dose D
- Lecture du signal naturel + dose
- Bruit de fond
- Irradiation : dose d de normalisation
- Lecture du signal TL de normalisation
- Bruit de fond

La dose ajoutée pour le signal naturel + dose a été choisie comme équivalente à la dose naturelle reçue depuis 3300 ans à savoir 12 Gy pour les grains de quartz. Cette dose correspond à une valeur de dose d'irradiation moyenne supposée de 3.6 mGy/an reçue depuis la chauffe archéologique. Le niveau de cette dose est suffisamment élevé pour repérer facilement des signaux TL déjà à saturation et, d'autre part, suffisamment faible pour ne pas saturer des signaux TL qui ne seraient pas déjà à saturation.

Des mesures de radioactivité réalisées *a posteriori* sur le terrain ainsi que la caractérisation radiochimique des sédiments argileux (teneur très forte en uranium) nous ont cependant montré que l'on avait sous-estimé la dose naturelle reçue depuis environ 3300 ans d'un facteur 2 pour le foyer F6, très argileux et donc particulièrement radioactif. Ceci représente l'amplitude maximale de notre sous-estimation. Néanmoins, les résultats obtenus sont peu dépendants de la valeur

exacte dans la mesure où l'ordre de grandeur de la dose naturelle est respecté. L'effet est un tassement vertical des courbes sans conséquence sur leur forme en fonction de la température.

La dose de normalisation (d) a été choisie égale à 12 Gy (d = D) pour des raisons d'homogénéité avec la dose d'irradiation naturelle.

III.1.2. Mesures de TL

L'ensemble des courbes des signaux naturels (« nat ») et naturels + dose (« nat+D ») mesurées sur les grains de quartz provenant des foyers F4, F6 et F8 sont respectivement exposées dans les annexes 1, 2 et 3.

A titre d'exemple, les courbes de trois échantillons du foyer F4 (F4-1, F4-5 et F4-26 ; Figure 67) et de trois échantillons du foyer F6 (F6-26, F6-11 et F6-16b ; Figure 68) sont présentées dans le corps du texte pour pouvoir décrire les comportements types repérés. Les principales observations concernent la reproductibilité du signal TL entre aliquotes, la présence ou non de la saturation des signaux, la position des composantes TL, l'intensité de la TL et les intensités relatives de chaque composante.

- ***Reproductibilité entre aliquotes*** : les deux mesures (deux aliquotes) effectuées pour chaque signal sur chaque échantillon montrent généralement une bonne concordance. Néanmoins, il arrive que les mesures du signal naturel soit assez différentes (exemple du F4-26, Figure 67) probablement par la variabilité du quartz sur une fraction aussi grossière. Toutefois, comme nous le verrons lors de comparaison avec le référentiel thermique, ces variabilités n'ont pas constitué d'obstacle majeur à l'attribution des paléotempératures.

- ***Saturation du signal vs non saturation*** : la comparaison entre le signal naturel et le signal naturel + dose permet de mettre en évidence la présence ou non d'une saturation du signal TL. Les prélèvements F4-1 (Figure 67) et F6-26 (Figure 68) ne présentent pas ou peu d'augmentation du signal avec l'irradiation : le signal est saturé c'est-à-dire que le signal mesuré correspond majoritairement au signal géologique et qu'aucune chauffe n'a été opérée par le passé. A contrario, les prélèvements F4-5 et F4-26 (Figure 67) ou F6-11 et F6-16b (Figure 68) montrent une augmentation du signal avec l'irradiation indiquant ainsi des prélèvements chauffés.

- ***Position des pics TL*** : les composantes de la TL sont centrées sur plusieurs températures. Pour le signal naturel, les pics principaux sont centrés sur 250°C, 280°C, 325°C, 350°C et/ou 410°C (Figure 67 et Figure 68). L'ajout de dose pour le signal naturel + dose fait apparaître le pic à 110°C qui est une composante TL du quartz de faible durée de vie.

- ***Intensité de la TL et intensité des pics*** : de manière générale deux types de comportements se dégagent. Le premier possède une intensité[5] de la composante principale TL très forte, supérieure à 15000 coups/°C, et le pic à 110°C a une intensité très faible, inférieure à 5000 coups/°C (exemples de F4-1 et F6-26 ; Figure 67 et Figure 68). Par contre, le second comportement montre une intensité du signal TL naturel entre 1000 et 2000 coups/°C avec un pic à 110°C d'intensité forte, supérieure à 20000 coups/°C (exemples des prélèvements F4-5, F4-26, F6-11 et F6-16b ; Figure 67 et Figure 68). Par ailleurs, au sein de ce deuxième comportement, les intensités de chacune des composantes TL sont variables d'un échantillon à l'autre, par exemple la composante à 350°C pour F4-5 (Figure 67) ou à 410°C pour F6-16b (Figure 68).

[5] : L'intensité TL peut être exprimée en coups par unité de temps de comptage, ici 0.25 s. Etant donné que la vitesse de chauffe est de 4°C/s, on peut aussi exprimer l'intensité TL en coups par °C.

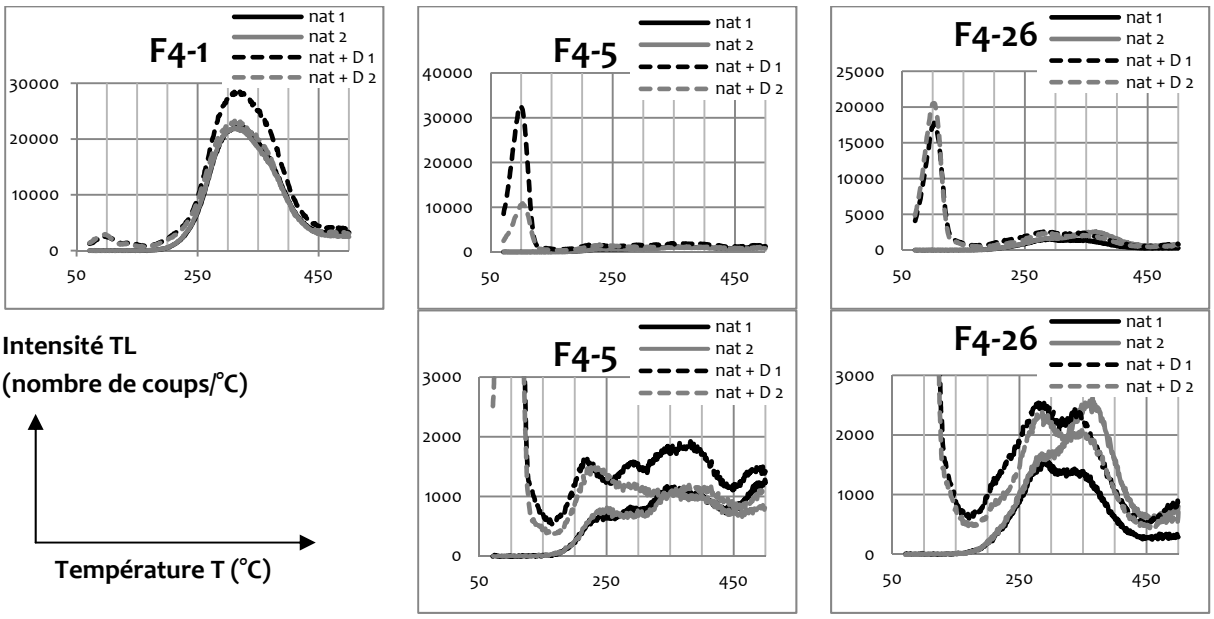


Figure 67 : Signaux TL (fraction 200 - 500 µm du quartz) naturels (traits pleins) et naturels + dose (traits pointillés) des prélèvements n° 1, 5 et 26 du foyer F4 (vitesse de chauffe de 4°C/s).

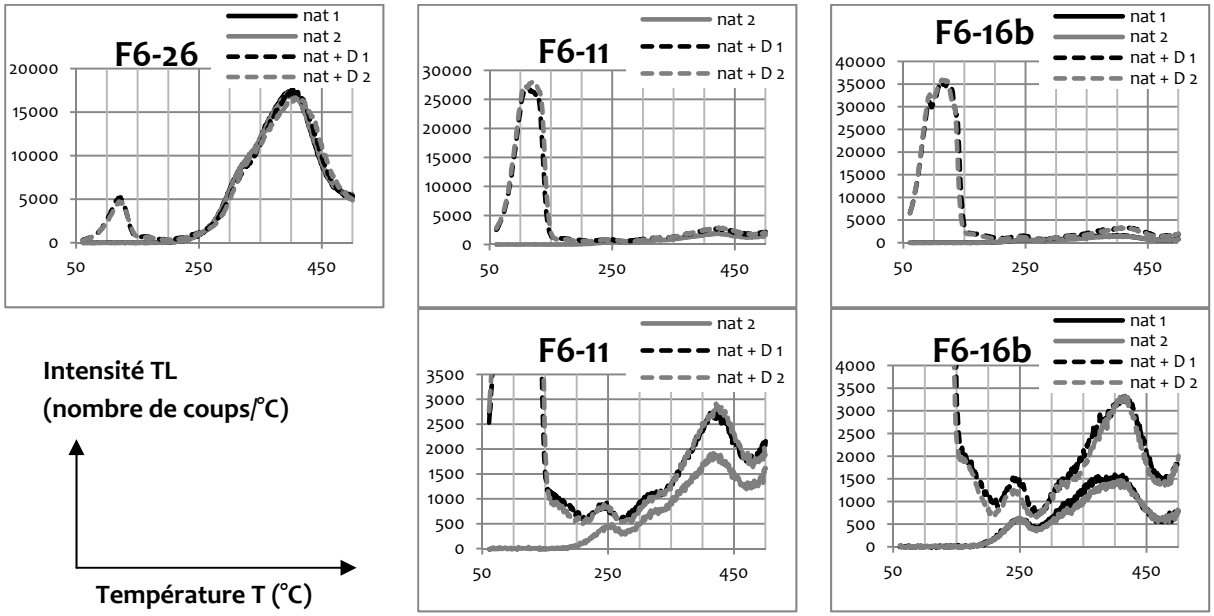


Figure 68 : Signaux TL (fraction 200 - 500 µm du quartz) naturels (traits pleins) et naturels + dose (traits pointillés) des prélèvements 26, 11, et 16b du foyer F6 (vitesse de chauffe de 4°C/s).

Quelques prélèvements, à l'image de F4-16 et F4-25 (Figure 69), ne correspondent pas à l'un des deux comportements précités car ils présentent une intensité de la TL moyenne (atour de 10000 coups/°C) et l'ajout de dose n'entraine pas ou peu d'augmentation du signal mais un pic à 110°C d'intensité forte.

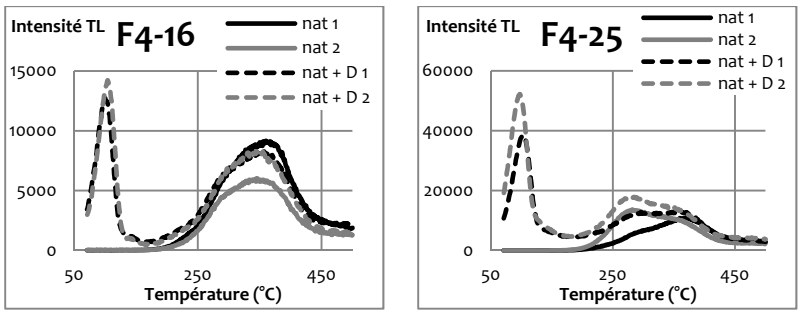


Figure 69 : Signaux TL (fraction 200 - 500 µm du quartz) naturels (traits pleins) et naturels + dose (traits pointillés) des prélèvements 16 et 25 du foyer F4 (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C).

Ainsi, d'un prélèvement à l'autre, on observe des variations d'intensité et de forme (position des composantes TL) des courbes TL. Nous allons voir que ces variations résultent de différentes intensités de chauffe archéologiques auxquelles ont été soumis les sédiments substrats des foyers. Ce sont ces mêmes variations qui vont nous permettre de déterminer une paléotempérature par comparaison avec celles observées sur le référentiel thermique associé.

III.2. **Construction du référentiel thermique**

Du sable de grès désagrégé (BDX 12894) a été extrait de la grotte des Fraux pour créer le référentiel thermique correspondant aux grains de quartz de fraction grossière (200-500 µm).

Afin de pouvoir comparer les références thermiques avec les échantillons archéologiques, il est nécessaire de reproduire sur les références (1) la ***chauffe due au feu*** et (2) le temps écoulé depuis, c'est-à-dire l'effet de ***l'irradiation naturelle*** reçue par le matériau depuis la chauffe.

III.2.1. Cycle thermique de chauffe : simulation de la chauffe archéologique

Les protocoles thermiques appliqués pour créer les références ont été choisis afin de correspondre au mieux à la réalité. En effet, le cycle thermique d'un feu expérimental (Werts et Jarhen, 2007 ; notre propre expérience) est généralement défini par :

- une vitesse moyenne de montée en température de l'ordre de 20°C/min ;
- des températures au cœur du feu atteignant 650°C environ ;
- une vitesse de refroidissement de l'ordre de quelques °C/min.

Le cycle thermique défini pour simuler la chauffe archéologique sur les références thermiques est le suivant :

- Vitesse de chauffe : 20°C/min
- Durée du palier à la température choisie Tmax : 1 heure
- Vitesse de refroidissement : 5°C/min

La durée de palier a été prise d'une heure car (1) il est suffisamment long pour que les matériaux dans le four soit à l'équilibre thermique et (2) il est suffisamment court pour pouvoir faire plusieurs chauffes dans une journée (trois au maximum compte tenu des vitesses de chauffe et de refroidissement).

Treize températures (Tmax) ont été choisies pour constituer le référentiel. Elles s'étendent de 200°C à 600°C, en gardant un témoin de sédiment non chauffé :

- non chauffée
- 200°C
- 250°C
- 300°C
- 325°C
- 350°C
- 375°C
- 400°C
- 450°C
- 500°C
- 550°C
- 600°C
- 650°C

Après le cycle thermique, le signal TL résiduel de chaque référence (aliquote a) ainsi que le signal résiduel avec ajout d'une dose d'irradiation (aliquote b) ont été enregistrés. En effet, la lecture de ces signaux TL permet d'évaluer l'influence de la chauffe sur le vidage des pièges,

d'observer la disparition progressive du signal géologique avec la température et de regarder l'influence de l'ajout d'une dose au signal résiduel (saturation ou non).

Les mesures ont été réalisées selon le protocole suivant :

Aliquote a :

- Lecture du signal TL résiduel
- Bruit de fond
- Irradiation : dose d de normalisation
- Lecture du signal TL de normalisation
- Bruit de fond

Aliquote b :

- Irradiation : dose D
- Lecture du signal TL résiduel + dose
- Bruit de fond
- Irradiation : dose d de normalisation
- Lecture du signal TL de normalisation
- Bruit de fond

III.2.2. Irradiation artificielle : simulation de l'irradiation naturelle reçue par les échantillons archéologiques depuis la chauffe

Il s'agit ici des simuler sur les références, l'irradiation naturelle reçue par les échantillons archéologiques durant le temps écoulé depuis la chauffe (environ 3300 ans). Pour cela, une dose d'irradiation D de 12 Gy a été choisie (dose moyenne de 3.6 mGy par an). Elle est suivie d'un « *cut-heat* » à 230°C. Cette température de 230°C a été déterminée après plusieurs essais pour lesquels les composantes TL de basse température (< 280°C) des échantillons archéologiques ont été comparées avec celles des références thermiques. Certains échantillons archéologiques possèdent une composante TL autour de 250°C. Ainsi, un *cut-heat* à 250°C était trop fort et effaçait toutes les composantes TL de basse température (< 280°C) des références thermiques. A l'opposé, un *cut-heat* à 200°C était trop faible et les composantes TL de basse température (< 280°C) des références thermiques avaient une intensité trop élevée par rapport à celle des échantillons archéologiques. Finalement, un *cut-heat* à 230°C est apparu comme un bon compromis même s'il existe encore des écarts avec les composantes de basse température de certains échantillons archéologiques.

Le signal naturel simulé est donc mesuré sur chaque référence thermique qui a chauffé dans le four suivant un cycle thermique précis puis a été soumis à une irradiation et un *cut-heat*. Ce signal est le signal équivalent au signal naturel des échantillons archéologiques. De même, le signal naturel simulé + dose permet de mesurer l'augmentation éventuelle d'intensité TL consécutive à l'irradiation D :

- pas d'augmentation d'intensité TL (saturation) : échantillon pas ou peu chauffé ;
- augmentation de l'intensité TL (pas de saturation) : échantillon chauffé.

Les protocoles de mesure pour les signaux naturels simulés et naturels simulés + dose sont les suivants :

Aliquote 1 :

- Irradiation : dose D
- « *cut-heat* » à 230°C
- Lecture du signal TL naturel simulé
- Bruit de fond
- Irradiation : dose d de normalisation
- Lecture du signal de normalisation
- Bruit de fond

Aliquote 2 :

- Irradiation : dose D
- « *cut-heat* » à 230°C
- Irradiation : dose D
- Lecture du signal TL naturel simulé + dose
- Bruit de fond
- Irradiation : dose d de normalisation
- Lecture du signal de normalisation
- Bruit de fond

III.2.3. Mesure de TL

Les mesures TL réalisées sur les grains de quartz à savoir les signaux résiduel et résiduel + dose puis les signaux naturel simulé et naturel simulé + dose vont maintenant être présentées.

III.2.3.1. *Signal résiduel*

Le signal résiduel (reste du signal géologique après la chauffe dans le four) montre une décroissance d'intensité (Figure 70) avec la température de chauffe (température de création des références, T max) jusqu'à Tmax = 375°C. L'intensité diminue considérablement dès que la température de chauffe dépasse les 250°C. Entre 300°C et 375°C, le signal résiduel persiste dans les régions de haute température (T > 400°C). Au-delà de Tmax = 375°C il ne reste aucun signal TL.

Ainsi, si un échantillon archéologique n'a pas chauffé au-delà de 375°C, un reste du signal géologique sera encore mesurable.

Le signal résiduel + dose décroit suivant le même mode que le signal résiduel (Figure 71).

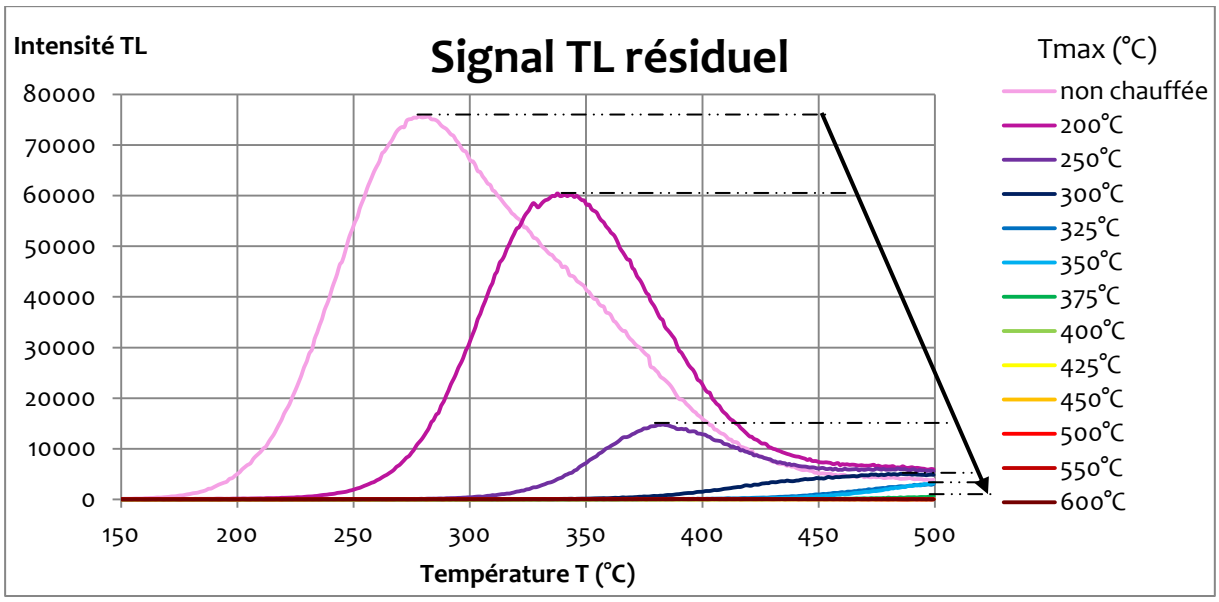


Figure 70 : Signal TL résiduel des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz après les cycles de chauffe dans le four. Aucun signal n'étant visible en deçà de 150°C, la courbe a été tronquée. (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C)

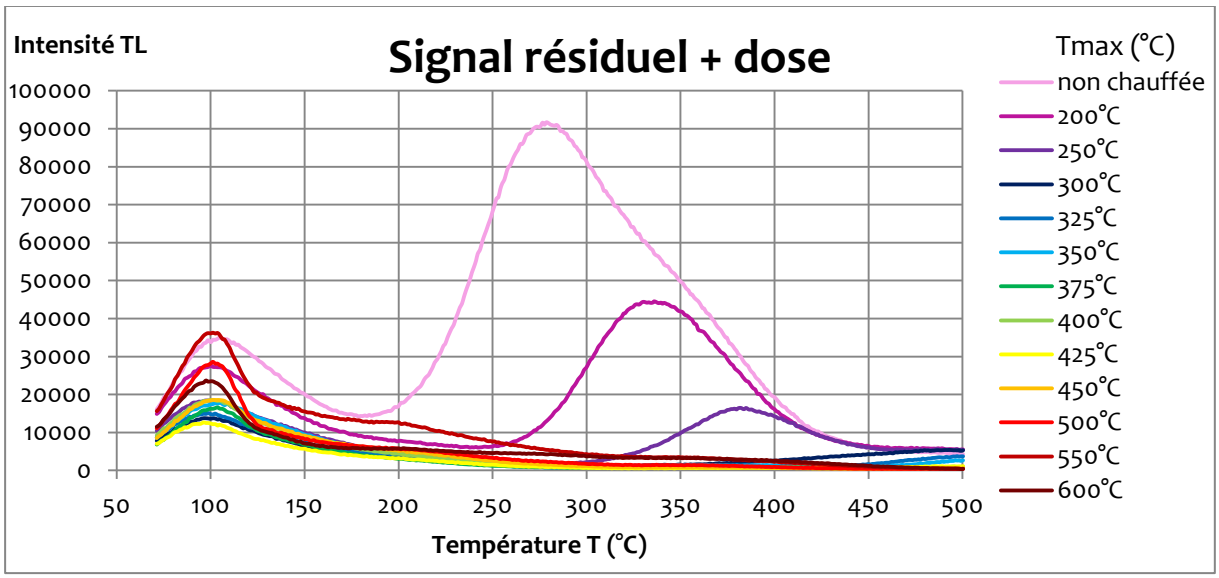


Figure 71 : Signal TL résiduel + dose (12 Gy) des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C).

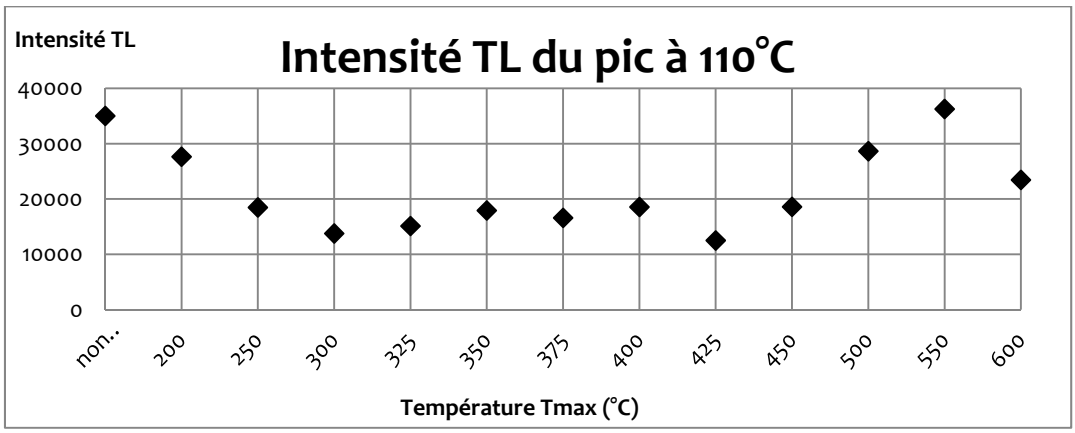


Figure 72 : Variation de l'intensité du pic à 110°C des courbes de signal résiduel + dose des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz.

Le pic à 110°C montre une certaine variabilité avec un maximum d'intensité à 550°C (Figure 72). On s'intéresse aux variations d'intensité du pic à 110°C car celles-ci seront utilisées dans la suite de l'étude pour lever quelques indéterminations entre des prélèvements non chauffés et chauffés.

III.2.3.2. *Signal naturel TL simulé*

L'intensité du signal TL naturel simulé (Figure 73, haut) et celle du signal naturel simulé + dose (Figure 74) commencent par décroître avec la température de chauffe (Tmax). Les références thermiques non chauffée et chauffées à 200°C et 250°C ont un signal naturel simulé (et naturel simulé + dose) dominé par le signal TL géologique résiduel : forte intensité et saturation de la TL. Tant que les grains de quartz sont chauffés en deçà de Tmax = 375°C, le signal résiduel est toujours visible dans les régions de haute température (T > 400°C). Ceci est en tout point cohérent avec l'évolution du signal résiduel exposée précédemment (Figure 70).

Pour les références avec Tmax > 375°C (Figure 73, bas ; Figure 74), l'intensité des deux composantes TL majeures (une à T = 280°C et l'autre à T = 360°C) augmente avec la température de chauffe (Tmax). Pour la référence à Tmax = 600°C, il y a une augmentation globale de sensibilité. Ce phénomène est du aux modifications de la structure cristalline par la chauffe en laboratoire qui a créé de nouveaux pièges remplis par l'irradiation qui a suivi.

La superposition des signaux naturel simulé et naturel simulé + dose est présentée Figure 77. Pour les faibles températures (Tmax) il y a une saturation du signal TL qui disparaît progressivement quand Tmax augmente.

L'intensité du pic à 110°C (Figure 75) montre un maximum d'intensité pour la référence chauffée à 500°C. Son évolution n'étant pas monotone, il est difficile d'utiliser son intensité comme seul critère pour attribuer une paléotempérature. Néanmoins, le rapport entre l'intensité maximale des composantes de haute température et l'intensité du pic à 110°C (Figure 76) possède un comportement qui permet de différentier des échantillons chauffés et non chauffés.

C'est l'ensemble des signaux naturels simulés (avec et sans ajout de dose, Figure 77) qui va servir pour la détermination des paléotempératures. En effet, le rapport d'intensité entre le pic à 110°C et la (les) composante (s) de haute température peut donner des indications sur les températures de chauffe complémentaires aux variations d'intensité et de forme.

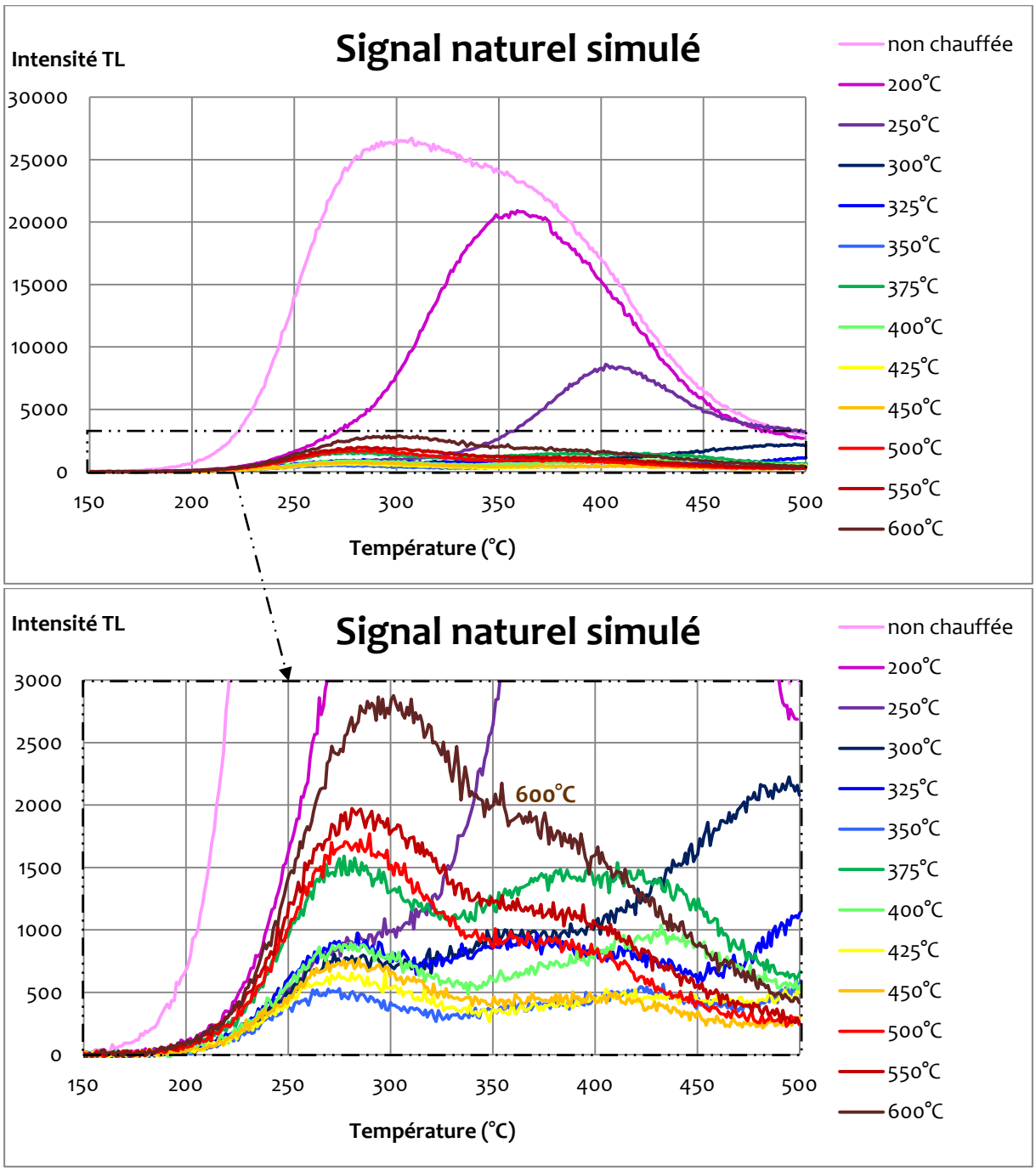


Figure 73 : Signal TL naturel simulé des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C).

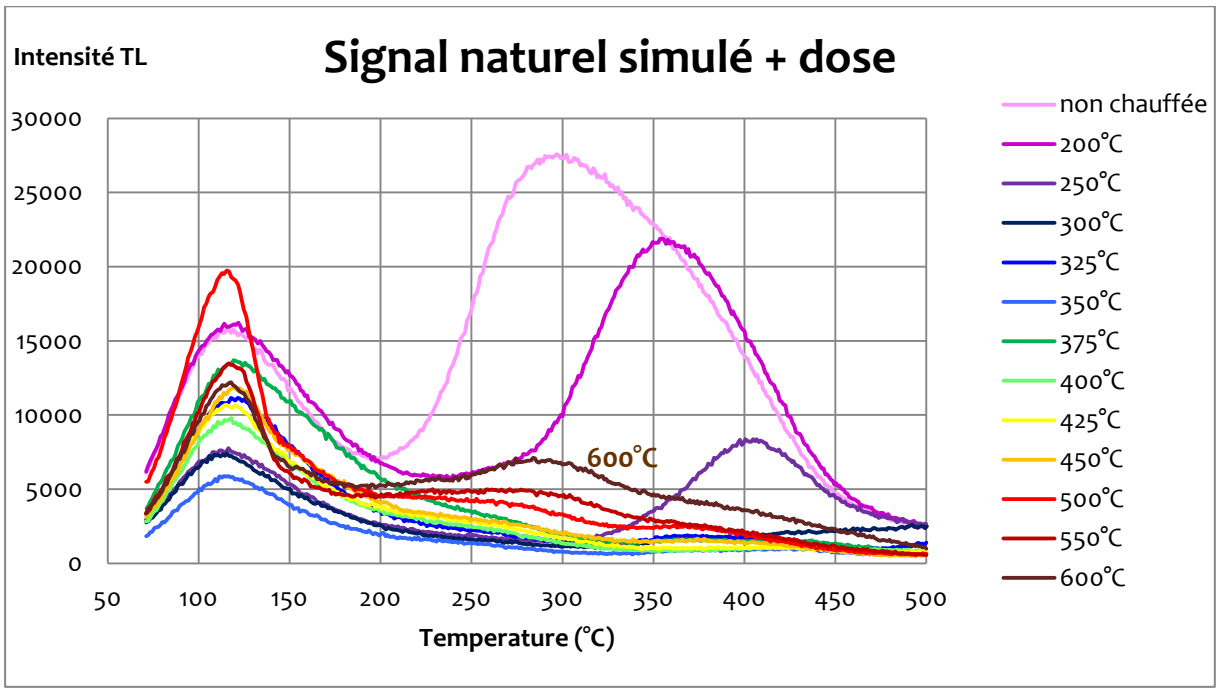


Figure 74 : Signal TL naturel simulé + dose des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C).

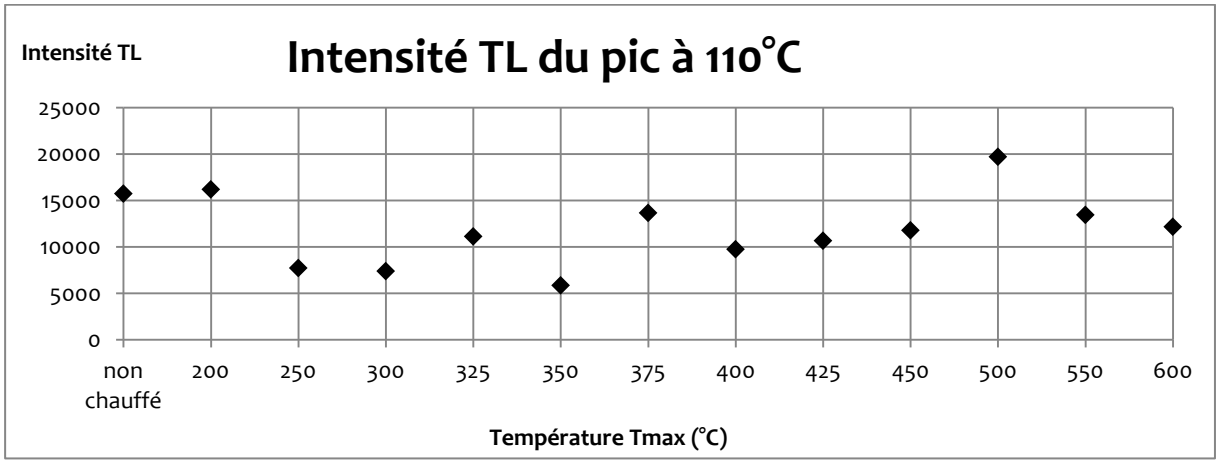


Figure 75 : Variation de l'intensité du pic à 110°C des courbes de signal TL naturel simulé + dose des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz.

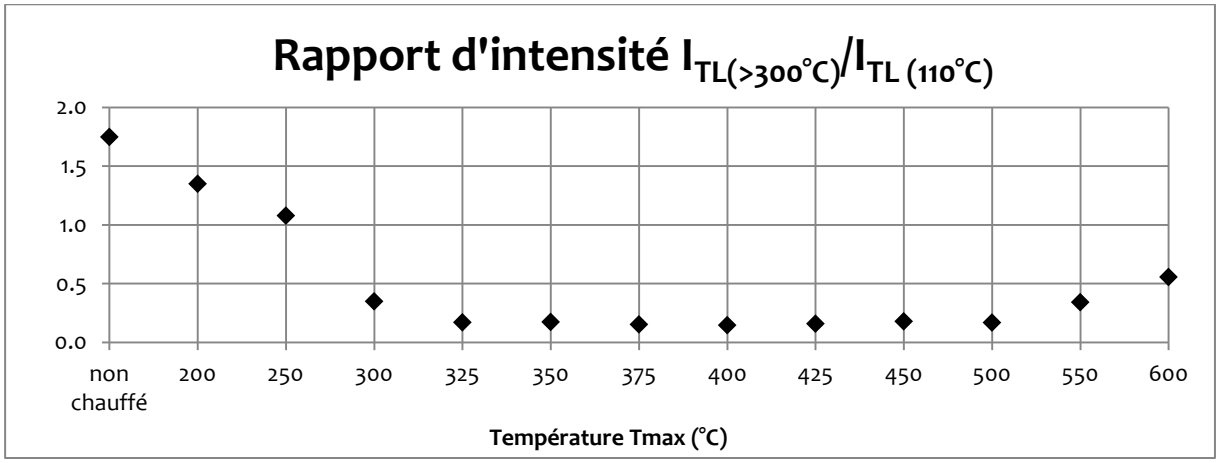


Figure 76 : Variation du rapport d'intensité maximale entre les composantes de haute température (> 300°C) et le pic à 110°C du signal naturel simulé + dose des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz.

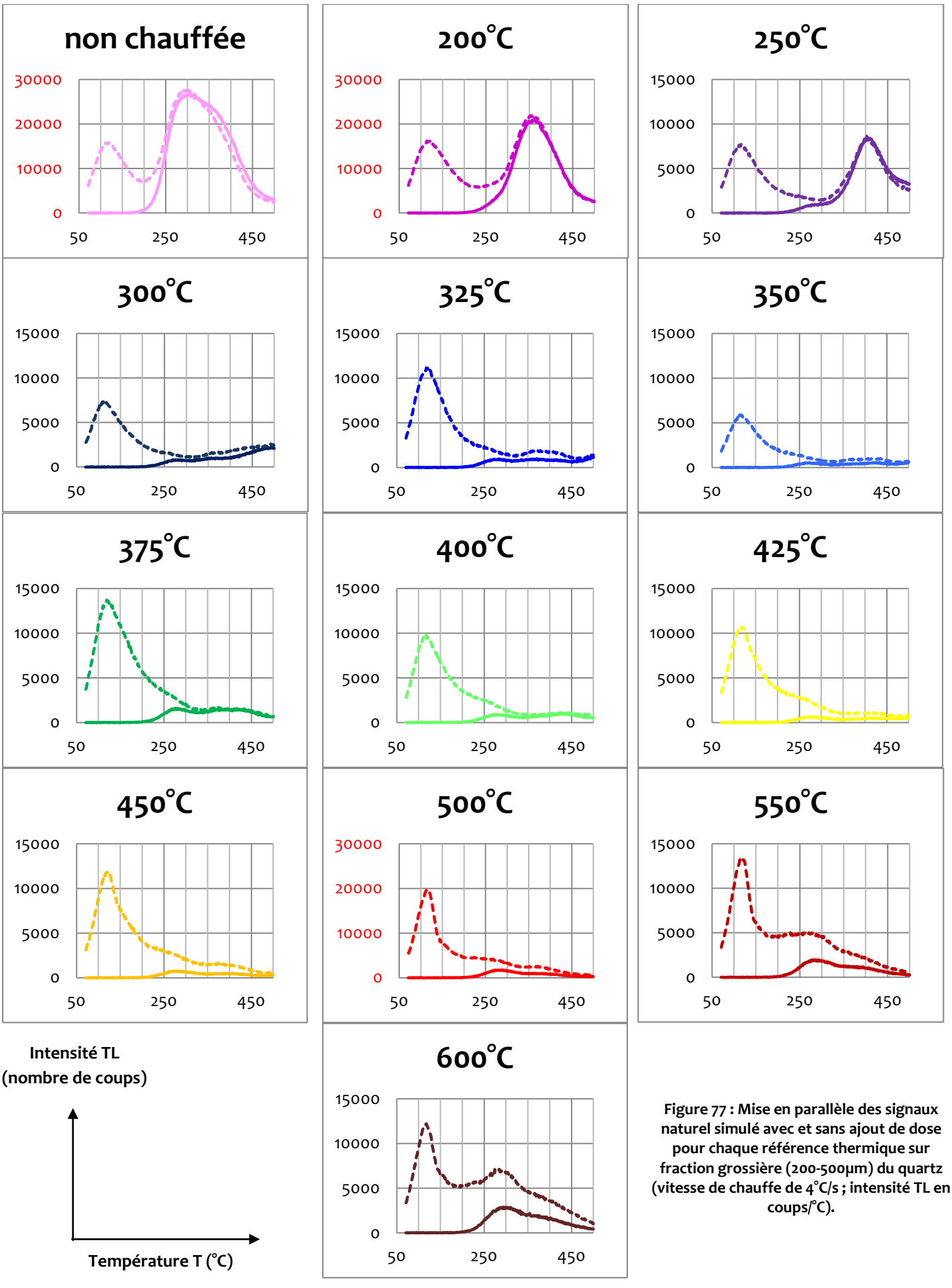


Figure 77 : Mise en parallèle des signaux naturel simulé avec et sans ajout de dose pour chaque référence thermique sur fraction grossière (200-500µm) du quartz (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C).

III.3. **Détermination des paléotempératures**

La détermination des paléotempératures s'effectue par comparaison des courbes en 3 étapes :

- une observation minutieuse de chaque courbe ;
- un calcul de la variance relative entre les courbes TL d'un échantillon et l'ensemble des références thermiques ;
- une classification hiérarchique de l'ensemble des échantillons et des références thermiques.

III.3.1. Comparaison visuelle

L'observation détaillée de chaque courbe, de son intensité, de la position de ses composantes TL principales (température), de l'influence de l'ajout de dose sur le pic à 110°C et sur le reste de la courbe permet d'attribuer une paléotempérature à chaque prélèvement par comparaison avec les références thermiques (Tableau 12).

Si on reprend nos échantillons d'illustration (Figure 78 et Figure 79) :

- le ***prélèvement n°F4-1***, comme la référence non chauffée, présente une composante large centrée sur 320°C et une saturation du signal avec l'ajout de dose. On lui associe donc la référence non chauffée.
- le ***prélèvement n°F4-5*** a une composante à 250°C, une autre centrée sur 350-400°C puis une légère remontée du signal à partir de 450°C. La référence à Tmax = 325°C possède les mêmes caractéristiques si ce n'est que la composante de basse température est centrée sur 280°C.
- le ***prélèvement n°F4-26***, comme la référence à 500°C, présente une première composante centrée sur 280°C puis une seconde entre 350°C et 400°C.
- le ***prélèvement n°F6-26***, possède une composante principale large entre 300 et 450 (maximum à 400°C) et une saturation du signal. Compte tenu de la position de la composante principale, on serait tenté de lui attribuer la référence à 250°C. Néanmoins, au vu de l'intensité du pic à 110°C par rapport à celle de la composante principale, la référence non chauffée serait la plus pertinente. Pour ce prélèvement, on peut donc simplement dire qu'il n'a pas chauffé au-delà de 250°C.
- le ***prélèvement n°F6-11*** présente une composante à 250°C puis une augmentation du signal jusqu'à 425°C, une chute d'intensité faible puis une remontée. La référence thermique la plus proche (Tmax = 350°C) a un comportement similaire excepté la composante à 270°C dont l'intensité est supérieure à celle du prélèvement et la position légèrement décalée du fait du *cut-heat*.
- le ***prélèvement n°F6-16b*** a une composante à 250°C, une autre entre 350°C et 425°C puis une chute importante de l'intensité avant une faible remontée aux hautes températures. La référence à Tmax = 450°C présente les mêmes variations si ce n'est toujours le décalage de la première composante.

Ce sont ces descriptions détaillées qui permettent d'attribuer visuellement une paléotempérature (Tableau 12 pour le foyer F4, Tableau 13 pour le foyer F6 et Tableau 14 pour le foyer F8). Le décalage de la composante à 250°C-280°C entre les prélèvements et les références thermiques est une conséquence du mode de création du signal naturel simulé. En effet, l'irradiation artificielle puis le *cut-heat* consécutif ne peuvent simuler exactement le comportement d'une irradiation de 3300 ans. Toutefois, le signal simulé est un bon compromis pour effectuer ces comparaisons.

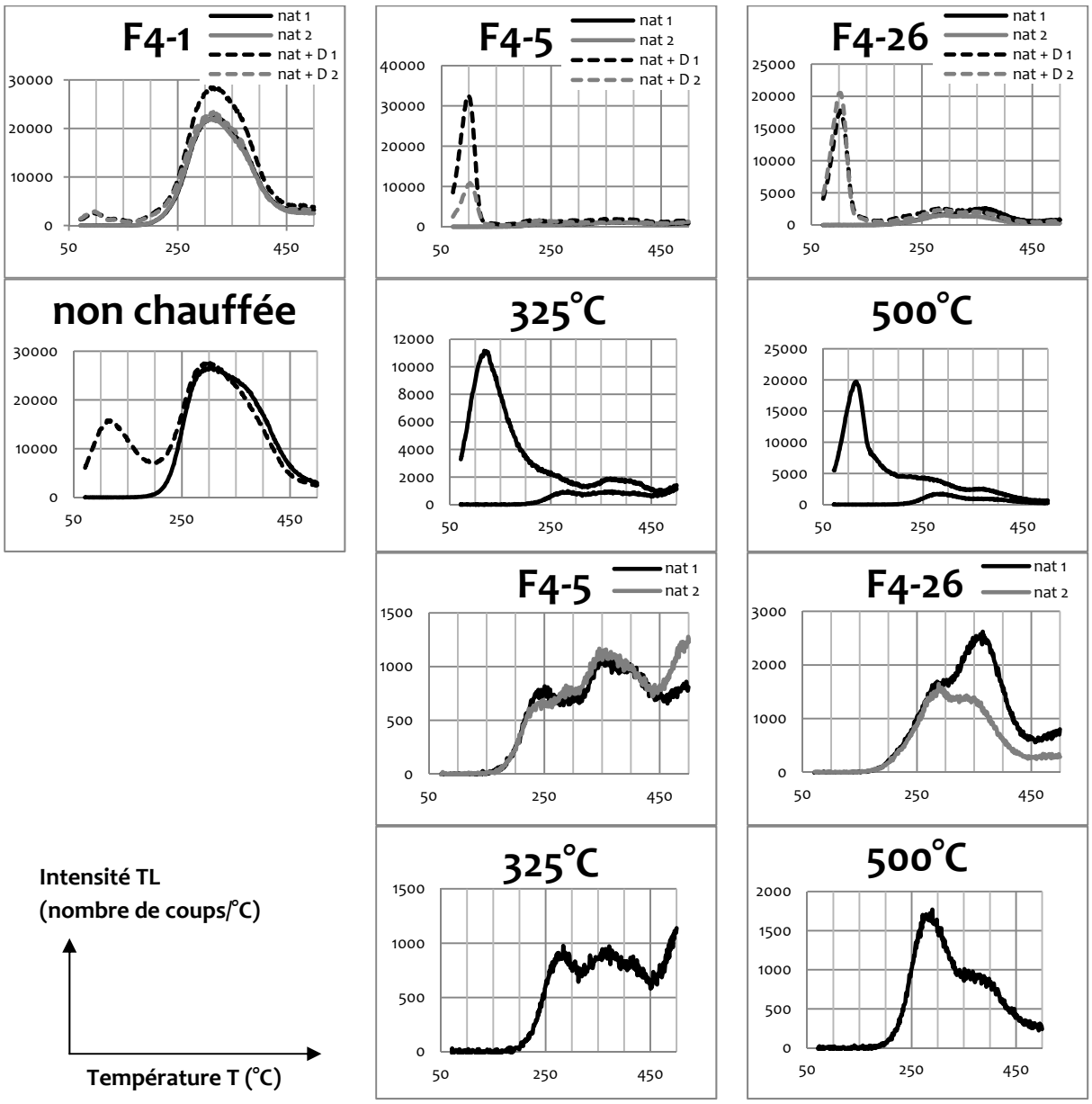


Figure 78 : Exemple de signaux TL naturel et naturel + dose de certains prélèvements archéologiques (F4-1, F4-5, F4-26 ; fraction 200-500 µm du quartz) et comparaison (visuelle) avec les références thermiques les plus proches (vitesse de chauffe de 4°C/s).

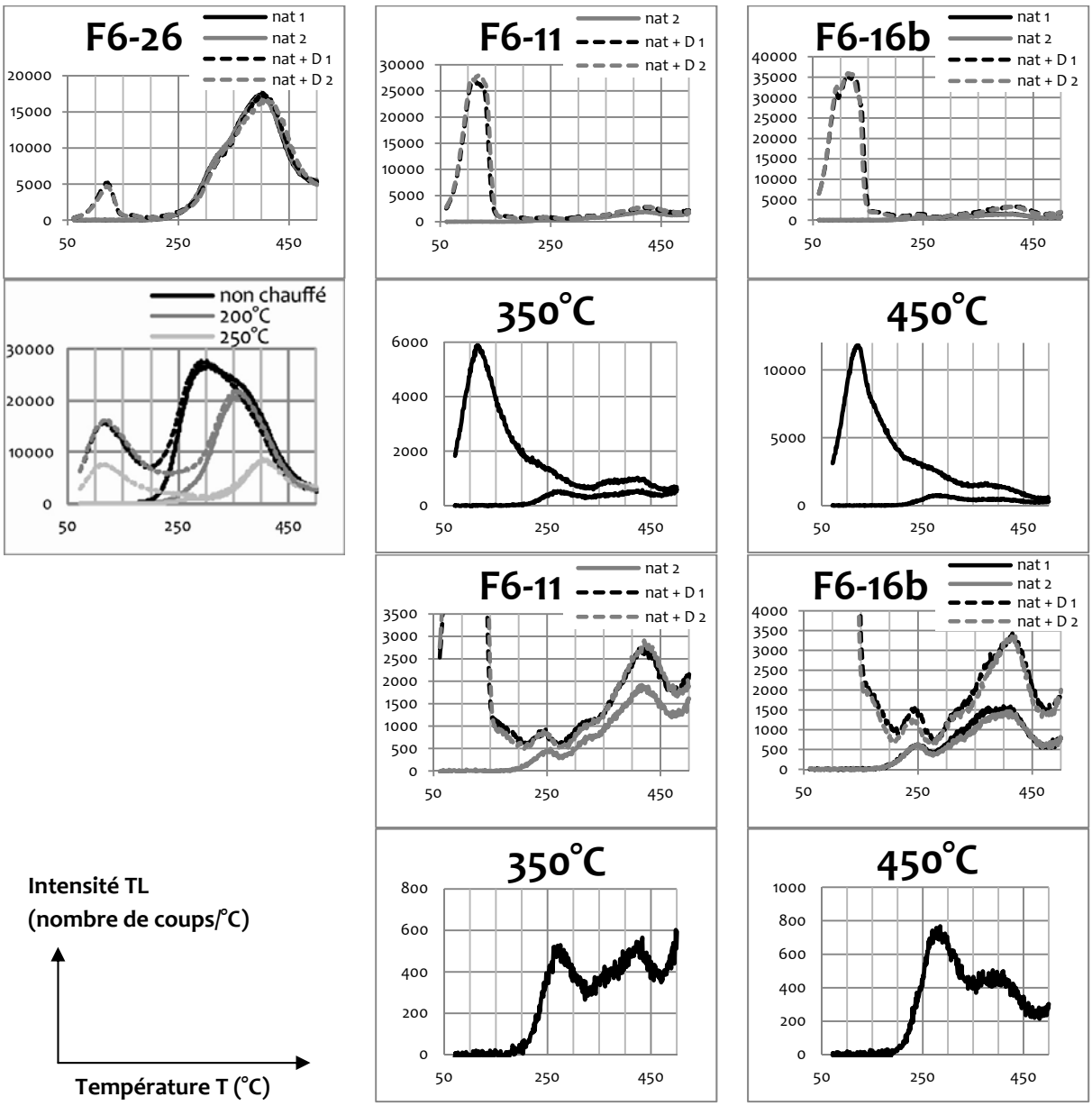


Figure 79 : Exemples de signaux TL naturel et naturel + dose de certains prélèvements archéologiques (F6-26, F6-11 et F6-16b ; fraction 200-500 µm du quartz) et comparaison (visuelle) avec les références thermiques les plus proches (vitesse de chauffe de 4°C/s).

Pour certains prélèvements (n°F4-13, F4-16 et F4-17, foyer F4), il est cependant difficile de déterminer une paléotempérature. En effet, les courbes naturelles de ces échantillons sont d'intensité moyenne (≈ 5000 coups/°C) mais présentent une composante unique large caractéristique des prélèvements peu chauffés (annexe 1). L'ajout de dose n'entraine presque aucune augmentation d'intensité. Ces échantillons possèdent des courbes regroupant les caractéristiques des références pas ou peu chauffées (saturation du signal et intensité moyenne du pic à 110°C) et celles très chauffées (intensité moyenne du signal). Il est possible que ces prélèvements, issus de zones fortement charbonneuses, soient un mélange entre des sédiments non chauffés (substrat gréseux) et des sédiments chauffés (issus de la sole ou attenant, et/ou sédiment gréseux surfacique chauffé par les vidanges de braises et charbons).

III.3.2. Calcul de la variance relative

La seconde étape est un calcul de variance relative d'intensité entre la courbe naturelle d'un échantillon et les courbes des références thermiques sur un intervalle de température donné (250°C < T < 480°C). La variance (V) correspond à la moyenne des carrés des écarts à la moyenne et la variance relative (V_R) est le rapport de la variance au carré de la moyenne :

$$V = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(x_i - \bar{x})^2 \qquad V_R = \frac{V}{\bar{x}^2}$$

où n est le nombre de valeurs, x_i le rapport entre le signal TL de l'échantillon et le signal d'une des références à la température i et $\bar{x}$ moyenne des x_i.

Prenons l'exemple du prélèvement n°F4-1 (Tableau 10). L'intensité du signal naturel ITL (F4-1) est divisée par l'intensité de la référence thermique considérée ITL (référence) à chaque température *i*. Ensuite, pour chaque référence, la moyenne de ce rapport est calculée, puis la variance et enfin la variance relative (formule ci-dessus). La référence thermique la plus proche possède la variance relative la plus faible.

F4-1 : naturel		**références thermiques**						**rapport ITL(F4-1)/ ITL(référence)**					
T (°C)		non chauffé	200°C	250°C	…	550°C	600°C	non chauffé	200°C	250°C	…	550°C	600°C
i	ITL	ITL	ITL	ITL	ITL	ITL	ITL	ITL	ITL	ITL	ITL	ITL	ITL
250.4	6906	13970	1533	484	…	1096	1285	0.49	4.50	14.27	…	6.30	5.37
251.4	7303	14134	1602	517	…	1104	1368	0.52	4.56	14.13	…	6.62	5.34
252.5	7682	14947	1694	517	…	1217	1441	0.51	4.53	14.86	…	6.31	5.33
253.7	7935	15580	1713	537	…	1217	1474	0.51	4.63	14.78	…	6.52	5.38
254.8	8167	16087	1788	556	…	1206	1457	0.51	4.57	14.69	…	6.77	5.61
…	…	…	…	…	…	…	…	…	…	…	…	…	…
495.1	3292	2973	2689	3333	…	291	453	1.11	1.22	0.99	…	11.31	7.27
496.1	3119	3197	2767	3347	…	259	427	0.98	1.13	0.93	…	12.04	7.30
497.2	3374	3119	2722	3216	…	270	428	1.08	1.24	1.05	…	12.50	7.88
497.9	3296	3063	2691	3344	…	258	458	1.08	1.22	0.99	…	12.78	7.20
499.3	3317	3068	2687	3209	…	294	454	1.08	1.23	1.03	…	11.28	7.31
500.3	3232	2982	2692	3240	…	255	416	1.08	1.20	1.00	…	12.67	7.77
							moyenne :	0.70	1.59	7.67		10.28	6.65
							variance :	0.03	1.90	64.24		11.53	3.74
							variance relative :	0.06	0.75	1.09		0.11	0.08

Tableau 10 : Exemple du traitement numérique utilisé pour calculer la variance relative.

La même opération peut être effectuée sur la courbe naturelle + dose et les signaux naturels simulés + dose des références thermiques. Cette fois on considère l'intervalle de température 70 °C < T < 480°C pour les calculs. Ceci permet de prendre en compte les rapports d'intensité du pic à 110°C avec la composante principale.

Les résultats obtenus sur le signal naturel et le signal naturel + dose sont complémentaires et permettent d'attribuer une paléotempérature ou un intervalle de paléotempératures suivant les cas (Tableau 12).

Pour nos exemples (Figure 80), le calcul des variances relatives indique que le prélèvement n°F4-1 n'a pas été chauffé, que le prélèvement n°F4-5 a chauffé entre 325°C et 425°C et que le prélèvement n°F4-26 a chauffé à 500°C. Pour le foyer F6, le prélèvement n°F6-26 n'a pas ou peu chauffé (200°C), le n°F6-11 montre un intervalle de chauffe entre 250 °C et 425°C. Enfin, le prélèvement F6-16b est associé à l'intervalle de température 300-450°C.

L'ensemble des courbes de variance relative sont disponibles dans les annexes 4, 5 et 6.

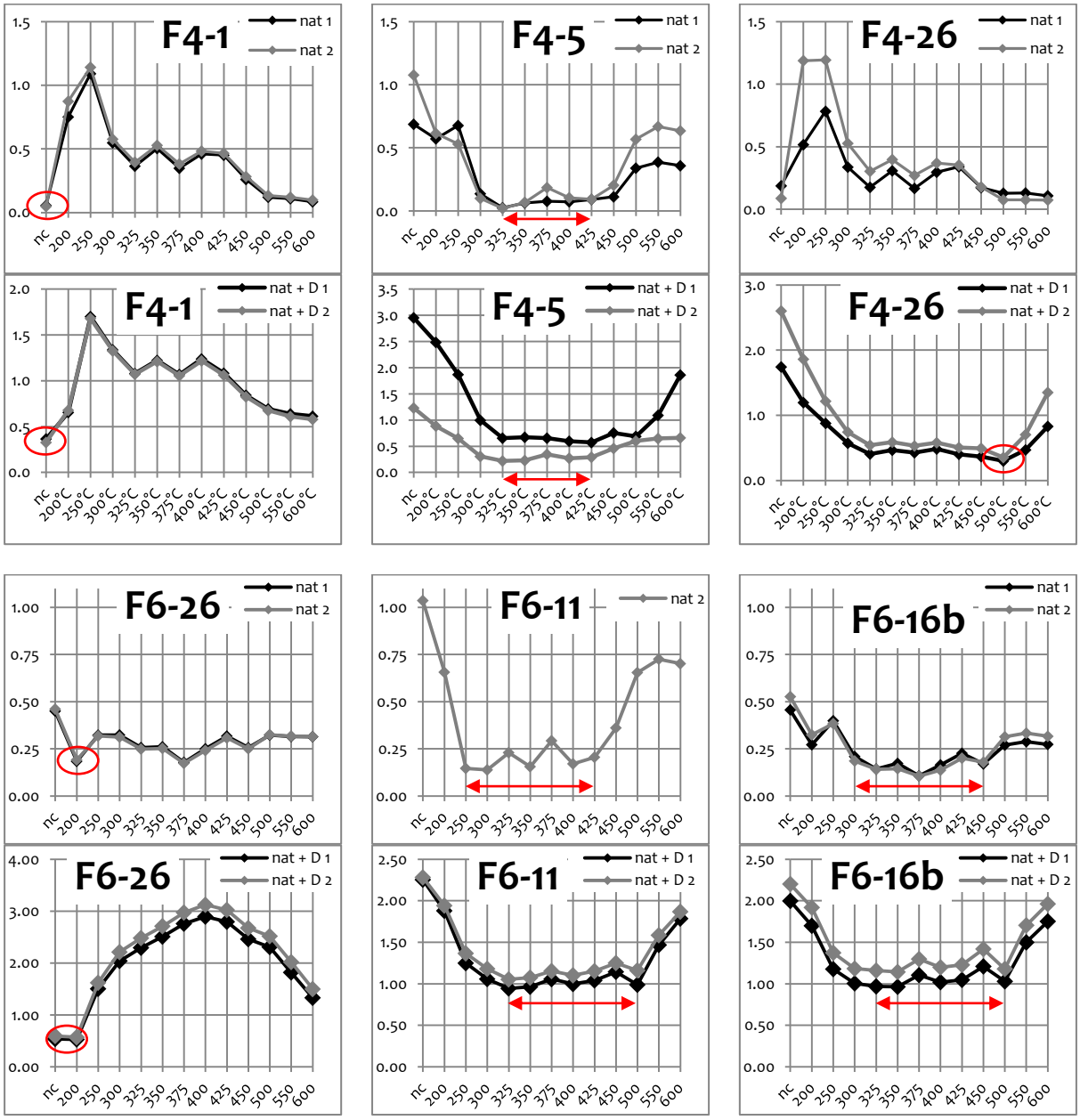


Figure 80 : Exemples de représentation des variances relatives pour les prélèvements F4-1, F4-5, F4-26, F6-26, F6-11, F6-16b.

III.3.3. Classification hiérarchique

Enfin, une troisième méthode a été utilisée : une classification hiérarchique (Baxter, 2003) de l'ensemble des échantillons et références thermiques (Statistica Statsoft, méthode de Ward par les distances euclidiennes).

Pour cela, les courbes naturelles de chaque échantillon ont été découpées en intégrales de 10°C de large entre 150°C et 470°C. Sur chaque intervalle de température, l'intégrale de l'intensité sous la courbe a été calculée. Ces intégrales sont comparées avec les intégrales correspondantes (sur le même intervalle de température) de l'ensemble des autres courbes (échantillons et références).

Prenons l'exemple du foyer F4 (Tableau 11), pour réaliser la classification hiérarchique, on construit une matrice où les lignes (observables) correspondent aux intégrales de chaque échantillon (prélèvements et références) et les colonnes (variables) sont les intervalles de températures sur lesquels on a intégré l'intensité TL.

La méthode de classification est ascendante, c'est-à-dire qu'on regroupe d'abord les deux observables les plus proches qui forment un nœud. Il reste alors n-1 observables et on réitère le processus jusqu'au regroupement complet (*cf*. Saporta, 2006, p. 258-259). On obtient ainsi un dendrogramme qui regroupe les références et les échantillons entre eux suivant la proximité de leur courbe TL.

ΔT (°C) : n° échantillon	150-160	160-170	170-180	…	450-460	460-470
F4-1 nat1	154	437	1128	…	31719	31959
F4-1 nat2	163	455	1100	…	26499	25733
F4-2 nat1	66	157	267	…	10647	11986
F4-2 nat 2	68	142	300	…	9906	11419
F4-3 nat1	191	441	989	…	13162	13363
F4-3 nat 2	197	439	1017	…	10685	10582
…	…	…	…	…	…	…
F4-33 nat1	123	291	848	…	42568	40134
F4-33 nat2	81	208	518	…	30927	28983
F4-34 nat1	82	305	758	…	27705	27555
F4-34 nat2	75	238	483	…	32095	31056
nc	299	731	1669	…	38474	33885
200°C	25	72	291	…	33927	30083
250°C	0	0	34	…	36441	34771
…	…	…	…	…	…	…
550°C	23	150	130	…	3772	3302
600°C	75	91	115	…	5961	4959

Tableau 11 : Matrice des intégrales de l'intensité TL pour le foyer F4 et les références thermiques, base de la classification hiérarchique.

Les dendrogrammes associés aux foyers F4, F6 et F8 sont présentés Figure 81 et Figure 82. Ils montrent en ordonnée les distances euclidiennes entre échantillons ou groupes d'échantillons. Plus l'ordonnée est faible, meilleure est la cohérence entre les courbes de TL des groupements.

Cette troisième méthode permet de rassembler les échantillons de même comportement entre eux et de leur attribuer une paléotempérature ou un intervalle de température (Tableau 12).

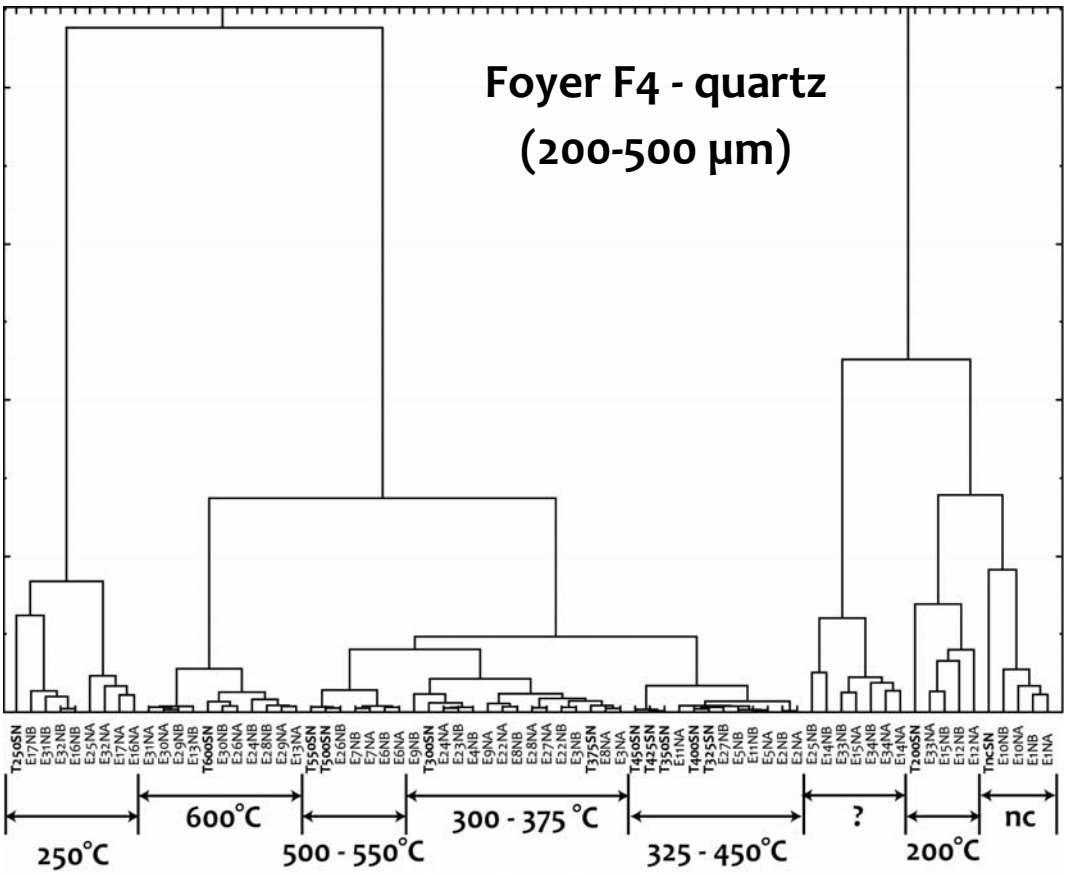


Figure 81 : Classification hiérarchique des échantillons du foyer F4 et des références thermiques (en gras). Codes utilisés pour les échantillons : E (Echantillon) + n° de prélèvement+N (Naturel) + A ou B (nat 1 ou nat 2) ; Pour les références : T (Témoin) + température Tmax + SN (Simulation Naturel), nc = non chauffé.

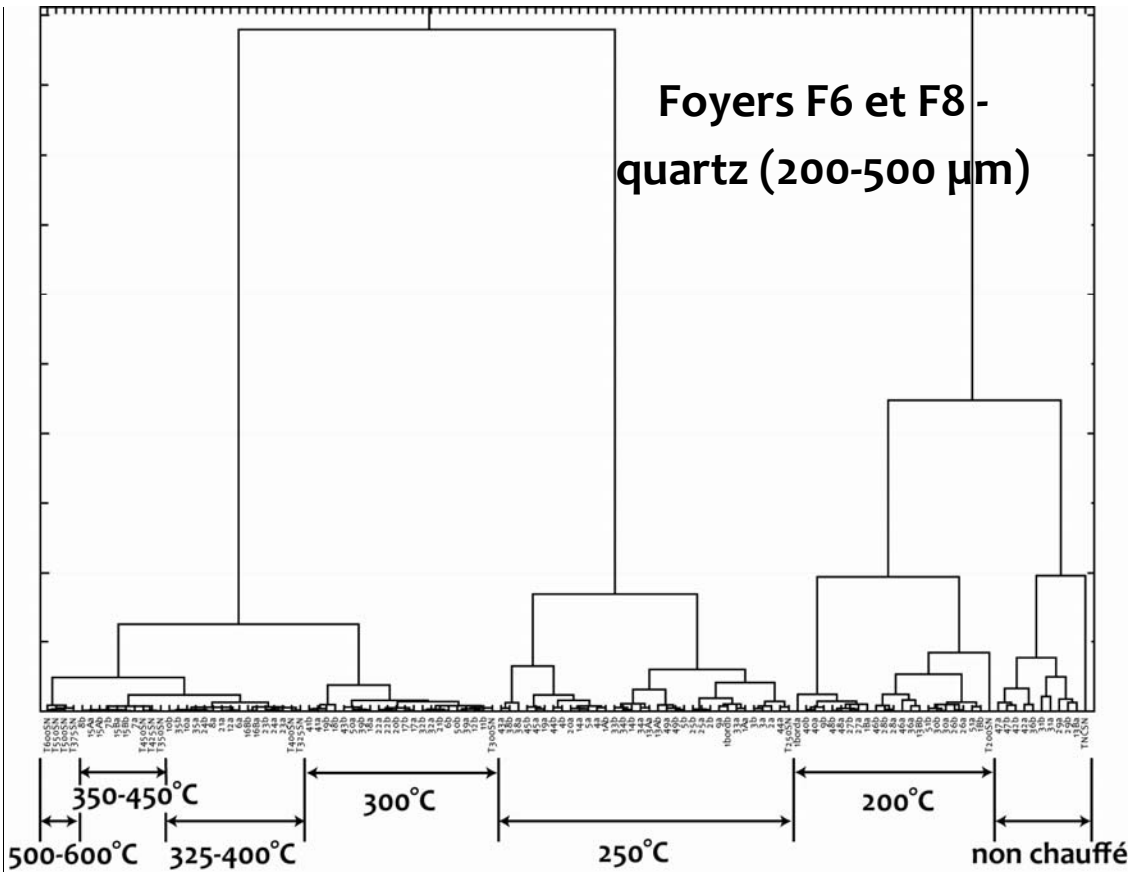


Figure 82 : Classification hiérarchique des prélèvements des foyers F6-F8 et des références thermiques (en gras). Codes utilisés pour les prélèvements : numéro de prélèvement + a ou b (nat 1 ou nat 2) ; Pour les références thermiques : T (Témoin) + température + SN (Simulation du Naturel).

Dans les deux dendrogrammes (Figure 81 et Figure 82), les échantillons non chauffés et chauffés à 200°C et 250°C sont clairement identifiés. En effet, la différence d'intensité TL est importante entre ces échantillons et ceux qui sont plus fortement chauffés (> 250°C). La classification hiérarchique est fortement dépendante de l'intensité des signaux TL et permet donc une différentiation entre échantillons chauffés ou faiblement chauffés. Cette sensibilité est dans ce cas un avantage. Cependant, comme nous le verrons pour les mesures de TL sur la fraction fine polyminérale, cette sensibilité peut être un inconvénient : s'il y a une différence d'intensité notable entre les références thermiques et les échantillons, elle prime sur la similitude de forme. La classification hiérarchique devient inefficace pour déterminer des paléotempératures à moins d'appliquer une normalisation aux courbes de TL. Toutefois dans cette partie ce problème n'est pas présent.

Pour le foyer F4, on peut supposer que le groupe (prélèvements n°14, 15, 25, 33, 34) qui n'est associé à aucune référence thermique particulière mais qui est rattaché au groupe [non chauffé - 200°C], contient des échantillons ayant été faiblement chauffés mais avec des courbes TL un peu particulières qui font qu'ils ne collent pas exactement aux références. Le reste des échantillons se répartit à des températures uniques (non chauffé, 200°C, 250°C, 600°C) ou dans des intervalles de températures (300-375°C, 325-450°C, 500-550°C) qui peuvent éventuellement se recouper. Dans ces cas là, c'est grâce aux deux autres approches que la paléotempérature sera déterminée.

Pour les foyers F6 et F8, les échantillons sont associés soit à une référence thermique donc une température unique (non chauffé, 200°C, 250°C, 300°C), soit à plusieurs références thermiques donc des intervalles de températures (325-400°C, 350-450°C). Par contre, aucun échantillon n'est associé à des références thermiques chauffées entre 500°C et 600°C qui sont alors regroupées avec la référence à 375°C. Les prélèvements de ces deux foyers semblent donc moins chauffés que ceux du foyer F4.

III.3.4. Corrélation entre les trois méthodes

Pour chacune des méthodes, une paléotempérature ou un intervalle de paléotempérature a été associée à chaque échantillon.

Pour le foyer F4, dont les prélèvements n'ont fait l'objet que de mesures TL sur le quartz (200 - 500 µm), la combinaison des trois méthodes permet de choisir une valeur « moyenne » de température qui recoupe au mieux les trois autres (Tableau 12). Les températures déterminées par les trois méthodes sont cohérentes entre elles pour la grande majorité des prélèvements. Deux prélèvements (F4-13 et F4-25) présentent cependant des résultats incompatibles : suivant la méthode de détermination utilisée, les paléotempératures diffèrent entre du matériel peu chauffé et très chauffé. Cette divergence de paléotempératures provient des courbes TL de ces prélèvements qui présentent la forme des références peu chauffées mais des intensités moyennes. La paléotempérature associée, marquée d'un point d'interrogation (Tableau 12) pour signifier qu'un doute persiste, a été choisie en suivant la méthode de la variance relative.

Pour les foyers F6 et F8, l'ensemble des prélèvements ont été étudiés sur la fraction 200 - 500 µm du quartz et la fraction 3 - 12 µm polyminérale. La combinaison des températures ne sera effectuée qu'après l'étude sur la fraction polyminérale. Néanmoins, les trois paléotempératures déterminées sur le quartz sont présentées dans le Tableau 13 (foyer F6) et le Tableau 14 (foyer F8) et elles présentent de bonnes concordances.

Prélèvement		Température (°C)			
n°	BDX	Visuelle	Variance	Class. Hier.	Combinaison
F4-1	12619	nc	nc	nc	***nc***
F4-2	12620	350	325	325-450	***350***
F4-3	12621	450	325	300-375	***375***
F4-4	12622	325	300	300-450	***325***
F4-5	12623	325	325-425	325-450	***325***
F4-6	12624	500	500	500-550	***500***
F4-7	12625	500	500	500-550	***500***
F4-8	12626	375	300-350	300-375	***375***
F4-9	12627	350	300-350	300-375	***350***
F4-10	12628	nc	nc	nc	***nc***
F4-11	12629	325 - 350	300-350	325-450	***350***
F4-12	12630	200	nc-200	200	***200***
F4-13	12631	?	nc-200	600	***200 ?***
F4-14	12632	nc	nc	nc-200	***nc***
F4-15	12633	nc	nc	nc-200	***nc***
F4-16	12634	?	200	250	***250***
F4-17	12635	?	nc-200	250	***250***
F4-22	12639	450 - 500	325-500	300-375	***450***
F4-23	12640	300	300	300	***300***
F4-24	12641	350	300-325	300 / 600	***325***
F4-25	12642	550	500-550	nc-200 /250	***500 ?***
F4-26	12643	500	500	500-550 / 600	***550***
F4-27	12644	500	450-500	300-450	***450***
F4-28	12645	≥ 600	500-550	300-375/600	***600***
F4-29	12646	≥ 600	≥ 500	600	***600***
F4-30	12647	≥ 600	≥ 450	600	***600***
F4-31	12648	≥ 600	≥ 450	250/600	***600***
F4-32	12649	nc	nc-200	250	***250***
F4-33	12650	nc	nc-200	nc-200	***200***
F4-34	12651	nc	nc-200	nc-200	***200***

Tableau 12 : Foyer F4, numéros des prélèvements et paléotempératures déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique sur la fraction 200-500 µm du quartz ainsi que la combinaison des trois (nc : non chauffé).

Prélèvement		Température (°C)			Prélèvement		Température (°C)		
n°	BDX	Visuelle	Variance	Class. Hier.	n°	BDX	Visuelle	Variance	Class. Hier.
F6-1a	14511	200	250	250	F6-17	14535	400	300-450	300
F6-1b	14512	nc	nc-200	200	F6-18	14536	350	325	300
F6-1bord	14657	200	200-250	200	F6-19	14537	nc-250	nc-200	250
F6-2	14513	250	250	250	F6-20	14538	nc-250	200	250
F6-3	14515	200	250	250	F6-21	14539	400	325-500	300
F6-4	14516	250	250	250	F6-22	14540	400	325-500	300
F6-5	14518	250	250	250	F6-23	14541	400	325-500	325-400
F6-6	14519	300-350	325-500	300	F6-24	14542	350	325	325-400
F6-7	14520	300-350	325-500	350-450	F6-25	14543	200	250	250
F6-8	14522	250	325	350-450	F6-26	14544	nc	nc-200	200
F6-9	14523	nc	200-250	200	F6-27	14545	nc	nc-200	200
F6-10	14524	300	325-500	325-400	F6-28	14546	nc	nc-200	200
F6-11	14525	350	325-500	300	F6-29	14547	nc	nc-200	nc
F6-12	14527	350	325-500	325-400	F6-30	14548	nc	nc-200	200
F6-13a	14528	nc	200-250	250	F6-31	14549	nc	nc-200	nc
F6-13b	14529	nc	nc-200	200	F6-32	14550	400	325-500	300
F6-14	14530	nc	250	250	F6-33	14551	250	250	250
F6-15a	14531	350	325-500	350-450	F6-34	14552	nc	200	250
F6-15b	14656	300	325-500	350-450	F6-35	14553	350	325-500	325-400
F6-16b	14534	450	300-450	325-400	F6-36	14554	nc	nc-200	nc

Tableau 13 : Foyer F6, numéros des prélèvements et paléotempératures déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique sur la fraction 200-500 µm du quartz (nc : non chauffé).

Prélèvement		Température (°C)			Prélèvement		Température (°C)		
n°	BDX	Visuelle	Var. Rel.	Class. Hier.	n°	BDX	Visuelle	Var. Rel.	Class. Hier.
F8-38	14556	250-300	200-250	250	F8-45	14563	250	200	250
F8-39	14557	250-300	250-325	300	F8-46	14564	nc	nc-200	200
F8-40	14558	nc	nc-200	200	F8-47	14565	nc	nc-200	nc
F8-41	14559	250	200	200	F8-48	14566	nc	nc-200	200
F8-42	14560	nc	nc-200	nc	F8-49	14567	nc	nc-200	250
F8-43	14561	250-300	200-250	250	F8-50	14568	350	250-325	300
F8-44	14562	nc	200-250	250	F8-51	14569	nc	nc-200	200

Tableau 14 : Foyer F8, numéros des prélèvements et paléotempératures déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique sur la fraction 200-500 µm du quartz (nc : non chauffé).

III.4. **Validation par le foyer expérimental**

Les cinq prélèvements effectués dans les grès broyés de la structure expérimentale après les quatre chauffes (Figure 60) ont aussi été étudiés par TL. Ils constituent un ensemble d'échantillons tests dont on connait l'histoire thermique et dont on va déterminer la température équivalente.

La chauffe de ces prélèvements étant récente, ils ont été traités comme des références thermiques en ajoutant une dose d'irradiation pour les comparer aux courbes naturelles simulées des références thermiques, c'est-à-dire que nous avons simulé le vieillissement par l'ajout d'une dose d'irradiation suivi d'un *cut-heat*. Les paramètres de mesure et les protocoles sont identiques à ceux des références thermiques (ce chapitre, II.2.2)

III.4.1. Mesures de TL

Les signaux résiduels enregistrés (restes du signal TL après les chauffes expérimentales) montrent trois comportements différents (Figure 83) : les prélèvements BDX 14909 et BDX 14910 ne possèdent pas de résidu du signal géologique. Les prélèvements BDX 14911 et BDX 14912 montrent un signal géologique résiduel dans les régions de haute température (> 400°C). Enfin, le prélèvement BDX 15300 présente une intensité forte (20000 coups/°C) et un signal géologique prépondérant (saturation du signal).

Les signaux naturels simulés et naturels simulés + dose (Figure 84) présentent les mêmes comportements dépendant du signal géologique. Les échantillons BDX 14909 et BDX 14910 ont une composante à 250°C puis une seconde composante centrée sur 350-400°C. Ils présentent un pic à 110°C de forte intensité et une augmentation du signal avec l'ajout de dose. Les prélèvements BDX 14911 et BDX 14912 ont une composante à 250°C et ensuite ils présentent une augmentation continue de l'intensité du signal à partir de 350°C. L'ajout de dose entraine l'apparition d'un pic à 110°C d'intensité moyenne et une augmentation du signal. Enfin, le prélèvement BDX 15300 a une composante large entre 350°C et 450°C, un pic à 110°C d'intensité faible et une saturation du signal.

Ces signaux naturels simulés et naturels simulés + dose vont maintenant être comparés à ceux des références thermiques.

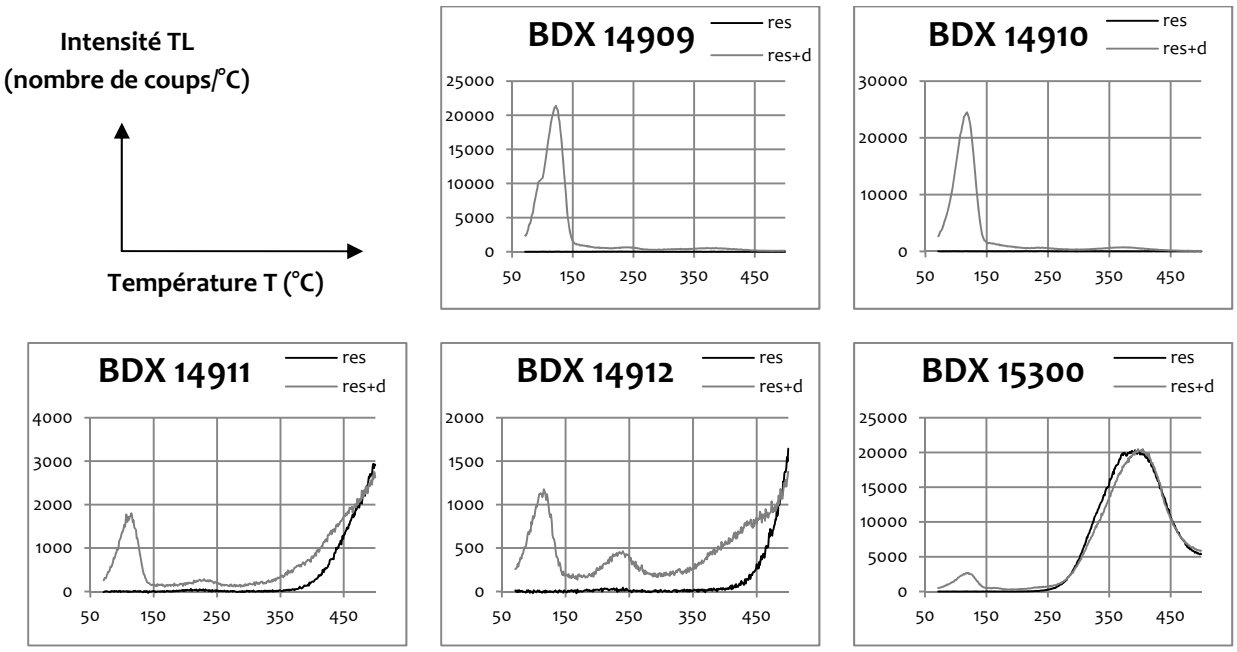


Figure 83 : Signal TL résiduel et résiduel + dose sur la fraction 200 - 500 µm du quartz du foyer expérimental (vitesse de chauffe de 4°C/s).

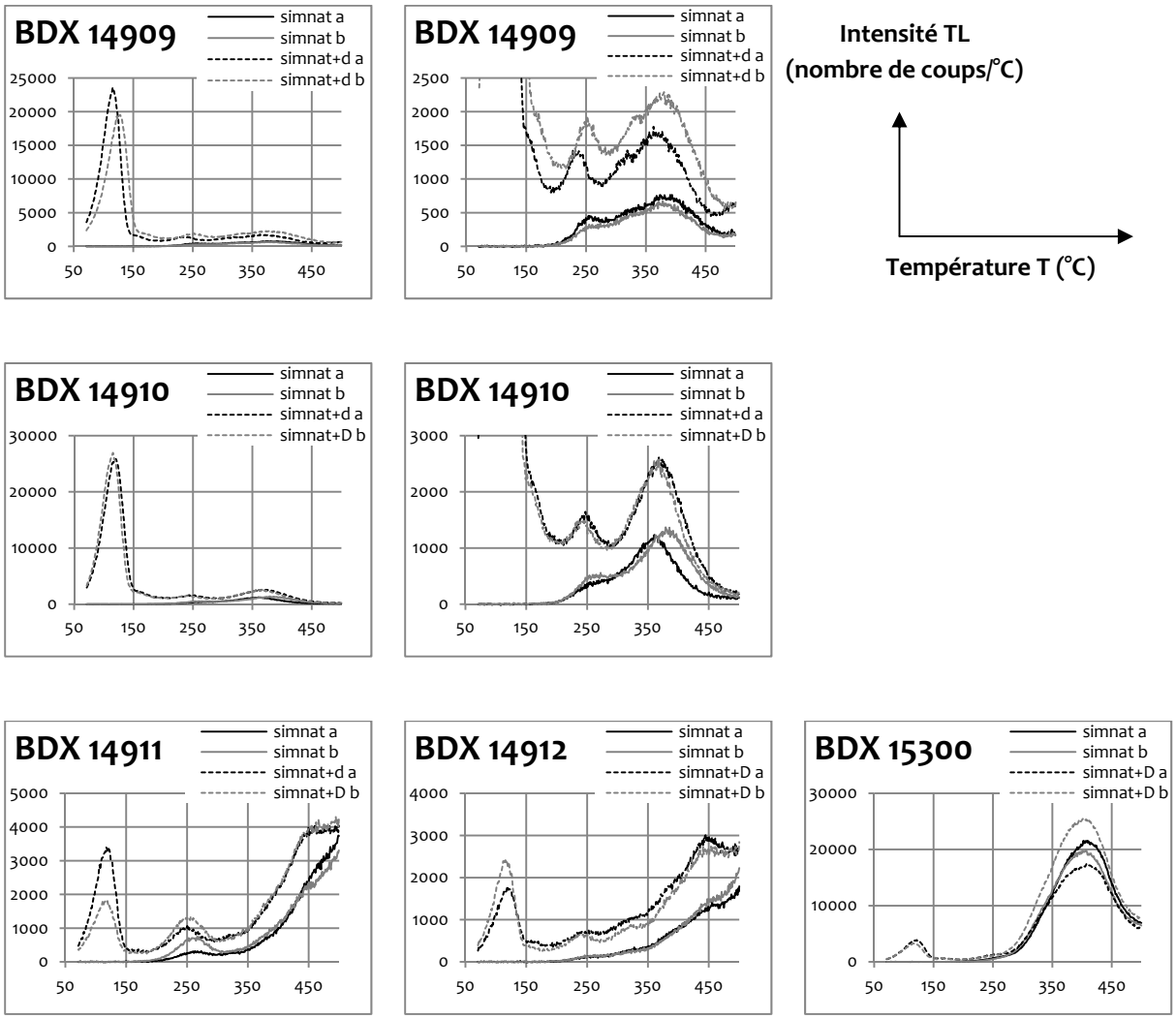


Figure 84 : Signal naturel simulé (traits pleins) et naturel simulé + dose (traits pointillés) sur la fraction 200 - 500 µm du quartz du foyer expérimental (vitesse de chauffe de 4°C/s).

III.4.2. Détermination de la paléotempérature

Nous allons d'abord présenter les comparaisons (visuelle, variance et classification hiérarchique) nécessaires à la détermination des paléotempératures, comparaisons entre les courbes TL des échantillons du foyer expérimental et celles des références thermiques. Ce n'est que dans un second temps que nous comparerons les paléotempératures obtenues avec le cycle thermique réel auquel ont été soumis ces échantillons.

III.4.2.1. *Comparaison visuelle*

Les courbes TL des prélèvements du foyer expérimental sont présentés ci-dessous (Figure 85) en comparaison avec la ou les références thermiques les plus proches visuellement en intensité et en forme :

- BDX 14909 associé à la référence à 375°C par la similitude de l'allure de la courbe et la proximité de la position des composantes TL ;
- BDX 14910 associé aux références 450-500-550°C par la proximité de la position des composantes TL (à 250°C et autour de 400°C) et malgré une inversion dans le rapport des intensités de ces deux composantes ;
- BDX 14911 et BDX 14912 associés à la référence à 300°C par la présence marquée du signal géologique dans les régions de haute température ;
- BDX 15300 associé à la référence à 200°C par l'intensité du signal et la position de la composante TL principale.

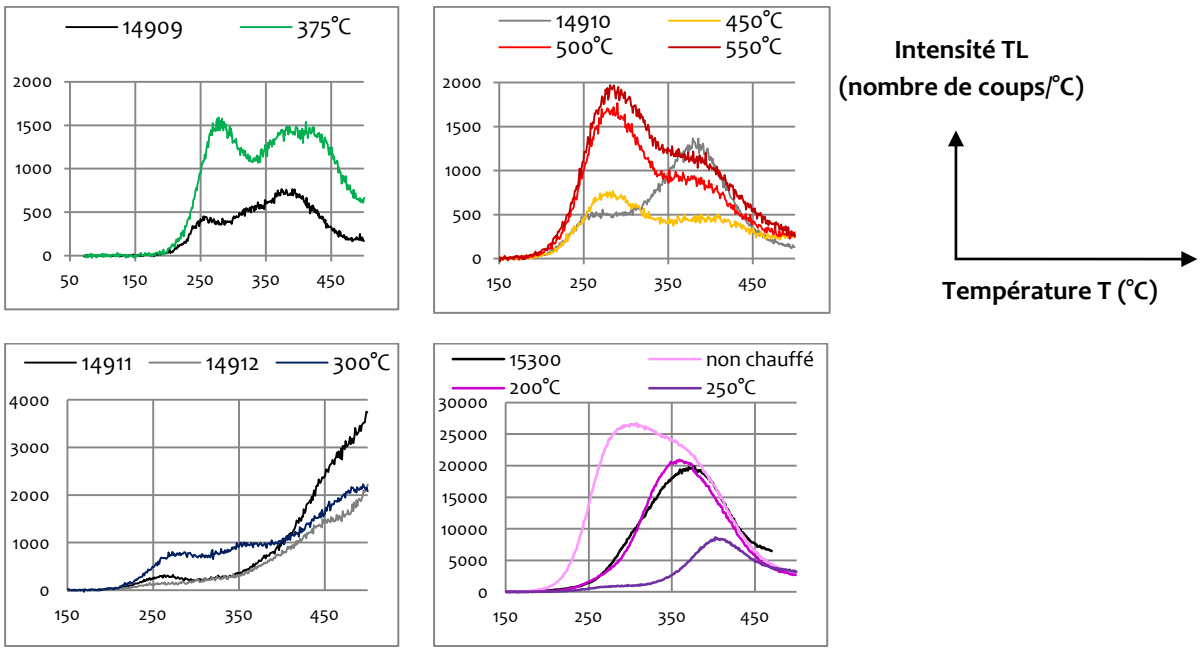


Figure 85 : Comparaison visuelle des courbes naturelles simulées des prélèvements du foyer expérimental avec les références thermiques les plus proches (vitesse de chauffe de 4°C/s).

III.4.2.2. *Calcul de la variance relative*

Le calcul de la variance relative des courbes (simulées) naturelle et naturelle + dose (détail du protocole, ce chapitre II.3.2) permet l'attribution d'une paléotempérature (ou d'un intervalle) pour chaque prélèvement du foyer expérimental (Figure 86) :

- BDX 14909 associé soit à la référence à 375°C, soit à l'intervalle 325-500°C ;
- BDX 14910 associé à la référence à 500°C ;
- BDX 14911 et BDX 14912 associés à la référence à 300°C ;
- BDX 15300 associé à la référence à 250°C.

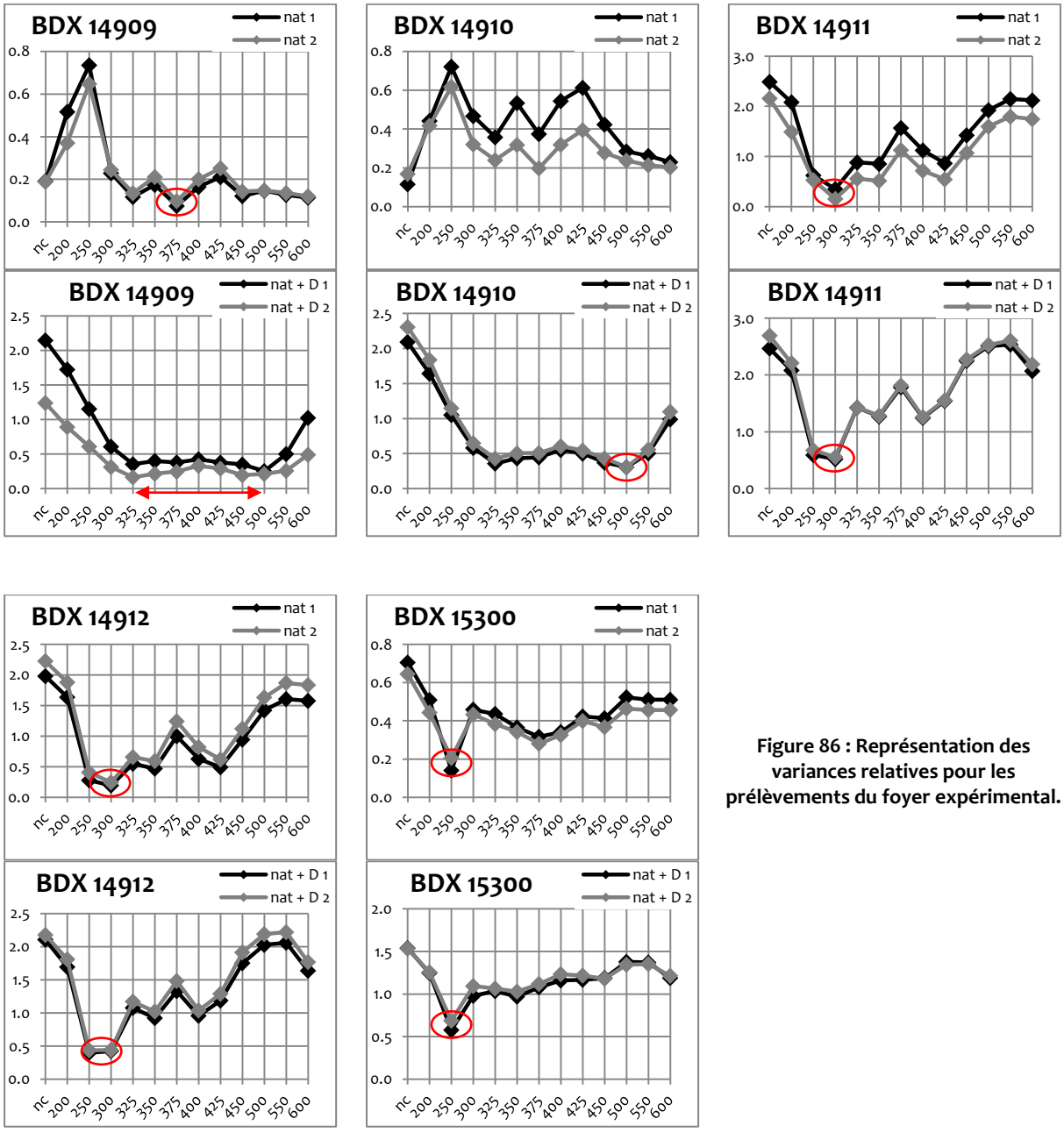


Figure 86 : Représentation des variances relatives pour les prélèvements du foyer expérimental.

III.4.2.3. *Classification hiérarchique*

La classification hiérarchique des prélèvements du foyer expérimental ainsi que des références thermiques (détail ce chapitre, II.3.3) indiquent (Figure 87) :

- BDX 14909 associée à l'intervalle 350-450°C ;
- BDX 14910 associé à l'intervalle 325-400°C ;
- BDX 14911 et BDX 14912 associé à la référence à 300°C
- BDX 15300 associé à la référence à 200°C.

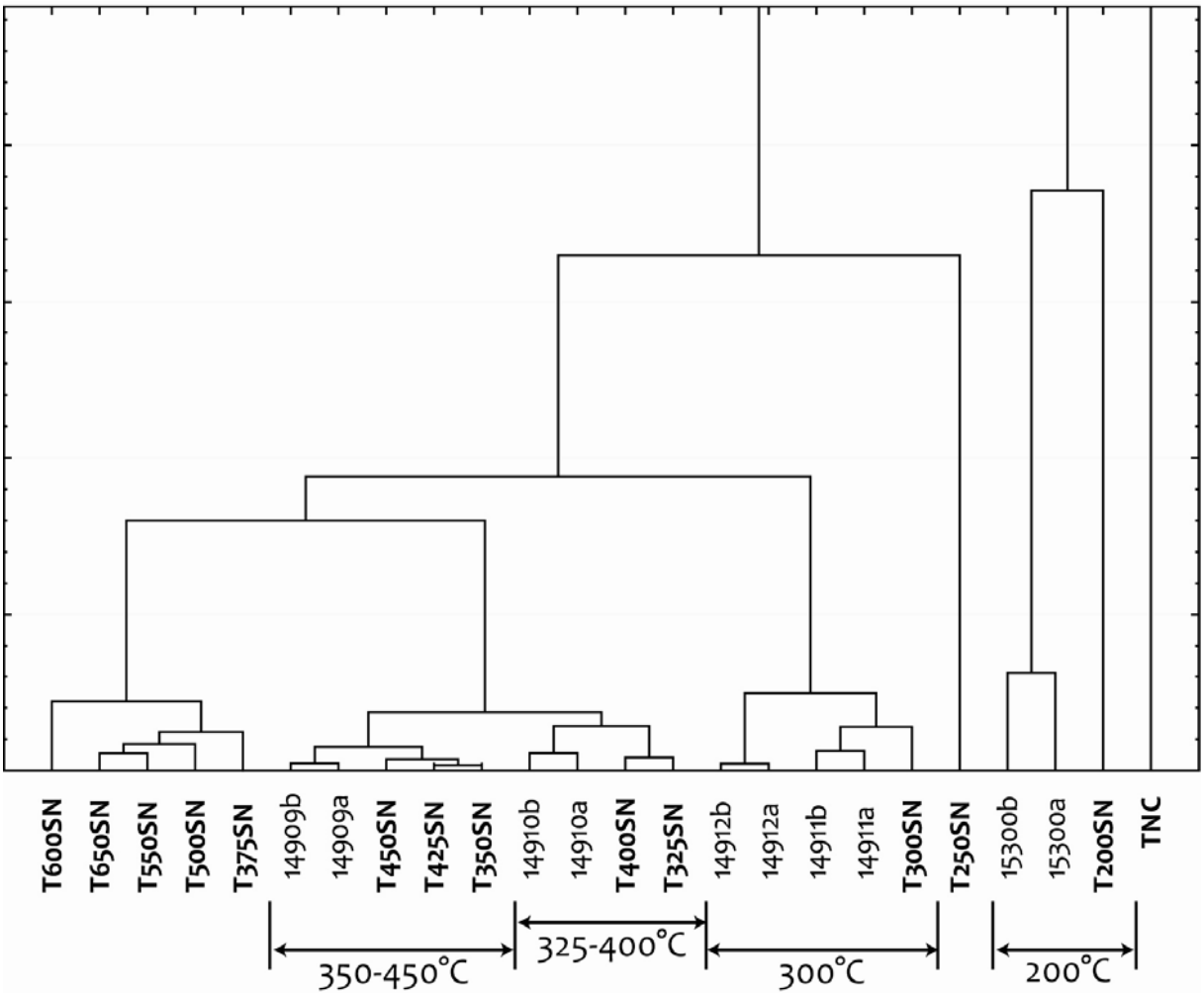


Figure 87 : Classification hiérarchique des prélèvements du foyer expérimental et des références thermiques (en gras). Code utilisé pour les références : T (Témoin) + température + SN (Simulation naturel) ; prélèvements : n° BDX + a ou b (nat 1 ou nat 2).

III.4.2.4. *Corrélation des trois méthodes*

Pour effectuer la corrélation, examinons d'abord les cycles réels des chauffes expérimentales (Figure 88) :

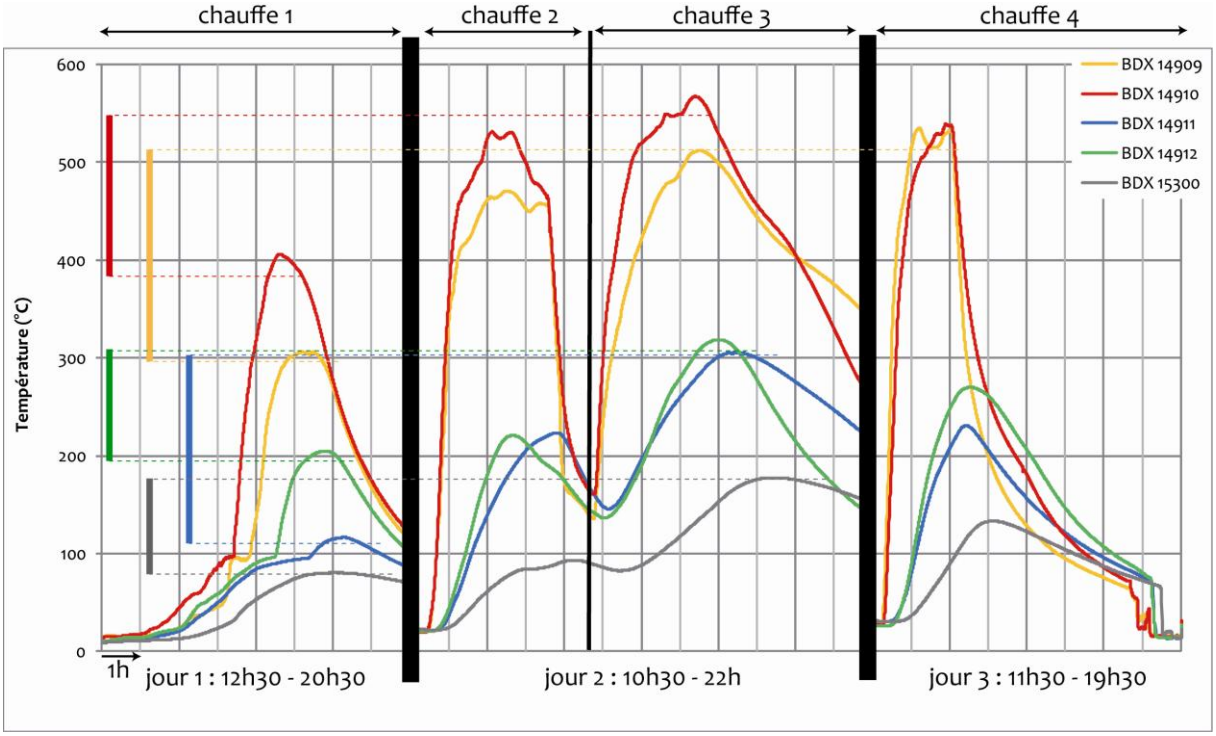


Figure 88 : Cycles thermiques enregistrés par les thermocouples correspondant aux prélèvements. Sur la gauche du graphique sont représentés les intervalles « min-max » de chauffe de chaque échantillon pendant au moins une heure.

Les grandes lignes de ces cycles thermiques réels de chaque échantillon se résument ainsi (Tableau 15) :

Histoire thermique réelle				Intervalle min-max pendant au moins 1h
chauffe 1	chauffe 2	chauffe 3	chauffe 4	
2h à T>200°C Tmax à 300°C	2h30 à T>400°C Tmax = 470°C	2h à T>450°C Tmax = 510°C	1h à T>500°C Tmax = 540°C	300-510
2h à T>300°C Tmax = 400°C	1h à T>500°C Tmax = 530°C	3h à T>500°C Tmax = 570°C	1h à T>500°C Tmax = 540°C	380-550
1h30 à T>100°C Tmax = 120°C	1h à T>200°C Tmax = 220°C	1h à T>300°C Tmax = 310°C	1h à T>200°C Tmax = 230°C	110-300
30 min à T>200°C Tmax = 210°C	1h à T>200°C Tmax = 220°C	1h30 à T>300°C Tmax = 320°C	2h30 à T>200°C Tmax = 270°C	200-310
1h à 80°C	2h à T>80°C Tmax = 90°C	3h à T>160°C Tmax = 180°C	3h à T>100°C Tmax = 130°C	80-180

Tableau 15 : Histoire thermique réelle et intervalle min-max de chauffe.

Le Tableau 16 synthétise les températures obtenues par comparaison visuelle, calcul de la variance relative et classification hiérarchique et les met en parallèle avec l'intervalle de température min-max pendant au moins une heure de chaque échantillon.

	Température (°C)			Intervalle min-max pendant au moins 1h
	Visuelle	Variance	Class.Hier.	
BDX 14909	375	375 ou 325-500	350-450	300-510
BDX 14910	450-550	500	325-400	380-550
BDX 14911	300	300	300	110-300
BDX 14912	300	300	300	200-310
BDX 15300	200	250	200	80-180

Tableau 16 : Corrélation entre les températures visuelles, la variance relative, la classification hiérarchique et les intervalles min-max de chauffe pendant au moins 1h.

Les températures équivalentes obtenues (Tableau 16) sont cohérentes avec les différences réelles de cycles thermiques et le calcul de la variance relative semble plus en phase avec l'histoire thermique que la classification hiérarchique.

Il est difficile de trouver un paramètre quantificateur de la correspondance entre le cycle thermique réel et la température équivalente associée. En effet, le cycle thermique utilisé pour construire les références thermiques diffère largement du cycle thermique subi par les échantillons du foyer expérimental. La température équivalente ne peut donc pas se lire directement sur les courbes de température de celui-ci.

Nous avons par ailleurs tenté de calculer le terme d'exposition thermique définit par J. Spencer et D. Sanderson (1994) :

$$\textit{thermal exposure} \propto \int_0^t T(t)\log(t)\,dt$$

Ce paramètre n'a pas permis de comparaison entre le cycle thermique des références et celui des échantillons du foyer expérimental même si on lui applique un facteur de normalisation fonction du temps d'exposition.

Cependant, le classement en température des échantillons reste bien le même quel que soit le paramètre utilisé (visuel, variance, classification hiérarchique, intervalle min-max et *thermal exposure*) et suit les différences de l'histoire thermique :

T (BDX 14910) > T (BDX 14909) > T (BDX 14911, BDX 14912) > T (BDX 15300)

IV. Mesure de TL sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm)

La sole de cuisson du foyer F4 (F4-18, F4-19 et F4-21), les foyers F6 et F8 ainsi que la sole du foyer expérimental ont été étudiés sur la fraction fine polyminérale.

IV.1. **Echantillonnage archéologique**

IV.1.1. Paramètres de mesure TL

Les protocoles de mesure sont identiques à ceux utilisés pour la fraction 200 - 500 µm du quartz (ce chapitre, II.1.1), si ce n'est que la valeur de dose ajoutée est supérieure. Une valeur de 20 Gy a été choisie pour la fraction fine polyminérale puisque d'une part, un sédiment argileux est plus riche en radioéléments que le sédiment gréseux et d'autre part, la contribution des particules alpha à la thermoluminescence des grains fins doit être prise en compte. La dose naturelle reçue pendant un même temps sera donc plus importante qu'avec les grains de quartz 200 - 500 µm. La valeur de la dose a été sous-estimée, comme pour les grains de quartz, au maximum d'un facteur 2.

IV.1.2. Mesure de TL

Les signaux naturels et naturels + dose des prélèvements de la sole foyère (F4) et des foyers F6 et F8 ont été mesurés. L'ensemble des courbes des échantillons des foyers F6 et F8 sont disponibles dans l'annexe 7 pour le foyer F6 et dans l'annexe 8 pour le foyer F8.

A titre d'exemple, les trois prélèvements de la sole F4 (F4-18, F4-19 et F4-21 ; Figure 89) ainsi que les prélèvements F6-26, F6-11 et F6-16b (Figure 90) sont présentés dans le texte.

- ***Reproductibilité du signal*** : elle est bonne pour la grande majorité des prélèvements (annexe 7 et annexe 8). La reproductibilité est meilleure que pour les grains de quartz (200 - 500 µm) probablement à cause de l'homogénéisation de la fraction fine polyminérale pendant la préparation des aliquotes.

- ***Saturation du signal vs non saturation*** : la saturation du signal est identifiée en comparant le signal naturel avec le signal naturel + dose. Le prélèvement F6-26 (Figure 90) ne présente pas ou peu d'augmentation du signal avec l'irradiation, il y a donc saturation du signal TL qui correspond alors au signal géologique indiquant l'absence de chauffe par le passé. Pour le prélèvement F6-11 (Figure 90), on observe une saturation du signal dans les régions de haute température montrant la présence d'un résidu de signal géologique et indiquant une chauffe peu intense dans le passé. Enfin, les prélèvements F4-18, F4-19, F4-21 (Figure 89) et F6-16b (Figure 90) ne présentent pas de saturation du signal avec l'irradiation indiquant une chauffe assez intense dans le passé pour effacer le signal géologique.

- ***Position des pics et intensité TL*** : les composantes TL des prélèvements F4-18, F4-19, F4-21 et F6-16b se situent entre 250°C et 400°C avec des intensités faibles (< 400 coups/°C) surtout pour le F4-21 (Figure 89). L'ajout de dose entraine l'apparition d'un pic à 110°C d'intensité moyenne (de 2000 à 8000 coups/°C) caractéristique du quartz indiquant que la luminescence de la fraction fine polyminérale est dominée par celle du quartz. Le prélèvement F6-11 (Figure 90) montre une

intensité TL faible mais croissante de 250°c à 450°C. L'intensité du pic à 110°C induit par l'irradiation est plutôt faible (< 2000 coups/°C). Le prélèvement F6-26 (Figure 90) a un signal naturel d'intensité moyenne (4000 coups/°C) mais qui est très supérieure aux signaux TL des autres prélèvements. Les composantes TL sont situées entre 250°C et 400°C. Le pic à 110°C induit par l'irradiation a une intensité inférieure à celle des autres composantes TL (3000 coups/°C).

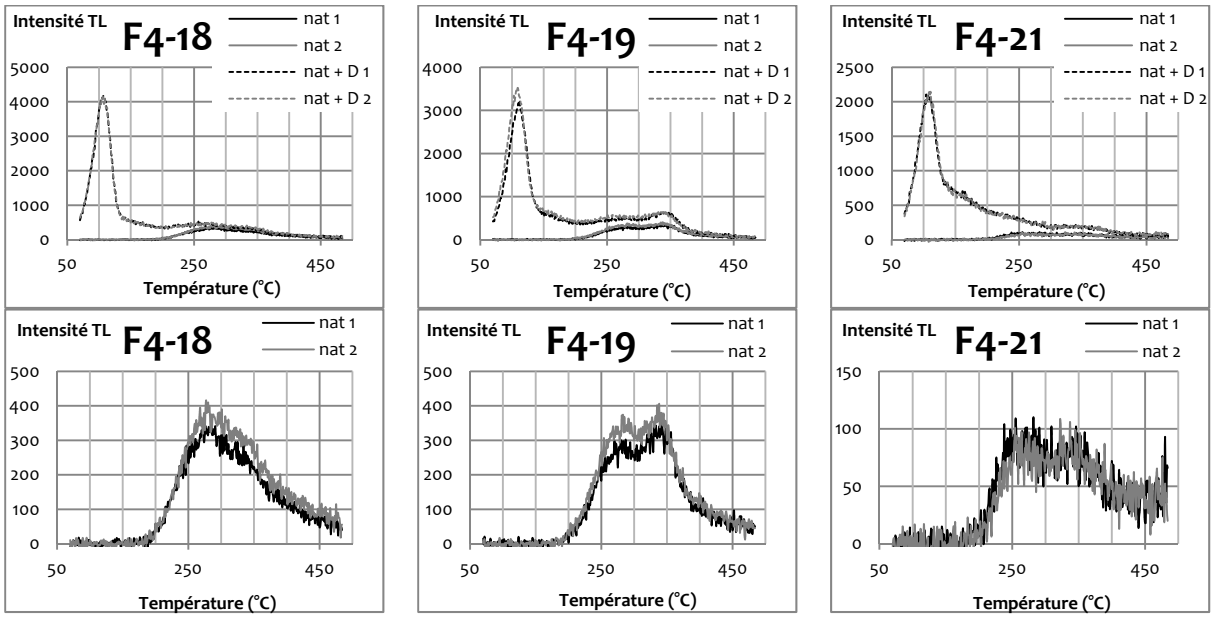


Figure 89 : Signaux TL naturels (traits pleins) et naturels + dose (traits pointillés) des prélèvements F4-18, F4-19 et F4-21 de la sole foyère du foyer F4 (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C).

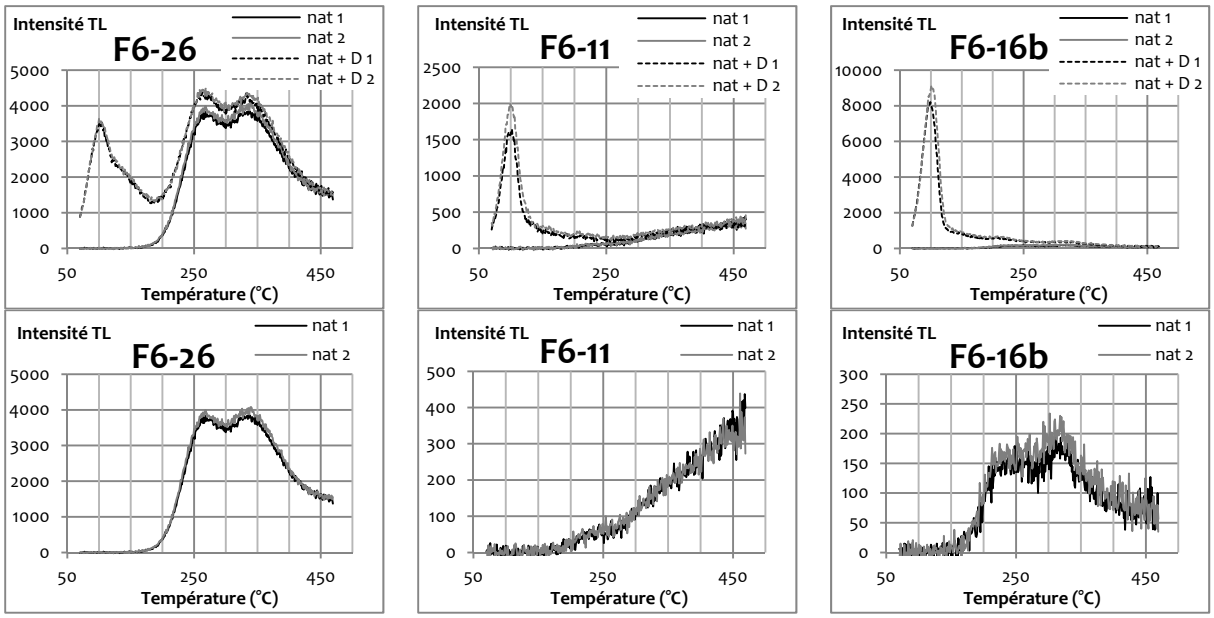


Figure 90 : Signaux TL naturels (traits pleins) et naturels + dose (traits pointillés) des prélèvements F6-26, F6-11, et F6-16b du foyer F6 (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C).

IV.2. **Construction du référentiel thermique**

Un référentiel thermique spécifique à la fraction fine (3 - 12 µm) polyminérale a été construit en chauffant dans le four du sédiment de la grotte des Fraux (BDX 12893) provenant du secteur 2.

IV.2.1. Cycle thermique de chauffe : simulation de la chauffe archéologique

Le cycle thermique est exactement le même que celui appliqué à la construction du référentiel du quartz (ce chapitre, II.2.1). A la suite des chauffes en four, la fraction fine polyminérale a été extraite du sédiment argileux suivant le protocole de préparation préalablement détaillé (ce chapitre, I.2).

IV.2.2. Irradiation artificielle : simulation de l'irradiation naturelle reçue par les échantillons archéologiques depuis la chauffe

Les signaux naturels simulés et naturels simulés + dose ont été mesurés suivant des protocoles similaires (ce chapitre, II.2.2) à ceux du référentiel sur quartz (200 - 500 µm) en utilisant une dose D de 20 Gy au lieu de 12 Gy (sédiment argileux plus riche en radioéléments). Cette valeur est là aussi sous-estimée et pourrait entraîner des différences d'intensité entre le référentiel thermique et les échantillons archéologiques.

IV.2.3. Mesure de TL : signal naturel simulé

Pour ce référentiel, seuls le signal naturel simulé (Figure 91) et le signal naturel simulé + dose (Figure 92) ont été enregistrés, le signal résiduel ne servant pas pour l'attribution des paléotempératures.

L'intensité TL est assez faible et pour lisser le signal, les courbes présentées sont des intégrales de l'intensité TL tous les 5°C (soit la somme de cinq valeurs consécutives). Ainsi l'intensité maximale est ici de 3000 coups/5°C (intégrale sur 5°C) ce qui correspond à 600 coups/°C. L'intensité TL de la fraction fine polyminérale est donc environ 4 fois plus faible que pour la fraction 200 - 500 µm du quartz en tenant compte de la différence de quantité de matière déposée par décantation pour la fraction fine polyminérale qui est environ 10 fois plus faible que la quantité de quartz (200 - 500 µm). Les faibles intensités entraînent un bruitage important sur les signaux TL des références thermiques comprises entre 375°C et 450°C (principalement). L'intensité du signal est à la limite du bruit de fond.

Le signal naturel simulé (Figure 91, haut) présente cependant une décroissance marquée de son intensité jusqu'à Tmax = 350°C. Les références thermiques chauffées jusqu'à 350°C ont tout ou partie de leur courbe dominée par le signal résiduel du signal géologique. Pour celles chauffées entre 375°C et 450°C le signal est quasiment nul (Figure 91, bas). A partir de Tmax = 500°C, l'intensité de la composante TL autour de 330°C augmente jusqu'à un maximum pour Tmax = 650°C (température maximale de chauffe testée).

Le signal naturel simulé + dose (Figure 92) suit une évolution similaire pour ce qui est des composantes TL avec T > 250°C. La présence du pic à 110°C suite à l'irradiation indique que le signal TL est dominé par le quartz. Les variations d'intensité du pic à 110°C (Figure 93) montrent un maximum pour Tmax = 500°C. Si on étudie le comportement du rapport entre l'intensité

maximale des composantes pour T < 250°C et l'intensité du pic à 110°C, ce rapport décroit de la référence non chauffée à celle chauffée à 375°C, reste stable jusqu'à 550°C puis augmente à partir de 600°C. Ce comportement, identique à celui observé pour la fraction 200 - 500 µm du quartz, apporte des informations pour l'identification des paléotempératures.

Malgré une faible intensité pour certains signaux, une évolution marquée des signaux naturels simulés (avec et sans ajout de dose, Figure 95) est présente et va être utilisée pour la détermination de paléotempératures. Ces variations de forme et d'intensité seront complétées par l'évolution du rapport d'intensité entre les composantes TL (> 250°C et pic à 110°C).

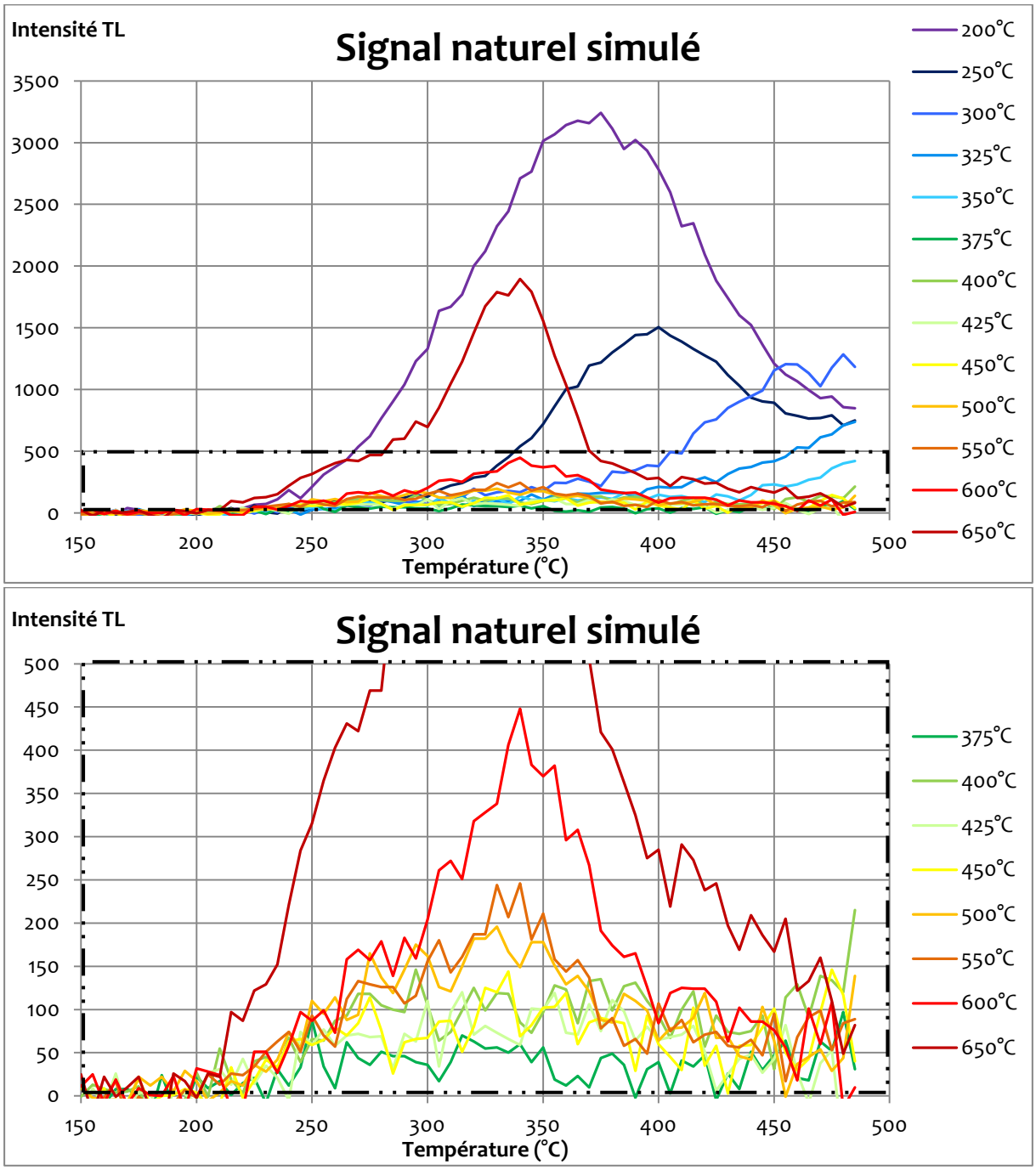


Figure 91 : Signal naturel simulé des références thermiques sur fraction fine polyminérale (3 - 12 µm). Sur l'agrandissement seuls les signaux concernés ont été laissés pour une meilleure de lisibilité des courbes. (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/5°C)

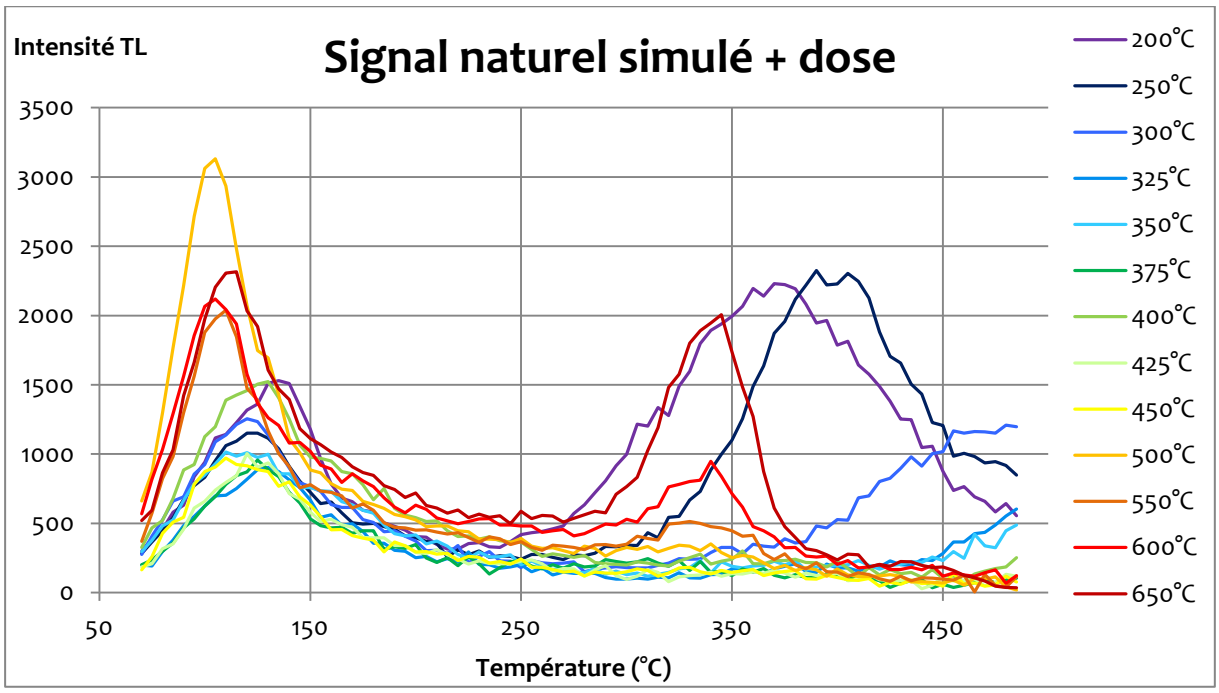


Figure 92 : Signal naturel simulé + dose (20 Gy) des références thermiques sur fraction fine polyminérale (3 - 12 µm) (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/5°C).

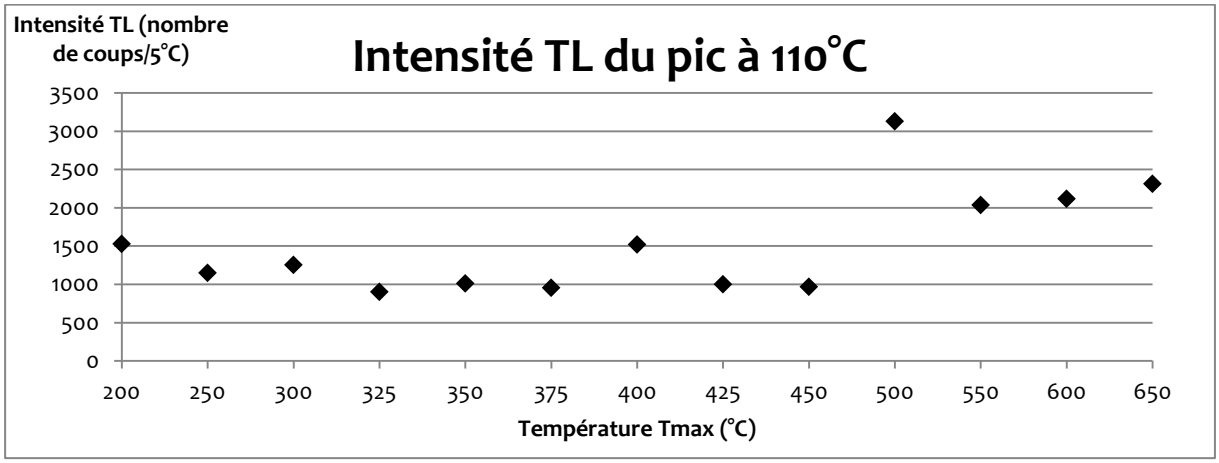


Figure 93 : Variations d'intensité du pic à 110°C avec la température de chauffe Tmax des courbes du signal naturel simulé + dose des références thermiques sur fraction fine polyminérale (3 - 12 µm).

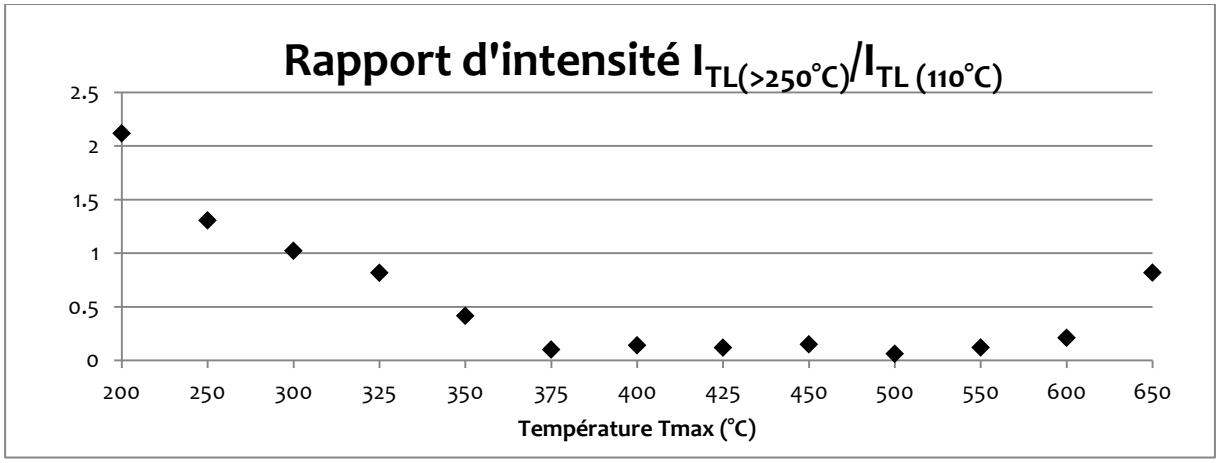


Figure 94 : Variation du rapport d'intensité maximale entre les composantes TL pour T > 250°C et le pic à 110°C du signal naturel simulé + dose des références thermiques sur fraction fine polyminérale (3 - 12 µm).

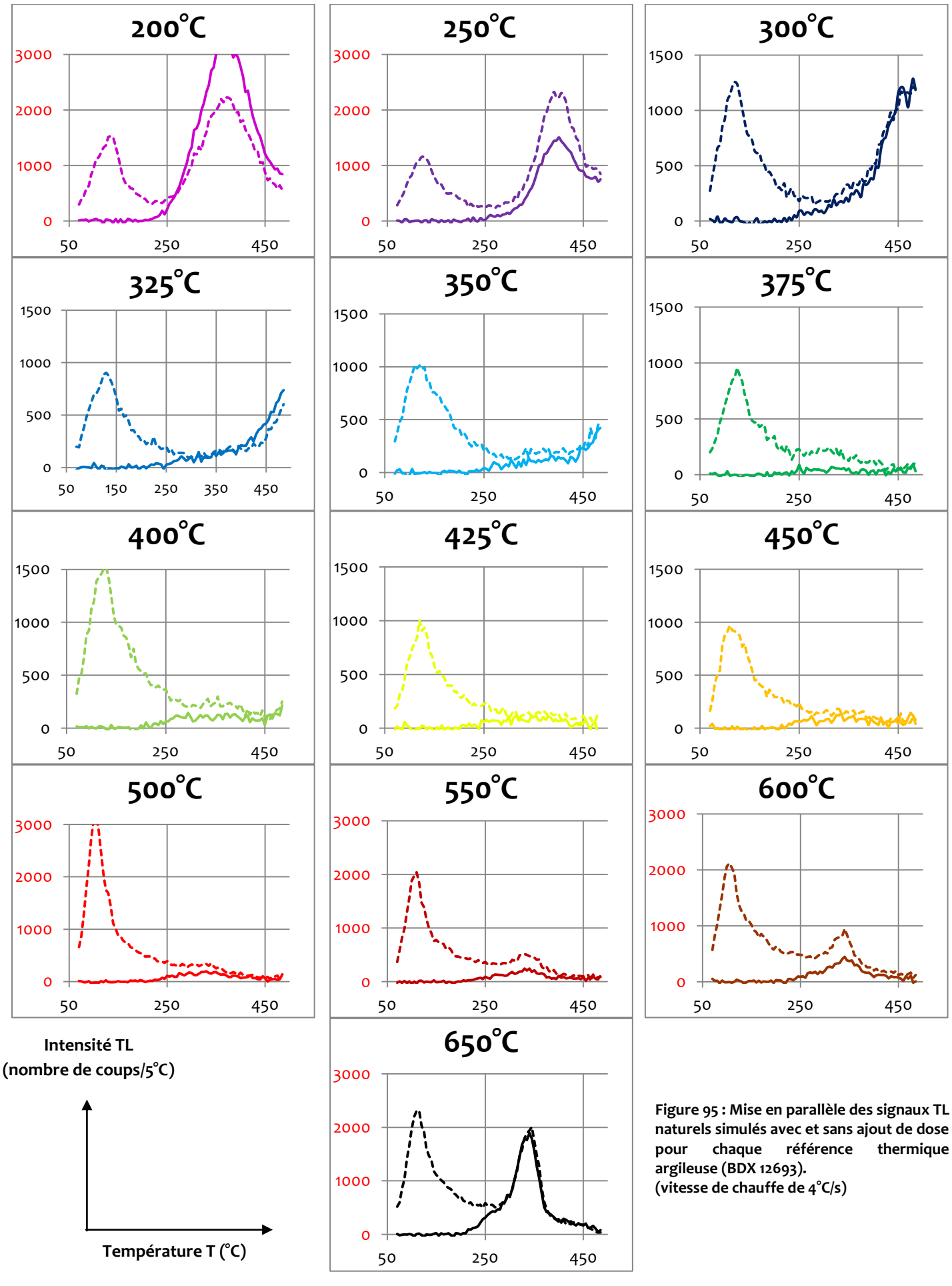


Figure 95 : Mise en parallèle des signaux TL naturels simulés avec et sans ajout de dose pour chaque référence thermique argileuse (BDX 12693).
(vitesse de chauffe de 4°C/s)

IV.3. **Détermination des paléotempératures**

Comme précédemment, trois méthodes vont être utilisées pour déterminer les paléotempératures : la comparaison visuelle des courbes, le calcul de la variance relative ainsi que la classification hiérarchique de l'ensemble des prélèvements et références thermiques.

De manière générale, les prélèvements archéologiques présentent une intensité du signal TL supérieure à celle des références thermiques. Cette différence peut poser problème dans l'attribution des températures. Cependant on parvient visuellement à comparer les courbes et le calcul de la variance relative permet de s'affranchir de cette différence. Il reste la classification hiérarchique où une normalisation des courbes a été réalisée pour pouvoir l'utiliser, ce qui sera explicitée.

IV.3.1. Comparaison visuelle

Pour la sole F4, deux comportements se présentent (Figure 96). Le prélèvement F4-21 dont l'intensité est faible (100 coups/°C) est comparable directement aux références thermiques et plutôt associé à la référence à 500°C. Par contre, l'intensité des prélèvements F4-18 et F4-19 est supérieure à celle des références. L'allure du signal (forte intensité du pic à 110°C et accroissement du signal avec la dose) indique sans aucun doute des prélèvements chauffés (> 500°C) mais d'intensité supérieure aux références. Cette forte intensité est plutôt similaire à celle obtenue pour les références de quartz pur. Il est possible que ces prélèvements effectués sur la sole contiennent majoritairement du quartz, en tout cas en plus grande concentration que l'argile utilisée pour construire les références.

Pour les prélèvements illustrant les foyers F6 et F8 (Figure 97), le prélèvement F6-16b a un comportement similaire au F4-21 et une paléotempérature associée de 500°C. Le prélèvement F6-11 présente un signal avec un résidu de signal géologique dans les régions de haute température comparable à celui de la référence à 350°C. Enfin, le prélèvement F6-26 a un signal saturé par le signal géologique, caractéristique des échantillons peu chauffés (< 200°C). Les paléotempératures associées au reste des échantillons sont regroupées dans le Tableau 18.

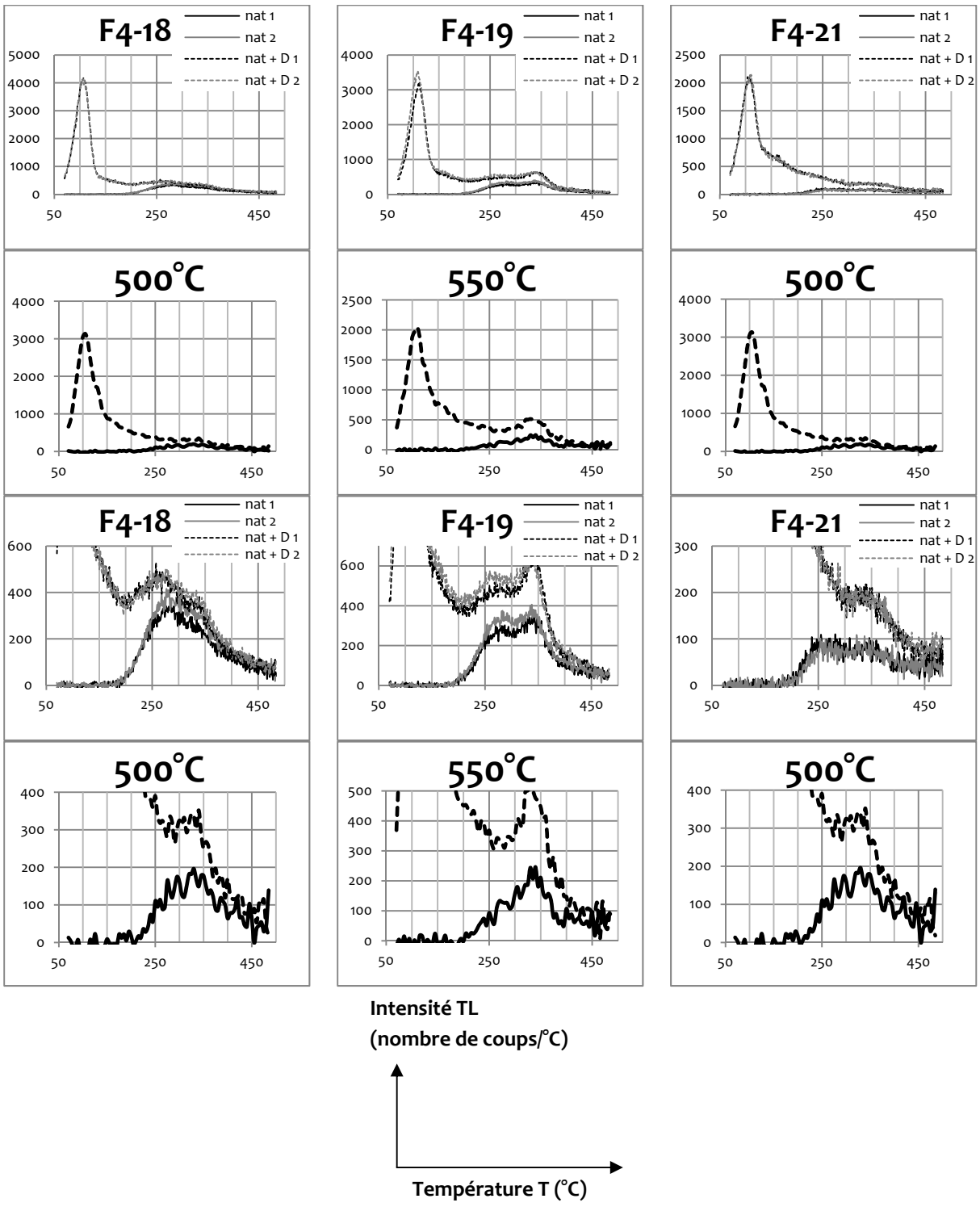


Figure 96 : Signaux TL naturel et naturel + dose des prélèvements de la sole foyère (F4) sur la fraction 3 - 12 µm polyminérale et comparaison avec les références thermiques les plus proches (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C pour les échantillons archéologiques et en coups/5°C pour les références thermiques).

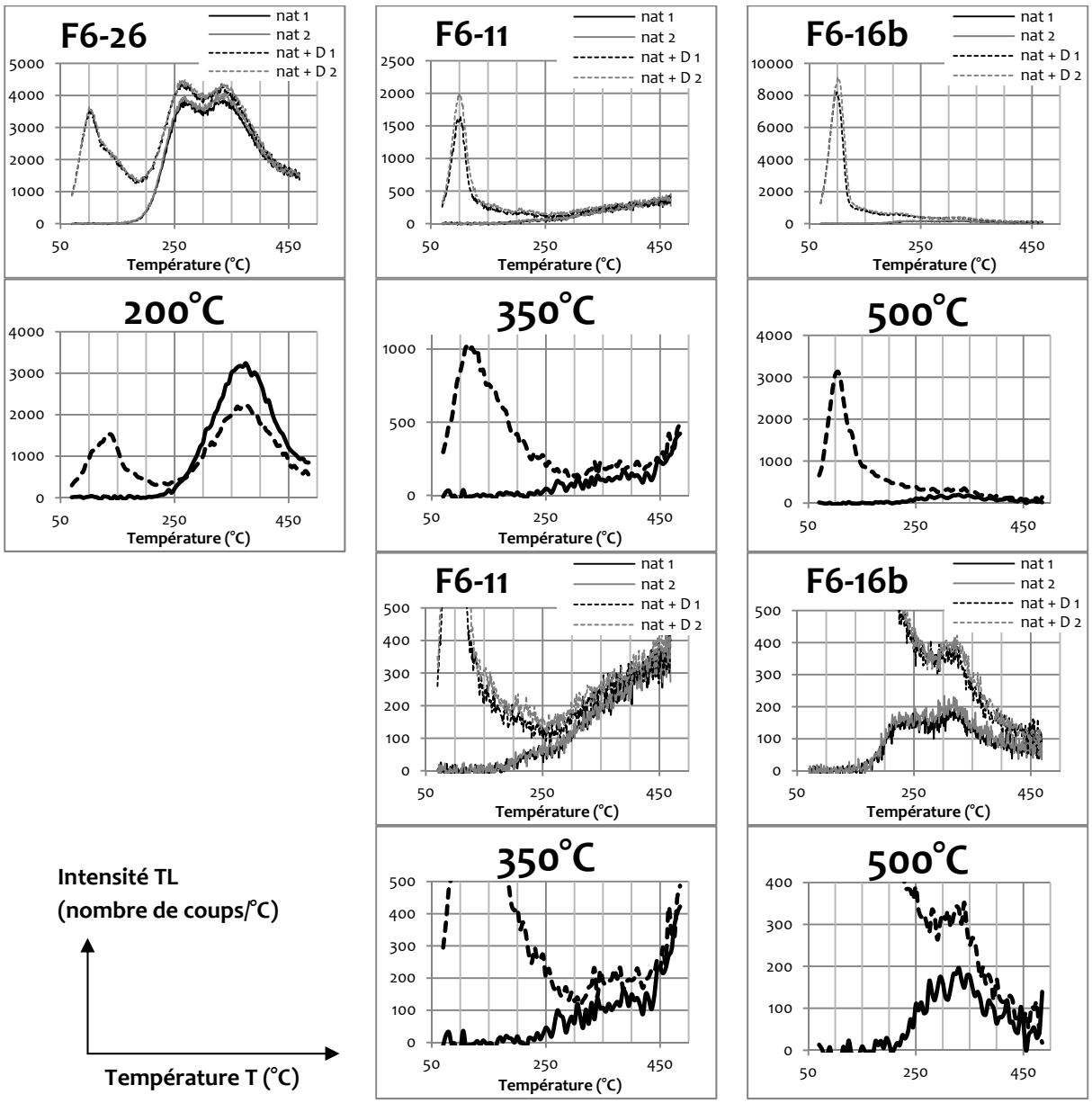


Figure 97 : Exemples de signaux TL de prélèvements de foyer F6 mesurés sur la fraction fine 3 - 12 µm polyminérale et comparaison avec les références thermiques les plus proches (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C pour les échantillons archéologiques et en coups/5°C pour les références thermiques).

IV.3.2. Calcul de la variance relative

La variance relative (protocole détaillé dans ce chapitre, II.3.2) a été déterminée entre 250°C et 400°C pour le signal naturel puis entre 70°C et 400°C pour le signal naturel + dose (annexes 9 et 10). Les intensités des références peu chauffées et très chauffées étant similaires, les variances calculées pour ces références thermiques ont souvent des valeurs proches.

Néanmoins, la variance du signal naturel + dose est bien plus discriminante que celle du signal naturel car elle prend en compte le pic à 110°C. Les courbes de variance utilisées seront donc celles des signaux naturels + dose.

Il apparait que lorsque la variance relative du signal naturel + dose présente des valeurs semblables quelle que soit la température de la référence thermique, les prélèvements sont faiblement chauffés (par exemple F6-26, Figure 99).

Lorsque la variance du signal naturel + dose est décroissante depuis la référence chauffée à 200°C jusqu'à une référence de température donnée puis qu'elle ré-augmente, alors le prélèvement est associé à cette température (par exemple F6-11 et F6-16b, Figure 99).

Etant données les faibles intensités de certains signaux, il a été choisi de faire le calcul de la variance sur des intégrales de 5°C au lieu de le faire point par point : chaque rapport d'intensité entre le signal TL du prélèvement et de la référence considérée se fait non pas à chaque température fournie par l'appareil mais pour intégrale de 5°C.

Pour le foyer F4, la combinaison des variances relatives sur les deux signaux (Figure 98) permet d'attribuer une paléotempérature de 500°C pour F4-18, de 550°C pour F4-19 et de 450-500°C pour F4-21.

Pour les foyers F6 et F8, prenons nos trois exemples d'illustration du foyer F6, (Figure 99). Pour le prélèvement F6-26, la variance relative quasiment constante (0.4 à 0.6) indique que ce prélèvement n'a que peu chauffé (200°C). Pour le F6-11, les variances relatives mènent à la température de 300°C puisque cette température montre le minimum de la variance. Enfin, le prélèvement F6-16b est associé à la paléotempérature de 500°C.

L'ensemble des températures déterminées par le calcul de la variance relative pour le foyer F6 et le foyer F8 sont présentés dans Tableau 18. Les courbes de variance associées figurent en annexes 9 et 10.

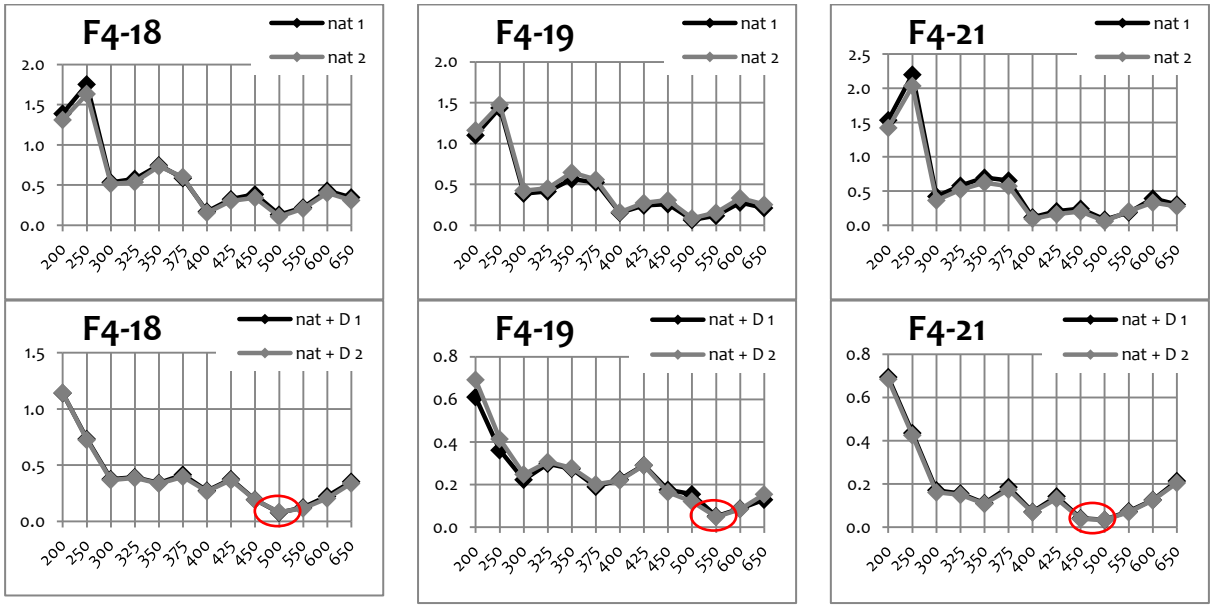


Figure 98 : Evolution de la variance relative des prélèvements de la sole foyère F4-18, F4-19 et F4-21 (fraction 3 - 12 µm polyminérale).

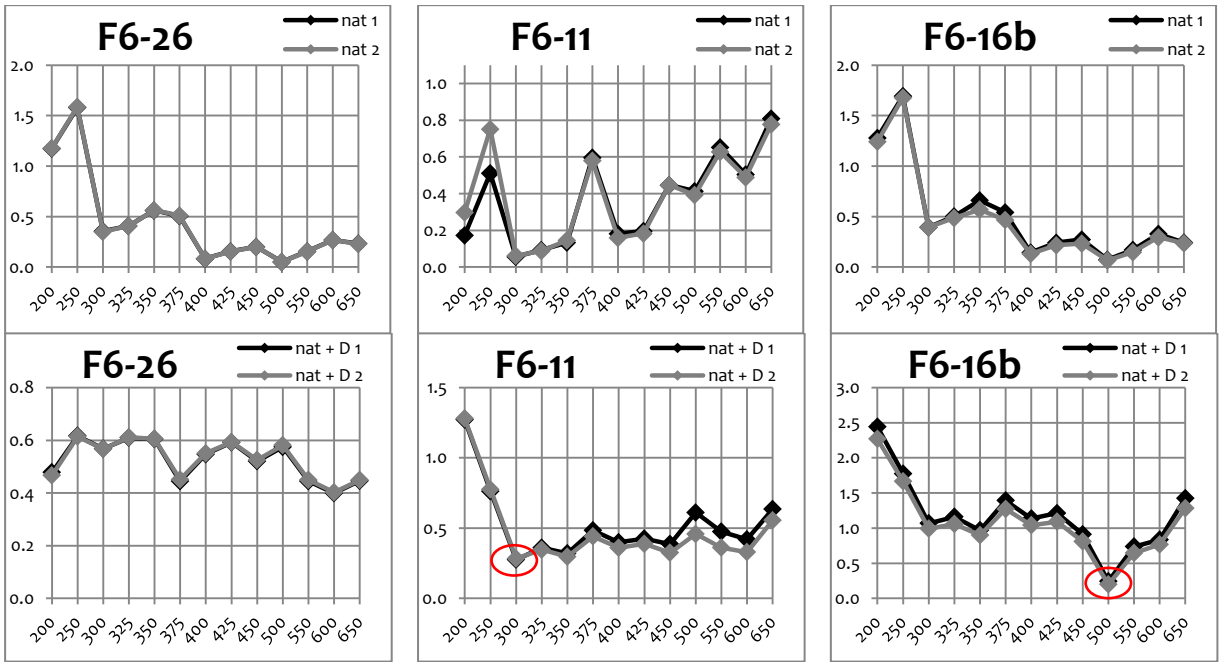


Figure 99 : Exemple d'évolution de la variance relative de trois prélèvements du foyer F6, F6-26, F6-11 et F6-16b (fraction 3 - 12 µm polyminérale).

IV.3.3. Classification hiérarchique

Les classifications hiérarchiques ont été réalisées à partir des intégrales sous la courbe TL naturelle (ou naturelle simulée pour les références) de 200°C à 470°C tous les 10°C (détail du protocole ce chapitre, II.3.3).

La classification hiérarchique établie directement à partir des courbes TL naturelles et naturelles + dose des prélèvements et des références thermiques n'est pas utilisable. En effet, l'intensité TL des références thermiques est de manière générale inférieure à l'intensité TL des échantillons archéologiques. Ainsi, sur une telle classification les références se retrouvent groupées et ne sont pas réparties avec les échantillons, ce qui rend la méthode inopérante.

Afin de pouvoir comparer la forme des courbes, les intégrales calculées sous les courbes TL naturelles (entre 200°C et 470°C tous les 10°C) et les courbes naturelles + dose (entre 80°C et 470°C tous les 10°C) ont été normées à la valeur correspondante de l'intégrale sur la tranche 350-360°C (tranche de 10°C qui appartient à la composante principale du signal TL). De cette manière, la classification hiérarchique permet d'associer des paléotempératures (ou intervalles) aux échantillons.

Ainsi, la classification hiérarchique pour les trois prélèvements du foyer F4 (Figure 100) indique une paléotempérature de 500°C pour le F4-18 et le F4-21, et de 550-600°C pour le F4-19.

Par contre, pour les foyers F6 et F8, les références thermiques chauffées au-delà de Tmax = 500°C ont été supprimées de la matrice de la classification puisque les signaux TL présentent une saturation dans les régions TL de haute température (à partir de 400°C). Ceci évite des erreurs d'attribution dues à l'augmentation d'intensité de la composante TL à 350°C qui réapparait au-delà de Tmax = 500°C. De cette manière, la classification hiérarchique permet d'associer des paléotempératures aux échantillons (Figure 101). Les prélèvements F6-26, F6-11 et F6-16b se voient ainsi attribuer les paléotempératures respectives de 200°C, 300-450°C et 500°C.

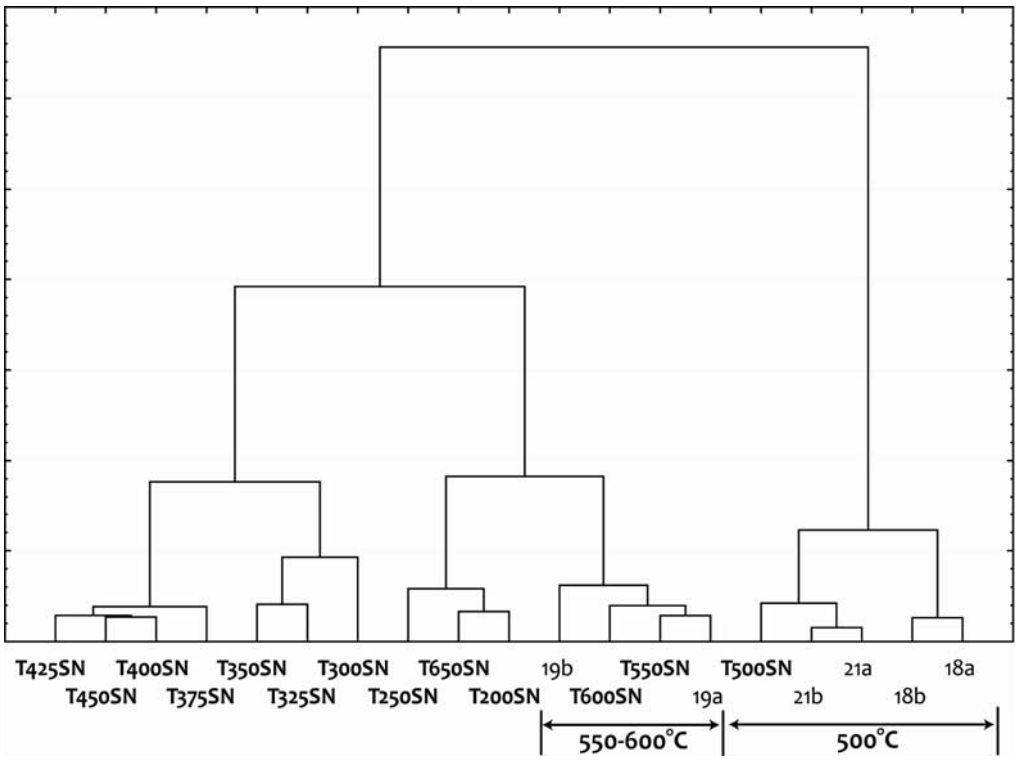


Figure 100 : Classification hiérarchique de F4-18, F4-19 et F4-21 et des références chauffées à plus de 400°C.
Codes échantillons : n° + a ou b (pour nat 1 ou nat 2) ;
Codes références T(Témoins) + température Tmax + SN (Simulation Naturel).

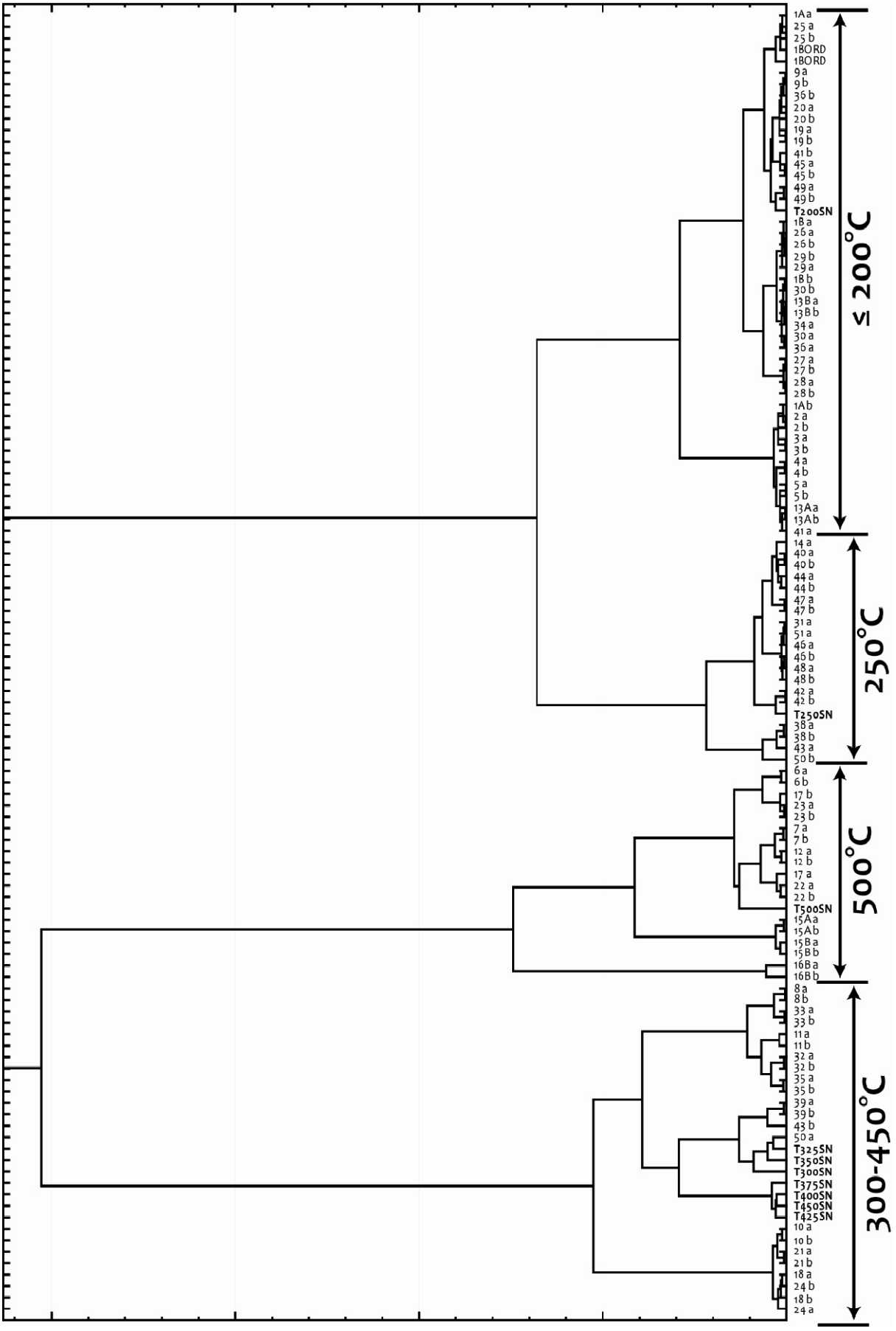


Figure 101 : Classification hiérarchique de l'ensemble des prélèvements des foyers F6 et F8 ainsi que des références thermiques chauffées en deçà de 550°C. Codes échantillons : n° + a ou b (nat 1 ou nat 2). Codes références : T (Témoins) + température Tmax + SN (Simulation Naturel).

IV.3.4. Corrélation entre les trois méthodes

Les tableaux suivant (Tableau 17 et Tableau 18) reprennent l'ensemble des paléotempératures (ou intervalles) déterminées sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm).

Prélèvement		Température (°C)			
n°	BDX	Visuelle	Variance	Class. Hier.	Combinaison
F4-18	12636	500	500	500	***500***
F4-19	12637	550	550	550-600	***550***
F4-21	12638	500	450-500	500	***500***

Tableau 17 : Sole du foyer F4, numéros des prélèvements et paléotempératures déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm).

Prélèvement		Température (°C)			Prélèvement		Température (°C)		
n°	BDX	Visuelle	Variance	Class. Hier.	n°	BDX	Visuelle	Variance	Class. Hier.
F6-1a	14511	200-250	250	200	F6-17	14535	450	500	500
F6-1b	14512	nc-200	< 200	200	F6-18	14536	450	500	300-450
F6-1bord	14657	nc-200	200	200	F6-19	14537	nc-200	200	200
F6-2	14513	200-250	250	200	F6-20	14538	nc-200	200	200
F6-3	14515	200-250	250	200	F6-21	14539	350	300-600	300-450
F6-4	14516	200-250	300	200	F6-22	14540	450	500	500
F6-5	14518	200-250	< 200	200	F6-23	14541	450	500	500
F6-6	14519	400	500	500	F6-24	14542	400	500	300-450
F6-7	14520	350	500	500	F6-25	14543	200-250	250	200
F6-8	14522	200-250	300	200	F6-26	14544	nc-200	< 200	200
F6-9	14523	nc-200	200	200	F6-27	14545	nc-200	< 200	200
F6-10	14524	400	300-350 500-600	300-450	F6-28	14546	nc-200	< 200	200
F6-11	14525	350	300	300-450	F6-29	14547	nc-200	< 200	200
F6-12	14527	400	500	500	F6-30	14548	nc-200	< 200	200
F6-13a	14528	200-250	< 200	200	F6-31	14549	nc-200	200	250
F6-13b	14529	nc-200	< 200	200	F6-32	14550	400	550-600	300-450
F6-14	14530	nc-200	300	250	F6-33	14551	nc-200	550-600	200
F6-15a	14531	450	500	500	F6-34	14552	nc-200	< 200	200
F6-15b	14656	450	500	500	F6-35	14553	400	300	300-450
F6-16b	14534	500	500	500	F6-36	14554	nc-200	< 200	200
F8-38	14556	nc-200	250	250	F8-45	14563	200-250	< 200	200
F8-39	14557	350	300	300-450	F8-46	14564	nc-200	200	250
F8-40	14558	nc-200	200	250	F8-47	14565	nc-200	200	250
F8-41	14559	200-250	<300	200	F8-48	14566	nc-200	200	250
F8-42	14560	nc-200	200	250	F8-49	14567	nc-200	200	200
F8-43	14561	nc-200	300	250	F8-50	14568	300	300-350	300-450
F8-44	14562	nc-200	200-250	250	F8-51	14569	nc-200	200	250

Tableau 18 : Foyers F6 et F8, numéros des prélèvements et paléotempératures déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm).

A partir des mesures sur la fraction fine du sédiment argileux, il apparait que la sole du foyer F4 a été très chauffée avec des températures supérieures à 500°C et le bourrelet semble avoir été soumis à des températures supérieures de l'ordre de 550-600 °C. A l'opposé, les paléotempératures obtenues pour le foyer F8 sont généralement inférieures ou égales à 250°C. En position intermédiaire, le foyer F6 semble présenter la totalité de la gamme de température.

Pour pouvoir attribuer une paléotempérature au sédiment argileux, il a fallu tenir compte des différences d'intensité observées entre les prélèvements archéologiques et le référentiel thermique. Ainsi, l'observation visuelle et le calcul de la variance relative sont un préalable indispensable à la classification hiérarchique. En effet, il est nécessaire de limiter les références thermiques en enlevant les fortement chauffées (lorsque c'est possible) pour éviter des erreurs d'attribution de paléotempérature du fait du regain d'intensité des références thermiques chauffées à Tmax > 500°C. Cette séparation ne peut se faire qu'avec l'application préalable des deux autres méthodes. Ainsi la classification hiérarchique ne peut pas être utilisée comme seul moyen de détermination des paléotempératures.

Cependant, les différences d'intensité entre les prélèvements archéologiques d'un côté et le sédiment utilisé pour créer les références thermiques de l'autre, est intrigante étant donné que l'ensemble des sédiments étudiés proviennent de la grotte. Bien que la dose ajoutée pour créer le référentiel ait été sous-estimée, cela n'explique pas en totalité les différences observées. En effet, cette différence s'observe aussi au sein même de la sole où le prélèvement F4-21, prélevé dans la fissure de la sole, présente une intensité TL comparable aux références thermiques alors que les prélèvements F4-18 et F4-19 ont une intensité bien supérieure.

Deux phénomènes conjugués peuvent être à l'origine de ces différences de luminescence :

- d'une part des différences dépendantes de la température atteinte qui pourrait être à la limite ou supérieure au domaine étudié (température maximale de 650°C pour le référentiel).
- d'autre part une variabilité de composition des minéraux fins au sein des sédiments prélevés qui pourrait expliquer pourquoi les échantillons archéologiques ont une intensité systématiquement supérieure aux références thermiques.

Ce second phénomène a été appréhendé par une étude de sédiments argileux au sein de la grotte des Fraux. Plusieurs prélèvements de sédiments argileux provenant de différents secteurs de la cavité ont fait l'objet d'analyses de composition minérale et de mesures de luminescence afin d'étudier leur variabilité.

IV.3.5. Etude de la variabilité des sédiments argileux dans la grotte des Fraux

Treize sédiments argileux ont été prélevés (Figure 102 et Figure 103) à l'intérieur de la grotte ainsi qu'à l'extérieur afin d'étudier leur variabilité. Les prélèvements internes à la cavité ont été réalisés dans des sédiments différents visuellement soit par la couleur soit par la texture. L'objectif est d'étudier un panel des sédiments argileux présents dans la grotte puisque dans le cas de foyers à plat (F6 ou F8) le feu repose directement sur le sédiment argileux, sans aménagement particulier. Par contre, dans le cas de foyer construit, comme le foyer F4, le sédiment constitutif de la sole peut avoir été prélevé dans la grotte - *a priori* le cas le plus simple surtout qu'un creusement dans le sol a été repéré a proximité de la sole qui pourrait correspondre à une petite « carrière » de sédiment argileux - ou à l'extérieur de la cavité.

On souhaite pouvoir ainsi comprendre les différences d'intensité observées entre les signaux TL archéologiques (particulièrement pour ceux de la sole du foyer F4) et les signaux TL des références thermiques. Onze échantillons (BDX 14748 à 14758) ont été prélevés à proximité des foyers et en différents points de la grotte (Figure 102) ainsi que deux à l'extérieur (BDX 14759 et BDX 14760), dans les formations superficielles. Il faut préciser que le seul élément comparatif avec les échantillons archéologiques sera la TL puisque la matière prélevée sur les foyers a été entièrement consommée par les mesures de TL.

Une série d'analyse a été menée sur ces sédiments argileux :
Tout d'abord une analyse granulométrique permet de déterminer les proportions argile/silt/sable des sédiments.
Ensuite des analyses de la composition élémentaire et de la composition minérale renseignent directement sur la variabilité de composition des sédiments.

- analyses de composition élémentaire par microscopie électronique à balayage, MEB, couplée à une sonde EDS, *Energy Dispersive Spectrometry* ;
- analyses de composition minérale par diffraction des rayons X, DRX.

De plus, des observations d'exoscopie des grains, c'est-à-dire de leur morphologie au MEB, permettent de déterminer l'origine des grains (éolienne, fluviatile…) et de voir s'il y a des différences d'un sédiment argileux à l'autre. Par ailleurs, les radioéléments (K, U, Th) présents dans les sédiments des Fraux ont été quantifiés par des mesures de spectrométrie gamma afin d'observer s'il existe une variabilité dans les sédiments des Fraux.
Finalement, des mesures de TL ont été effectuées pour pouvoir lier les sédiments analysés pour cette étude de la variabilité des sédiments argileux de la grotte des Fraux avec les sédiments des foyers archéologiques.

Par ces différents paramètres, l'objectif est d'évaluer si des variations de granulométrie, de composition (élémentaire, minérale, radiochimique), d'origine ont une influence sur l'intensité de thermoluminescence de la fraction fine polyminérale.

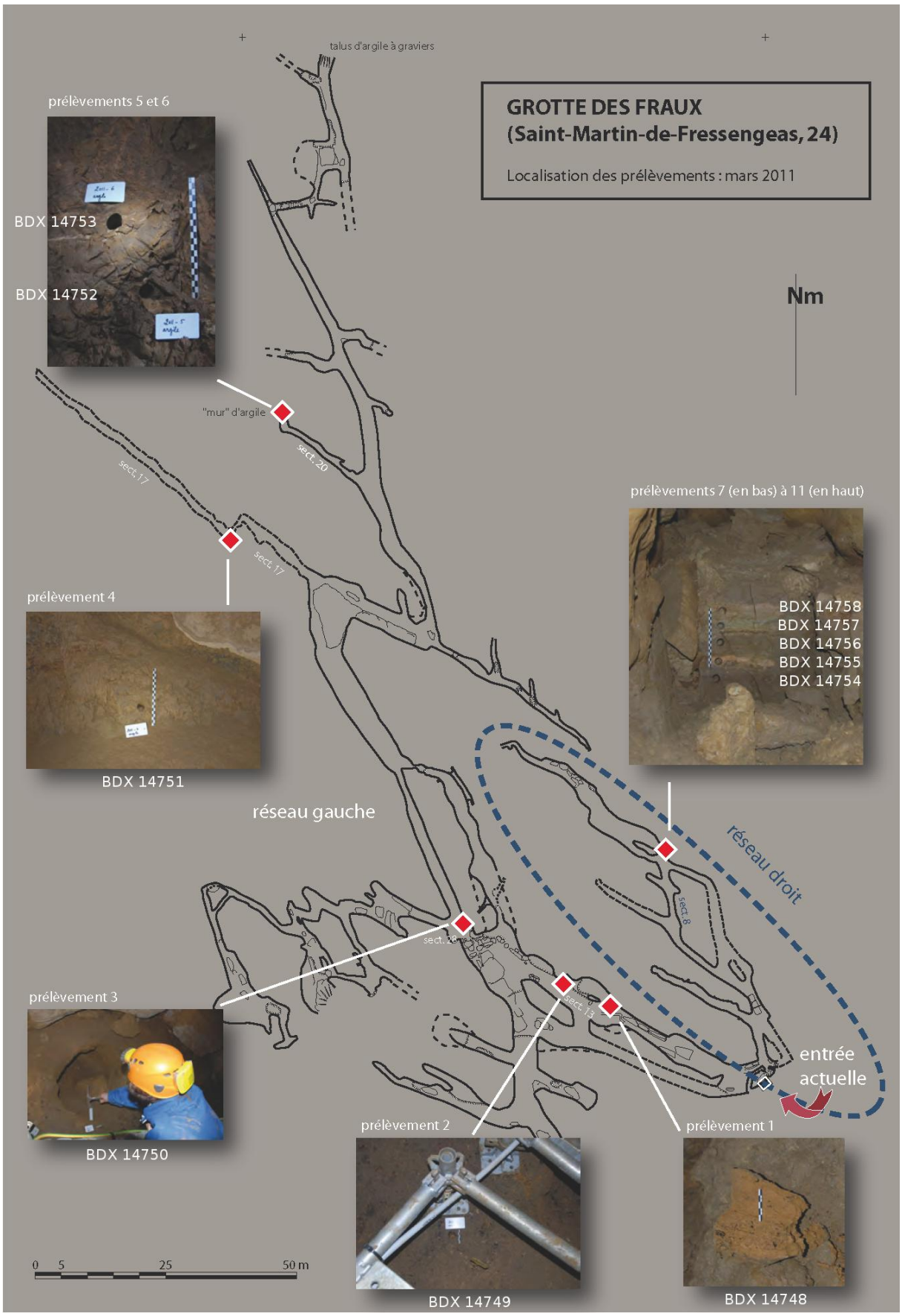


Figure 102 : Localisation des prélèvements dans le réseau de la grotte des Fraux. © relevé et DAO : Y. et C. Billaud ; cliché : A. Burens.

Pour les résultats détaillés de chacune des analyses précédentes, le rapport d'analyse est mis en annexe (annexe 11). Je remercie ici sincèrement Nadia Cantin pour sa disponibilité et son aide concernant ces analyses, particulièrement la diffraction des rayons X (DRX) et la granulométrie.

Figure 103 : Prélèvements de sédiments argileux provenant de la grotte des Fraux et des formations superficielles (les deux en bas à droite).

- ***Composition, granulométrie et morphologie des grains***

Les conclusions principales de ces analyses indiquent que les sédiments argileux extérieurs se différencient nettement en composition par rapport aux sédiments de la grotte. L'ensemble des prélèvements internes à la grotte sont non sableux (sauf BDX 14750), très riches en fer et en manganèse (surtout BDX 14754) mais avec une certaine variabilité dans les teneurs. Ils présentent par ailleurs des teneurs exceptionnellement élevées en uranium (10 à 20 ppm).

Une certaine homogénéité a été observée dans la minéralogie des argiles, avec une dominante de kaolinite. Cependant les phases minérales non argileuses présentent des variabilités entre échantillons (feldspaths et oxydes de fer parmi lesquels la goethite et la lépidocrocite ont été détectées). Par ailleurs, la diversité de la morphologie des grains et les traces de chocs observées tendraient à montrer des origines multiples de ces grains (éoliennes, fluviatiles…) au sein de tous les prélèvements.

L'étude met ainsi en évidence une variabilité dans les sédiments argileux de la grotte au sein de laquelle il est difficile de repérer des tendances de dépôt par secteur, ou même au niveau de la grotte dans sa totalité.

Nous allons maintenant voir l'influence de cette variabilité sur le signal TL.

- ***Mesures TL***

Les mesures de luminescence ont été réalisées sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm) de ces sédiments alors considérés comme des références thermiques (Figure 104). Les sédiments argileux des Fraux ont été chauffés à 500°C pendant une heure et mesurés suivant le même protocole de mesure TL que les références thermiques en recréant un signal naturel simulé avec une irradiation de 20 Gy et un *cut-heat* à 230°C. Ce test a été effectué avec une température de chauffe de 500°C, température proche de celle estimée pour la sole foyère, afin de pouvoir comparer les intensités des signaux à une telle température de chauffe.

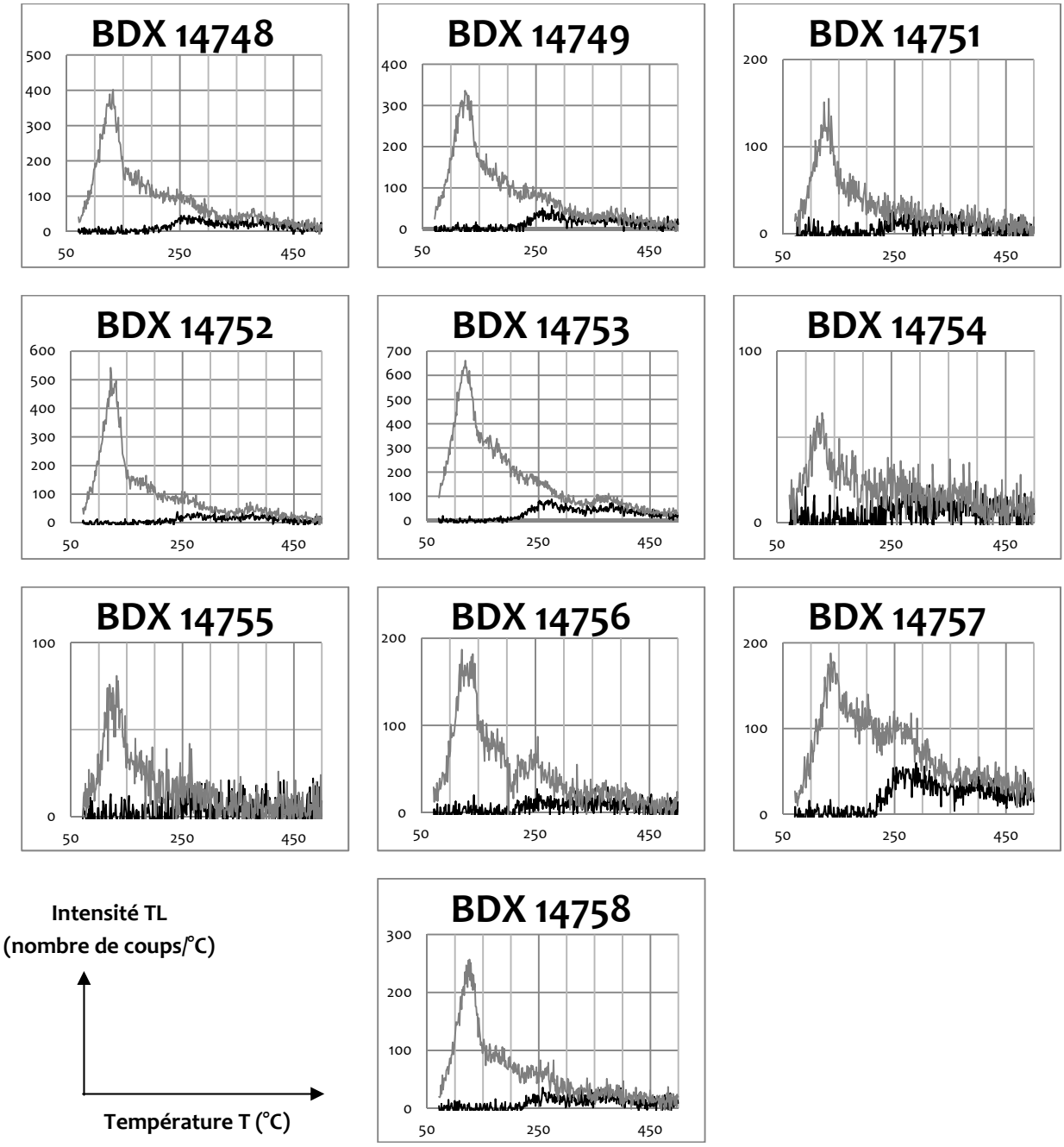


Figure 104 : Signal TL naturel simulé (noir) et naturel simulé + dose (gris) pour les sédiments argileux de la grotte des Fraux prélevés pour l'étude de leur variabilité (vitesse de chauffe de 4°C/s).

Les signaux TL (Figure 104) sont d'intensité extrêmement faible : maximum 90 coups/°C pour le signal naturel et 650 coups/°C pour le signal naturel + dose (BDX 14753). Pour aucun de ces sédiments on ne retrouve l'intensité des signaux des échantillons archéologiques, d'environ 400 coups/°C pour le signal naturel et de plus de 3000 coups/°C pour le naturel + dose (sole foyère F4).

Il est possible que la dose appliquée soit insuffisante mais cela n'explique pas l'amplitude des différences observées. Ces écarts pourraient être induits par une différence de teneurs en minéraux luminescents, c'est-à-dire en quartz.

L'intensité du pic principal du quartz peut ici être utilisée comme point de comparaison direct de la quantité de quartz dans les échantillons car l'ensemble des poudres mesurées en DRX ont été soumises aux mêmes conditions de mesure. La corrélation observée entre l'intensité TL maximale du signal naturel et l'intensité du pic principal du quartz (Figure 105) ainsi que la présence du pic à 110°C révèlent que le minéral luminescent qui domine est le quartz.

De plus, si on compare l'intensité du pic principal du quartz (DRX, en coups) en fonction de l'intensité maximale des signaux TL naturel et naturel + dose (Figure 105), on observe que ***plus il y a de quartz, plus les signaux TL sont intenses***. La teneur en quartz du sédiment argileux pourrait ainsi être responsable des différences d'intensité TL observées.

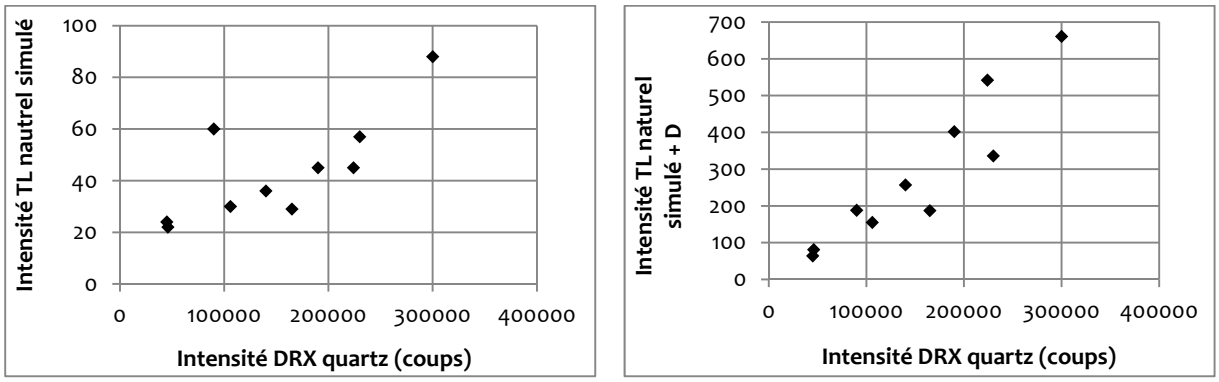


Figure 105 : Variation de l'intensité du pic à 110°C du signal TL naturel simulé (à gauche) et naturel simulé + dose (à droite) en fonction de l'intensité du pic du quartz (DRX sur poudre).

Si on s'intéresse au foyer F4, l'intensité TL étant supérieure aux références thermiques, il est probable que le sédiment argileux constitutif de la sole foyère soit plus riche en quartz, au moins dans la fraction 3 - 12 µm. L'hypothèse d'un ajout d'un dégraissant au sédiment argileux constituant la sole (F4) par les hommes de l'Âge du bronze pour améliorer la résistance thermique de la sole et en éviter la fissuration avait été émise. Du sable issu des grès désagrégés est effectivement disponible partout dans la grotte et particulièrement autour de la sole. Cependant, en ajoutant du sable, ce n'est pas la fraction granulométrique fine (3 - 12 µm) qui est particulièrement enrichie en quartz.

Cette étude montre que les différences systématiques d'intensité TL observées entre les échantillons archéologiques et le référentiel thermique sont certainement le résultat d'une variabilité de teneur en quartz du sédiment argileux. Etant donnée la variabilité mise en évidence dans les sédiments des Fraux, le sédiment choisi pour construire le référentiel thermique de la fraction fine polyminérale aurait du être prélevé au plus près des foyers étudiés. Cependant, il n'est pas réaliste non plus de faire un référentiel par foyer. C'est pourquoi il apparait préférable d'utiliser le référentiel thermique basé sur les grains de quartz qui n'est pas sujet à cette variabilité au sein d'un site.

IV.4. **Validation par le foyer expérimental**

Les six prélèvements effectués sur la sole expérimentale (Figure 106) ont été étudiés sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm), extraite suivant le protocole défini précédemment (ce chapitre, I.2). Leur histoire thermique peut être estimée à partir des thermocouples insérés dans la sole, qui indiquent des températures entre 600°C et 700°C, et ceux positionnés sous la sole sur la couche de grès broyés, qui présentent des températures maximales autour de 500°C (Figure 107).

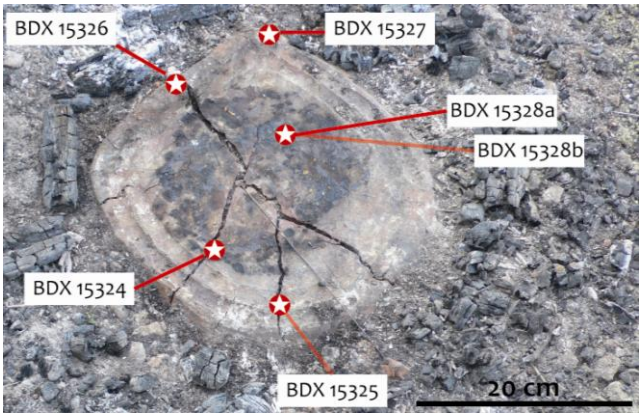


Figure 106 : Localisation des prélèvements sur la sole expérimentale :
BDX 15324 prélevé sur toute l'épaisseur de la sole ;
BDX 15325 : dessous de la sole ;
BDX 15326 : dessus du bourrelet ;
BDX 15327 : bord de la sole ;
BDX 15328a : zone noire centrale, dessus de la sole ;
BDX 15328b : zone noire centrale, dessous de la sole.

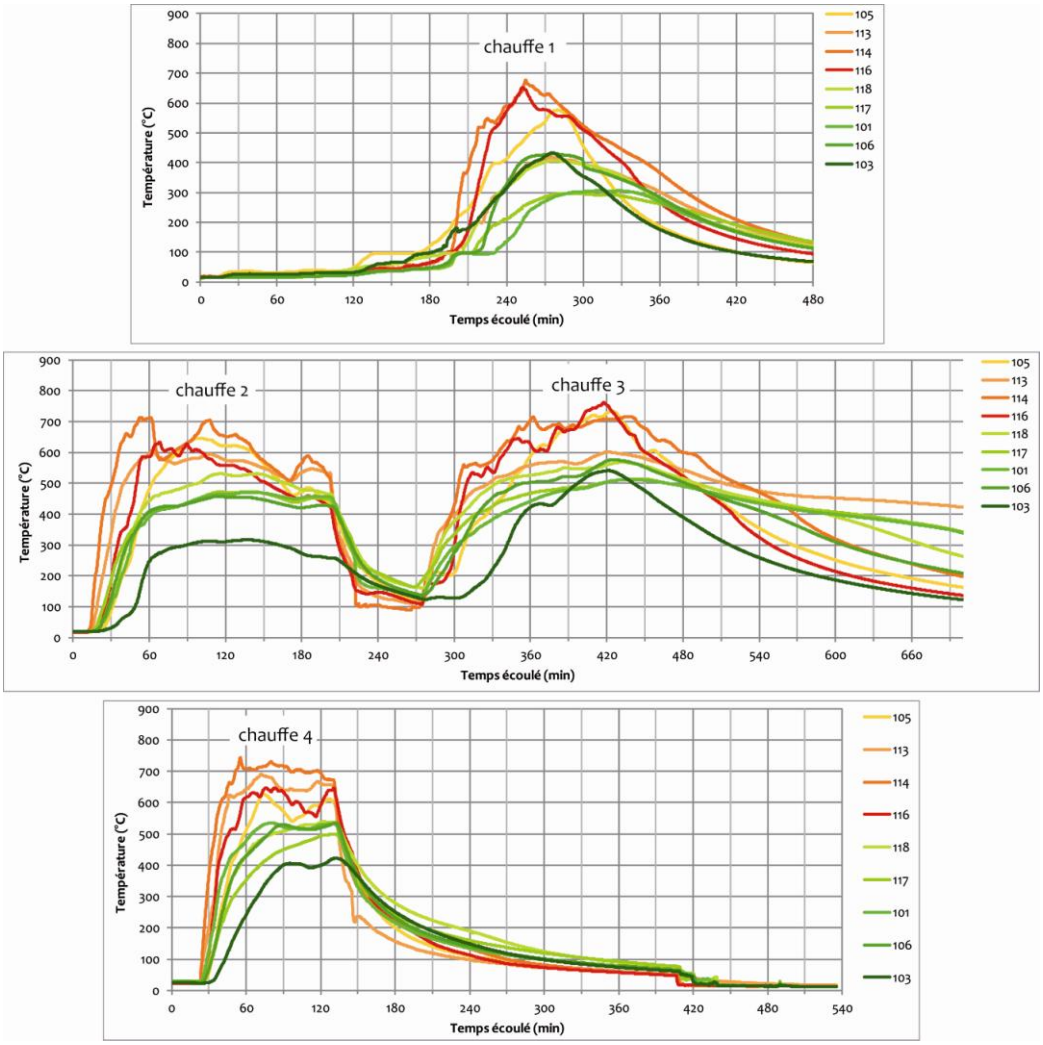


Figure 107 : Courbes de températures des thermocouples insérés dans la sole expérimentale (jaune à rouge) et sous la sole (vert) au cours des quatre feux.

IV.4.1. Mesures de TL

Les signaux résiduels (sans et avec ajout de dose) ainsi que les signaux naturels simulés (sans et avec ajout de dose) ont été mesurés (cf. protocole, ce chapitre, II.2.2) en considérant ces prélèvements chauffés expérimentalement comme des références thermiques (Figure 108).

Le signal résiduel est d'intensité nulle, résultat attendu du fait des fortes températures atteintes par la sole.

On peut par ailleurs différencier deux comportements du signal naturel simulé :

- d'un côté les échantillons BDX 15324, BDX 15325, BDX 15327 et BDX 15328b possèdent un signal naturel simulé d'intensité faible (< 200 coups/°C). L'ajout de dose entraîne l'apparition d'un pic à 110°C d'intensité moyenne (600 à 1000 coups/°C) mais supérieure à l'intensité des autres composantes TL.
- d'un autre côté, les prélèvements BDX 15326 et BDX 15328a ont un signal d'intensité légèrement supérieure (200 à 500 coups/°C). Le pic à 110°C observé après l'ajout de dose est d'intensité comparable aux autres composantes TL.

IV.4.2. Détermination des paléotempératures

IV.4.2.1. *Comparaison visuelle*

Les deux comportements décrits ci-dessus correspondent à des températures différentes :

- les prélèvements BDX 15324, BDX 15325, BDX 15327 et BDX 15328b semblent visuellement concorder avec les références chauffées à 550°C et 600°C (Figure 108 et Figure 109) ;

- les deux échantillons restant, BDX 15326 et BDX 15328a, présentent eux l'allure de la référence à 650°C (pic à 110°C de même intensité que les composantes de haute température, Figure 108 et Figure 109). Ces deux derniers prélèvements provenant de la surface supérieure de la sole ont certainement chauffé à des températures supérieures à 650°C. Néanmoins, notre référentiel thermique s'arrêtant à 650°C, il n'est pas possible de l'observer.

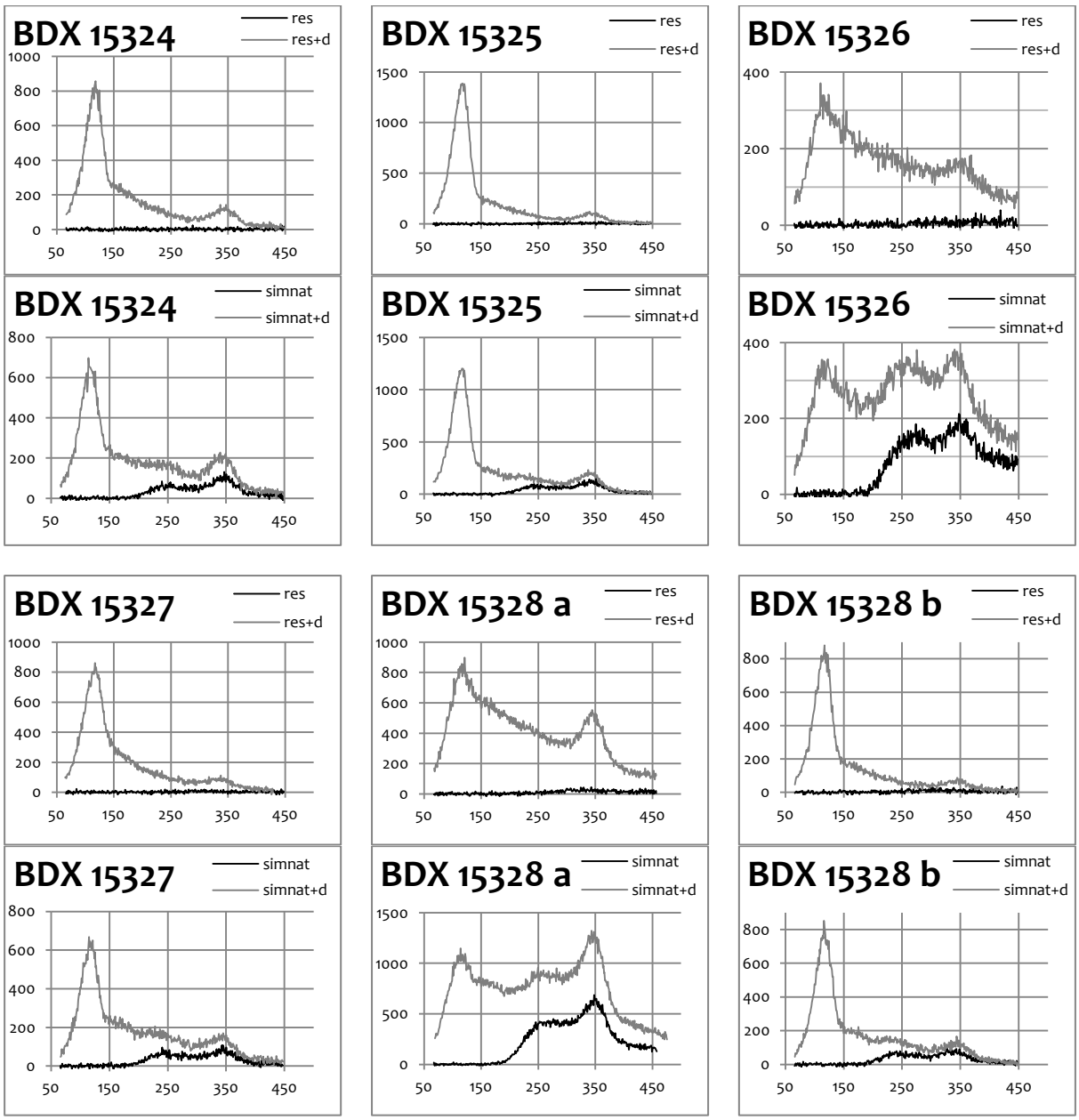


Figure 108 : Signaux résiduel, résiduel + dose, naturel simulé et naturel simulé + dose des prélèvements de la sole expérimentale étudiés sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm). (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C).

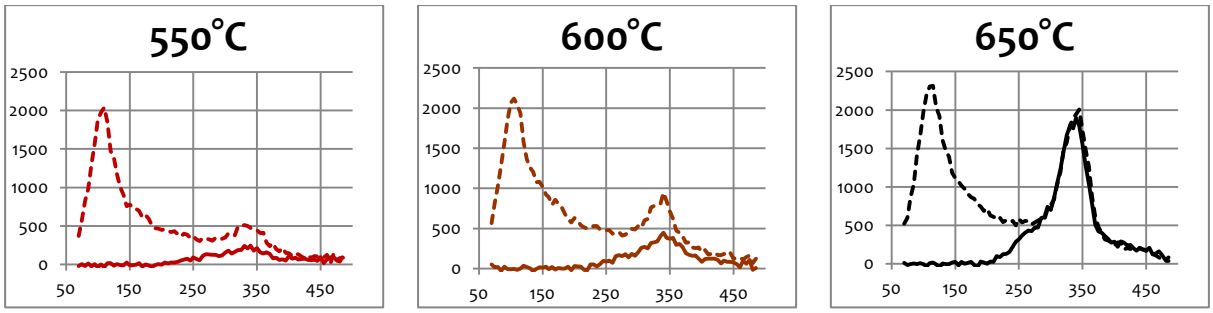


Figure 109 : Références thermiques de la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm) correspondantes aux échantillons de la sole expérimentale (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/5°C).

IV.4.2.2. *Calcul de la variance relative*

La variance relative (protocole détaillé dans ce chapitre, II.3.2) a été calculée pour les signaux naturels et naturels + dose entre 250°C à 400°C pour le signal naturel et de 70°C à 400°C pour le signal naturel + dose. Comme précédemment (ce chapitre, III.3.2), ces calculs ont été effectués sur des intégrales de 5°C.

Sont présentées ici (Figure 110) uniquement les variances des courbes naturelles + dose qui sont les plus informatives. Il en ressort que les prélèvements BDX 15324, BDX 15325, BDX 15327 et BDX 15328b sont associés à une température de 550°C. BDX 14326 est associé à la référence à 600°C et BDX 14328a à 600-650°C.

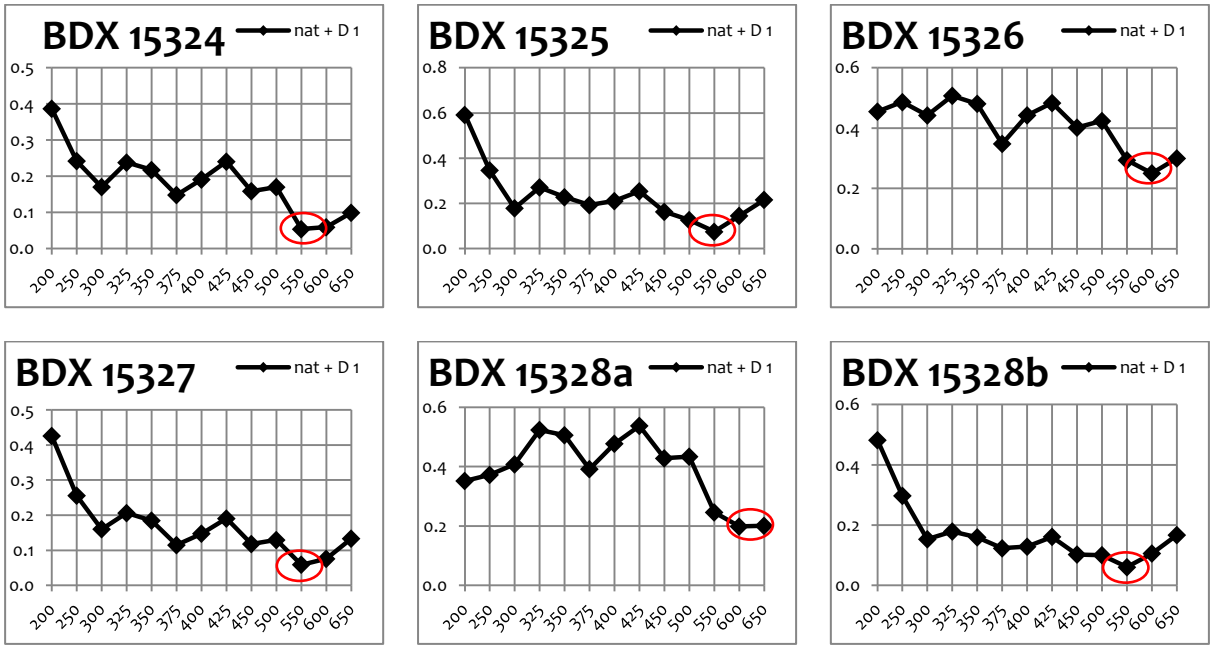


Figure 110 : Variance relative des prélèvements de la sole expérimentale étudiés sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm).

IV.4.2.3. *Classification hiérarchique*

La classification hiérarchique (protocole détaillé dans ce chapitre, III.3.3) confirme la distinction faite visuellement entre les prélèvements (Figure 111). Les prélèvements BDX 15324, BDX 15325, BDX 15327 et BDX 15328b sont associés aux références à 550°C et 600°C. Les prélèvements BDX 15326 et BDX 15328a sont quant à eux associés aux références à 650°C et 200°C. Cette incohérence vient de la similitude des intensités des références thermiques à 200°C et 650°C. Néanmoins, ces prélèvements sont très chauffés et la température attribuée est de 650°C voire peut-être plus.

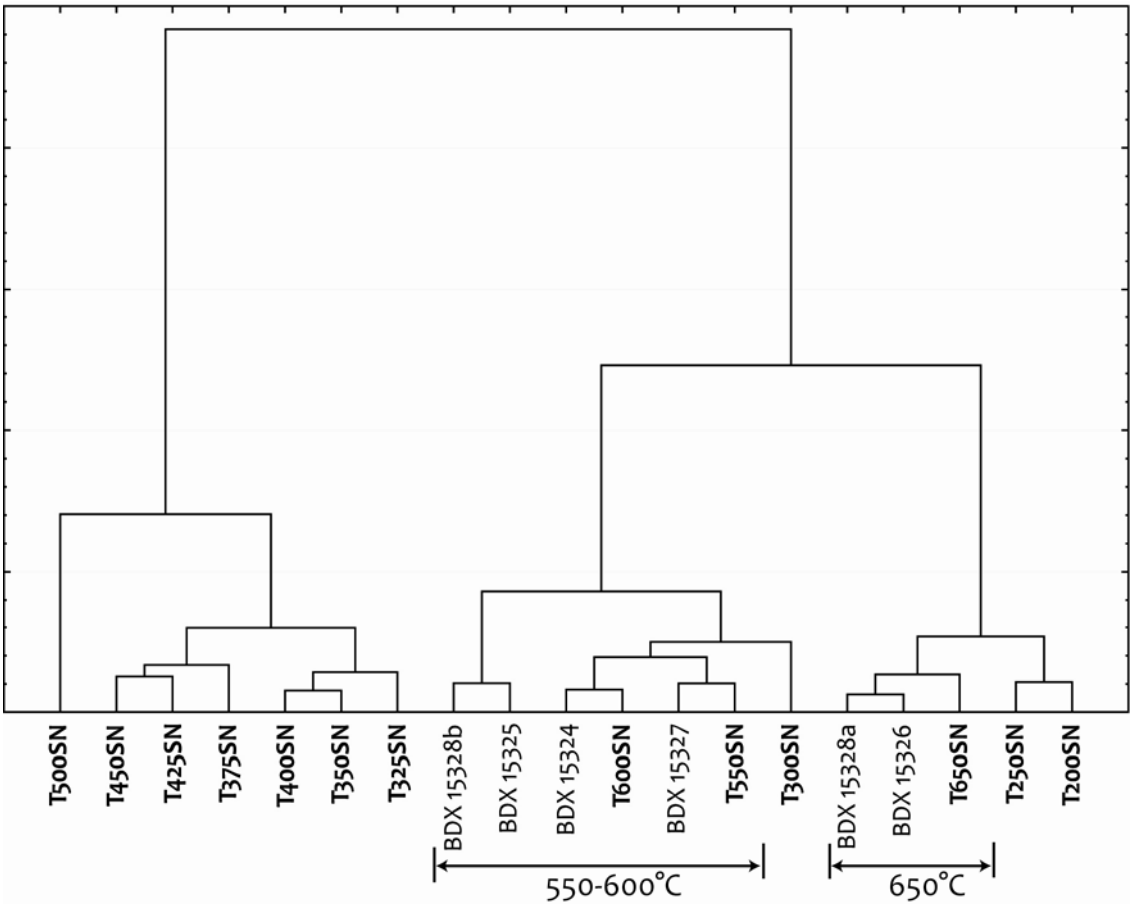


Figure 111 : Classification hiérarchique des prélèvements de la sole expérimentale étudiés sur la fraction fine polyminérale (3-12 µm).

IV.4.2.4. *Corrélation entre les trois méthodes*

La comparaison des températures déterminées par les trois méthodes (Tableau 19) montre la bonne cohérence des résultats entre eux et avec l'histoire thermique de la sole estimée entre 500°C (dessous) et 700°C (dessus).

Les prélèvements du dessous de la sole (BDX 15324, BDX 15325 et BDX 15328b) ou du bord (BDX 15327) ont les températures les plus faibles (550°C) alors que ceux du bourrelet (BDX 15326) et du centre (BDX 15328a, dessus, dans la zone noire engendrée par la combustion de graisses animales) de la sole ont les plus fortes (650°C ou plus). Il est intéressant de rapprocher ces températures de celle de la sole archéologique (F4) pour laquelle les températures les plus fortes avaient aussi été repérées au niveau du bourrelet.

Prélèvement		Température (°C)			
n°	BDX	Visuelle	Variance	Class. Hier.	Combinaison
1	15324	550-600	550	600	***550-600***
2	15325	550-600	550	550-600	***550***
3	15326	650	600	650	***650***
4	15327	550-600	550	550	***550***
5a	15328a	650	600-650	650	***650***
5b	15328b	550-600	550	550-600	***550***

Tableau 19 : Sole expérimentale, température déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique (fraction fine polyminérale 3-12 µm).

V. Paléotempérature et répartition spatiale

Il s'agit dans un premier temps de regarder la cohérence des paléotempératures obtenues à partir de la TL de la fraction fine polyminérale (3 -12 µm) et de la fraction grossière du quartz (200 - 500 µm). Cette comparaison est possible pour les foyers F6 et F8 (Tableau 21 et Tableau 20) pour lesquels les mesures ont été réalisées sur les deux fractions.

Il apparait que lorsque les prélèvements sont chauffés, les paléotempératures obtenues sur la fraction fine polyminérale sont supérieures à celles sur la fraction grossière du quartz. Néanmoins, la concordance entre les différentes températures déterminées pour un échantillon est assez bonne et elle permet de proposer une paléotempérature qui combine au mieux les six températures acquises (Tableau 21 et Tableau 20, dernière colonne).

Pour le foyer F6, deux paléotempératures déterminées par la variance relative sur la fraction 3-12 µm polyminérale posent problème (F6-32 et F6-33 : valeurs mises entre parenthèses dans le Tableau 21). Ces valeurs n'ont pas été prises en compte dans la détermination de la combinaison des paléotempératures car elles ne correspondent à aucune des cinq autres valeurs.

Pour le foyer F4, la combinaison des paléotempératures a déjà été présentée pour les prélèvements de la sole analysés sur la fraction polyminérale 3-12 µm (Tableau 17) et pour les autres prélèvements traités sur la fraction 200-500 µm du quartz (Tableau 12).

Prélèvement		Température (°C)						
n°	BDX	fraction 200 - 500 µm quartz			fraction 3 - 12 µm polyminérale			Combinaison
		Visuelle	Variance	Class. Hier.	Visuelle	Variance	Class. Hier.	
F8-38	14556	250-300	200-250	250	nc-200	250	250	***250***
F8-39	14557	250-300	250-325	300	350	300	300-450	***325***
F8-40	14558	nc	nc-200	200	nc-200	200	250	***200***
F8-41	14559	250	200	200	200-250	<300	200	***250***
F8-42	14560	nc	nc-200	nc	nc-200	200	250	***nc***
F8-43	14561	250-300	200-250	250	nc-200	300	250	***250***
F8-44	14562	nc	200-250	250	nc-200	200-250	250	***250***
F8-45	14563	250	200	250	200-250	< 200	200	***250***
F8-46	14564	nc	nc-200	200	nc-200	200	250	***200***
F8-47	14565	nc	nc-200	nc	nc-200	200	250	***nc***
F8-48	14566	nc-250	nc-200	200	nc-200	200	250	***200***
F8-49	14567	nc	nc-200	250	nc-200	200	200	***200***
F8-50	14568	350	250-325	300	300	300-350	300-450	***350***
F8-51	14569	nc	nc-200	200	nc-200	200	250	***200***

Tableau 20 : Foyer F8, mise en correspondance des paléotempératures déterminées sur la fraction fine polyminérale 3 - 12 µm et la fraction grossière 200 - 500 µm du quartz. La dernière colonne présente une valeur déterminée au mieux au regard des 6 valeurs précédentes.

Prélèvement		Température (°C)						
n°	BDX	fraction 200 - 500 µm quartz			fraction 3 - 12 µm polyminérale			Combinaison
		Visuelle	Variance	Class. Hier.	Visuelle	Variance	Class. Hier.	
F6-1a	14511	200	250	250	200-250	250	200	**250**
F6-1b	14512	nc	nc-200	200	nc-200	< 200	200	**200**
F6-1bord	14657	200	200-250	200	nc-200	200	200	**200**
F6-2	14513	250	250	250	200-250	250	200	**250**
F6-3	14515	200	250	250	200-250	250	200	**250**
F6-4	14516	250	250	250	200-250	300	200	**250**
F6-5	14518	250	250	250	200-250	< 200	200	**250**
F6-6	14519	300-350	325-500	300	400	500	500	**400**
F6-7	14520	300-350	325-500	350-450	350	500	500	**400**
F6-8	14522	250	325	350-450	200-250	300	200	**300**
F6-9	14523	nc	200-250	200	nc-200	200	200	**200**
F6-10	14524	300	325-500	325-400	400	300-350 500-600	300-450	**400**
F6-11	14525	350	325-500	300	350	300	300-450	**350**
F6-12	14527	350	325-500	325-400	400	500	500	**400**
F6-13a	14528	nc	200-250	250	200-250	< 200	200	**250**
F6-13b	14529	nc	nc-200	200	nc-200	< 200	200	**200**
F6-14	14530	nc	250	250	nc-200	300	250	**250**
F6-15a	14531	350	325-500	350-450	450	500	500	**425**
F6-15b	14656	300	325-500	350-450	450	500	500	**425**
F6-16b	14534	450	300-450	325-400	500	500	500	**450**
F6-17	14535	400	300-450	300	450	500	500	**425**
F6-18	14536	350	325	300	450	500	300-450	**350**
F6-19	14537	nc-250	nc-200	250	nc-200	200	200	**200**
F6-20	14538	nc-250	200	250	nc-200	200	200	**200**
F6-21	14539	400	325-500	300	350	300-600	300-450	**350**
F6-22	14540	400	325-500	300	450	500	500	**400**
F6-23	14541	400	325-500	325-400	450	500	500	**425**
F6-24	14542	350	325	325-400	400	500	300-450	**375**
F6-25	14543	200	250	250	200-250	250	200	**250**
F6-26	14544	nc	nc-200	200	nc-200	< 200	200	**200**
F6-27	14545	nc	nc-200	200	nc-200	< 200	200	**200**
F6-28	14546	nc	nc-200	200	nc-200	< 200	200	**200**
F6-29	14547	nc	nc-200	nc	nc-200	< 200	200	***nc***
F6-30	14548	nc	nc-200	200	nc-200	< 200	200	**200**
F6-31	14549	nc	nc-200	nc	nc-200	200	250	***nc***
F6-32	14550	400	325-500	300	400	(550-600)	300-450	**375**
F6-33	14551	250	250	250	nc-200	(550-600)	200	**250**
F6-34	14552	nc	200	250	nc-200	< 200	200	**200**
F6-35	14553	350	325-500	325-400	400	300	300-450	**350**
F6-36	14554	nc	nc-200	nc	nc-200	< 200	200	***nc***

Tableau 21 : Foyer F6, mise en correspondance des paléotempératures déterminées sur la fraction fine polyminérale 3 - 12 µm et la fraction grossière 200 - 500 µm du quartz. La dernière colonne présente une valeur déterminée au mieux au regard des 6 valeurs précédentes.

Dans un second temps, nous reportons les températures sur les clichés des foyers. Le foyer F4 (Figure 112) montre une répartition des paléotempératures cohérente avec de fortes températures (> 500°C) sur une première zone correspondant à la sole et à l'arrière du bourrelet ainsi que sur une seconde petite zone qui apparaît comme rubéfiée (centrée sur les prélèvements n°6 et 7). Autour de ces deux zones, les températures sont décroissantes jusqu'au sédiment non chauffé. Entre les deux zones, il semble y avoir un espace où les sédiments sont peu chauffés. Le foyer F6 (Figure 113) montre lui aussi un cœur de chauffe mais avec des températures maximales de 400-450°C. En s'éloignant de ce cœur, les températures diminuent. Pour le foyer F8, il apparait que les prélèvements sont peu chauffés avec un maximum de 350°C.

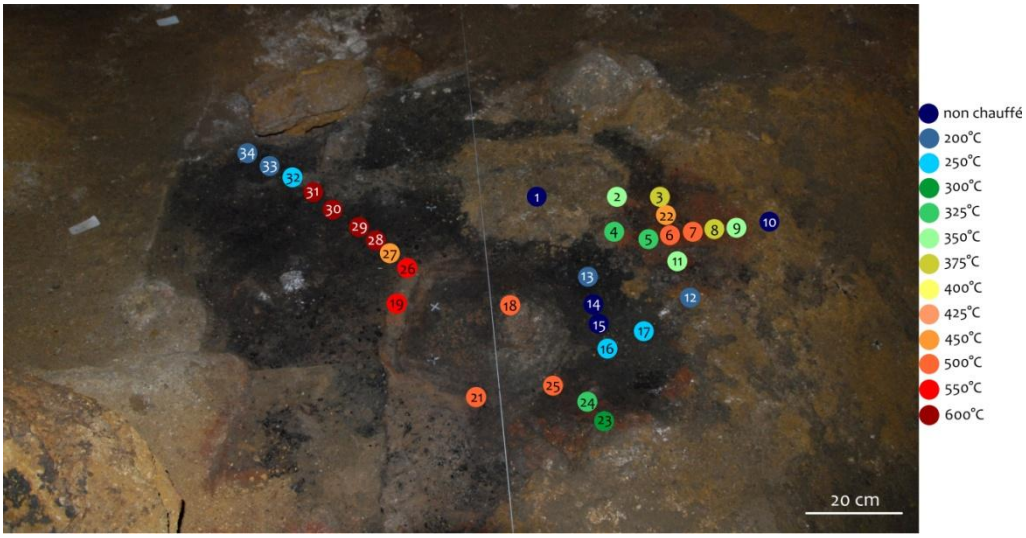


Figure 112 : Localisation des températures associées aux prélèvements provenant du foyer F4. © cliché : A. Burens.

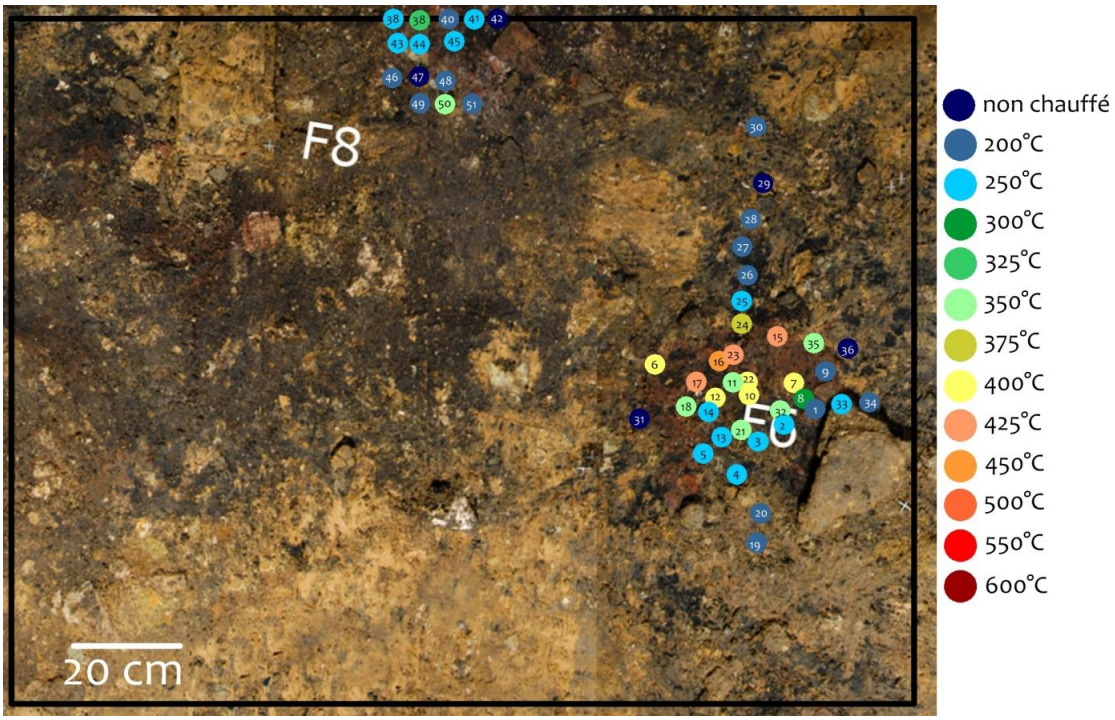


Figure 113 : Localisation des températures associées aux prélèvements provenant des foyers F6 et F8. © cliché : A. Burens.

VI. Bilan

Dans ce chapitre, des prélèvements provenant de foyers archéologiques de la grotte des Fraux ont été étudiés à partir de leurs propriétés de thermoluminescence afin de déterminer les températures atteintes par le passé. Pour cela, les signaux TL naturels (et naturels + dose) des échantillons archéologiques ont été comparés aux signaux TL simulés sur des références thermiques créées en laboratoire suivant un cycle thermique précis[6]. Ainsi, les paléotempératures obtenues sont des températures équivalentes au cycle thermique utilisé. Afin de valider la méthodologie développée, des échantillons d'histoire thermique connue provenant d'un foyer expérimental ont été étudiés suivant des procédés similaires.

Le référentiel thermique créé à partir de la fraction grossière des grains de quartz s'avère robuste. Il concorde avec les prélèvements archéologiques tant dans la forme que dans l'intensité des courbes. Seule la composante TL à 250°C qui est variable en intensité dans les échantillons ne correspond pas toujours. Le référentiel thermique créé à partir de la fraction fine polyminérale est quant à lui moins facile à utiliser puisqu'il y a une différence d'intensité notable entre les signaux TL du référentiel thermique et ceux des échantillons archéologiques due en partie à une sous-estimation de la dose reçue mais aussi à une variabilité de la concentration en minéraux luminescents (quartz) dans les sédiments des Fraux.

Les approches comparatives employées, visuelle et statistique, sont complémentaires. La première est indispensable pour s'approprier les différents comportements de la luminescence avec la température. Cette phase d'observation et de description des courbes permet une attribution de paléotempérature qui prend en compte l'intensité des courbes, la forme et les rapports d'intensité entre les différentes composantes.

L'approche statistique (calcul de la variance relative et classification hiérarchique) fonctionne particulièrement bien avec le référentiel thermique du quartz. Elle discrimine les prélèvements suivant leur intensité TL et la position des pics de luminescence et les regroupe autour d'une ou plusieurs références thermiques dont les courbes TL ont l'allure la plus proche.

Pour les mesures réalisées sur la fraction fine polyminérale, une intégration des signaux TL sur 5°C a été utilisée pour le calcul de la variance relative. De plus, une normalisation des intégrales servant à la construction de la classification hiérarchique a été nécessaire pour pallier la différence d'intensité entre références thermiques et échantillons archéologiques. Par ailleurs, la comparaison visuelle et le calcul de la variance relative sont des étapes préalables indispensables à la classification hiérarchique car elles permettent d'estimer les températures maximales (comme dans le cas des foyers F6 et F8). Ainsi les références thermiques utilisées dans la classification hiérarchique sont restreintes, évitant des erreurs d'association de paléotempératures. En effet, les courbes TL des références thermiques peu chauffées et chauffées au-delà de 500°C se ressemblent. Cette similitude implique des difficultés pour l'attribution des paléotempératures au-delà de 500°C. Néanmoins, le contexte du prélèvement (dans une zone rubéfiée, au centre du foyer, loin du cœur du foyer…) permet, lorsqu'un doute se présente, de différencier entre du non chauffé ou du très chauffé.

[6] Ce développement méthodologique fait l'objet d'un article mis en annexe (*annexe 12*) paru en 2012 dans la revue Quaternary Geochronology.

Dans le cas de la sole expérimentale, les températures atteintes en surface dépassent certainement celles du référentiel thermique (jusqu'à 650°C). Dans ce cas, la température associée est une température minimale atteinte.

Les trois foyers de la grotte des Fraux étudiés sont de morphologie différente. Le foyer F8 est visible par une large lentille charbonneuse d'environ un mètre de diamètre avec quelques endroits rubéfiés (dont celui prélevé). Le foyer F6 est remarquable par une petite zone rubéfiée (30 cm de diamètre environ), très délimitée. Enfin, le foyer F4 se distingue par la présence de la sole foyère à laquelle sont associées (1) une zone rubéfiée d'environ 30 cm de diamètre et (2) une zone charbonneuse à l'arrière du bourrelet.

Ces trois morphologies sont associées à des paléotempératures maximales variables. Ainsi, les prélèvements du foyer F8 sont les moins chauffés avec un maximum de 350°C. Ceux du foyer F6, indiquent des températures jusqu'à 425-450°C, ces températures maximales étant circonscrites à une petite zone. Les prélèvements de la sole foyère du foyer F4 ainsi que ceux de la zone charbonneuse montrent des températures allant au-delà de 500°C, alors que la petite zone rubéfiée atteint juste 500°C.

* *
*

Les échantillons prélevés sur l'ensemble de la surface des structures de combustion donnent un aperçu de la répartition des températures. Afin d'étendre les surfaces étudiées, nous allons par la suite tester le potentiel d'un couplage entre les paléotempératures déterminées par TL et les cartographies de susceptibilité magnétique dans le but d'obtenir une cartographie en température de la totalité d'un foyer.

Chapitre 8 : Cartographie des foyers : apports de la susceptibilité magnétique et du géomagnétisme

Les cartographies de la susceptibilité magnétique ou du champ magnétique sont deux approches non invasives qui permettent de localiser des anomalies magnétiques liées entre autres à la présence de sédiments chauffés. Dans un premier temps, nous allons présenter les apports éventuels et la complémentarité de ces cartographies pour l'étude des foyers. Ensuite, nous nous concentrerons sur les cartographies de susceptibilité magnétique pour tester le potentiel d'un couplage avec les paléotempératures TL afin d'étalonner la susceptibilité magnétique en température et d'obtenir une carte en température des foyers.

I. Cartographies de susceptibilité magnétique et de champ magnétique

Les cartographies de **susceptibilité magnétique** des foyers F4 (Figure 47), F6 et F8 (Figure 51) ont d'ores et déjà été exploitées, décrites et comparées lors de l'explication de la stratégie d'échantillonnage. Elles apportent des informations qui concernent l'aimantation induite c'est-à dire la minéralogie magnétique et plus exactement la concentration en phases ferrimagnétiques. Cependant, cette mesure ne concerne que les deux centimètres supérieurs de sédiment.

Les cartographies de **champ magnétique** permettent de mettre en évidence les déformations du champ magnétique induites par la présence de matériaux portant une aimantation. Les matériaux chauffés créent de fortes anomalies engendrées par l'acquisition d'une aimantation thermorémanente (ATR) et par l'augmentation de leur capacité d'aimantation (création de phases magnétiques). L'un des avantages de cette approche est la localisation d'anomalies magnétiques non détectées par la susceptibilité magnétique, le capteur du susceptibilimètre étant un capteur de surface. De plus, la présence d'une anomalie magnétique permet de confirmer la position primaire des sédiments chauffés (si déplacement alors l'ATR disparait), information inaccessible par la mesure de susceptibilité magnétique.

Ces deux approches sont donc complémentaires et pourraient apporter des éléments sur l'emplacement de structures de combustion et la préservation de leur intégrité physique.

Pour le foyer F4, une cartographie du champ magnétique a été réalisée en 2009 (F. Lévêque et V. Mathé, LIENSs) pour laquelle les données de champ magnétique (magnétomètre G858, Geometrics, Figure 114) ont été enregistrées en continu à l'aide d'un tachéomètre (appareil permettant la localisation dans l'espace du capteur de champ magnétique relié à un prisme par un suivi laser, Figure 115).

Figure 114 : Capteur du magnétomètre G858, Geometrics.
© cliché : A. Burens.

Figure 115 : Tachéomètre Trimble VX.
© cliché : A. Burens.

La fusion des données de susceptibilité magnétique et de champ magnétique superposées au relevé archéologique (Figure 116) a pu être effectuée grâce au géoréférencement de l'ensemble des données dans le système de coordonnées Lambert 2 : le tachéomètre fournit directement ces données et les cartes de susceptibilité magnétique ainsi que les relevés sont géoréférencées par quelques points. La précision de ce recalage est de l'ordre de 2 à 3 cm du fait (1) du non alignement du prisme avec le capteur (Figure 114), (2) de la légère distorsion du relevé et (3) de l'incertitude (de l'ordre du cm) sur les points de référencement des cartes de susceptibilité magnétique.

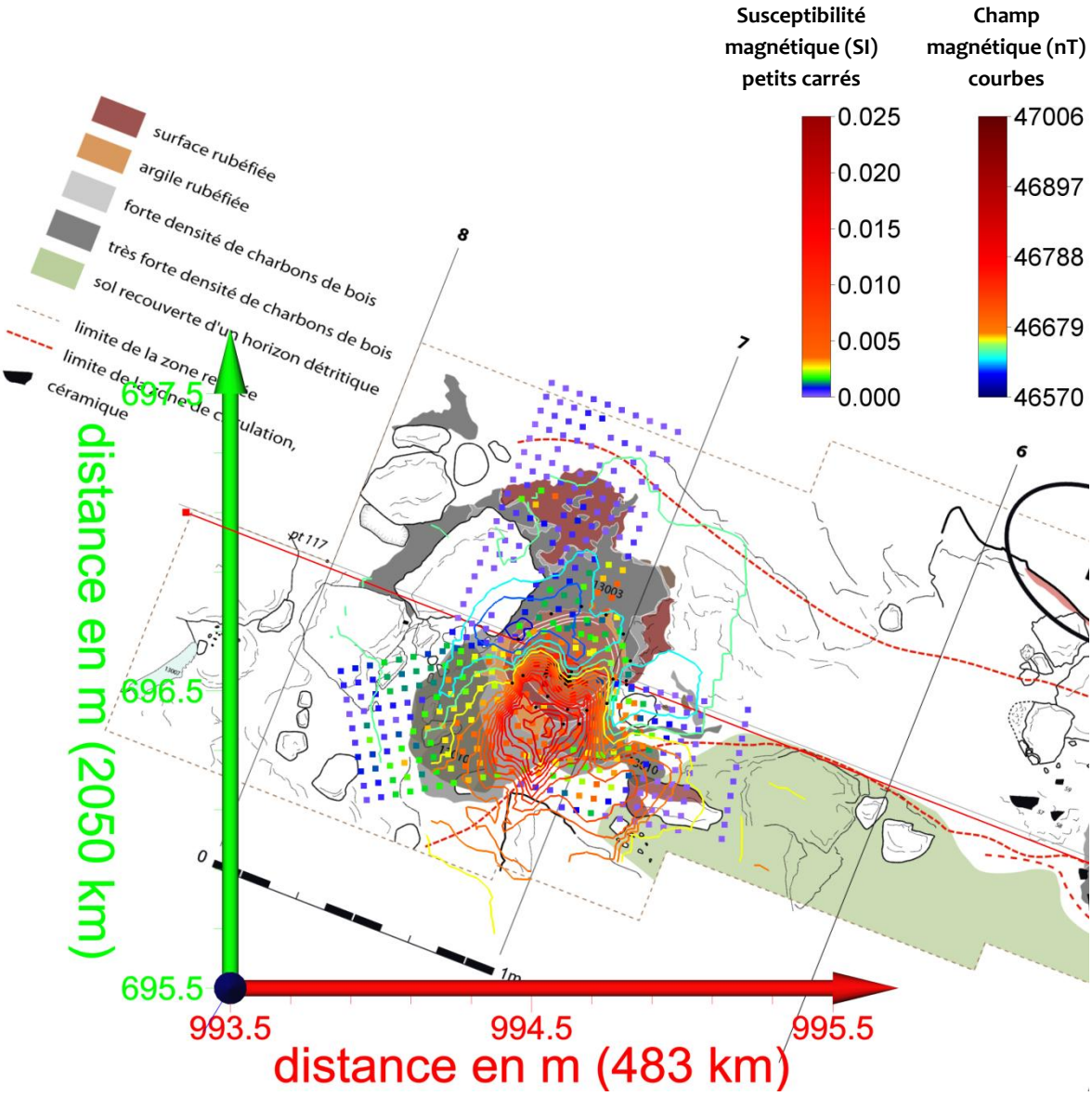


Figure 116 : Fusion des données de susceptibilité magnétique (SI, petits carrés), de champ magnétique (nanoTesla = nT, courbes) et de relevé archéologique (© relevé : L. Carozza).

Le relevé gênant la lecture, une superposition des données magnétique et du contour de la sole uniquement permet une meilleure lisibilité (Figure 117).

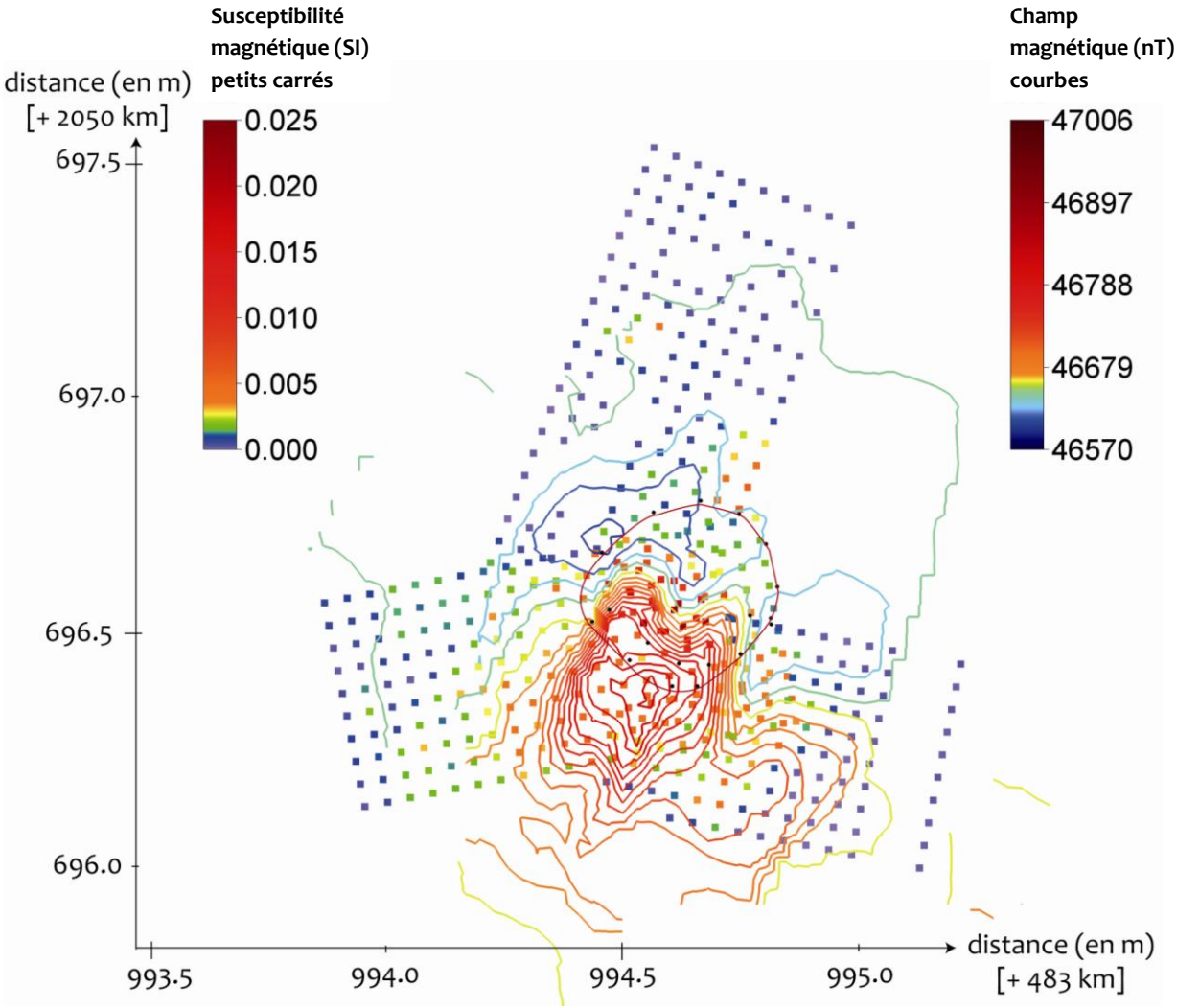


Figure 117 : Foyer F4, cartographie du champ magnétique (courbes isochamp, nT) superposée à la cartographie de susceptibilité magnétique (petit carré, SI).

Les mesures de champ magnétique mettent en évidence une anomalie magnétique dipolaire (négative en bleu au nord et positive en rouge au sud) d'intensité élevée. La position du centre du dipôle concorde bien avec la sole foyère. Autour, aucune autre anomalie magnétique ne semble détectée. Plusieurs hypothèses sont possibles pour expliquer ce phénomène :

- l'intensité de l'anomalie magnétique de la sole masque la présence potentielle d'autres anomalies magnétiques puisque (1) les températures atteintes par les sédiments ont peut être été modérées et l'intensité de l'anomalie magnétique est alors trop faible pour être détectée ou (2) les matériaux ne possèdent qu'une faible concentration en minéraux précurseurs aux phases magnétiques formées par la chauffe (matériaux issus de la désagrégation de grès).

- la densité de points allant en décroissant en s'éloignant de la sole, il est possible qu'un manque de données soit à l'origine de cette absence.

- les matériaux rubéfiés associés aux fortes valeurs de susceptibilité magnétique (pour lesquels on pourrait attendre la présence d'une anomalie magnétique) ont potentiellement été déplacés et l'aimantation acquise pendant le dernier refroidissement (ATR) a disparu.

La multiplicité des hypothèses ne permet pas d'apporter une réponse concernant les sédiments entourant la sole foyère. Toutefois les cartographies de champ magnétique peuvent apporter des informations sur des structures qui n'affleurent pas ou bien sur l'intégrité physique de structures visibles. Cette approche ne fait pas partie du sujet de ce doctorat (*cf.* rapports de fouille de la grotte des Fraux pour plus d'information : Carozza, 2009 et 2011). Néanmoins, il pourrait être intéressant de relier l'intensité des anomalies magnétiques avec la détermination de paléotempératures par TL et de tester le potentiel de ces anomalies comme marqueurs de l'intensité du feu. Cette approche serait une piste à exploiter complémentaire à celle développée dans notre travail à savoir la confrontation entre la susceptibilité magnétique et les paléotempératures TL.

II. Couplage de la susceptibilité magnétique et des paléotempératures TL

Dans un premier temps, la comparaison entre la susceptibilité magnétique de terrain et la susceptibilité magnétique mesurée sur le prélèvement pour l'étude TL est réalisée afin d'évaluer la représentativité de la mesure volumique par rapport au prélèvement.

Ensuite, les valeurs de susceptibilité magnétique de terrain seront mises en relation avec les paléotempératures déterminées par TL (de manière cartographique puis numérique) dans l'objectif d'étalonner en température les valeurs de susceptibilité magnétique mesurée *in situ* et de construire une carte en température des foyers.

II.1. **Susceptibilité magnétique de terrain vs laboratoire**

Avant leur destruction pour les mesures TL, la susceptibilité magnétique spécifique (χ, en m^3/kg) de chaque prélèvement a été mesurée en laboratoire (susceptibilimètre KLY-4S, AGICO). Cette susceptibilité magnétique a été comparée à la susceptibilité magnétique volumique mesurée sur le terrain (κ, sans unité dans le système international SI) afin d'évaluer la correspondance entre le prélèvement effectué et le volume investigué par la mesure de terrain.

Pour pouvoir comparer les valeurs de susceptibilité magnétique entre elles dans une même unité et traduire les informations volumiques de terrain en une grandeur à normalisation massique, une masse volumique théorique du matériau a été utilisé (1800 kg/m^3). Les valeurs de susceptibilité magnétique sont présentées dans les tableaux suivants (Tableau 22, Tableau 23 et Tableau 24). Pour le foyer F4 certaines valeurs de susceptibilité magnétique de terrain manquent car les prélèvements ont été réalisés en dehors de la zone cartographiée.

Foyer F4								
n°	BDX	κ (terrain)		χ (laboratoire)	n°	BDX	κ (terrain)		χ (laboratoire)
		10^{-6} SI	10^{-6} m^3/kg	10^{-6} m^3/kg			10^{-6} SI	10^{-6} m^3/kg	10^{-6} m^3/kg
1	12619	60	0.033	0.054	16	12634	5770	3.206	3.218
2	12620	120	0.067	0.037	17	12635	2450	1.361	3.804
3	12621	1960	1.089	0.777	22	12639	2940	1.633	0.998
4	12622	150	0.083	0.033	23	12640	\	\	0.785
5	12623	800	0.444	0.488	24	12641	\	\	0.557
6	12624	\	\	1.275	25	12642	1530	0.850	1.918
7	12625	3810	2.117	7.357	26	12643	4700	2.611	4.533
8	12626	370	0.206	0.218	27	12644	2380	1.322	3.829
9	12627	100	0.056	0.048	28	12645	2680	1.489	3.577
10	12628	220	0.122	0.030	29	12646	2560	1.422	3.866
11	12629	910	0.506	0.355	30	12647	2730	1.517	4.019
12	12630	130	0.072	0.061	31	12648	2630	1.461	4.351
13	12631	910	0.506	1.726	32	12649	1910	1.061	3.060
14	12632	1980	1.100	1.529	33	12650	620	0.344	0.644
15	12633	4150	2.306	2.241	34	12651	70	0.039	1.258

Tableau 22 : Foyer F4, numéros de prélèvement et valeurs de la susceptibilité magnétique de terrain (κ) et de laboratoire (χ). La masse volumique moyenne choisie pour traduire κ en une grandeur à normalisation massique est de 1800 kg/m^3.

Foyer F6								
n°	BDX	κ (terrain)		χ (laboratoire)	n°	BDX	κ (terrain)		χ (laboratoire)
		10^{-6} SI	10^{-6} m^3/kg	10^{-6} m^3/kg			10^{-6} SI	10^{-6} m^3/kg	10^{-6} m^3/kg
1-a	14511	1030	0.572	0.581	17	14535	7140	3.967	4.238
1-b	14512	1030	0.572	0.301	18	14536	2920	1.622	1.607
1-bord	14657	1030	0.572	1.486	19	14537	550	0.306	0.823
2	14513	760	0.422	1.674	20	14538	1170	0.650	0.949
3	14515	800	0.444	1.483	21	14539	1580	0.878	4.197
4	14516	1200	0.667	1.865	22	14540	2840	1.578	5.201
5	14518	820	0.456	2.281	23	14541	5500	3.056	12.606
6	14519	2570	1.428	2.217	24	14542	1740	0.967	3.539
7	14520	3630	2.017	3.295	25	14543	820	0.456	2.009
8	14522	1030	0.572	3.492	26	14544	860	0.478	0.806
9	14523	1220	0.678	1.705	27	14545	420	0.233	0.750
10	14524	1860	1.033	4.314	28	14546	400	0.222	0.646
11	14525	2840	1.578	3.514	29	14547	440	0.244	0.378
12	14527	4760	2.644	2.124	30	14548	570	0.317	0.505
13-a	14528	1150	0.639	1.831	31	14549	530	0.294	0.357
13-b	14529	1150	0.639	0.487	32	14550	2090	1.161	4.559
14	14530	1310	0.728	1.914	33	14551	1010	0.561	2.901
15-a	14531	1710	0.950	1.938	34	14552	380	0.211	0.989
15-b	14656	1710	0.950	3.064	35	14553	1550	0.861	1.439
16-b	14534	5500	3.056	2.804	36	14554	540	0.300	0.519

Tableau 23 : Foyer F6, numéros et valeurs de susceptibilité magnétique de terrain (κ) et de laboratoire (χ). La masse volumique moyenne choisie pour traduire κ en une grandeur à normalisation massique est de 1800 kg/m^3.

Foyer F8									
n°	BDX	κ (terrain)		χ (laboratoire)	n°	BDX	κ (terrain)		χ (laboratoire)
		10^{-6} SI	10^{-6} m^3/kg	10^{-6} m^3/kg			10^{-6} SI	10^{-6} m^3/kg	10^{-6} m^3/kg
38	14556	570	0.317	0.512	45	14563	1400	0.778	3.932
39	14557	890	0.494	0.613	46	14564	810	0.450	2.176
40	14558	1600	0.889	2.128	47	14565	820	0.456	0.450
41	14559	990	0.550	2.348	48	14566	820	0.456	1.941
42	14560	340	0.189	0.810	49	14567	630	0.350	1.109
43	14561	610	0.339	0.444	50	14568	990	0.550	1.940
44	14562	1260	0.700	1.416	51	14569	720	0.400	0.992

Tableau 24 : Foyer F8, numéros et valeurs de susceptibilité magnétique de terrain (κ) et de laboratoire (χ). La masse volumique moyenne choisie pour traduire κ en une grandeur à normalisation massique est de 1800 kg/m^3.

Lorsqu'on représente la susceptibilité magnétique volumique de terrain normalisée à la masse en fonction de la susceptibilité magnétique spécifique (Figure 118), certains prélèvements présentent des valeurs comparables entre les deux mesures : les points se positionnement autour de la droite identité. Cependant, une partie des prélèvements possèdent des différences notables entre les deux valeurs de susceptibilité magnétique, de l'ordre de trois fois plus élevées pour la susceptibilité magnétique sur prélèvement par rapport à celle mesurée *in situ*.

Les écarts constatés entre la mesure de laboratoire et la mesure de terrain ont plusieurs origines possibles dont les effets peuvent se superposer :

- la profondeur d'investigation du capteur de contact, de l'ordre de 90% du signal dans les deux premiers centimètres (Lecoanet *et al.*, 1999), apporte une information sur une plus grande profondeur que celle du prélèvement réalisé sur le premier centimètre. Le matériau chauffé étant préférentiellement en surface (rarement au-delà du premier centimètre, observation faite sur les carottes prélevées pour l'archéomagnétisme), la mesure de contact minimise les valeurs de susceptibilité magnétique en intégrant dans le volume mesuré des matériaux non transformés par la chauffe.

- des défauts de contact du capteur (relief, caillou) ou l'intercalation de matériaux diamagnétiques tels que les charbons de bois peuvent aussi expliquer des sous-estimations des valeurs mesurées *in situ*. On remarque en effet, particulièrement pour le foyer F4, que les prélèvements les plus charbonneux ont tous une susceptibilité magnétique de terrain sous-estimée.

- dans le cas du foyer F4, un tri involontaire des matériaux lors de la phase de prélèvements a pu favoriser la fraction fine, plus magnétique, au détriment de matériaux diamagnétiques tels que les charbons et les grains de quartz. De ce fait, la susceptibilité magnétique mesurée en laboratoire est surestimée.

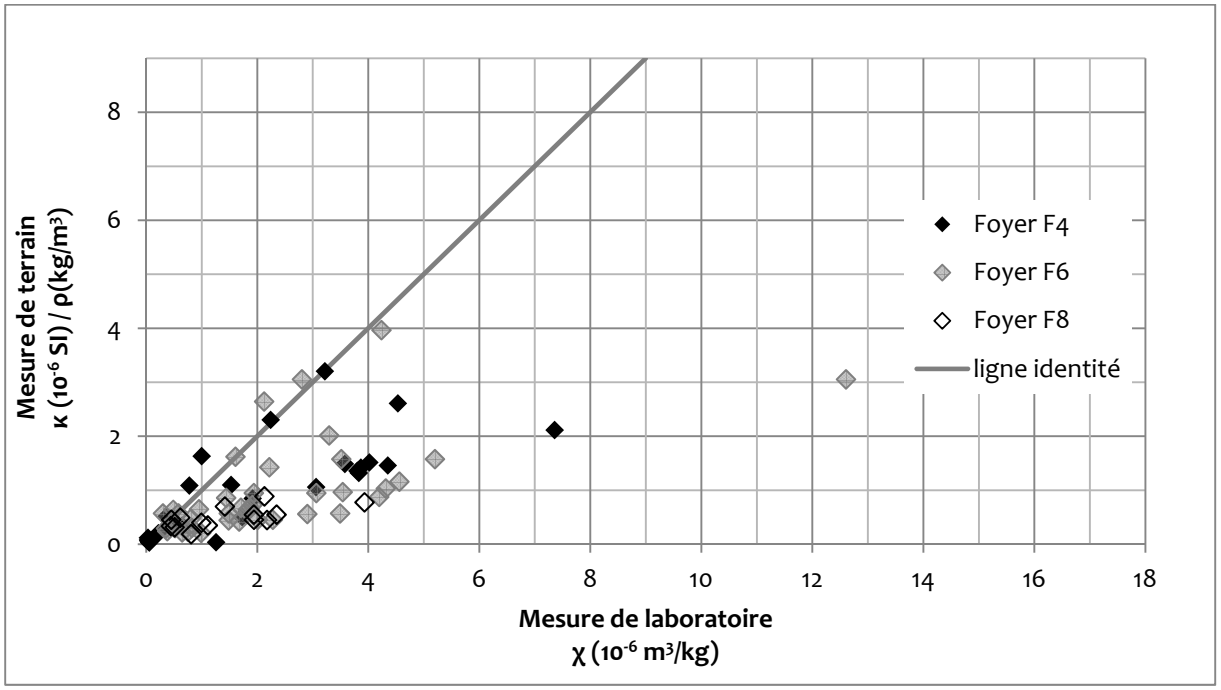


Figure 118 : Foyers F4, F6 et F8, susceptibilité magnétique de terrain, divisée par une masse volumique moyenne ρ=1800 kg/m^3, en fonction de la susceptibilité magnétique de laboratoire mesurée sur les prélèvements.

Par ailleurs, un autre facteur entrant en jeu est la masse volumique théorique choisie à 1800 kg/m^3 :

- pour le foyer F4, les prélèvements provenant de la lentille charbonneuse à l'arrière du bourrelet de la sole foyère (n°25 et 27 à 34) sont très riches en charbon, de même que ceux provenant de la zone juste devant la sole foyère (n°13 à 17). Ainsi la masse volumique considérée comme correcte pour des sédiments est surestimée pour ces prélèvements principalement composés de charbon. En prenant pour ces échantillons, une masse volumique environ trois fois plus faible de 650 kg/m^3, ils se placent le long de la droite identité (Figure 119). Une telle masse volumique correspondrait à un mélange de 20 % de sédiment à 1800 kg/m^3 pour 80 % de charbon à 400 kg/m^3 (valeur moyenne pour des masses volumiques de charbon entre 300 et 500 kg/m^3 ; Deloye, 2012).

- pour les foyers F6 et F8, certains prélèvements contiennent des charbons de bois pour lesquels nous avons repris la valeur précédente de 650 kg/m^3. Ainsi, si on applique une valeur de 1800 kg/m^3 pour les sédiments et une valeur de 650 kg/m^3 pour les sédiments contenant des charbons (n°2 à 5, 8, 10, 14, 15, 19 à 28, 30, 32 à 34, 40 à 42, 44 à 46, 48, 49 et 51), les points se rapprochent fortement de la droite identité (Figure 119).

Deux prélèvements restent éloignés de la droite identité. Il s'agit des prélèvements n° F4-7 et F6-23. Ils sont tous deux issus de zones assez chauffés (Figure 112 et Figure 113). Il est possible que se soit le prélèvement en surface - donc de sédiment le plus chauffé de plus forte susceptibilité magnétique que le sédiment sous jacent et investigué par la mesure volumique de terrain - qui implique une surestimation de la susceptibilité magnétique de laboratoire.

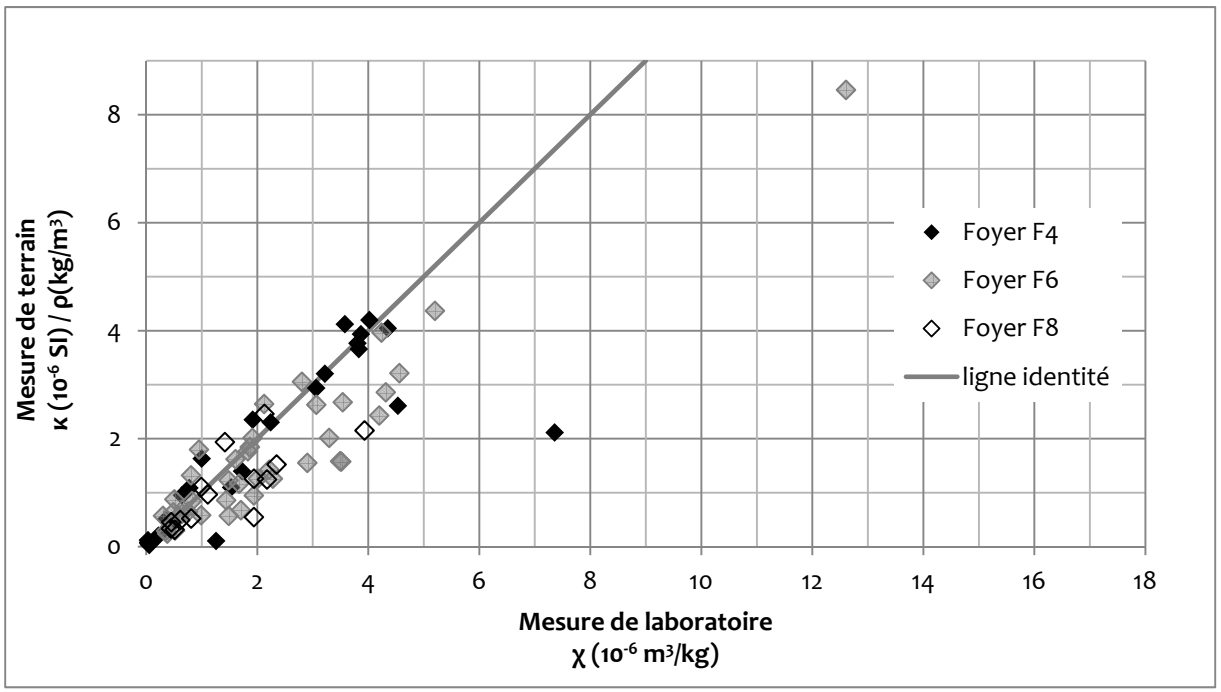


Figure 119 : Foyers F4, F6 et F8, susceptibilité magnétique de terrain, divisée soit par une masse volumique de ρ=1800 kg/m^3 pour les prélèvements sans charbons et de ρ=650 kg/m^3 pour les zones principalement constituées de charbon, en fonction de la susceptibilité magnétique de laboratoire mesurée sur les prélèvements.

L'ensemble des origines des écarts précités entre les mesures de terrain et de laboratoire sur prélèvements (hétérogénéité des matériaux, profondeur d'investigation du capteur, défauts de contact du capteur, tri des matériaux) sont cumulés et difficilement séparables. Néanmoins, pour les prélèvements 1 à 18 du foyer F6 il est possible d'observer l'influence de la profondeur d'investigation du capteur. En effet, des informations sur les profondeurs de rubéfaction ont été apportées par les prélèvements sous forme de carotte (**Tableau 7**). Ainsi, lorsqu'on met en relation l'écart relatif entre la susceptibilité magnétique de laboratoire et celle de terrain en fonction de l'épaisseur de rubéfaction (Figure 120), on observe une forte tendance qui indique que plus l'épaisseur de rubéfaction est faible plus l'écart entre les mesures est grand. L'effet de dilution du signal engendré par un volume d'intégration du capteur de terrain plus important que le volume prélevé est ainsi mis en évidence.

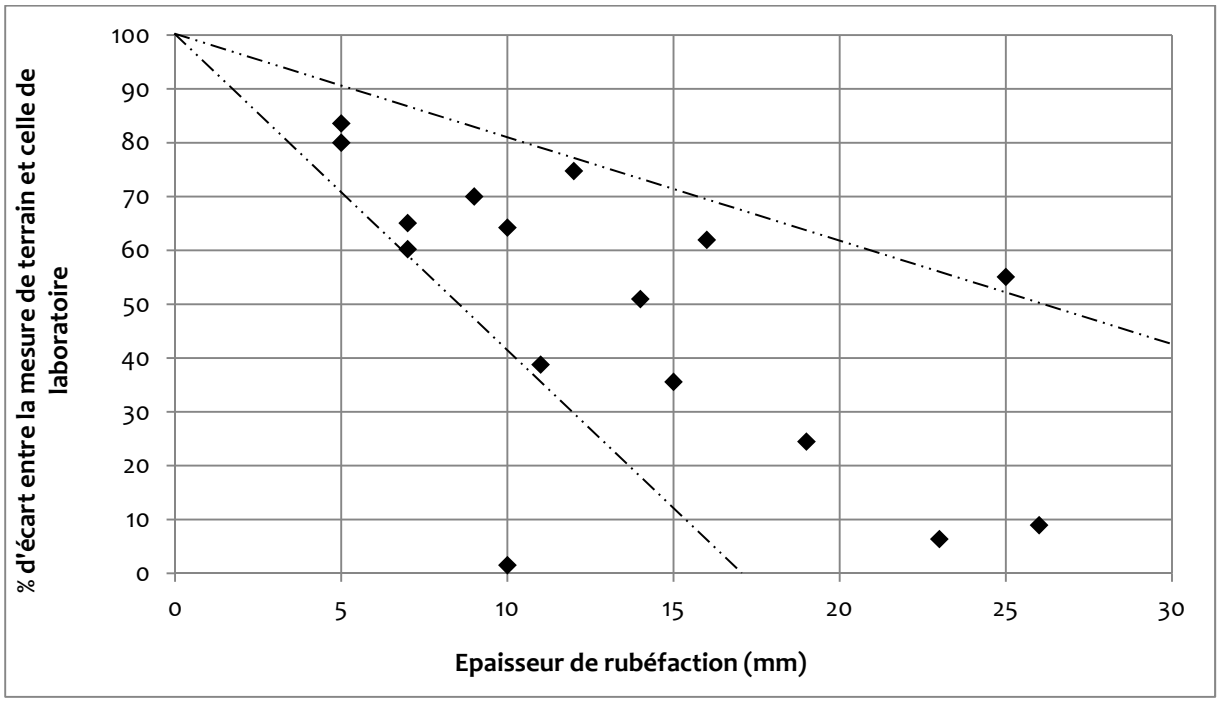
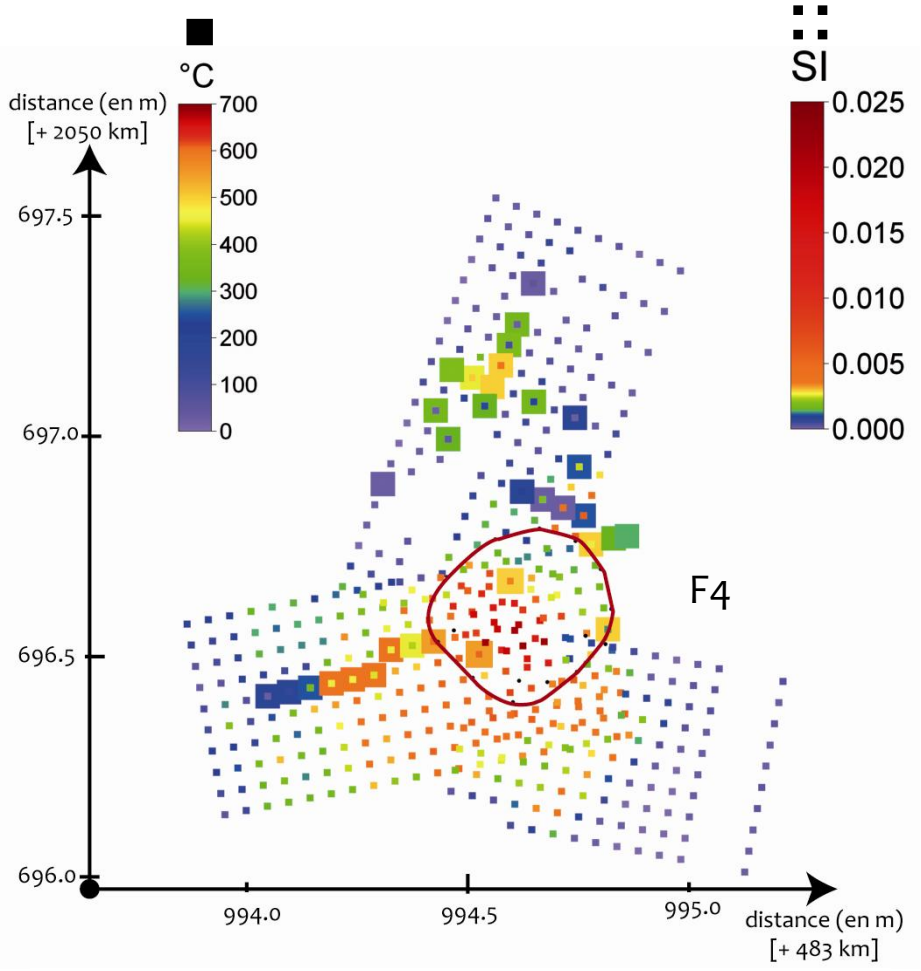


Figure 120 : Ecart relatif entre la susceptibilité magnétique de laboratoire et celle de terrain en fonction de l'épaisseur de rubéfaction observée sur les carottes prélevées.

Finalement, la cartographie de susceptibilité magnétique indiquera de manière correcte les zones où le substrat est homogène de nature et d'intensité de chauffe. Ainsi, si on considère que l'intensité du feu est proportionnelle à l'épaisseur de rubéfaction, les zones les plus chauffées (épaisseur de rubéfaction d'environ 2 cm) et les zones non chauffées seront repérées avec des valeurs de terrain proche de celle de laboratoire. Par contre, les zones moyennement chauffées (épaisseur de rubéfaction faible) présenteront des valeurs de susceptibilité magnétique de terrain sous-estimées.

II.2. **Comparaison visuelle : susceptibilité magnétique de terrain et températures TL**

Les cartographies de susceptibilité magnétique ont été superposées aux valeurs de paléotempératures déterminées par TL (Figure 121).



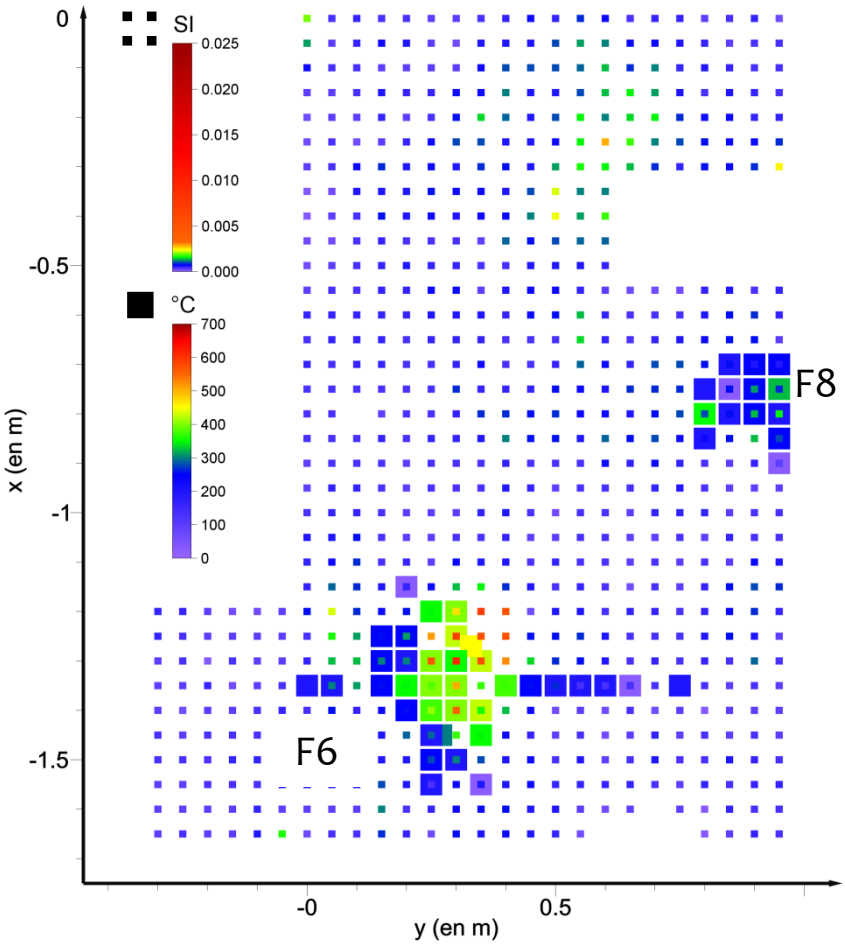


Figure 121 : Foyer F4 (haut) et F6-F8 (bas), carte de susceptibilité magnétique de terrain (petit carré, SI) et paléotempérature TL (gros carré, °C).

Dans les deux secteurs étudiés, la susceptibilité magnétique évolue principalement dans le même sens que la paléotempérature TL. Pour le foyer F4, quelques points (sur la Figure 121, les quatre petits carrés dans les quatre gros carrés bleus juste au dessus de la sole) montrent néanmoins des valeurs variables de susceptibilité magnétique alors que les paléotempératures sont inférieures à 250°C. Pour le foyer F6 (Figure 121, bas), la cohérence entre susceptibilité magnétique et paléotempérature semble correcte. Pour le foyer F8 (Figure 121, bas), la susceptibilité magnétique et les paléotempératures sont faibles et montrent peu de variations.

La correspondance entre la susceptibilité magnétique de terrain et la paléotempérature TL semblant *a priori* exister, l'étalonnage en température de la susceptibilité magnétique va être testé.

II.3. **Corpus d'étalonnage**

Pour chaque foyer, les valeurs de la susceptibilité magnétique de terrain mesurées à l'emplacement du prélèvement sont représentées en fonction de la paléotempérature TL (Figure 122).

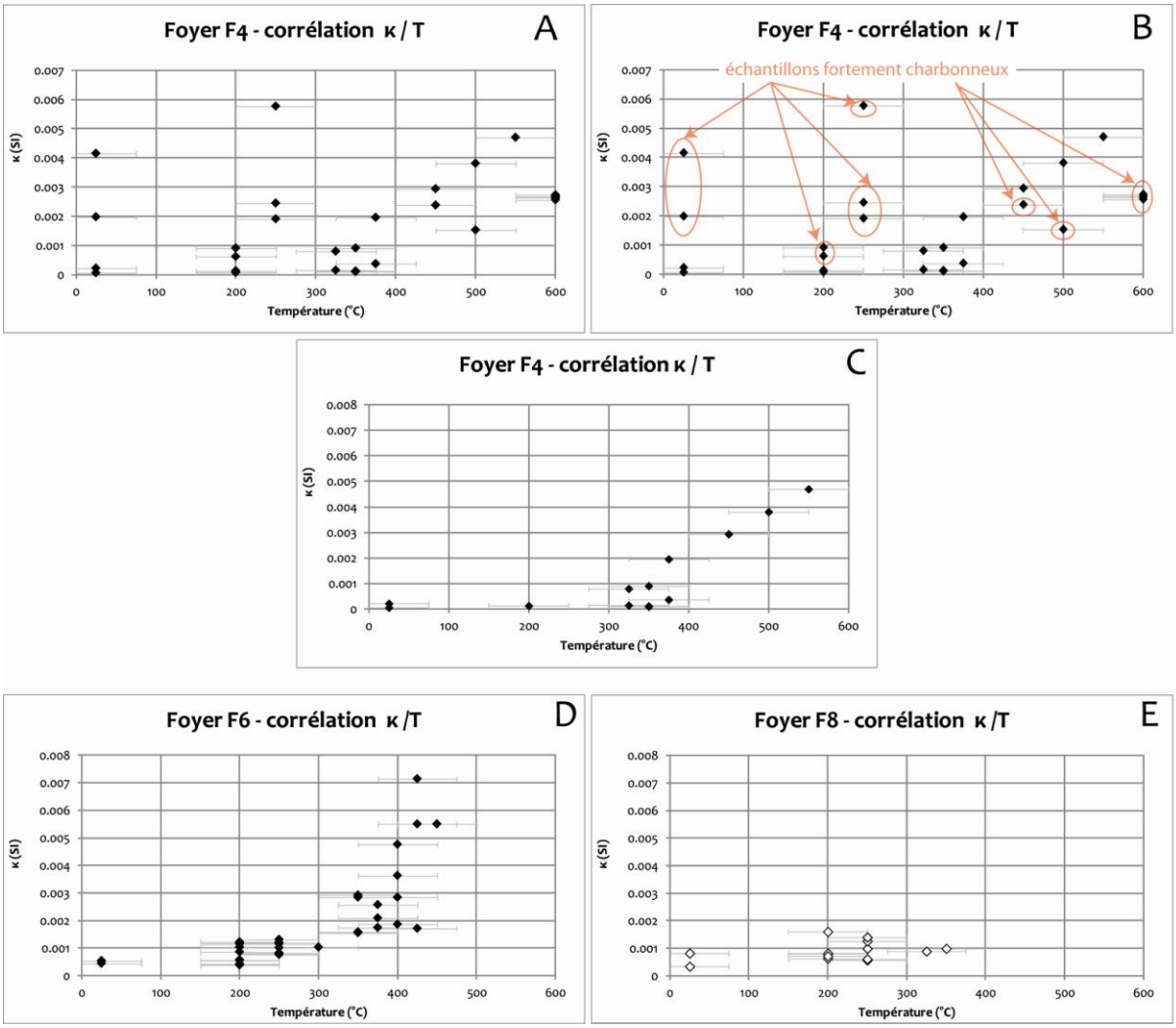


Figure 122 : Susceptibilité magnétique de terrain (κ) en fonction des paléotempératures TL pour le foyer F4 (A, B et C), le foyer F6 (D) et le foyer F8 (E).

Pour le foyer F4 (Figure 122, A), dans un premier temps, aucune tendance ne se dégage. Il semble que quelle que soit la température, les mêmes valeurs de susceptibilité magnétique peuvent être obtenues. Pour le foyer F6 (Figure 122, D), par contre, la susceptibilité magnétique montre une augmentation avec la température notable au-delà de 300°C. Enfin, le foyer F8 ne présente pas de variation notable de la susceptibilité magnétique avec les températures (Figure 122, E). Ces dernières, inférieures ou égales à 350°C, ne semblent pas avoir été suffisantes pour provoquer d'importantes variations de la susceptibilité magnétique.

Dans le cas du foyer F4, si les prélèvements fortement charbonneux sont pointés (Figure 122, B), il apparait que ce sont eux qui créent l'altération du signal. Ces prélèvements (n°13 à 17, 25 et 27 à 34) issus de lentilles charbonneuses ont des comportements complexes : ils ont soit une paléotempérature sous-estimée par rapport à la valeur de susceptibilité magnétique, soit l'inverse. Dans le premier cas la paléotempérature est faible (≤ 250°C), donc le substrat gréseux n'a pas beaucoup chauffé, alors que la susceptibilité magnétique est assez élevée indiquant la présence de phases fortement magnétiques créées par la chauffe. Ainsi ces prélèvements seraient un mélange entre du substrat gréseux peu chauffé et de fines particules de sédiments argileux chauffés. Par contre, une paléotempérature élevée pour une susceptibilité magnétique moyenne peut correspondre soit à une couche de sédiments chauffés assez fine induisant une sous-estimation de la valeur de susceptibilité magnétique, soit à un matériau gréseux qui présente alors une faible susceptibilité magnétique.

Dans les deux cas, il s'agit probablement d'un mélange de matériaux engendré par l'utilisation même de la structure de combustion. En effet, le mode de fonctionnement le plus simple d'une sole de cuisson consiste (1) à l'allumage d'un feu sur la sole pour qu'elle chauffe, puis (2) à un écartement des charbons et des braises et (3) à un nettoyage de la surface avant la cuisson d'aliments sur la sole. Ainsi, il est possible que les zones fortement charbonneuses aient été affectés par ce mode de fonctionnement et correspondent à des zones de vidange de la structure. Les sédiments concernés font alors l'objet de déplacements et de mélanges possibles entre des sédiments chauffés et non chauffés. Les prélèvements provenant de cette zone ne peuvent alors pas être pris en compte dans la construction d'une corrélation entre susceptibilité magnétique et paléotempérature. Une fois ces prélèvements écartés du corpus d'étalonnage du foyer F4 (Figure 122, C), une augmentation de la susceptibilité magnétique est notable à partir de 300°C.

La comparaison des augmentations de susceptibilité magnétique de terrain avec la paléotempérature TL montre une augmentation plus modérée pour le foyer F4 que pour le foyer F6. Cette différence peut s'expliquer par la variabilité des sédiments étudiés (grès désagrégés pour F4 et sédiment argileux pour F6). Deux effets s'accumulent probablement : (1) le sédiment argileux contient vraisemblablement plus de précurseurs magnétiques (goethite et lépidocrocite) susceptibles de se transformer en magnétite et maghémite sous l'effet de la chauffe et d'augmenter ainsi les valeurs de susceptibilité magnétique ; (2) les valeurs de susceptibilité magnétique mesurées sur un sédiment gréseux sont diminuées par l'effet diamagnétique du quartz (susceptibilité magnétique négative).

Ainsi, les valeurs de susceptibilité magnétique présentent une tendance croissante avec les paléotempératures, qui nous a permis d'établir un étalonnage en température de la susceptibilité magnétique *in situ*.

II.4. **Etalonnage en température de la susceptibilité magnétique**

Les corrélations entre la susceptibilité magnétique de terrain et les paléotempératures TL ont été approchées par une fonction empirique de la forme (Figure 123) :

$\kappa = aT + b$ pour 25°C < T < 300°C
$\kappa = A \exp (a'T^2 + b'T + c')$ pour T > 300°C.

Ce choix a été fait puisque avant 300°C, aucune augmentation notable de la susceptibilité magnétique n'a lieu. A partir de 300°C, la croissance est rapide et atteint un palier aux hautes températures.

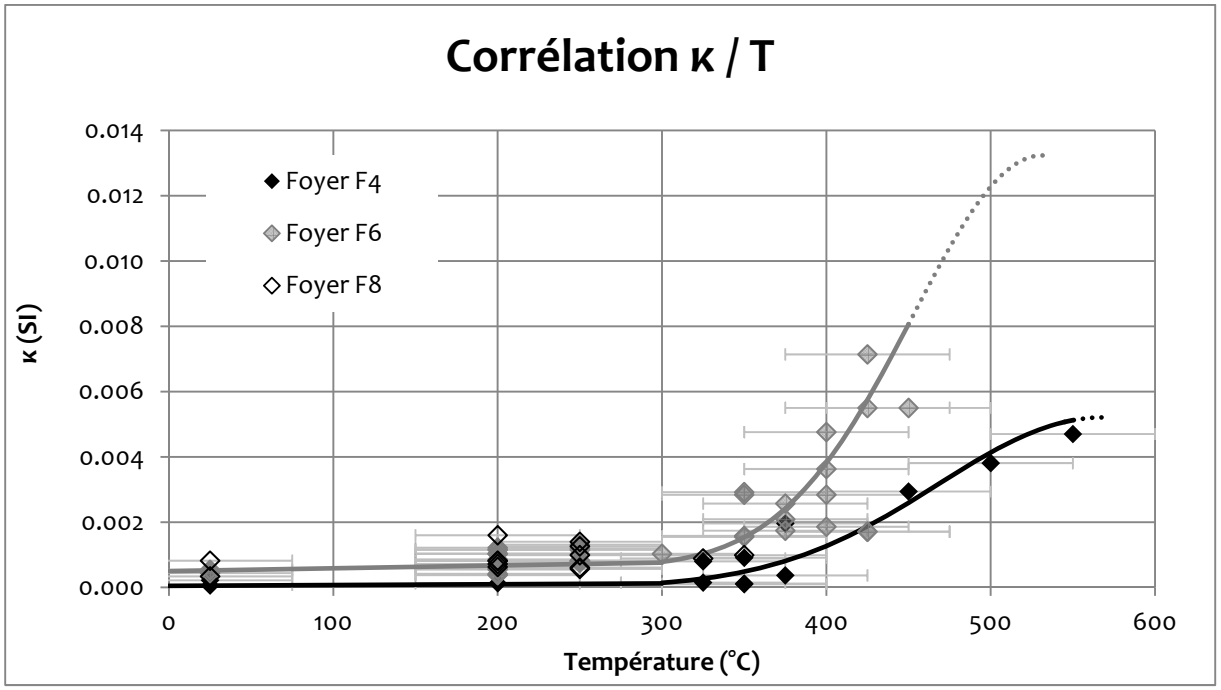


Figure 123 : Corrélations de la susceptibilité magnétique de terrain et de la paléotempérature TL approchée par une fonction empirique de la forme $\kappa = aT+b$ pour 25°C < T < 300°C et $\kappa = A \exp (a'T^2 + b'T + c')$ pour T > 300°C. Corrélation en gris pour le foyer F6 (et F8) et en noir pour le foyer F4. Au-delà des températures maximales atteintes pour chaque foyer, les pointillés sont une extrapolation supposée des corrélations.

Les corrélations sont définies jusqu'aux températures maximales déterminées par TL (550°C pour F4 et 450°C pour F6). Au-delà de ces températures, les courbes en pointillés illustrent une évolution supposée des corrélations.

A partir de ces deux courbes, il est possible, pour chaque foyer représentant d'un sédiment différent, de définir des intervalles de susceptibilité magnétique correspondant à des intervalles de paléotempérature. Le choix d'intervalles, plutôt que d'utiliser directement la courbe de corrélation pour l'étalonnage en température, est justifié par la variabilité de la susceptibilité magnétique observée pour une même paléotempérature (Figure 123). Des intervalles de 100°C sont ainsi définis afin d'intégrer ces fluctuations.

Pour le foyer F4, représentant un sédiment plutôt sablo-argileux, quatre intervalles sont obtenus :

- $\kappa < 0.001$ SI : $T < 350°C$
- 0.001 SI $< \kappa < 0.003$ SI : $350°C < T < 450°C$
- 0.003 SI $< \kappa < 0.005$ SI : $450°C < T < 550°C$
- $\kappa > 0.005$ SI : $T > 550°C$

Pour les foyers F6 et F8, représentant un sédiment principalement argileux, on définit trois intervalles seulement puisque les températures maximales enregistrées par les sédiments sont de 450°C :

- $\kappa < 0.0015$ SI : $T < 350°C$
- 0.0015 SI $< \kappa < 0.008$ SI : $350°C < T < 450°C$
- $\kappa > 0.008$ SI : $T > 450°C$

Dans les deux étalonnages, la paléotempérature minimale liée à une augmentation notable de la susceptibilité magnétique est 350°C. Néanmoins, au vu des précurseurs présents dans les sédiments des Fraux non chauffés (goethite et lépidocrocite), on pourrait s'attendre à voir des modifications importantes de la susceptibilité magnétique à partir de 250-300°C par la création de magnétite et maghémite (*cf* Figure 16 et le comportement de la susceptibilité magnétique avec la chauffe : Figure 142 et Figure 144). Ce décalage pourrait s'expliquer par la différence de volume concerné par la mesure de susceptibilité magnétique de terrain et le prélèvement effectué. Ce dernier, prélevé dans le premier centimètre, favorise les phases minérales chauffées alors que la mesure de susceptibilité magnétique *in situ* est sous estimée, particulièrement lorsque la chauffe est modérée (Figure 120) puisque le volume d'intégration du capteur prend en compte des sédiments sous jacent non chauffés. Ce n'est donc que pour les sédiments chauffés significativement (> 350°C dans le premier centimètre) que la susceptibilité magnétique de terrain montre une augmentation notable.

Cet étalonnage en température ainsi que les intervalles précédemment définis vont directement être utilisés pour la construction de cartes des foyers en température.

II.5. **Cartes en température des foyers F4, F6 et F8**

Les cartes en température se construisent à partir des cartographies de susceptibilité magnétique et des étalonnages en température de la susceptibilité magnétique de terrain établis précédemment.

La carte en température des foyers F6 et F8 (Figure 124) laisse apparaître peu de détails puisque seuls quelques points ressortent du fond peu ou pas chauffé. Cependant, le foyer F6 est bien visible et il est associé à des températures maximales de 450°C. Ces températures les plus élevées corrèlent avec la présence de rubéfaction en surface (Figure 124, droite).

Le foyer F8 n'est pratiquement pas détecté sur la carte en température (Figure 124). Les sédiments de ce foyer ont probablement été soumis à une chauffe insuffisante pour provoquer une augmentation notable de la susceptibilité magnétique, hypothèse confirmée par les paléotempératures TL de 300°C (un seul échantillon à 350°C) associées à la petite zone étudiée de ce foyer.

Pour le foyer F4, la question se pose de la présentation de l'ensemble des températures obtenues après l'étalonnage. En effet, les prélèvements issus des zones fortement charbonneuses ont été écartés pour constituer la corrélation.

La carte de l'ensemble des points (Figure 125, haut) ne montre pas d'incohérence dans la structure thermique observée et l'extension du foyer dont les températures semblent décroître en s'éloignant de la sole, cœur de la structure. Cette carte fait ressortir le centre la sole foyère qui possèderait les températures les plus élevées, supérieures à 550°C. Autour de la sole, s'organise une zone dont les températures seraient intermédiaires entre 350°C et 550°C. Enfin, cet ensemble ressort sur un fond qui ne serait pas ou peu chauffé (< 350°C). Une petite zone chauffée est isolée de la sole foyère par une zone peu ou pas chauffée (< 350°C). Elle correspond à un emplacement rubéfié, de 30 cm de diamètre environ, dont les températures atteindraient 450°C à 550°C de manière très localisée. Il est possible que cette zone soit indépendante de la sole foyère, puisque séparée par une zone faiblement chauffée, et qu'elle constitue une structure de combustion à part entière. Cependant, il pourrait aussi s'agir d'une zone de dépôt de braises ou de brandons.

La zone de température intermédiaire correspond principalement aux zones fortement charbonneuses (à l'arrière du bourrelet et au dessus de la sole). Ce sont les prélèvements provenant de ces zones qui ont été écartés pour l'étalonnage du fait de la variabilité de leur susceptibilité magnétique de terrain en fonction de la paléotempérature déterminée. Néanmoins, l'interprétation d'un mélange de sédiments chauffés et non chauffés qui résulteraient d'une utilisation de ces zones comme vidange de la sole foyère n'est en rien contradictoire avec la carte en température obtenue.

Pour s'affranchir de ces zones particulières, on peut proposer une carte en température où ont été effacés les points localisés dans les zones fortement charbonneuses (Figure 125 bas).

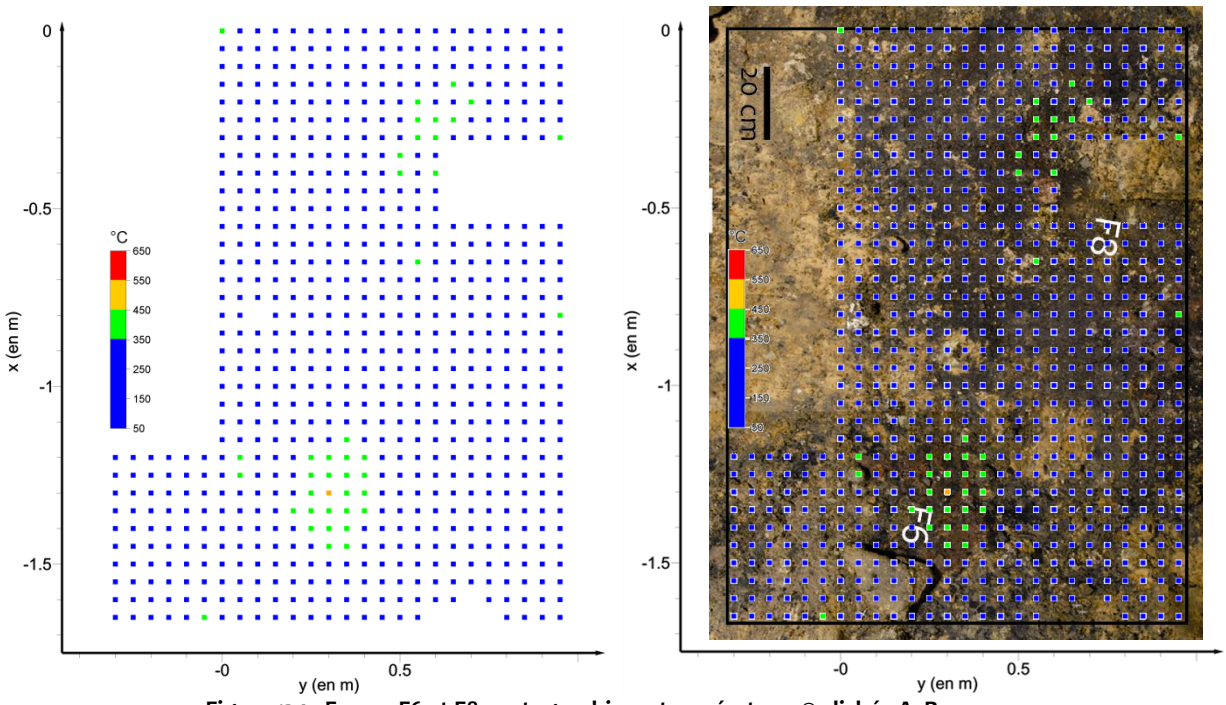


Figure 124 : Foyers F6 et F8, cartographie en température. © cliché : A. Burens.

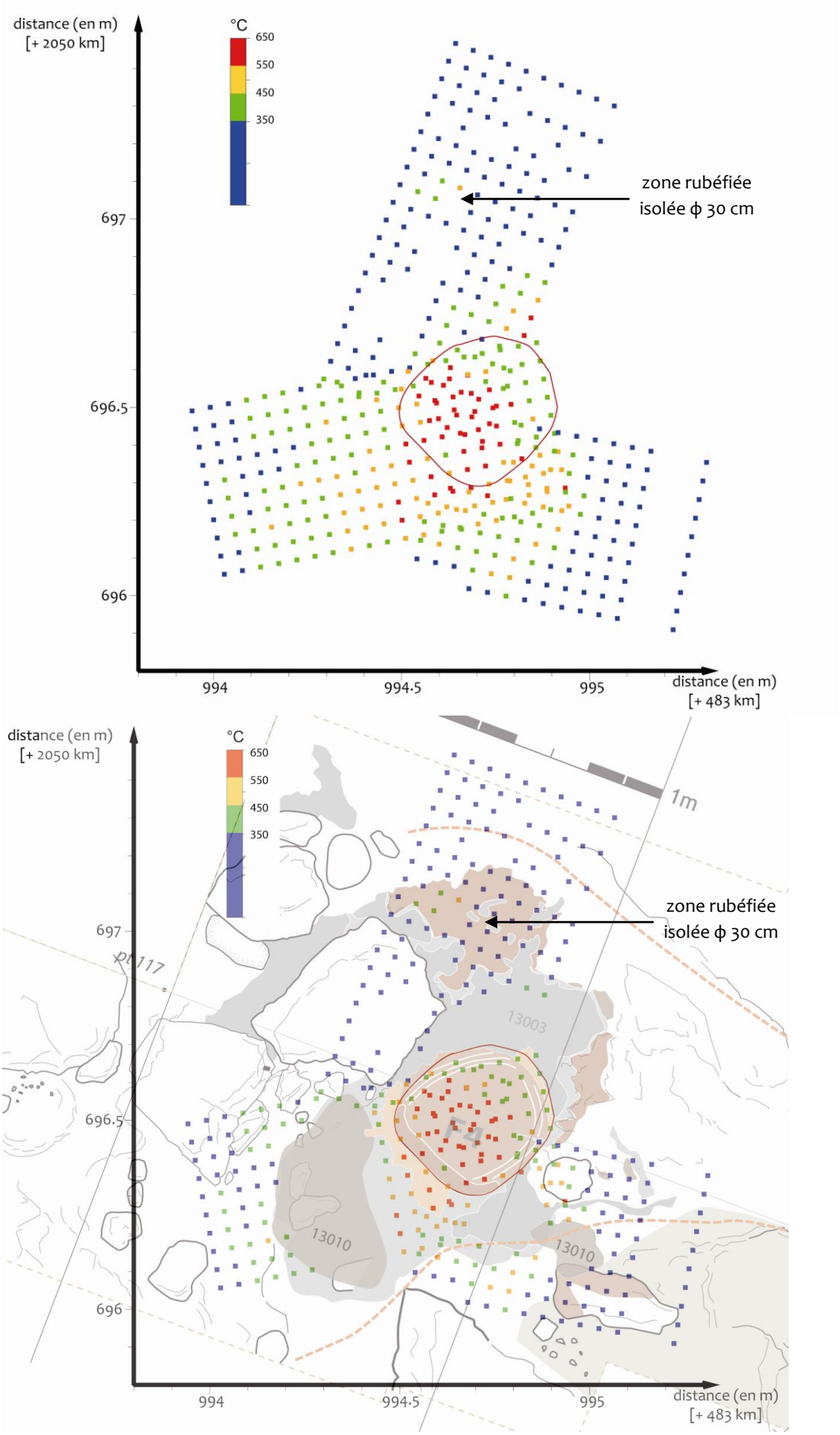


Figure 125 : Carte en température du foyer F4 avec la totalité des points représentés (haut) ou une fois écarté les points provenant de zones fortement charbonneuses (bas). © relevé : L. Carozza.

III. Bilan

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés au potentiel d'un couplage entre les cartographies magnétiques et les paléotempératures déterminées par TL.

Les cartographies magnétiques ont le grand avantage d'être non invasives. Elles permettent la détection d'anomalies magnétiques associées aux structures de combustion. Les mesures de **champ magnétique** apportent des informations sur la présence, l'intensité et l'intégrité physique des structures de combustion sans contrainte de profondeur. De son côté, la **susceptibilité magnétique** permet une localisation précise des foyers à l'affleurement avec une information accessible instantanément.

Les variabilités consécutives à la nature du matériau (sédiment argileux, gréseux, avec ou sans charbon) et à l'hétérogénéité locale de la chauffe (épaisseur de sédiment affecté par la chauffe par rapport au volume d'investigation de capteur du susceptibilimètre de terrain) sont deux limitations à la construction de cartes en température précises à partir de la susceptibilité magnétique.

La comparaison entre la susceptibilité magnétique de terrain et celle mesurée sur les prélèvements permet de visualiser, d'un point de vue magnétique, la représentativité du prélèvement par rapport au volume investigué par la mesure de terrain. Elle est généralement bonne pour les prélèvements « extrêmes » (ceux les plus chauffés ou ceux non chauffés) ainsi que ceux ne provenant pas de zones charbonneuses. De plus, cette comparaison permet de mettre en évidence plusieurs biais possibles :

- un fractionnement granulométrique et/ou minéralogique lors du prélèvement ;
- un problème d'hétérogénéité de la chauffe sur les premiers centimètres pouvant aller de sédiments très chauffés en surface jusqu'à non chauffés à quelques centimètres (volume correspondant à celui investigué par la mesure de susceptibilité magnétique de terrain).

Les cartes en température, établies à partir des cartographies de susceptibilité magnétique et de l'étalonnage en température de la susceptibilité magnétique de terrain, mettent en évidence les zones les plus chauffées sur un fond peu ou pas chauffé (< 350°C). Il ne faut pas s'attendre à ce que la susceptibilité magnétique de terrain fournisse des intervalles de température précis compte tenu de sa variabilité avec la température. Toutefois, en choisissant des intervalles de paléotempérature de 100°C, les structures thermiques détectées ont une cohérence qui semble compatible avec les observations archéologiques : le cœur rubéfié avec de fortes valeurs de susceptibilité magnétique serait *a priori* la zone la plus chauffée, puis, en s'éloignant de cette zone, les valeurs de susceptibilité magnétique et de température vont en diminuant.

Ainsi, même si l'étalonnage en température de la susceptibilité magnétique implique une perte d'information - tant du point de vue de la cartographie de susceptibilité magnétique que des paléotempératures TL qui étaient plus détaillées individuellement - les données obtenues

sont archéologiquement exploitables car elles permettent la localisation et la délimitation des zones chauffées avec une information associée de paléotempérature atteinte.

* *
*

Après s'être attachés à construire un paléothermomètre fondé sur les propriétés de luminescence, nous allons maintenant tester le potentiel paléothermométrique (1) des températures de déblocage de l'aimantation et (2) de la modification de signatures des oxydes de fer au travers de l'évolution des propriétés magnétiques.

Chapitre 9 : Etude paléothermométrique au travers des propriétés magnétiques

Comme nous l'avons déjà évoqué, le feu engendre (1) des transformations minéralogiques des matériaux et (2) l'acquisition d'une aimantation thermorémanente (ATR) proportionnelle au champ magnétique terrestre local associée à une aimantation rémanente chimique (ARC). Ces deux modifications sont quantifiables à partir de l'étude des propriétés magnétiques. Ces dernières se scindent en deux principales propriétés étudiées : l'aimantation induite expérimentalement en champ magnétique faible et fort et l'aimantation rémanente naturelle.

Les caractéristiques des aimantations rémanentes naturelles portées par les sédiments chauffés permettent de remonter à des informations sur les conditions du milieu au moment de leur acquisition, c'est-à-dire au cours de leur dernier refroidissement. Les informations communément exploitées concernent la direction stable de la composante vectorielle, désaimantée entre des paliers successifs, ainsi que son intensité qui permettent de réaliser des datations archéomagnétiques en se référençant à la courbe de dérive locale de la direction du champ magnétique ou de son intensité. Une information moins exploitée est la température de déblocage des aimantations. L'intérêt de cette donnée comme paléothermomètre des sédiments chauffés sera étudiée en comparant les températures de déblocage (température atteinte) aux températures équivalentes déterminées par TL.

Les propriétés d'aimantation induite et rémanente renseignent par ailleurs sur les phases minérales magnétiques en présence ainsi que sur leur taille de grain. Les informations de minéralogie et de taille de grain magnétiques de trois ensembles seront comparées, à savoir des sédiments provenant du foyer F6 de la grotte des Fraux, d'autres prélevés dans le foyer expérimental et enfin des sédiments chauffés en laboratoire, provenant de la grotte des Fraux. Ces données seront exploitées afin de déterminer si des sédiments chauffés, dans des conditions (température et atmosphère) variables, possèdent une signature magnétique potentiellement utilisable comme paléothermomètre.

Finalement, l'objectif de ce chapitre est d'étudier le potentiel (1) des températures de déblocage de l'aimantation rémanente et (2) de la signature magnétique des oxydes de fer pour établir des paléothermomètres indépendants de celui construit par la TL.

Dans un premier temps, les données issues des désaimantations thermiques seront exploitées. Puis, après avoir décrit la préparation de l'échantillonnage chauffé en laboratoire, les signatures magnétiques de sédiments du foyer F6, du foyer expérimental et chauffés en laboratoire seront déterminées et comparées.

I. Désaimantations thermiques de l'aimantation rémanente naturelle

Les mesures archéomagnétiques ont été réalisées sur les prélèvements du foyer F6, sous forme de carotte par enfoncement d'un tube de 25 mm de diamètre, pour l'établissement d'un point dans la courbe de référence du champ magnétique par G. Hervé (Doctorat à l'IRAMAT-Rennes, soutenu en 2012). Ces mesures concernent la désaimantation progressive, par palier de température croissante, de l'aimantation rémanente naturelle. La susceptibilité magnétique de chaque prélèvement est mesurée après chaque palier de désaimantation. L'ensemble de ces données a été ré-analysé pour une étude particulière des températures de déblocage de l'aimantation rémanente.

Le foyer F6 a été auparavant étudié par TL et possède ainsi une estimation de paléotempérature pour des prélèvements jumeaux. Les températures de déblocage de l'aimantation rémanente vont pouvoir être comparées aux paléotempératures TL pour évaluer leur pertinence comme paléothermomètre.

I.1. **Concernant les prélèvements**

Les carottes sont pour la grande majorité composées d'une épaisseur de sédiment rubéfié allant de 5 à 26 mm puis de sédiment non rubéfié jaune-orangé (Tableau 7). La longueur standard des échantillons mesurés est de 22 mm. Ainsi, excepté les prélèvements n°11, 16 et 17 pour lesquels les échantillons sont entièrement rubéfiés, les échantillons sont constitués d'une partie rubéfiée et d'une partie non rubéfiée. Ces deux parties sont susceptibles de subir des modifications minéralogiques pendant le processus de désaimantation thermique par palier de température croissant.

Un test a été mené sur la carotte n°10 en séparant la partie rubéfiée de la partie non rubéfiée (cette carotte avait été laissée de côté pour le reste des mesures car elle n'avait pas conservé son intégrité physique pendant l'induration[7]). L'aimantation rémanente naturelle est principalement portée par la partie rubéfiée et d'un ordre de grandeur supérieur :

2.9×10^{-4} A.m²/kg pour la partie rubéfiée et 0.24×10^{-4} A.m²/kg pour la partie non rubéfiée.

Pour les échantillons entièrement rubéfiés ou majoritairement rubéfiés, l'ARN de la partie rubéfiée est dominante. Par contre, pour les prélèvements avec par exemple seulement 5 mm de rubéfaction, un tiers de l'ARN est porté par la partie non rubéfiée qui va probablement se transformer avec les chauffes des désaimantations thermiques. L'information d'aimantation portée par la partie non rubéfiée sera alors perdue.

Avant de procéder à la détermination des températures de déblocage à partir de la désaimantation thermique de l'aimantation rémanente, l'étude du coefficient de Kœnigsberger, qui estime l'intensité de l'aimantation naturelle par rapport à la capacité d'aimantation théorique de l'échantillon, peut apporter des données intéressantes sur la nature de l'aimantation rémanente.

[7] L'induration est une enrobage de l'échantillon dans une résine afin de le consolider.

I.2. **Coefficient de Kœnigsberger**

Le coefficient de Kœnigsberger (Qn) est le rapport entre l'aimantation rémanente naturelle (ARN) et l'aimantation induite (κ x H, où κ est la susceptibilité magnétique mesurée dans le champ magnétique H, ici 80 A/m dans le susceptibilimètre Bartington MS2) :

$$Qn = ARN/(\kappa.H)$$

Le coefficient de Kœnigsberger permet d'estimer la chauffe des prélèvements : Qn < 0.1 correspond à des échantillons non chauffés alors que Qn > 1 indique des échantillons clairement chauffés (Linford et Canti, 2001). Ce coefficient permet aussi d'estimer si l'ARN est composée d'une aimantation thermorémanente (ATR) stable pour laquelle Qn > 5 (Herries *et al.*, 2007).

La mise en relation des valeurs de l'ARN avec la susceptibilité magnétique volumique des prélèvements du foyer F6 montre une évolution croissante quasi linéaire de la susceptibilité magnétique avec l'ARN (Figure 126). Seul le prélèvement n°2 s'écarte de ce comportement avec une ARN forte pour une susceptibilité magnétique faible.

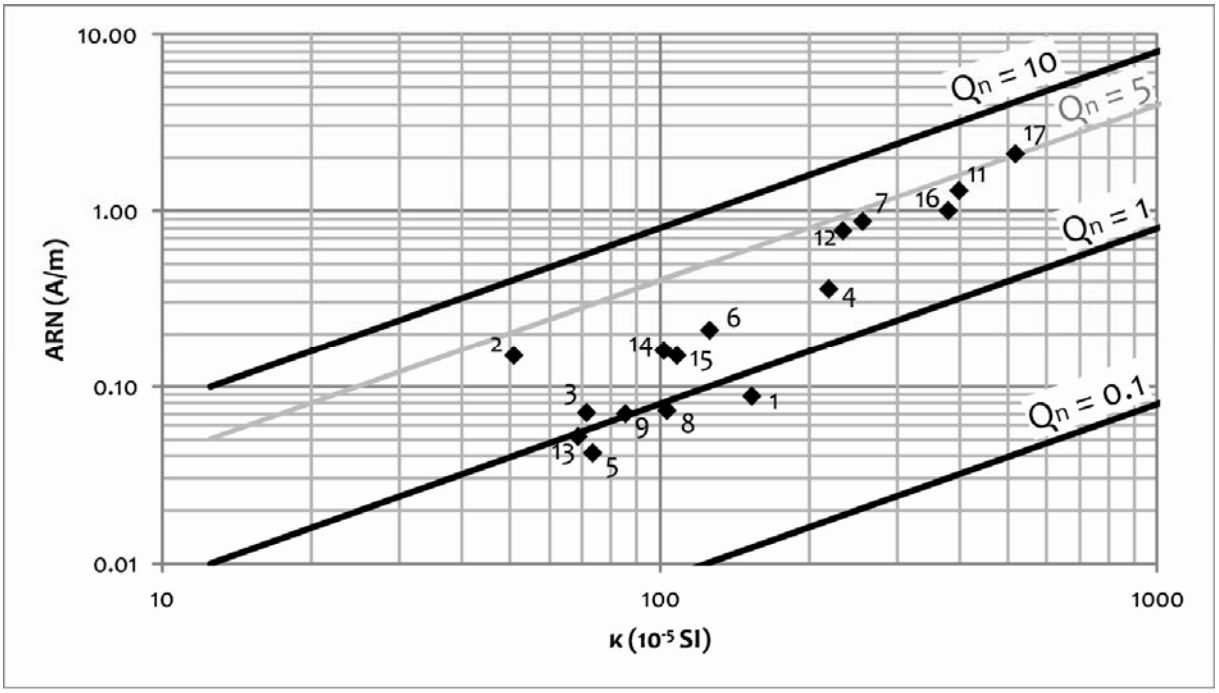


Figure 126 : Aimantation rémanente naturelle en fonction de la susceptibilité magnétique volumique et droite de valeur Qn = 1 et Qn = 10 du coefficient de Kœnigsberger.

Les valeurs du coefficient de Kœnigsberger varient de 0.72 à 5.07 (Figure 127). On peut alors séparer les échantillons en deux groupes :

- les prélèvements n°1, 5, 8, 9 et 13 avec ***Qn < 1*** pour lesquels la chauffe est probablement insuffisante pour pouvoir exploiter les désaimantations thermiques ;
- les autres prélèvements avec ***Qn > 1*** pour lesquels les désaimantations thermiques de l'ARN devraient être exploitables.

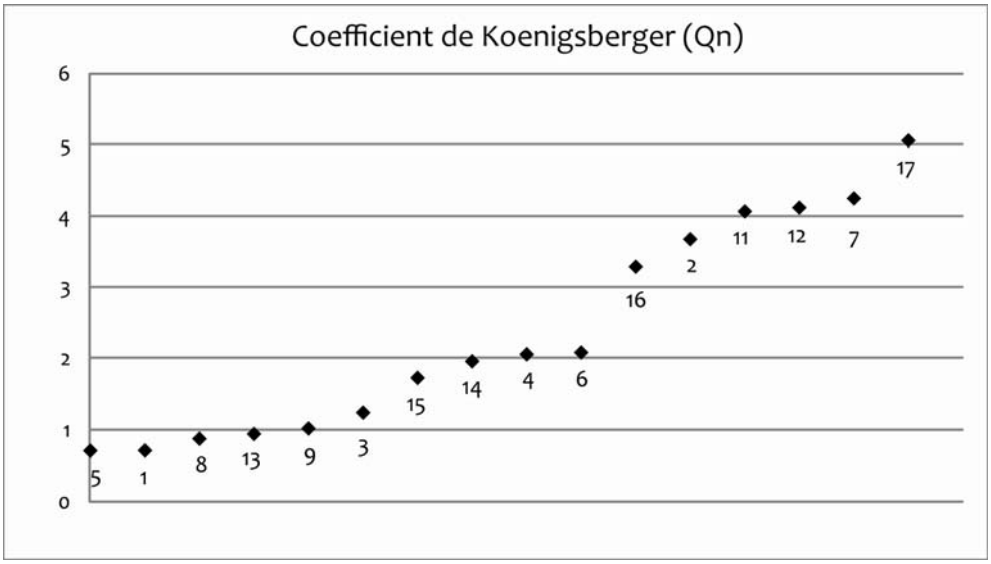


Figure 127 : Coefficient de Kœnigsberger classé par valeur croissante pour les prélèvements du foyer F6.

Les valeurs du coefficient de Kœnigsberger les plus élevées (Qn > 3) correspondent généralement à de grandes ***épaisseurs de rubéfaction*** (Figure 128) et inversement. On retrouve les prélèvements n°1, 5, 8, 9 et 13 pour lesquels Qn < 1 dans le groupe de prélèvements dont l'épaisseur de rubéfaction est inférieure à 10 mm.

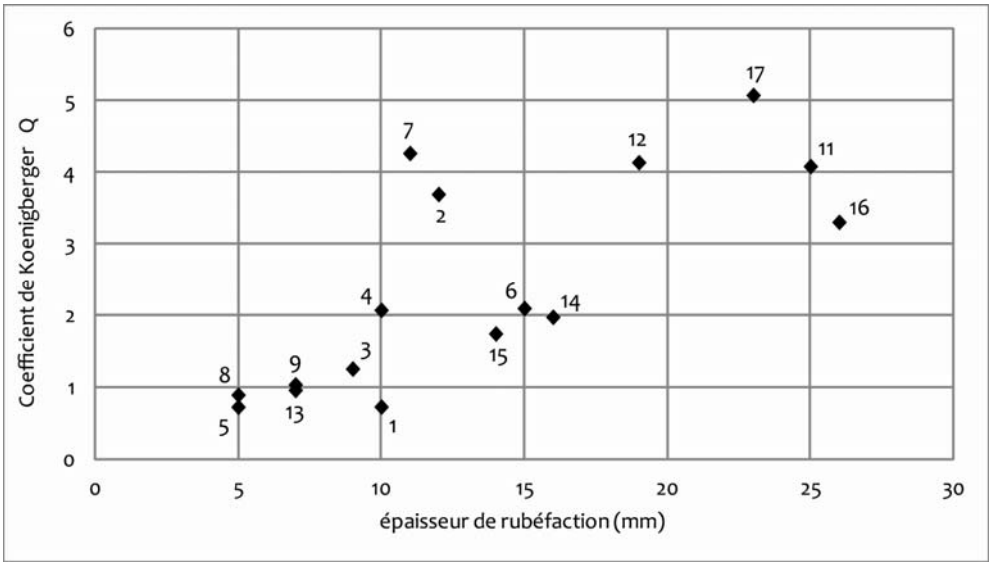


Figure 128 : Coefficient de Kœnigsberger en fonction de l'épaisseur de rubéfaction visible sur les carottes prélevées.

Les ***paléotempératures TL*** déterminées précédemment sur les prélèvements jumeaux permettent d'observer l'évolution du coefficient de Kœnigsberger avec la température (Figure 129). Il semble que plus le prélèvement a chauffé, plus Qn est élevé. Le prélèvement n°2 s'écarte fortement de ce comportement général et montre une valeur de Qn élevée (ARN forte et susceptibilité magnétique faible) par rapport à la paléotempérature TL associée.

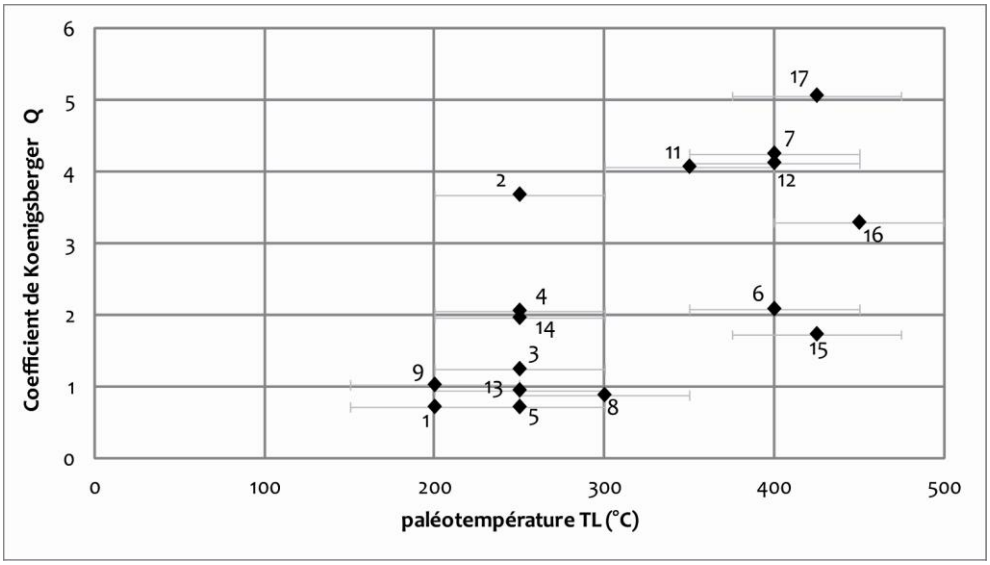


Figure 129 : Coefficient de Kœnigsberger en fonction de la paléotempérature TL déterminée pour chaque échantillon jumeaux dans le chapitre 7.

En repositionnant ces informations en fonction de l'emplacement des prélèvements dans le foyer F6, il apparait que les plus fortes valeurs de Qn (> 3) sont plutôt regroupées (n°11, 12, 16 et 17) et associées à des paléotempératures de 350°C à 450°C ; autour de ce cœur, on retrouve les prélèvements avec des valeurs de Qn moyennes à fortes (Qn > 1) et des paléotempératures de 250°C à 400°C ; et enfin les prélèvements avec Qn < 1 sont associés à des paléotempératures inférieures à 300°C.

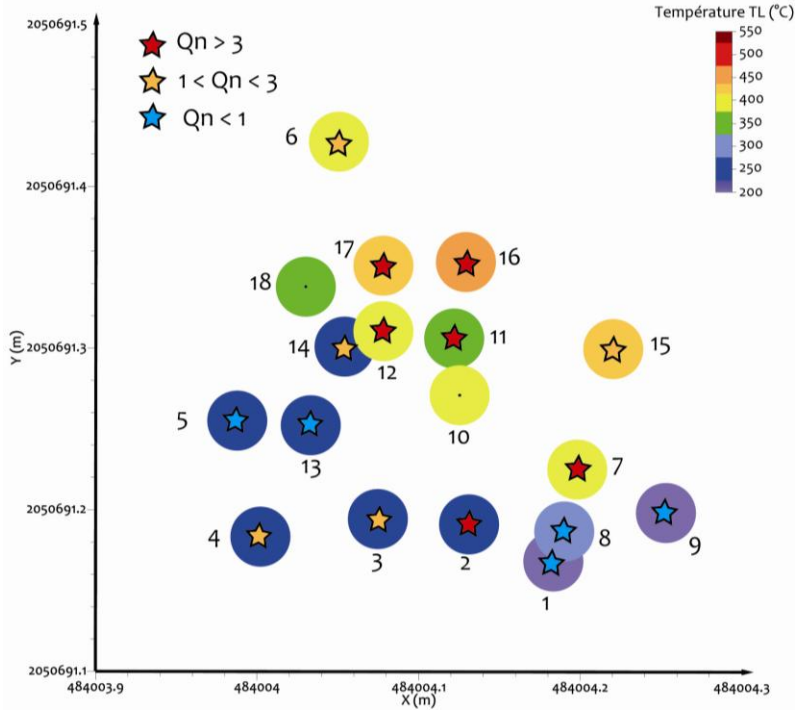


Figure 130 : Coefficients de Kœnigsberger (étoile) superposés aux paléotempératures TL (disque) à l'emplacement de chaque prélèvement du foyer F6 (coordonnées en Lambert 2 étendu).

Finalement, parmi les 16 prélèvements *a priori* exploitables (carottes n°10 et n°18 non utilisables), les prélèvements n°1, 5, 8, 9 et 13 ont un Qn < 1 qui implique des aimantations rémanentes naturelles plutôt d'origine sédimentaire (ARD) que thermique (ATR). La désaimantation thermique en tant que source d'information thermique est alors à prendre avec précaution. De plus, le prélèvement n°2 a un comportement différent de l'ensemble des échantillons (une ARN forte pour une susceptibilité magnétique faible ; un Qn fort pour une paléotempérature TL faible). Les désaimantations thermiques de ce prélèvement seront aussi à considérer avec prudence.

I.3. **Température de déblocage**

Les données de désaimantation thermique, acquises par G. Hervé (IRAMAT-Rennes), ont été re-traitées pour étudier le potentiel des températures de déblocage comme indicateur de paléotempérature des sédiments chauffés. En effet, d'un échantillon à l'autre, les vecteurs désaimantés à chaque nouveau palier de chauffe à température croissante diffèrent sensiblement. L'origine de cette différence peut être inhérente à la déformation locale du champ magnétique liée à la présence de matériaux chauffés, donc plus magnétique (c'est l'objet de la prospection magnétique). Elle peut aussi provenir de l'hétérogénéité naturelle des matériaux ou à des artefacts expérimentaux (champ magnétique résiduel dans le four en champ nul). Afin d'appréhender la source des divergences, la stabilité de la direction et de l'intensité de l'aimantation de chaque prélèvement a été étudiée entre chaque palier de désaimantation.

Les désaimantations thermiques ont été réalisées par G. Hervé en deux séries pour lesquelles les températures de désaimantation diffèrent légèrement :

Série 1 : n° 1, 3, 5, 8, 9, 13, 15 et 16

- ambiante
- 100°C
- 150°C
- 200°C
- 240°C
- 280°C
- 330°C
- 395°C
- 440°C
- 490°C
- 530°C
- 565°C

Série 2 : n°2, 4, 6, 7, 11, 12, 14, 17

- ambiante
- 100°C
- 150°C
- 210°C
- 260°C
- 320°C
- 385°C
- 435°C
- 485°C
- 525°C
- 560°C

Pour ces chauffes, les échantillons sont introduits dans le four, qui est déjà à la température voulue, et restent à cette température pendant une heure. Le refroidissement n'est pas maitrisé avec une durée de 30 min à 1h selon la température.

Après chaque palier de désaimantation, la susceptibilité magnétique des prélèvements est mesurée afin d'observer s'il y a eu ou non des modifications de la minéralogie magnétique.

I.3.1. Evolution de la susceptibilité magnétique

Les mesures de la susceptibilité magnétique à chaque palier de la désaimantation thermique mettent en évidence des modifications minéralogiques pour certains prélèvements (Figure 131). Plusieurs types d'évolution sont visibles :

- n° 2, 4, 11, 12, 14, 16 et 17 pour lesquels la susceptibilité magnétique n'évolue pas notablement avec les températures croissantes atteintes. Ces prélèvements peuvent être scindés en deux groupes : n°11, 16 et 17 avec des valeurs fortes de la susceptibilité magnétique (autour de 4.10^{-3} SI) et n°2, 4, 12 et 14 avec des valeurs très faibles à moyennes (de $0.2.10^{-3}$ SI à 2.10^{-3} SI).
- n°1, 6, 7, 13 et 15 pour lesquels la susceptibilité magnétique augmente graduellement à partir de 250°C.
- n°3, 5, 8 et 9 pour lesquels la susceptibilité magnétique augmente fortement entre 250°C et 300°C.

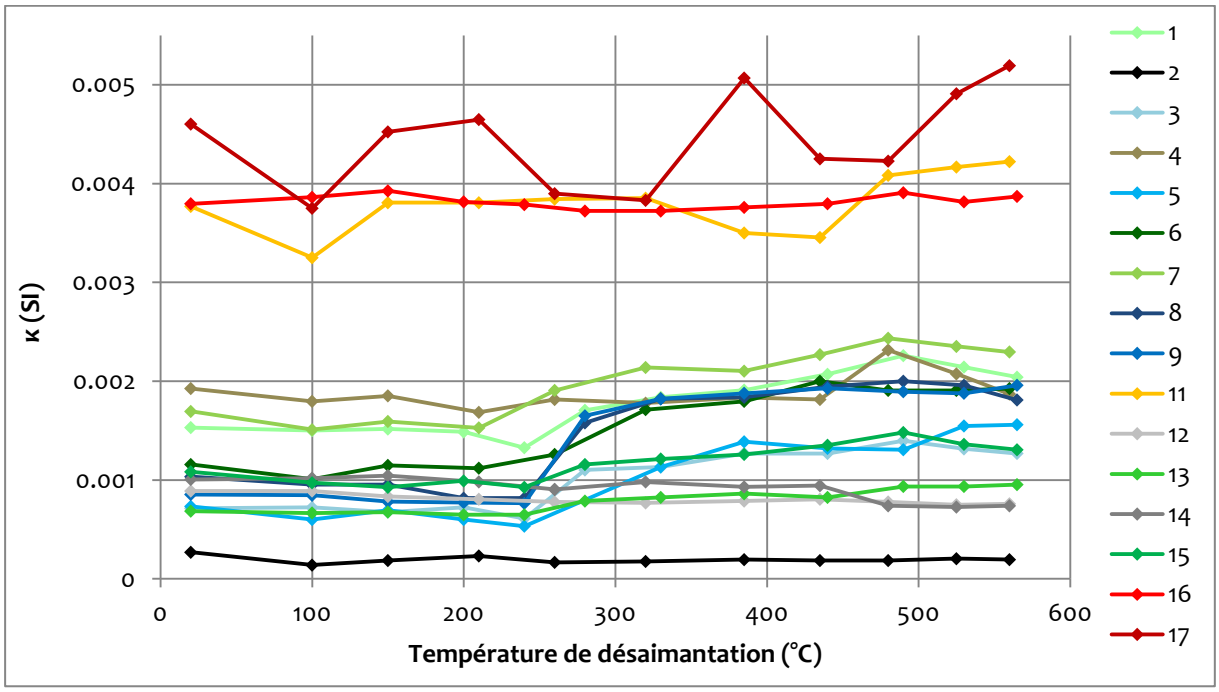


Figure 131 : Susceptibilité magnétique des prélèvements du foyer F6 à chaque étape de désaimantation thermique. Les couleurs ont été choisies pour différencier les comportements de la susceptibilité magnétique : en rouge les échantillons avec des valeurs plutôt stables et fortes de la susceptibilité magnétique, en gris-noir ceux avec des valeurs stables plus faibles ; en vert les échantillons pour lesquels la susceptibilité magnétique augmente graduellement de 250°C à 500°C environ et en bleu ceux qui présentent une augmentation importante de la susceptibilité magnétique entre 250°C et 300°C.

Ces variations de la susceptibilité magnétique peuvent s'interpréter en termes de transformations minéralogiques et de températures atteintes par le passé : un sédiment déjà chauffé à une certaine température ne devrait pas présenter d'évolution majeure de la susceptibilité magnétique en deçà de cette température.

Les prélèvements dont la susceptibilité magnétique ne varie pas ont *a priori* déjà été chauffés à 560°C ou plus (groupes 3 et 4, Figure 132). Les prélèvements qui présentent une franche augmentation de la susceptibilité magnétique à partir de 250°C n'ont probablement jamais été chauffés à cette température (groupe 1, Figure 132). Les prélèvements dont l'évolution de la susceptibilité magnétique est graduelle à partir de 250°C auraient déjà été chauffés à une

température supérieure sans que toutes les phases ne se soient transformées (groupe 2, Figure 132).

Un premier indice sur les températures atteintes est donc disponible par les mesures de susceptibilité magnétique. Cependant, cette information est corrélée aux épaisseurs de rubéfaction (Figure 132) ce qui laisse penser que ce sont les transformations de la partie non rubéfiées qui sont mises en évidence par ces mesures de susceptibilité magnétique. Plus la proportion de sédiment non rubéfié est importante dans l'échantillon, plus on observe de variation de la susceptibilité magnétique (principale augmentation à 250°C).

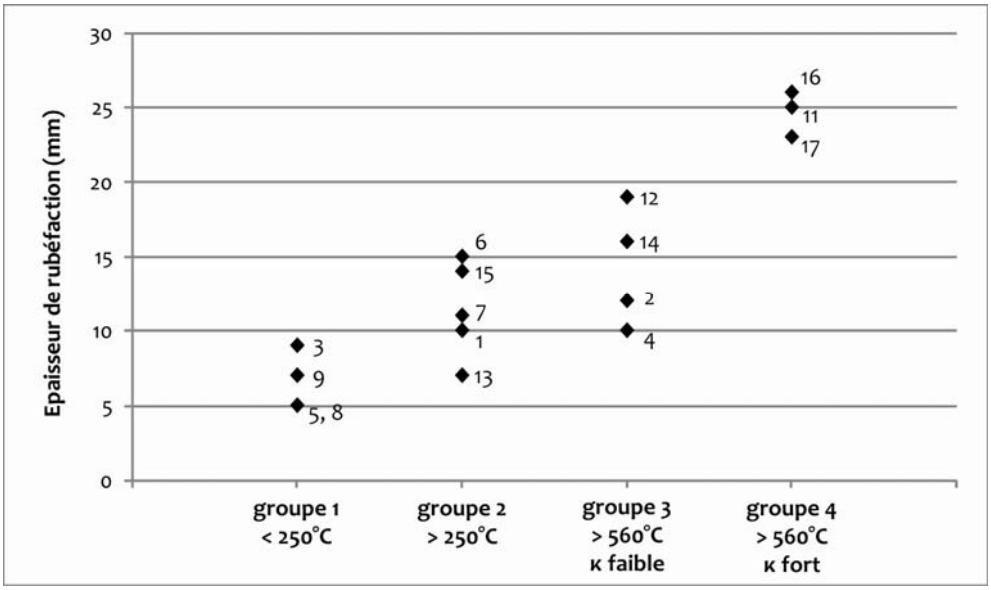


Figure 132 : Mise en évidence de la relation entre l'épaisseur de rubéfaction et les groupes constitués à partir de l'évolution de la susceptibilité magnétique mesurée à chaque étape de la désaimantation thermique de l'ARN.

Il y a donc d'importantes différences d'évolution de la minéralogie avec la chauffe d'un échantillon à l'autre. Les phases créées lors de ces chauffes n'acquièrent *a priori* pas d'aimantation puisque les mesures sont réalisées en champ nul. Les températures de déblocage déterminées reflèteraient donc les températures de blocage des phases qui ne se sont pas transformées. Néanmoins, si un champ résiduel est présent dans le four alors il peut être enregistré par les phases néoformées et induire un biais dans les directions et intensités obtenues.

La loi de réciprocité de Thellier, qui indique que la température de déblocage correspond à la température de blocage (Thellier, 1938), est vérifiée pour des populations de grains monodomaines. Par contre pour des populations de grains pseudo-monodomaines et polydomaines, la température de déblocage diverge de la température de blocage (Dunlop *et al.*, 2005). Ainsi, suivant la minéralogie initiale, il est possible d'avoir des décalages dans les températures déterminées sur certains échantillons et pas sur d'autres.

Par ailleurs, si les chauffes des désaimantations thermiques entrainent une création de grains superparamagnétiques (SP), leur comportement visqueux rend la mesure de l'ARN inexploitable en l'absence de chambre à champ magnétique atténué. Les prélèvements qui montrent des évolutions de la susceptibilité magnétique subissent des transformations de la minéralogie magnétique et probablement une création de grains SP. Les résultats des désaimantations thermiques vont donc être étudiés avec précaution.

I.3.2. Analyse des directions et des intensités de l'aimantation rémanente

La différence vectorielle de l'ARN entre deux étapes consécutives de désaimantation, a été calculée pour chaque étape et chaque échantillon. Ces variations sont reportées sur un plan en fonction de la localisation des prélèvements (Figure 133). Sur cette figure, les disques de couleur représentent les températures déterminées par TL. Chaque aimantation est représentée par une flèche : la longueur de la flèche correspond à l'intensité, son angle à la déclinaison et sa couleur en échelle de gris à l'inclinaison.

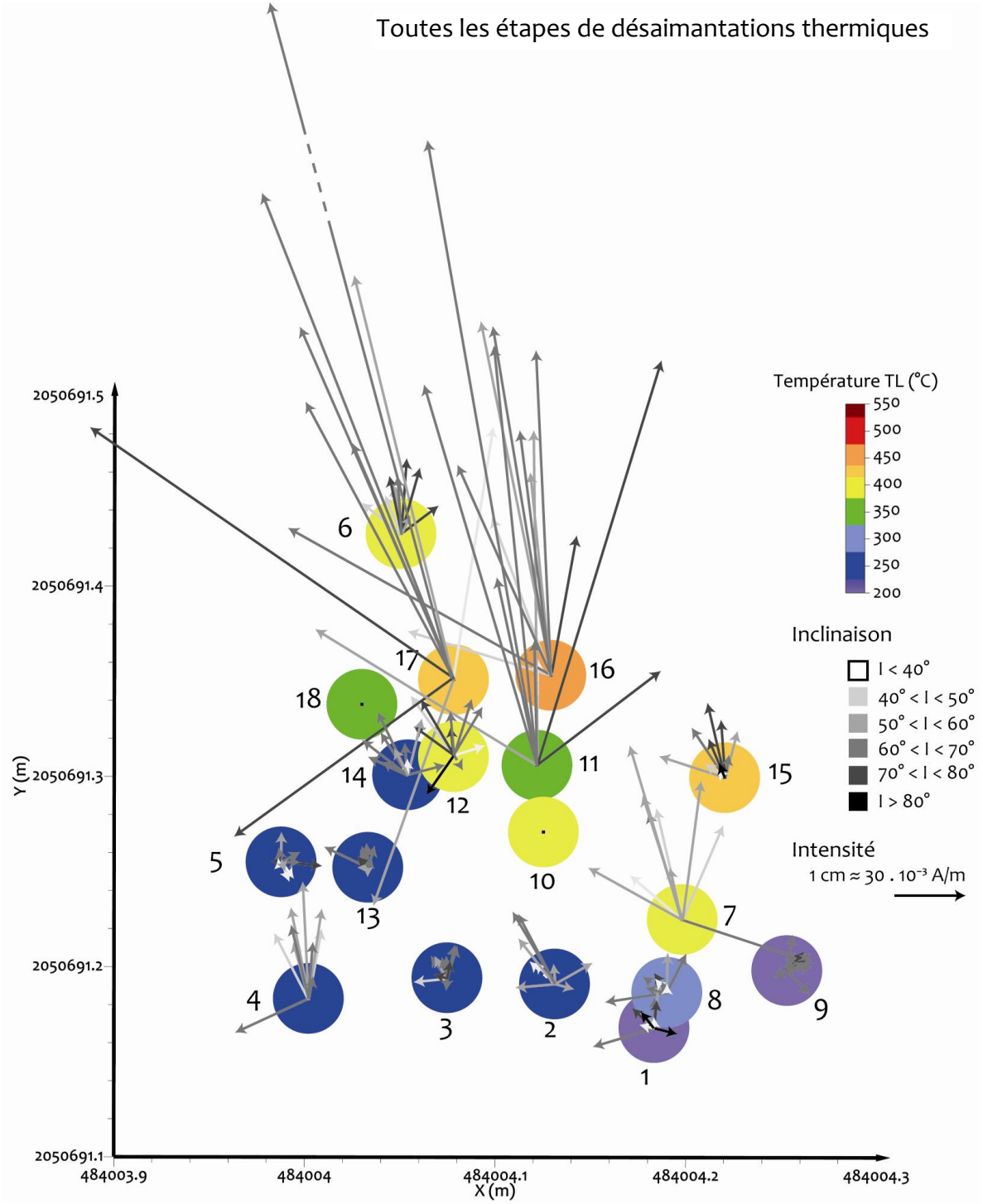


Figure 133 : Représentation des différences vectorielles de l'aimantation entre deux étapes de désaimantation thermique pour l'ensemble des paliers de température et pour chaque échantillon. La longueur de la flèche correspond à l'intensité, l'angle à la déclinaison et la couleur à l'inclinaison.

L'analyse des variations de direction et d'intensité de l'aimantation pourrait conduire à une température atteinte par le foyer. En théorie, les désaimantations permettent de dissocier les aimantations en fonction de leurs températures de déblocage (T_{deb}) :

- T < 200°C : influencé par l'aimantation rémanente visqueuse (ARV) de la magnétite (Dunlop et Özdemir, 2007) ;
- 200°C < T < T_{deb} : dernier feu et/ou le plus intense ou ARD.

La présence d'une aimantation rémanente chimique (ARC), acquise par la formation de phases minérales en deçà de leur température de blocage ou par une altération de minéraux aimantés, serait d'intensité comparable à l'ATR. Elle pourrait introduire un biais important dans la détermination des températures de déblocage d'une aimantation considérée à tort comme une ATR.

Observations générales :

Lorsqu'on regarde la Figure 133, quel que soit l'échantillon considéré, la variabilité de direction et d'intensité de l'ARN est assez importante. Les échantillons n°11, 16 et 17 qui possèdent les intensités les plus fortes proviennent du cœur de chauffe défini par TL et montrent la meilleure cohérence entre les directions d'aimantation. Les prélèvements n°4 et n°7 ont des intensités moyennes et une cohérence acceptable des directions d'aimantation. Pour le n°4, qui provient *a priori* d'une zone moins chauffée, cette intensité est inattendue. Cependant, il faut noter que ce prélèvement a été prélevé sur 10 mm seulement et que ces 10 mm sont rubéfiés.

Par ailleurs, les prélèvements n°1, 5, 8, 9 et 13 ont les intensités les plus faibles. Ces prélèvements correspondent à ceux avec Qn < 1 et de faibles paléotempératures TL.

Malgré la variabilité apparente, la déclinaison est comprise entre 340° et 350° et l'inclinaison entre 60° et 70°, angles principalement visibles sur les prélèvements n° 7, 11, 16 et 17.

Désaimantations thermiques à T < 200°C :

Si on étudie les désaimantations thermiques palier par palier, il apparait que la variabilité diminue fortement lorsque les aimantations mesurées pour les températures inférieures à 200°C sont retirées (Figure 134).

Ces désaimantations à T < 200°C sont probablement perturbées par l'ARV de la magnétite. En effet, cette phase minérale possède une ARV plus forte que les autres phases. Pour les sédiments prélevés, les aimantations des grains concernés par l'ARV ont tendance à s'orienter suivant le champ magnétique local du laboratoire, voir aléatoirement si les échantillons sont stockés en champ nul.

Une chauffe à une température de 200°C apporte une énergie thermique suffisante pour débloquer les aimantations des grains de magnétite dont le temps de relaxation va jusqu'à 1 Ma (Dunlop et Özdemir, 1997 : p. 274). On est ainsi certain de s'affranchir de l'ARV de la magnétite.

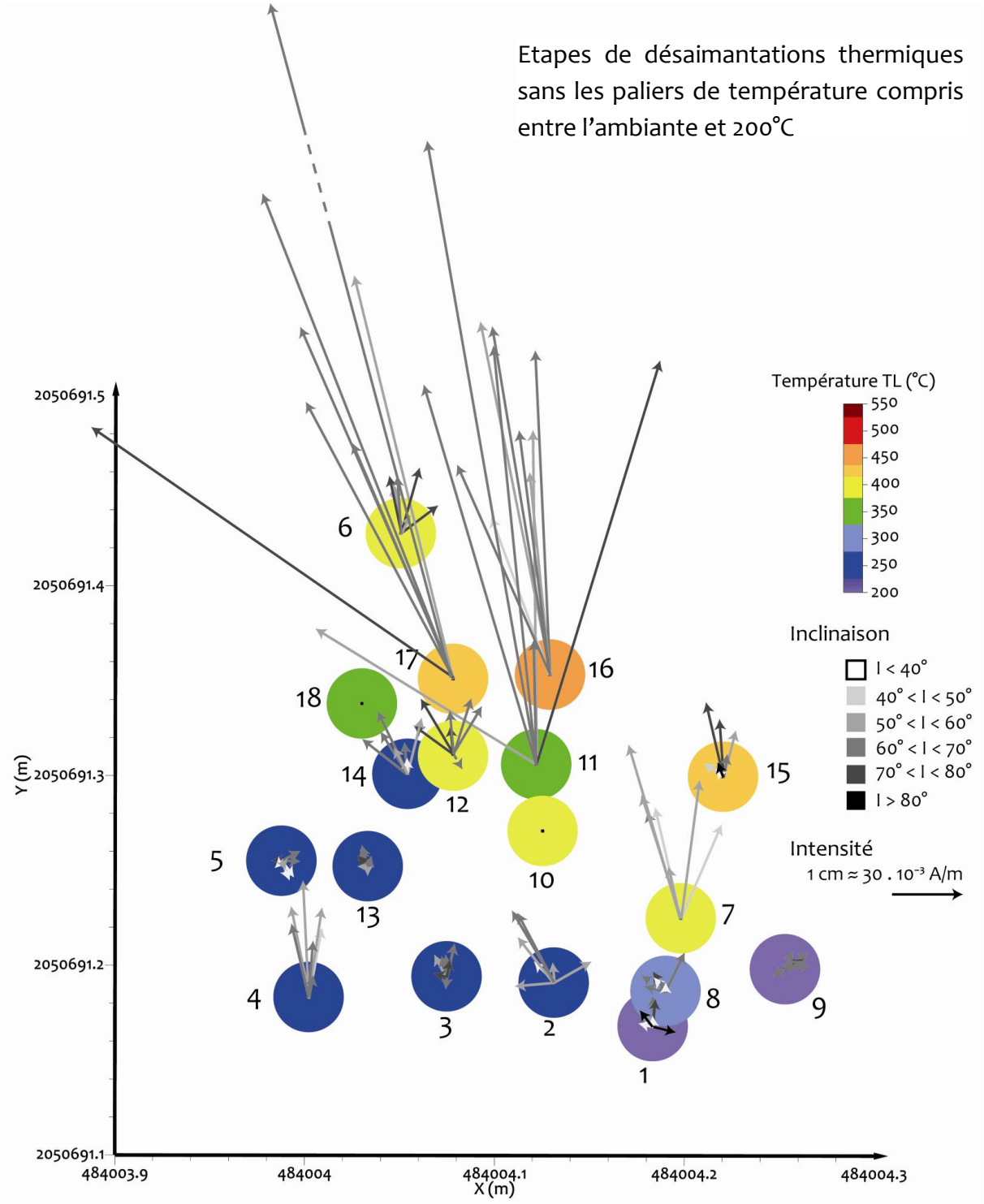


Figure 134 : Représentation des différences vectorielles de l'aimantation entre deux étapes de désaimantation thermique pour l'ensemble des paliers de température et pour chaque échantillon après avoir retiré les composantes entre la température ambiante et 200°C. La longueur de la flèche correspond à l'intensité, l'angle à la déclinaison et la couleur à l'inclinaison.

Des mesures systématiquement problématiques dans la série 2 :

Les prélèvements de la série 2 (n°2, 4, 6, 7, 11, 12, 14 et 17) ont tous une mesure complètement différente entre 200°C et 260°C. La présence d'un champ magnétique résiduel dans le four lors de la désaimantation à 200°C étant possible, le choix a été fait de ne pas considérer cette mesure dans l'étude des températures de déblocage. Ainsi, sur la figure ci-dessous (Figure 135) les différences vectorielles commencent à 260°C.

De la même manière, lorsqu'on regarde les directions palier après palier, les prélèvements n°6, 7, 11, 12, 14 et 17 ont d'abord une direction donnée, une différence vectorielle complètement différente, puis la direction redevient la même que la première. Cette mesure différente a été considérée comme aberrante et supprimée de la représentation (Figure 135).

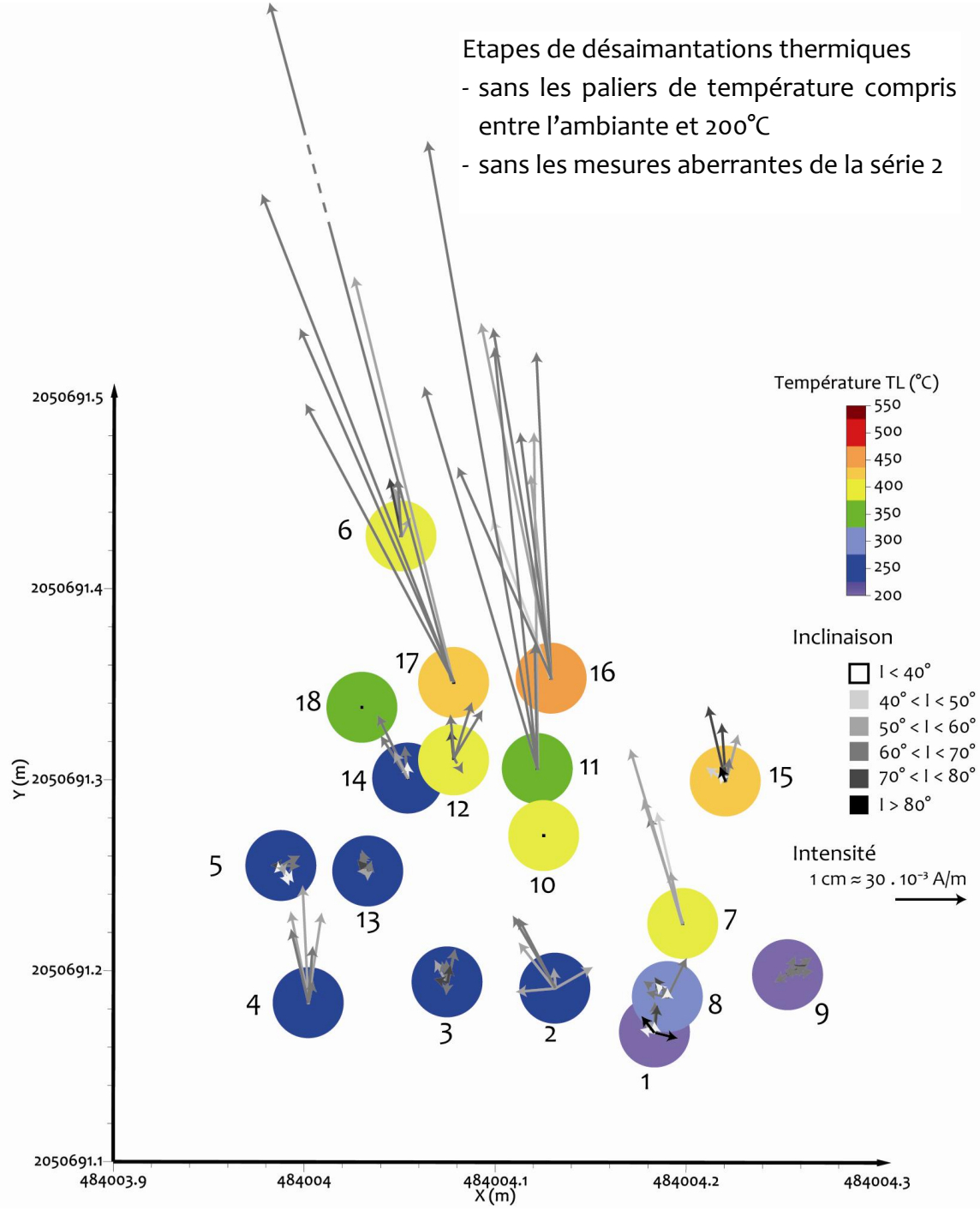


Figure 135 : Représentation des différences vectorielles de l'aimantation entre deux étapes de désaimantation thermique pour les paliers de température > 200°C et sans les mesures aberrantes de la série 2. La longueur de la flèche correspond à l'intensité, l'angle à la déclinaison et la couleur à l'inclinaison.

Comportements de l'aimantation rémanente naturelle :

En étudiant les changements d'intensité, de déclinaison et d'inclinaison au fur et à mesure des désaimantations thermiques, il est possible de définir trois comportements types de l'ARN :

- une aimantation unique dès 200°C qui indique un échantillon très chauffé et non perturbé : prélèvements n°4, 6, 7, 11, 14, 15, 16 et 17.
- une aimantation stable entre 200°C et une température de 440°C ou 490°C puis des variations erratiques : prélèvements n°1, 3, 9 et 13.
- une aimantation avec des variations erratiques entre 200°C et 395°C ou 435°C puis une aimantation stable entre cette température et 560°C : prélèvements n°2, 5, 8, et 12.

En ne conservant sur la représentation que les domaines de températures pour lesquels la direction de l'aimantation apparait comme stable (Figure 136), on obtient :

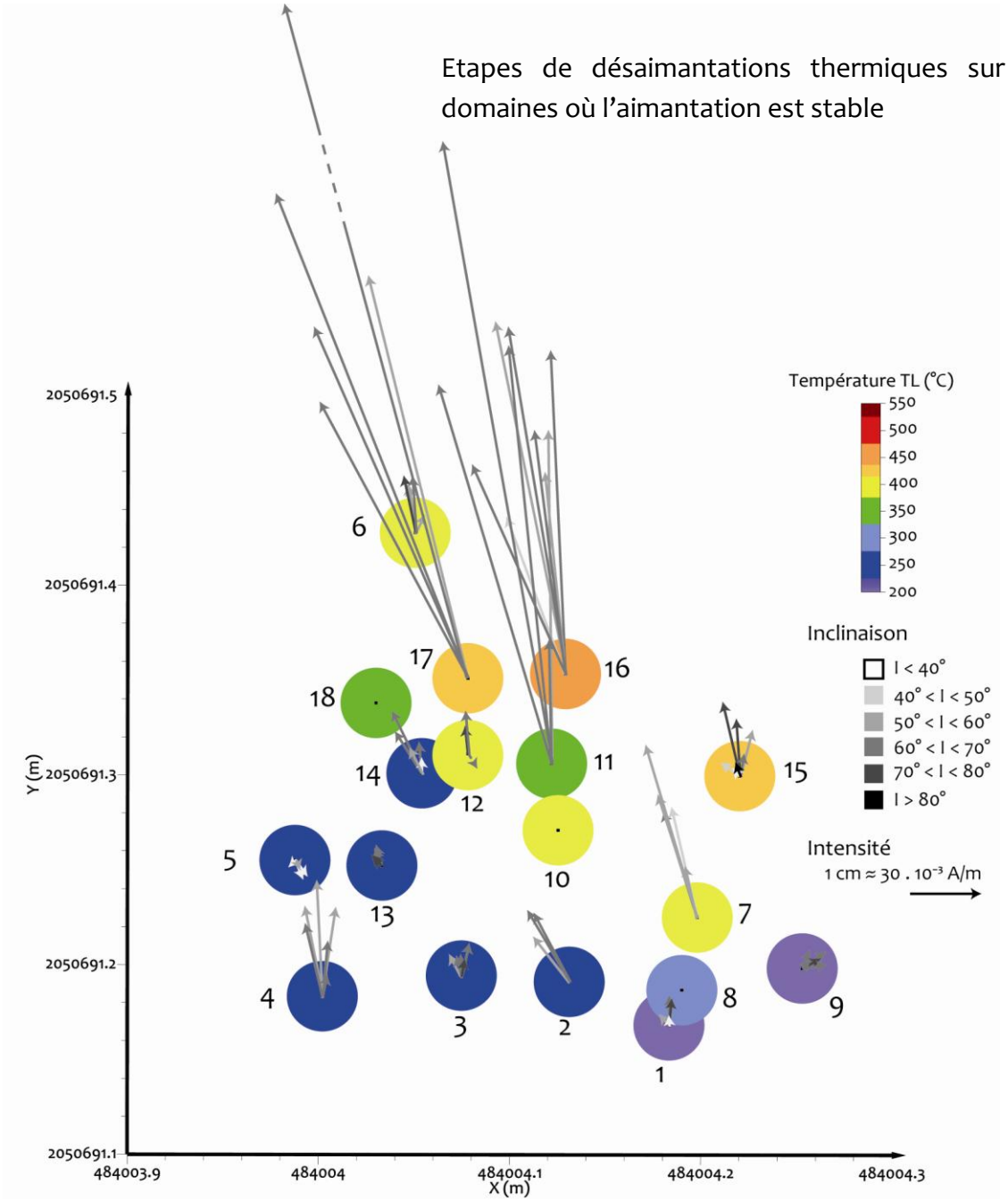


Figure 136 : Représentation des différences vectorielles de l'aimantation entre deux étapes de désaimantation thermique pour les domaines de températures où l'aimantation est stable.

Comparaison des données :

Le tableau ci-dessous (Tableau 25) regroupe les informations acquises grâce aux désaimantations thermiques des prélèvements du foyer F6.

n°	épaisseur de rubéfaction z (mm)	Qn	Variation de la susceptibilité magnétique	Comportement de l'aimantation sur les domaines de températures		T (TL) °C
5	5	0.72	forte dès 250°C	*erratique*	*395 - 565*	250
8	5	0.88	forte dès 250°C	*erratique*		300
13	7	0.95	moyenne dès 250°C	200 - 440	erratique	250
9	7	1.02	forte dès 250°C	200 - 440	erratique	200
3	9	1.24	forte dès 250°C	200 - 490	erratique	250
1	10	0.72	moyenne dès 250°C	200 - 440	erratique	200
4	10	2.06	aucune	***260 - 560***		250
7	11	4.25	moyenne dès 250°C	***260 - 560***		400
2	12	3.68	aucune	*erratique*	*435 - 560*	250
15	14	1.73	moyenne dès 250°C	***200 - 565***		425
6	15	2.08	moyenne dès 250°C	***260 - 565***		400
14	16	1.96	aucune	***260 - 560***		250
12	19	4.13	aucune	*erratique*	*435 - 560*	400
17	23	5.07	aucune	***200 - 560***		425
11	25	4.07	aucune	***260 - 560***		350
16	26	3.29	aucune	***200 - 565***		450

Tableau 25 : Récapitulatif des données relatives aux prélèvements pour l'archéomagnétisme (carottes) et comparaison avec les paléotempératures TL déterminées sur les prélèvements jumeaux. Les données sont classées par épaisseur de rubéfaction croissante.

On peut alors identifier trois groupes à partir de l'épaisseur de rubéfaction (z), du coefficient de Kœnigsberger (Qn) et des comportements de l'ARN :

- les prélèvements pour lesquels z ≤ 10 mm et Qn ≤ 1.25 qui montrent des modifications moyennes à fortes de la susceptibilité magnétique à partir de 250°C et principalement une ARN stable puis erratique. Les paléotempératures TL sont faibles (≤ 250°C).
- les prélèvements pour lesquels 10 mm < z < 20 mm et 1.25 < Qn < 4.25 qui montrent des modifications moyennes à nulles de la susceptibilité magnétique et deux types d'aimantation : erratique puis stable ou stable. Les paléotempératures TL varient de 250°C à 425°C.
- les prélèvements avec z > 20 mm et Qn > 3.25, dont la susceptibilité magnétique ne varie pas et pour lesquels l'aimantation est stable. Les paléotempératures TL sont supérieures à 350°C.

Le ***premier groupe*** (n°1, 3, 5, 8, 9 et 13) rassemble les échantillons qui avaient été repérés comme potentiellement problématiques du fait de leur faible chauffe indiquée par la faible épaisseur de rubéfaction et le Qn faible. De plus, les paléotempératures TL associées ne dépassent pas les 250°C. Le comportement principal de l'aimantation avec une direction privilégiée jusqu'à une certaine température (440°C ou 490°C) pourrait indiquer une température maximale atteinte par le passé de 440-490°C. La direction de l'aimantation devient ensuite erratique probablement par la formation de phases magnétiques à la limite SP/SD (superparamagnétique / *single domain*) qui sont source d'une ARV pendant l'expérimentation. Les informations d'aimantation deviennent alors inexploitables. Par ailleurs, l'intensité de l'aimantation rémanente naturelle (Figure 137 et Figure 138 ; courbes bleues) est faible et montre

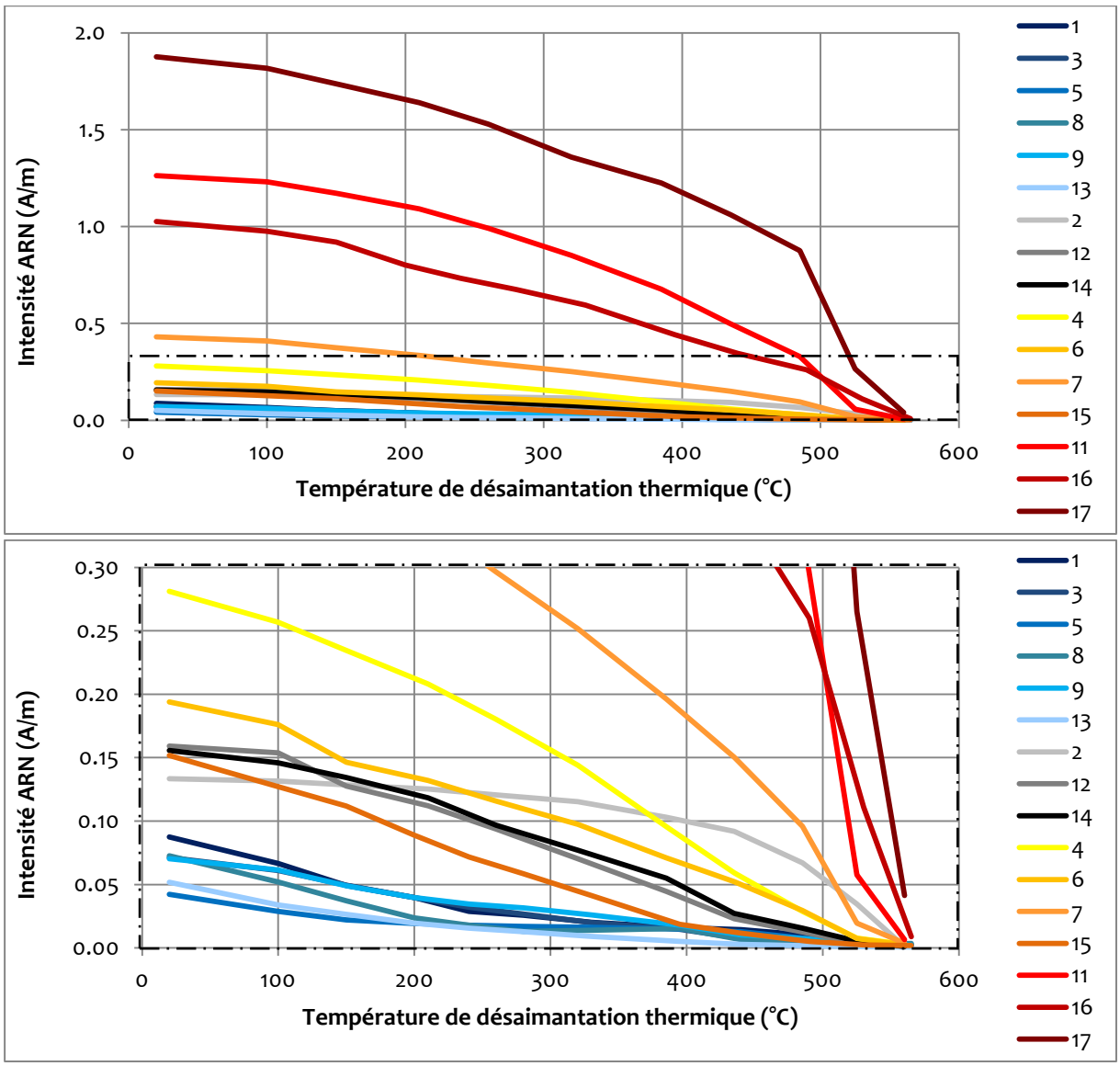


Figure 137 : Intensité de l'aimantation rémanente naturelle résiduelle après chaque palier de désaimantation thermique à température croissante.

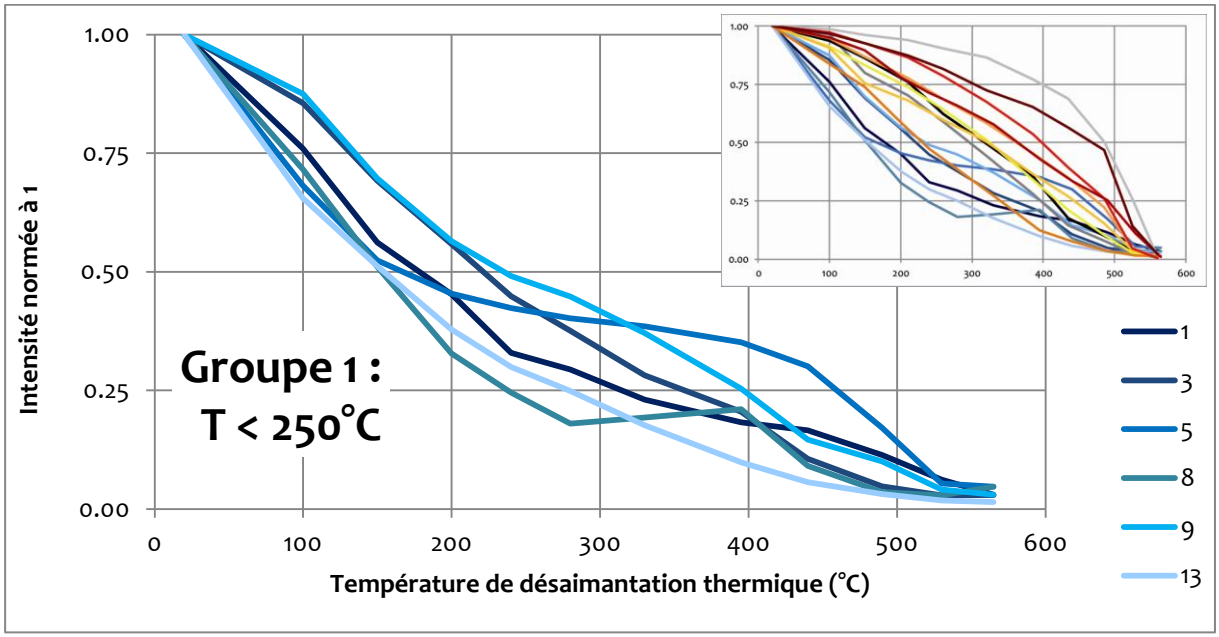


Figure 138 : Intensité de l'aimantation rémanente naturelle, normée à l'ARN maximale, après chaque palier de désaimantation à température croissante pour les prélèvements n°1, 3, 5, 8, 9 et 13.

une décroissance d'abord forte avec la température jusque environ 250°C où au moins la moitié de l'ARN a disparu (Figure 138). Interpréter les éventuelles variations de direction pour des températures supérieures afin d'extraire une paléotempérature est alors très incertain. On peut par contre déduire que ces prélèvements n'ont probablement pas chauffé au-delà de 250°C.

Dans ce premier groupe, le prélèvement n°8 montre une direction de l'aimantation erratique sur l'ensemble des paliers de désaimantation thermique. Aucune température de déblocage ne peut alors être déterminée pour ce prélèvement.

Le ***troisième groupe*** (n°11, 16 et 17) réunit *a priori* les prélèvements les plus chauffés qui ont l'épaisseur de rubéfaction et Qn les plus forts. La direction de l'aimantation est stable jusqu'à 560°C dans une direction donnée, la susceptibilité magnétique de ces prélèvements ne montre pas d'évolution et les paléotempératures TL correspondantes sont parmi les plus élevées et vont de 350°C à 450°C. De plus, la décroissance de l'intensité de l'ARN avec la température (Figure 137 et Figure 139, courbes rouges) est relativement continue (ARN max = 1 à 1.9 A/m). La chute d'intensité observée autour de 500°C (entre 490°C et 530°C) pour les prélèvements n°11 et 17 peut résulter de deux effets : soit on regarde la désaimantation d'une aimantation rémanente chimique (ARC) portée par la magnétite puisque la température de chute est proche de la température de Curie de celle-ci (T_C magnétite = 580°C) ; soit l'aimantation est une aimantation thermorémanente (ATR) et la température de chute correspond bien à une température de déblocage de l'ATR et traduit une température de chauffe autour de 500°C. Ces trois prélèvements étant visiblement les plus chauffés (susceptibilité magnétique forte, Qn fort, paléotempératures TL fortes) la seconde hypothèse d'une température de chauffe autour de 500°C pour les prélèvements n°11 et 17 est privilégiée. Le prélèvement n°16 ne montrant pas cette chute brutale, la température de chauffe associée est de 560°C.

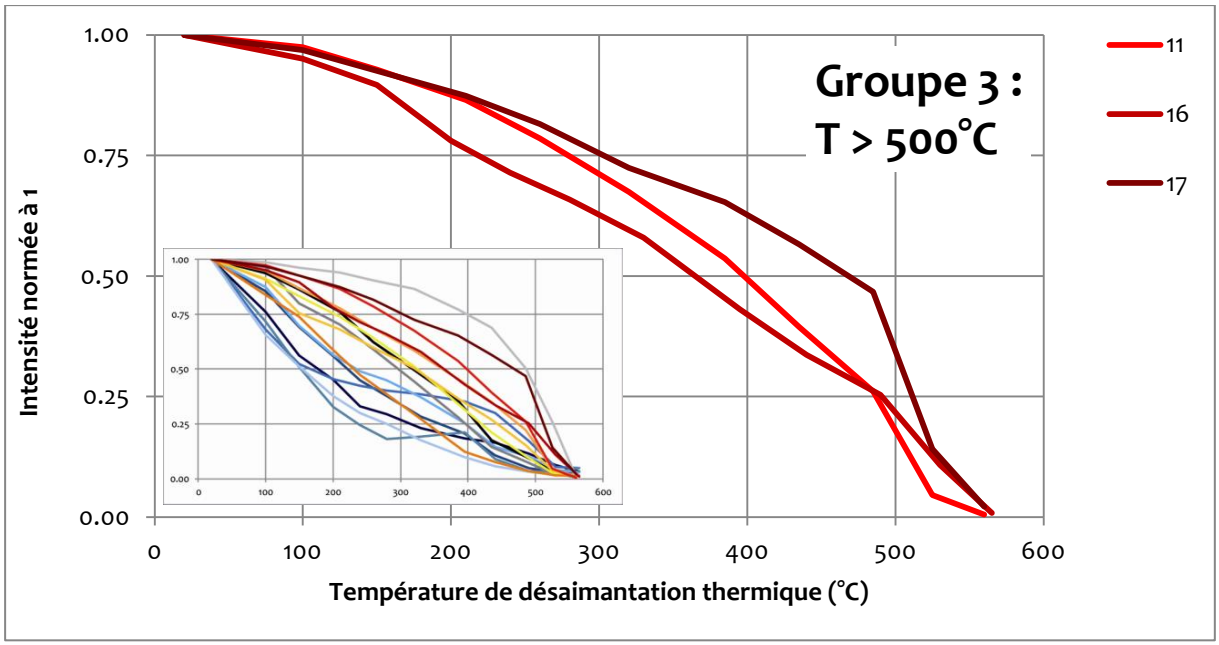


Figure 139 : Intensité de l'aimantation rémanente naturelle, normée à l'ARN maximale, après chaque palier de désaimantation à température croissante pour les prélèvements n°11, 16 et 17 du groupe 3.

Le ***second groupe*** combine les prélèvements d'épaisseur de rubéfaction et de Qn moyens. On observe trois comportements différents :

Tout d'abord les **prélèvements n° 6, 7 et 15** possèdent une aimantation de direction stable et de désaimantation progressive jusqu'à 560°C (Figure 137 et Figure 140, courbes orangées ; ARN max = 0.15 à 0.4 A/m). De plus l'évolution de la susceptibilité magnétique est moyenne à partir de 250°C et les paléotempératures TL élevées de 400-425°C. Le prélèvement n°15 a une décroissance différente avec une rupture de pente à 400°C qui pourrait, comme pour le groupe 3, rendre compte de la température atteinte. Le prélèvement n°7 présente une rupture de pente autour de 500°C et le prélèvement n°6 à 530°C. Ces trois prélèvements sont à rapprocher de ceux du troisième groupe avec une température de chauffe autour de 400°C pour le n°15, de 500°C pour le n° 7 et autour de 530°C pour le n°6. Les différences d'épaisseur de rubéfaction et d'intensité de l'ARN maximale indiquent probablement un temps d'exposition à la chaleur moins long que pour les prélèvements n°11, 16 et 17 donc une quantité de phases transformées moins importante.

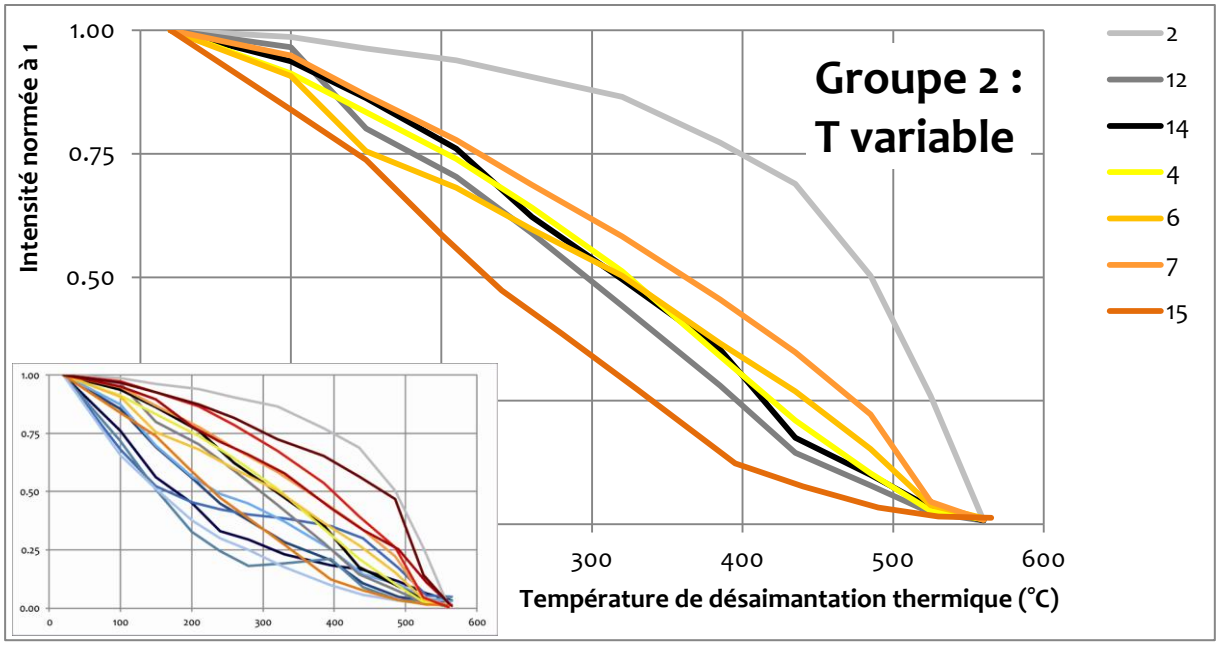


Figure 140 : Intensité de l'aimantation rémanente naturelle, normée à l'ARN maximale, après chaque palier de désaimantation à température croissante pour les prélèvements du groupe 2.

Ensuite les **prélèvements n° 4 et 14** ont une aimantation de direction stable et de désaimantation progressive jusqu'à 560°C (Figure 137 et Figure 140, courbe jaune n°4 et courbe noire n°14) sans que la susceptibilité magnétique ne varie notablement avec la chauffe. Cependant la susceptibilité magnétique est moyenne, l'intensité de l'ARN maximale est moyenne (0.27 A/m pour le n°4 et 0.15 A/m pour le n°14) et les paléotempératures TL associées sont faibles (250°C). Pour le prélèvement n°4, l'absence de modifications de susceptibilité magnétique vient du fait que l'échantillon mesuré ne fait que 10 mm d'épaisseur et que ces 10 mm sont rubéfiés. Ce prélèvement est certainement à rapprocher des n°6, 7 et 15 décrits précédemment, avec une température de chauffe à 530°C. Le temps d'exposition ne peut pas être précisé (de manière relative aux autres prélèvements) puisque l'épaisseur de rubéfaction est incomplète. Pour le prélèvement n°14, la susceptibilité magnétique diminue avec les chauffes des désaimantations thermiques indiquant probablement une transformation de phases magnétiques (magnétite/maghémite) en hématite. C'est l'unique prélèvement qui montre une diminution notable de la susceptibilité magnétique. Les aimantations enregistrées par les phases magnétiques seraient alors perdues avant même que leurs températures de déblocage ne soient

atteintes. On ne pourrait donc utiliser les températures de déblocage de ce prélèvement comme estimateur de température atteinte.

Enfin, les **prélèvements n°2 et 12** ont une aimantation de direction erratique puis stable de 435°C à 560°C, pas de variations de la susceptibilité magnétique et des paléotempératures respectives de 250°C et 400°C. L'absence de modification de la susceptibilité magnétique est difficile à expliquer puisqu'une partie non négligeable du prélèvement est non rubéfié donc susceptible de se transformer comme pour les autres prélèvements. Il est possible cependant qu'on observe le résultat d'une double transformation à savoir une création de phases magnétiques (comme pour les prélèvements 6, 7 et 15 par exemple) et une destruction de phases magnétiques (comme pour le n°14). De la même manière que pour le prélèvement n°14, on ne peut exploiter les températures de déblocage de ces prélèvements. La stabilité visible pour les paliers de hautes températures pourraient mettre en évidence la présence d'une ARC acquise par une altération des minéraux créés par la chauffe archéologique. L'allure de la décroissance de l'intensité de l'ARN avec la température du prélèvement n°2 est particulière avec plus de 70 % de l'ARN qui est désaimantée entre 400°C et 560°C (Figure 137 et Figure 140, courbe gris clair). Même si l'intensité de l'ARN est faible (ARN max = 0.13 A/m), ce comportement indique que l'aimantation est principalement portée par de la magnétite et qu'on observe ici la température de déblocage de la magnétite à une température proche de sa température de Curie (580°C) et pas une température de chauffe.

En résumé, les températures de déblocage déterminées lorsque c'était possible ont été ajoutées dans le tableau ci-dessous (Tableau 26) :

n°	épaisseur de rubéfaction (mm)	Qn	Variation de la susceptibilité magnétique	Comportement de l'aimantation sur les domaines de températures		Tdeb °C	T TL °C
5	5	0.72	forte dès 250°C	*erratique*	*395 - 565*	< 250	250
8	5	0.88	forte dès 250°C	*erratique*		nd	300
13	7	0.95	moyenne dès 250°C	200 - 440	erratique	< 250	250
9	7	1.02	forte dès 250°C	200 - 440	erratique	< 250	200
3	9	1.24	forte dès 250°C	200 - 490	erratique	< 250	250
1	10	0.72	moyenne dès 250°C	200 - 440	erratique	< 250	200
4	10	2.06	aucune	**260 - 560**		530	250
7	11	4.25	moyenne dès 250°C	**260 - 560**		500	400
2	12	3.68	aucune	*erratique*	*435 - 560*	nd	250
15	14	1.73	moyenne dès 250°C	**200 - 565**		400	425
6	15	2.08	moyenne dès 250°C	**260 - 560**		530	400
14	16	1.96	aucune	**260 - 560**		nd	250
12	19	4.13	aucune	*erratique*	*435 - 560*	nd	400
17	23	5.07	aucune	200 - 560		500	425
11	25	4.07	aucune	260 - 560		500	350
16	26	3.29	aucune	200 - 565		560	450

Tableau 26 : Récapitulatif des données relatives aux prélèvements « carottes » du foyer F6 : épaisseur de rubéfaction en mm ; coefficient de Kœnigsberger Qn ; description qualitative de l'évolution de la susceptibilité magnétique avec les chauffes des désaimantations thermiques ; comportements de l'ARN sur les domaines de températures de désaimantation thermique ; températures de déblocage déterminées si possible, nd = non déterminé ; paléotempératures TL.

La comparaison des températures de déblocage de l'ARN et des paléotempératures TL (Figure 141) indique que :

- pour les prélèvements peu chauffés (T<250°C) les températures de déblocage sont cohérentes avec les paléotempératures TL.
- pour les prélèvements avec T TL > 350°C, les températures de déblocage sont majoritairement supérieures aux paléotempératures TL (sauf n°15) avec environ 110°C de plus. Cet écart pourrait être le résultat des différences de cinétique dans l'enregistrement des deux phénomènes à savoir l'acquisition d'une ATR, principalement dépendante de la température atteinte, et le vidage des centre-pièges de luminescence, fortement dépendant de la durée d'exposition à une température.
- pour le prélèvement n°4, la température de déblocage (T deb = 530°C) est très supérieure à la paléotempérature TL (T TL = 250°C). On rappellera ici que la carotte n°4 n'est pas complète (10 mm) et qu'elle n'est constituée que du sédiment rubéfié. La partie non rubéfiée qui peut apporter des informations sur les températures de chauffe moyennes à faibles n'est donc pas présente. Néanmoins, étant donné l'intensité de l'ARN et la valeur de la susceptibilité magnétique, la température de déblocage déterminée semble correcte. Il est alors possible que l'écart résulte d'une l'hétérogénéité de chauffe entre les deux prélèvements (carotte et autour pour la TL).

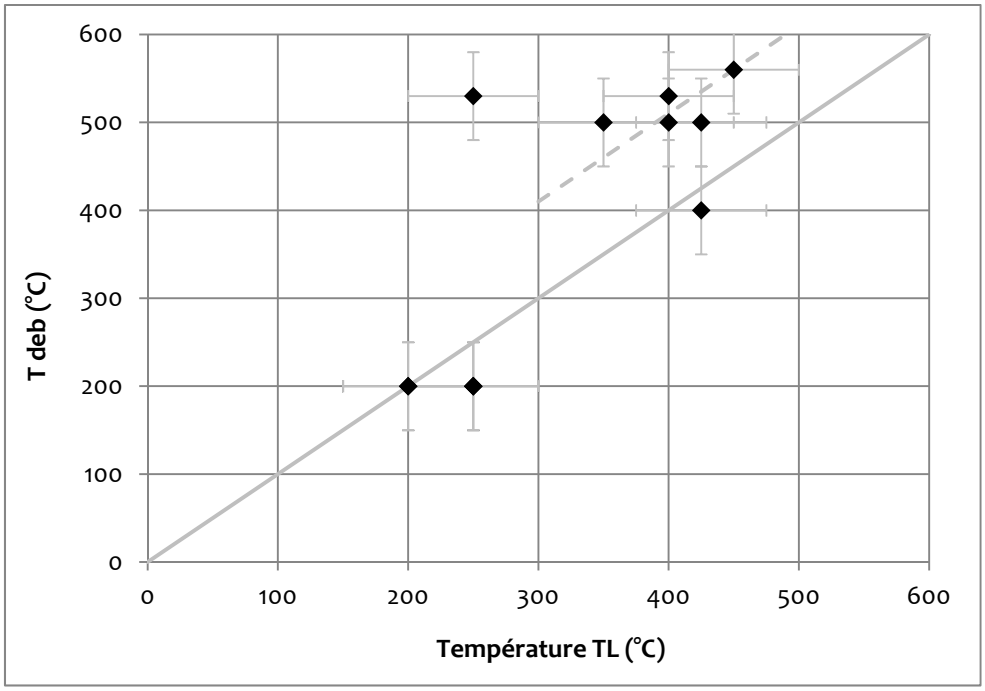


Figure 141 : Comparaison des températures de déblocage de l'aimantation rémanente (T deb) en fonction des paléotempératures TL.

I.4. **Bilan**

Le coefficient de Kœnigsberger, qui permet d'estimer l'intensité de l'aimantation naturelle par rapport à la capacité d'aimantation théorique, montre des valeurs faibles (autour de 1) à moyennes (< 5) qui indiquent que le foyer F6 a chauffé de manière modérée, voire faible pour certains échantillons dont l'épaisseur de rubéfaction est inférieure à 10 mm.

L'analyse des variations de direction et d'intensité de l'aimantation rémanente permet de déterminer des températures de déblocage de l'aimantation, reflet des températures de chauffe archéologique. Elle permet de séparer les prélèvements qui ont peu chauffé, à moins de 250°C, et de distinguer différentes températures pour les prélèvements chauffés. La comparaison avec les paléotempératures TL montre principalement une différence de 100°C environ, induite par les différences de cinétique dans l'enregistrement des deux phénomènes.

La susceptibilité magnétique mesurée après chaque palier de désaimantation thermique apporte aussi une information sur les températures atteintes : une susceptibilité magnétique forte qui n'évolue pas indique un prélèvement chauffé à T > 500°C, une susceptibilité magnétique faible qui augmente fortement à 250°C indique un prélèvement qui n'a jamais chauffé au-delà de cette température et une susceptibilité magnétique moyenne qui augmente légèrement entre 250°C et 560°C indique un prélèvement qui a déjà chauffé au-delà de 250°C mais pendant un temps insuffisant pour transformer toutes les phases précurseurs. Cette information thermométrique est liée à l'épaisseur de rubéfaction de sédiment qui traduit une durée de chauffe et de propagation de la chaleur dans le sédiment.

Il reste maintenant à étudier le potentiel de la signature magnétique des oxydes de fer contenus dans les sédiments des Fraux dans l'objectif de construire un paléothermomètre indépendant de celui établi sur les grains de quartz par la TL.

II. Signature magnétique des sédiments des Fraux : approche comparée de sédiments provenant d'un foyer archéologique, d'un foyer expérimental et de sédiments chauffés en laboratoire.

L'échantillonnage pour l'analyse de la signature magnétique, constitué de prélèvements du foyer F6 et de ceux du foyer expérimental, a été complété par des sédiments argileux provenant de la grotte des Fraux et chauffés en laboratoire.

Avant de décrire la préparation de ces derniers et les résultats de l'analyse magnétique sur l'ensemble de l'échantillonnage, les sédiments des Fraux ont fait l'objet de mesures thermomagnétiques pour appréhender les phases magnétiques en présence et leur température de transformation.

II.1. Etude préliminaire : courbe thermomagnétique κ(T) : mesure dynamique de la susceptibilité magnétique en fonction de la température

Afin de repérer les phases minérales en présence et leurs évolutions avec la chauffe, deux blocs de sédiment extrait de la grotte des Fraux (en 2008) ont été mesurés : le premier, « bloc 1 », de couleur brun jaune clair (N90, Munsell) est celui qui a été utilisé pour l'étude comparée avec le foyer F6 et le foyer expérimental ; le second, « bloc 2 » est de couleur brun (P69, Munsell). Les mesures ont été réalisées sur poudre (0.5 g) obtenue par séchage (un jour sous vide) puis broyage (mortier en agate) d'un morceau.

Deux types de mesure ont été réalisés avec une vitesse de chauffe et de refroidissement de 8.5°C/min dans une atmosphère d'air :

- un cycle de chauffe-refroidissement unique, de la température ambiante à 700°C (Figure 142 et Figure 144) ;
- des cycles successifs de chauffe-refroidissement avec des températures maximales croissantes de 100°C à 700°C (Figure 146 et Figure 147).

Les ***courbes thermomagnétiques de chauffe unique à 700°C*** (Figure 142 pour le bloc 1 et Figure 144 pour le bloc 2) mettent en valeur les phases présentes. Elles sont identifiées par des augmentations ou diminutions de la susceptibilité magnétique liées d'une part à des transformations minéralogiques et d'autre part à des changements d'état magnétique aux températures de Curie ou de Néel (passage d'un état ferromagnétique ou antiferromagnétique canté à un état paramagnétique). La dérivée première des courbes κ(T) permet une meilleure discrimination des variations de susceptibilité magnétique et des températures associées (Figure 143 et Figure 145).

La comparaison immédiate des Figure 142 (bloc 1) Figure 144 (bloc 2) permet d'observer une différence d'intensité du signal pendant la chauffe (courbe rouge). Le signal du bloc 1 est proche du seuil de détection de l'appareil et est sensible aux variations de la susceptibilité magnétique liées au four (signal four vide en gris).

Par ailleurs, l'augmentation finale de susceptibilité magnétique est bien plus importante sur le bloc 1 (x 200 ; $\chi \approx 17 \times 10^{-6}$ m^3/kg) que sur le bloc 2 (x 20 ; $\chi \approx 7 \times 10^{-6}$ m^3/kg) mettant en évidence une plus forte néoformation de phases ferrimagnétiques à partir du sédiment du bloc 1 qu'à partir du sédiment du bloc 2.

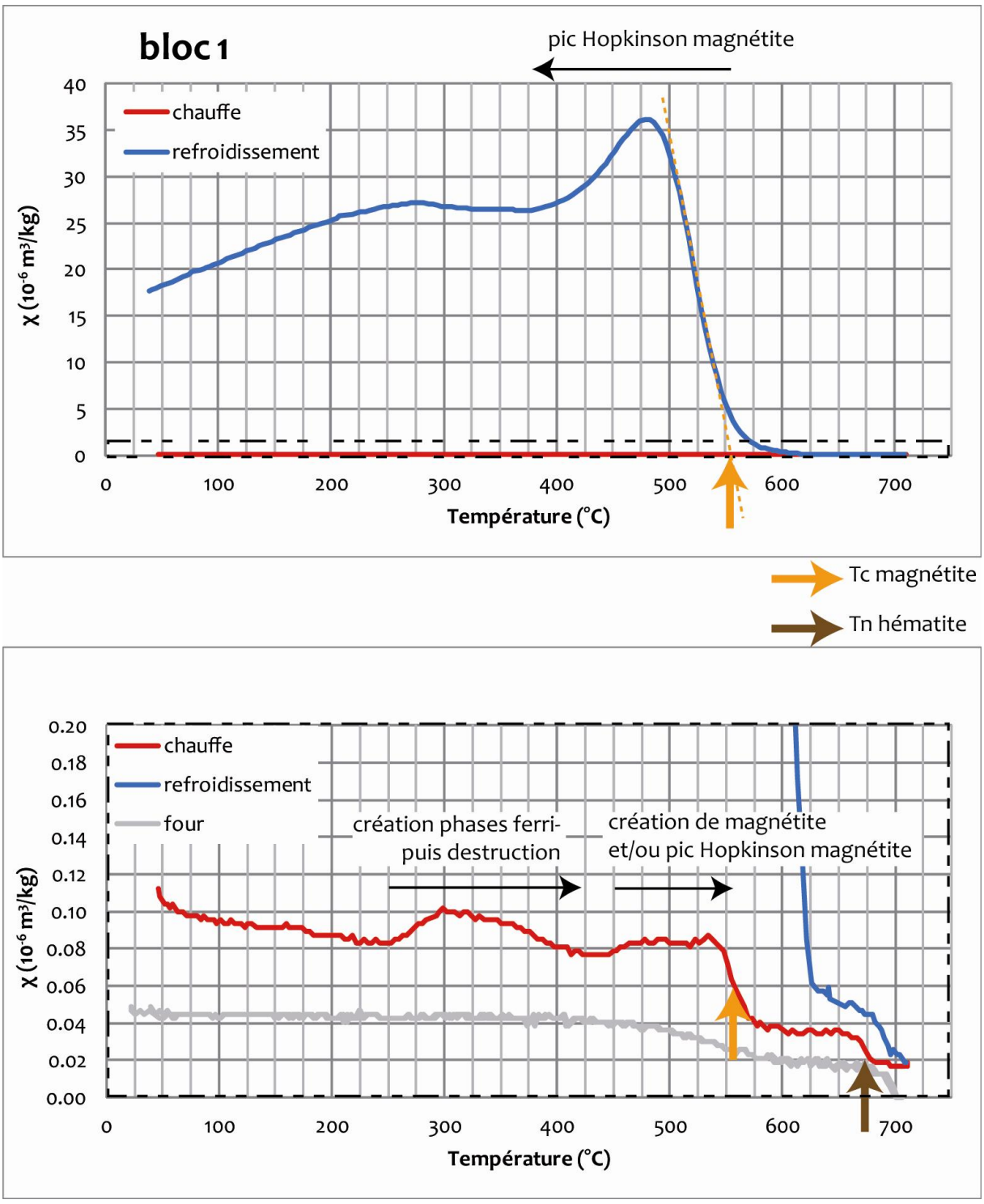


Figure 142 : Courbe thermomagnétique réalisée sur le bloc 1 en rouge pendant la chauffe unique à 700°C et en bleu pendant le refroidissement. La figure du bas est un agrandissement sur la courbe κ(T) pendant la chauffe sur laquelle on a fait figurer le signal du four vide avec une origine arbitraire pour ne pas gêner la lecture.

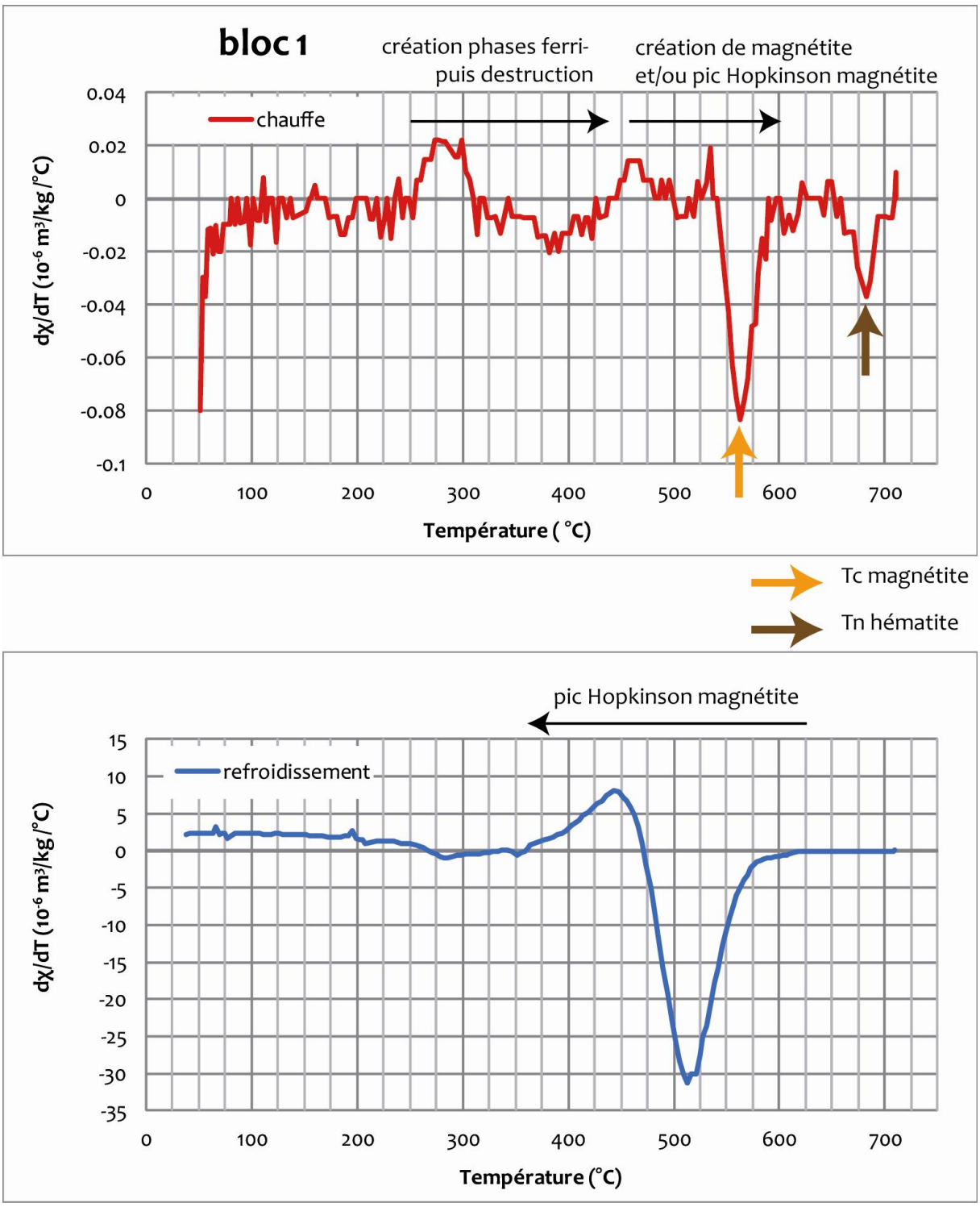


Figure 143 : Dérivée première des courbes thermomagnétiques (dχ/dT) en fonction de la température pour le bloc 1 pendant la chauffe (haut, rouge) et le refroidissement (bas, bleu).

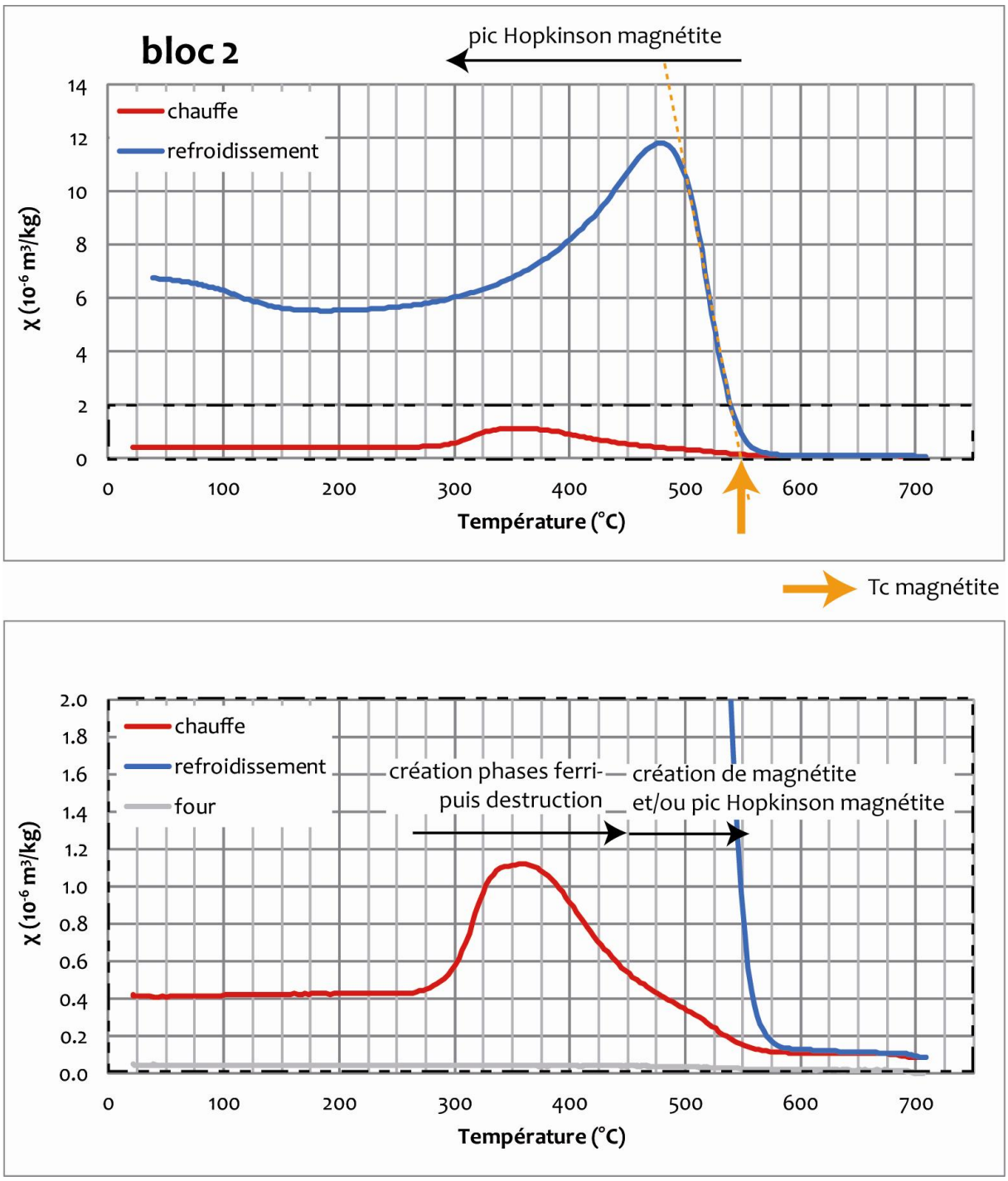


Figure 144 : Courbe thermomagnétique réalisée sur le bloc 2, en rouge pendant la chauffe unique à 700°C et en bleu pendant le refroidissement. La figure du bas est un agrandissement sur la courbe κ(T) pendant la chauffe sur laquelle on a fait figurer le signal du four vide avec une origine arbitraire.

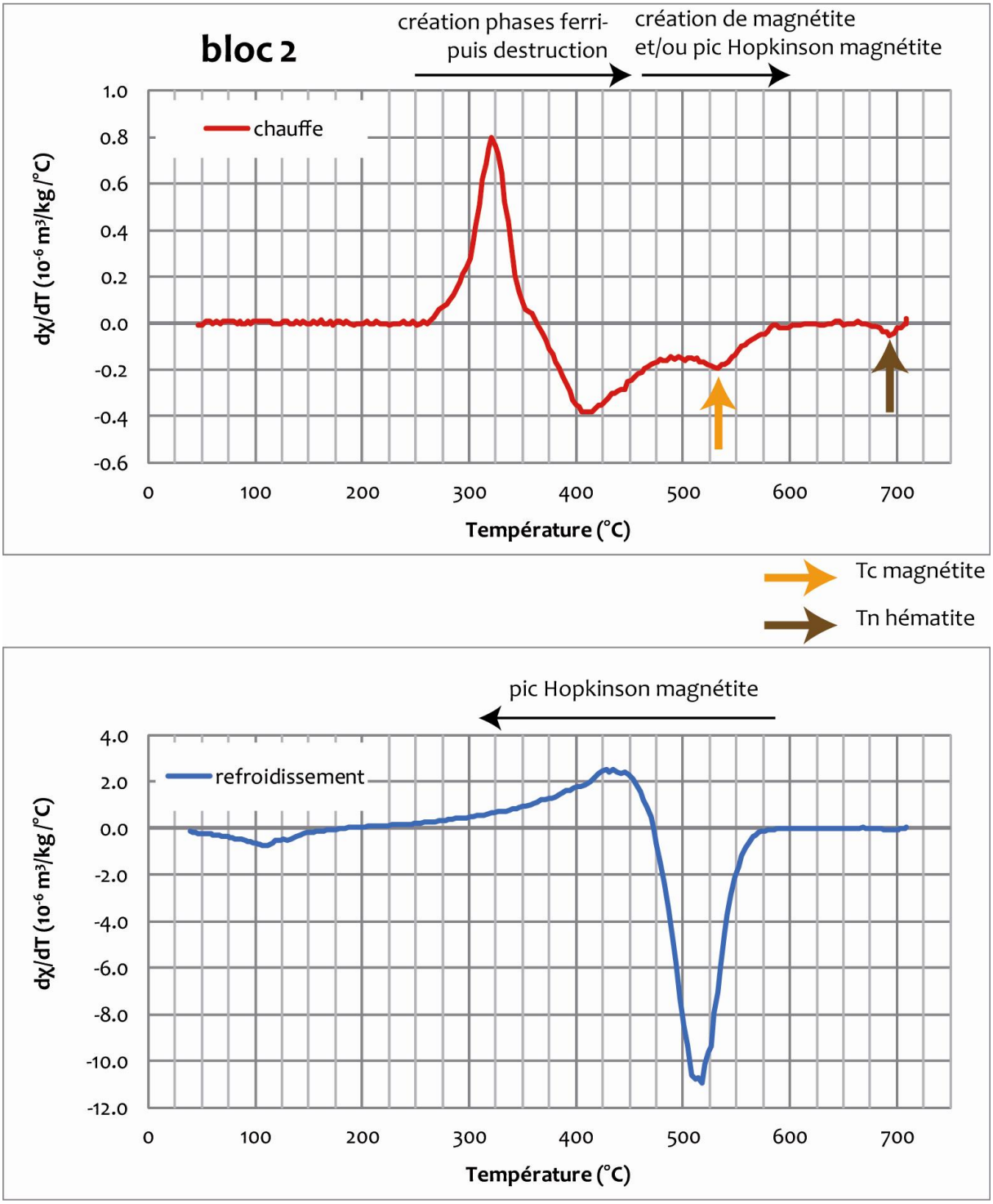


Figure 145 : Dérivée première des courbes thermomagnétiques (dχ/dT) en fonction de la température pour le bloc 2 pendant la chauffe (haut, rouge) et le refroidissement (bas, bleu).

Si on détaille plus précisément le comportement de la susceptibilité magnétique pendant la chauffe (courbe rouge), on observe, une augmentation de la susceptibilité magnétique entre 250°C - 300°C pour le bloc 1 et 265°C - 350°C pour le bloc 2. Cette augmentation est à relier à la probable création de phases ferrimagnétiques à partir de la déshydratation d'oxyhydroxydes. Etant donné que la goethite et la lépidocrocite ont été détectées dans les analyses DRX des sédiments des Fraux (*cf*. annexe 11), les transformations envisageables sont : goethite en magnétite et lépidocrocite en maghémite.

La diminution de la susceptibilité magnétique observée ensuite entre 350°C et 450°C pourrait s'expliquer par la destruction de la maghémite en hématite.

L'augmentation de la susceptibilité magnétique à partir de 450°C suivie d'une diminution brutale, bien observables pour le bloc 1 mais visibles seulement sous la forme d'un épaulement à la courbe pour le bloc 2, sont liées à deux phénomènes : la création de phases ferrimagnétiques et/ou le pic Hopkinson de la magnétite autour de sa température de Curie et à son comportement paramagnétique au-delà.

Aux températures de chauffe les plus fortes, il semble qu'on observe aussi le passage à la température de Néel de l'hématite. Néanmoins, ce phénomène n'est observable que pour le bloc 1, et comme le montre la Figure 142, le signal est très proche de celui du four vide. On ne peut donc conclure de manière certaine sur la présence d'hématite.

Lors du refroidissement (courbe bleue), on observe une très forte augmentation de la susceptibilité magnétique traduisant la néoformation de phases ferrimagnétiques et notamment de magnétite ici caractérisée par son pic Hopkinson.

Les courbes thermomagnétiques du bloc 1 et du bloc 2 indiquent une forte création de phases ferrimagnétiques avec la chauffe. Pour le bloc 2, la susceptibilité magnétique du sédiment brut est plus élevée, il n'y a pas de diminution de la susceptibilité magnétique aux faibles températures, l'augmentation finale de la susceptibilité magnétique est plus faible que celle du bloc 1 et la couleur du sédiment est plus foncée. Tous ces arguments pourraient indiquer qu'une part de ce sédiment a déjà chauffé par le passé.

Pour ***les courbes thermomagnétiques successives à température maximale croissante***, le protocole de mesure est le suivant : la susceptibilité magnétique est d'abord enregistrée pendant la première montée en température (trait plein, Figure 146 et Figure 147) jusqu'à 100°C puis pendant son refroidissement jusqu'à la température ambiante (trait pointillé, Figure 146 et Figure 147), puis pendant une chauffe jusqu'à 150°C et son refroidissement jusqu'à la température ambiante et ainsi de suite jusqu'à une température maximale de 700°C. Ces courbes κ(T) mettent en évidence les températures de forte augmentation de susceptibilité magnétique (entre 300°C et 350°C).

On retrouve ici les différences d'intensité du signal avec des variations de la susceptibilité magnétique faibles pour le bloc 1, proches du seuil de détection.

Par ailleurs, l'augmentation finale de la susceptibilité magnétique, après l'ensemble des chauffes, est inférieure à celle mesurée après une chauffe à 700°C et, cette fois, la susceptibilité magnétique finale est moindre pour le bloc 1 (x2 ; $\chi \approx 0.27 \times 10^{-6}$ m^3/kg) que pour le bloc 2 (x3 ; $\chi \approx 1.5 \times 10^{-6}$ m^3/kg). On aurait donc une formation de phases ferrimagnétiques moins importante pour des chauffes progressives. Une explication pourrait être que la succession de chauffe à l'air favorise l'oxydation en hématite d'une part importante des phases ferrimagnétiques créées. Néanmoins, au vu de l'augmentation générale de susceptibilité magnétique, la proportion de phases ferrimagnétiques formées est supérieure à la proportion de phases ferrimagnétiques oxydée en hématite.

Plus précisément, les quatre premières courbes κ(T) sont réversibles pour T ≤250°C : courbes bleu foncé superposées pour le bloc 1 autour 0.13×10^{-6} m^3/kg et pour le bloc 2 autour de 0.5×10^{-6} m^3/kg. La réversibilité des courbes indiquent qu'aucune transformation minéralogique n'est détectée.

La susceptibilité magnétique augmente de manière assez importante entre 300°C et 350°C (300-315°C pour le bloc 2) par la création de phases ferrimagnétiques. L'augmentation de susceptibilité magnétique est ensuite plus progressive de 375°C à 700°C pour le bloc 1 et de 335°C à 600°C pour le bloc 2 (flèche grise sur la gauche des Figure 146 et Figure 147). Cette augmentation moins importante provient soit une création moins importante de phases ferrimagnétiques soit une oxydation en hématite d'une part des phases ferrimagnétiques créées. Pour le bloc 2, la susceptibilité magnétique diminue après les chauffes à 650°C et 700°C traduisant une oxydation en hématite d'une part importante des phases ferrimagnétiques formées pendant la chauffe.

Pour les chauffes supérieures à 550°C, on observe un épaulement puis une chute de la susceptibilité magnétique, particulièrement visibles pour le bloc 2, liés au passage à l'état paramagnétique de la magnétite (léger effet Hopkinson).

A chaque nouvelle chauffe, il y a une évolution vers les hautes températures de la diminution de la susceptibilité magnétique observée avant l'effet Hopkinson de la magnétite. Ceci peut traduire soit une création de phase soit un changement de la taille de grains magnétiques.

Lorsqu'on compare le comportement de la susceptibilité magnétique avec la chauffe unique à 700°C et avec les chauffes progressives, il apparaît que la courbe de chauffe unique à 700°C montre des variations similaires aux variations des minima des courbes de chauffes progressives. Les transformations minéralogiques sont donc proches dans les deux cas. La grande différence réside dans la quantité de phases ferrimagnétiques créée *in fine*.

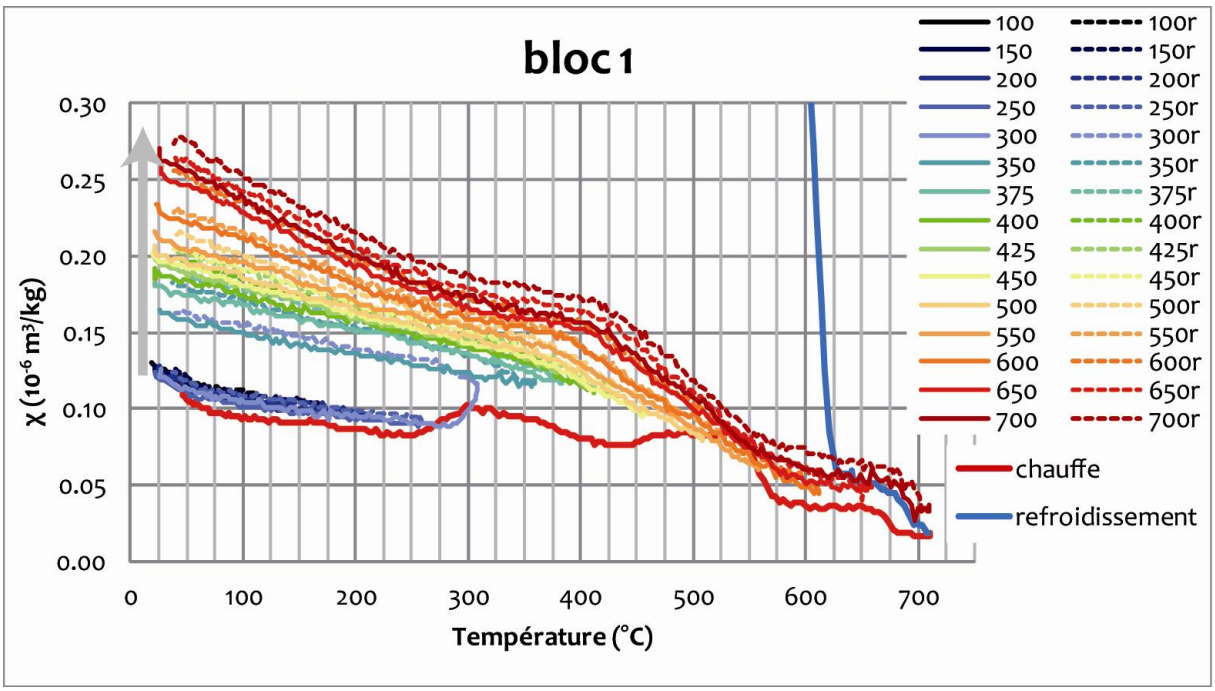


Figure 146 : Courbes thermomagnétiques réalisées sur le bloc 1 avec une température maximale croissante de 100°C pour la première chauffe à 700°C pour la dernière. Les chauffes sont en traits plein et les refroidissements en pointillés. La courbe thermomagnétique de la chauffe unique à 700°C est juxtaposée en fond.

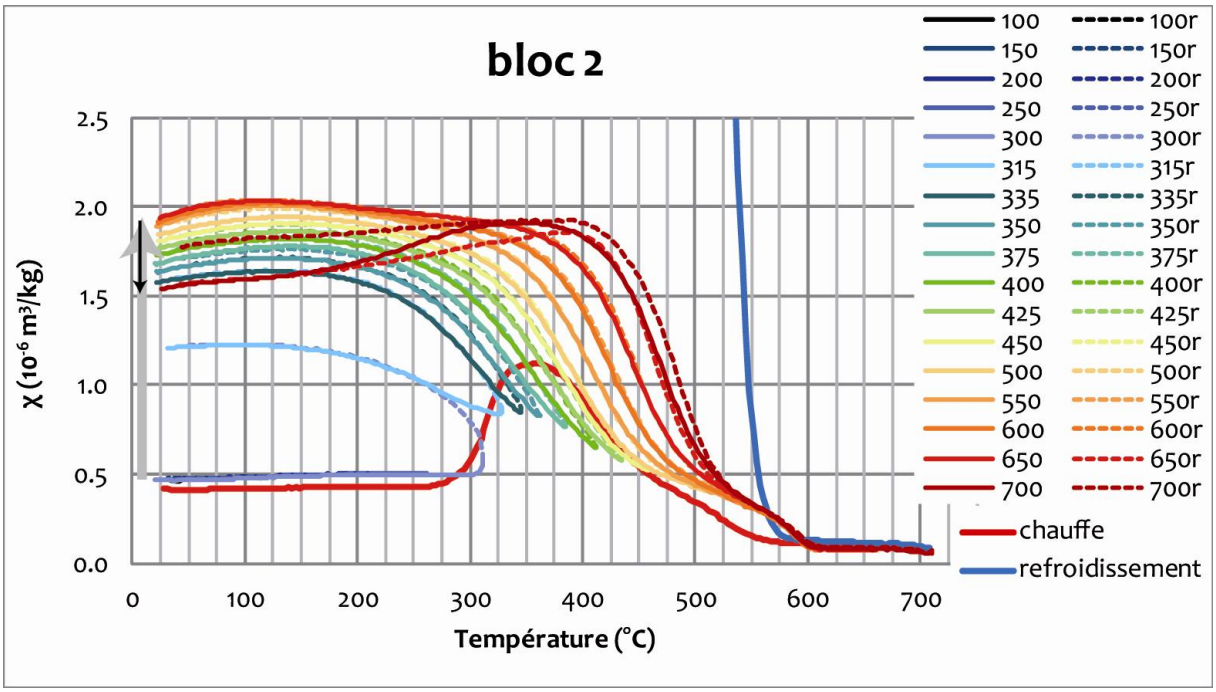


Figure 147 : Courbes thermomagnétiques réalisées sur le bloc 2 avec une température maximale croissante de 100°C pour la première chauffe à 700°C pour la dernière. Les chauffes sont en traits plein et les refroidissements en pointillés. La courbe thermomagnétique de la chauffe unique à 700°C est juxtaposée en fond.

L'ensemble des courbes thermomagnétiques permet de percevoir les phases en jeu ainsi que les températures de certaines transformations. Cette expérience montre entre autre que la susceptibilité magnétique des sédiments argileux des Fraux augmente lorsqu'ils sont chauffés au-delà de 250°C.

Ainsi, si les sédiments concernés contiennent des précurseurs à la formation de magnétite et maghémite, tels que la goethite et la lépidocrocite, une zone chauffée par un feu sera caractérisée par de fortes valeurs de susceptibilité magnétique. De plus, les températures atteintes dans les sédiments du substrat de feu ne dépassent que rarement les 600°C (Werts et Jarhen, 2007 ; Sievers et Wadley, 2008 ; Bentsen, 2012, notre expérience) et l'atmosphère de chauffe est réductrice (combustion du bois). Ceci favorise la création de magnétite au détriment de l'hématite et empêche l'oxydation de la magnétite/maghémite en hématite (réaction possible en atmosphère oxydante ; Dunlop et Özdemir, 2007). Ainsi on pourrait supposer que plus les températures atteintes seront élevées, plus la susceptibilité magnétique du substrat sera forte (Le Borgne, 1955 ; 1960 ; Carrancho et Villalaín, 2011 ; Herries et Fisher, 2010 ; Morinaga *et al*., 1999).

Il faut cependant prendre en considération qu'une évolution de la taille des grains entraine aussi des variations de susceptibilité magnétique (grains SP avec une forte susceptibilité magnétique) qu'il n'est pas possible de quantifier ici. Une approche plus complète est nécessaire combinant les propriétés d'aimantation induite et de rémanence pour appréhender les phénomènes en jeu lors de chauffe.

II.2. **Préparation des sédiments chauffés en laboratoire**

II.2.1. Mise en forme et séchage

Le sédiment du bloc 1 a été mis en forme en 33 cubes de 8 cm^3 environ qui ont été séchés sous une cloche à vide pendant 14 jours (réalisation : 2008). Ce séchage a entrainé une augmentation de la susceptibilité magnétique pour tous les cubes (Figure 148).

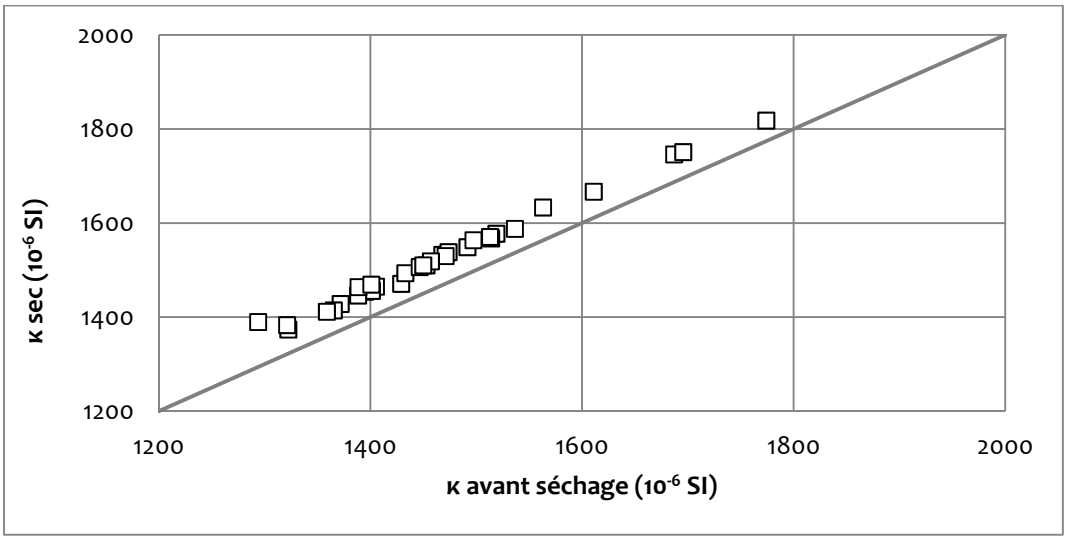


Figure 148 : Comparaison des valeurs de la susceptibilité magnétique des cubes avant séchage et après séchage.

Cette augmentation est principalement due à l'élimination de l'eau (Figure 149) puisque la valeur de la susceptibilité magnétique corrigée de la variation de susceptibilité magnétique induite par la perte d'eau n'est pas significativement différente de la susceptibilité magnétique avant séchage.

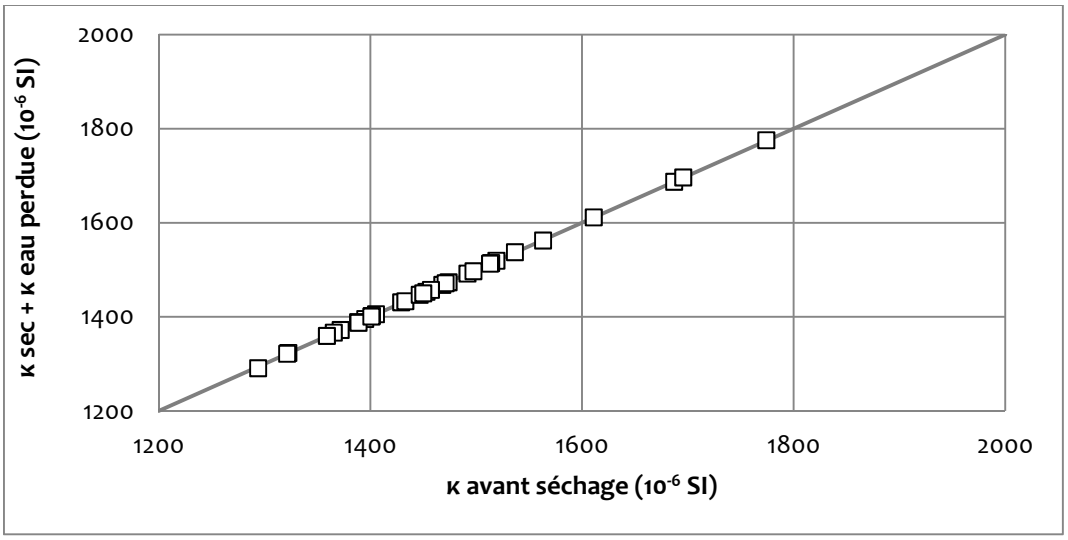


Figure 149 : Comparaison des valeurs de la susceptibilité magnétique des cubes avant séchage et après séchage mais corrigée de la variation de susceptibilité magnétique induite par l'eau perdue.

Les 17 cubes présentant le moins de différences ont été sélectionnés pour créer le référentiel.

II.2.2. Cycle thermique de chauffe

Ces cubes ont été soumis à des chauffes successives, à l'air, dans un four de désaimantation (MMTD18, MAGNETIC MEASUREMENTS) permettant de chauffer des échantillons dans un champ magnétique atténué par rapport au champ magnétique terrestre. Le cycle thermique a été choisi le plus proche possible de celui utilisé pour les référentiels TL :

- Vitesse de chauffe : 20°C/min ;
- Température maximale : une heure à la température maximale (100°C, 150°C, 200°C, 250°C, 300°C, 315°C, 335°C, 350°C, 375°C, 400°C, 425°C, 450°C, 500°C, 550°C, 600°C, 650°C, 700°C) ;
- Vitesse de refroidissement : 20°C/min (environ : pas de réglage possible).

Les échantillons, appelés « ***cubes*** » par la suite, présentent des variations de couleur liées aux transformations minéralogiques qui vont être explicitées ci-après (Figure 150).

II.2.3. Colorimétrie

Le plus souvent, les transformations minéralogiques des oxydes de fer dues au feu entrainent un changement de couleur, dit rubéfaction, dont l'extension correspond à celle de l'onde thermique. L'importance du changement de couleur dépend de nombreux paramètres tels que la nature des matériaux chauffés, les phases minérales présentes, l'état redox du milieu ambiant, la température atteinte... La rubéfaction est ainsi un indice visuel permettant de suspecter la présence d'un foyer mais pas une condition *sine qua non*.

La rubéfaction des cubes apparaît dès 250°C et s'accentue à partir de 550°C (Figure 150).

Figure 150 : Evolution de la couleur des sédiments de la grotte des Fraux avec la température de chauffe. La rubéfaction apparaît dès 250°C.

Des mesures de colorimétrie (spectrocolorimètre Konica-Minolta CM-700D) dans le repère Lab (Figure 4) avec une source de lumière D65 (lumière du jour) permettent de mettre en évidence cette évolution de la couleur (Figure 151 et Figure 152). La composante a* (axe vert-rouge) est particulièrement discriminante.

Ces mesures indiquent un changement de la couleur évident à 250°C. Cependant entre le cube à 250°C et ceux à 300-350°C une légère évolution a lieu. Les cubes de 300°C à 350°C puis de 375°C à 550°C forment deux ensembles (a* < 15 et b* < 17 pour le premier, a* > 15 et 17 < b* < 19.5 pour le second). Au-delà, une nouvelle évolution est notée et différencie les cubes chauffés de 600°C à 700°C.

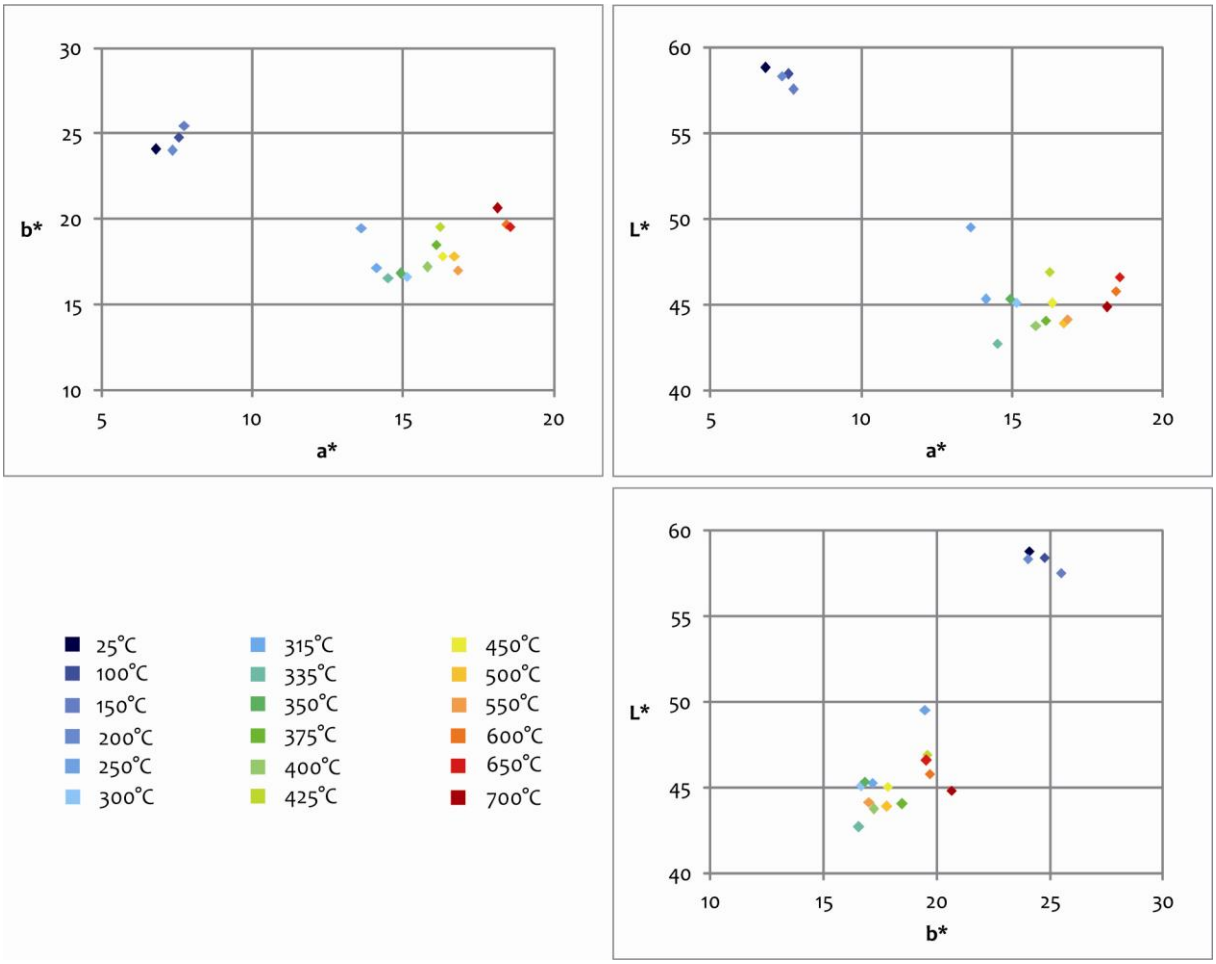


Figure 151 : Comparaison deux à deux des paramètres L*, a* et b* en fonction de la température atteinte par le cube.

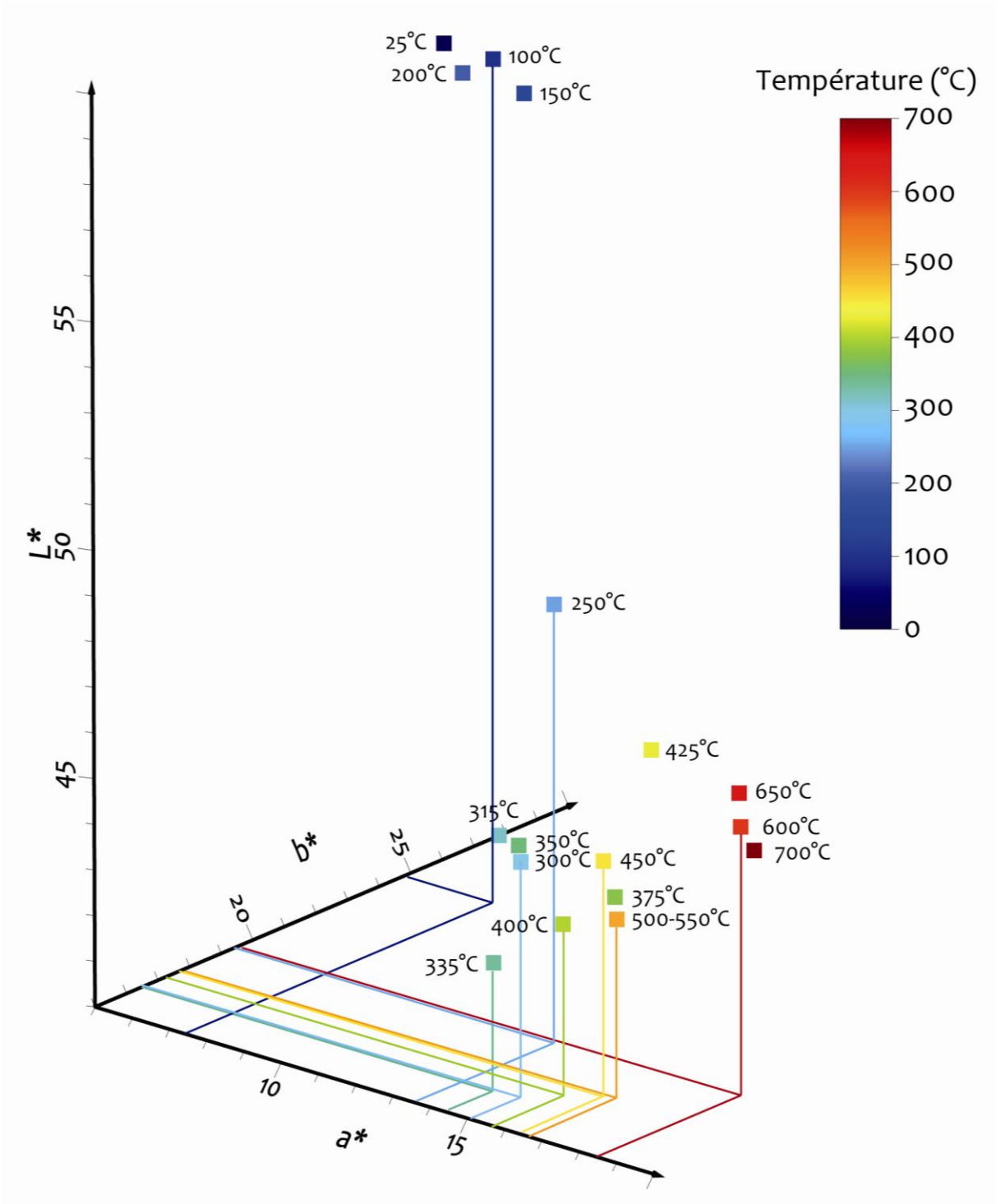


Figure 152 : Représentation en 3D des coordonnées L*, a*, b* en fonction de la température de chauffe des cubes.

Sur les spectres dans le visible (Figure 153), les quatre premiers spectres (25°C à 200°C) sont groupés avec des composantes remarquables à 450 nm (bleu), et à partir 570 nm (vert-jaune) jusqu'à 700 nm (rouge). Le spectre du cube à 250°C, pour lequel la composante à 450 nm est atténuée, est intermédiaire entre les précédents et ceux des cubes de 300°C à 550°C. La composante à 450 nm des spectres de 300°C à 550°C est aussi atténuée et il y a un léger décalage de l'augmentation d'intensité qui commence plutôt vers 580-600 nm (jaune). Les trois derniers spectres (600°C à 700°C) sont encore un peu plus décalés vers le rouge (620 nm et au delà).

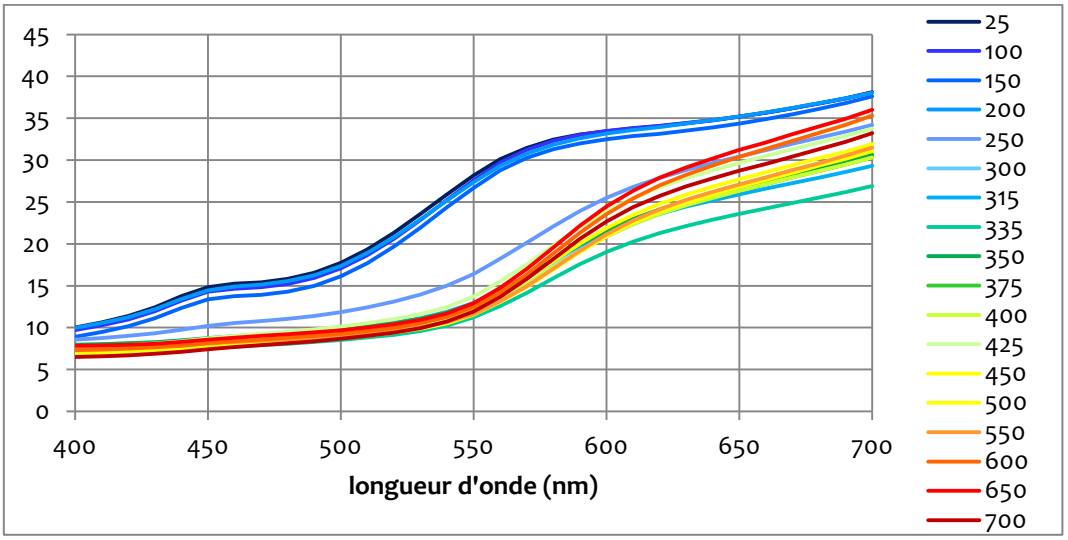


Figure 153 : Spectre de réflectance dans le visible des cubes chauffés (intensité lumineuse en fonction de la longueur d'onde). Chaque spectre est associé à une température de chauffe (°C) du cube.

Les deux types d'analyse colorimétrique permettent de séparer les cubes : ceux chauffés jusqu'à 200°C où il n'y a pas de modification notable ; le cube à 250°C qui est en cours de transformation pour lequel la coloration rouge apparaît ; les cubes de 300 à 350°C et ceux de 375°C à 550°C qui sont franchement rubéfiés ; et enfin les trois plus chauffés de 600°C à 700°C pour lesquels la rubéfaction s'accentue. La coloration est donc dépendante des températures atteintes. Ici la teinte rouge qui apparait est induite par la création de phase colorée telle que le pigment de magnétite puis d'hématite aux plus hautes températures. Il sera difficile d'utiliser les variations de couleurs enregistrées ici comme éléments de comparaison avec les foyers archéologiques puisque les transformations en jeu ne sont certainement pas identiques à celles produites par la chauffe d'un feu.

Cependant les sédiments de la grotte des Fraux ayant chauffé au-delà de 250°C possèderont *a priori* une rubéfaction visible.

II.3. **Signature magnétique**

Dans cette partie, les propriétés magnétiques d'aimantation induite et rémanente des prélèvements du foyer F6, du foyer expérimental et des cubes chauffés en laboratoire vont être étudiées et comparées pour en extraire des informations sur la signature magnétique. Il s'agit de déterminer si leur évolution avec la chauffe peut constituer un paléothermomètre.

La ***teneur en minéraux ferrimagnétiques*** est estimée par les propriétés magnétiques suivantes :

- la susceptibilité magnétique
- l'aimantation rémanente isotherme à saturation (ARIs) : aimantation induite par une impulsion de champ magnétique saturant, ici de 3 T, dans une direction donnée.
- l'aimantation rémanente anhystérétique à saturation (ARAs) : aimantation induite par l'application combinée, dans une direction donnée, d'un champ magnétique continu de 0.1 mT et d'un champ magnétique évanescent de 200 mT d'intensité initiale.

La ***minéralogie magnétique*** est principalement appréhendée à partir de mesures de :

- l'aimantation rémanente isotherme (ARI), aimantation induite par l'application d'une impulsion de champ magnétique d'intensité connue. Deux courbes différentes sont construites :
    - la courbe *Back-Field* de l'aimantation isotherme à saturation (BF-ARI) : courbe construite par des mesures successives de l'ARI induite par des impulsions de champ magnétique croissant, ici de 5 mT à 3T, à la suite d'une impulsion à 3T mais dans la direction opposée.
    - la courbe de désaimantation en champ alternatif (*Alternative Field)* de l'aimantation rémanente isotherme à 3 T (AF-ARI) : courbe construite par de mesures successives de l'ARI résiduelle suite à des désaimantations induites par l'application d'un champ magnétique alternatif évanescent dont l'intensité maximale initiale augmente pour chaque nouveau point de mesure.
- l'aimantation rémanente anhystérétique (ARA) et plus précisément la courbe désaimantation en champ alternatif (*Alternative field)* de l'aimantation rémanente anhystérétique (AF-ARA) : courbe construite par des mesures successives de l'ARA résiduelle suite à des désaimantations induites par l'application d'un champ magnétique alternatif évanescent dont l'intensité maximale initiale augmente pour chaque nouveau point de mesure.

La ***taille de grains magnétiques*** est déterminée par des mesures de :

- la susceptibilité magnétique en faisant varier la fréquence du champ magnétique d'excitation.
- la courbe de désaimantation *Alternative field* de l'aimantation rémanente anhystérétique (AF-ARA)
- l'aimantation rémanente visqueuse (ARV) : aimantation mesurée à la suite d'un trainage magnétique c'est-à-dire la différence d'aimantation suivant une direction après, dans notre cas, une semaine en champ nul et 24 h dans le champ magnétique terrestre (CMT) de manière à ce qu'ils soient soumis à ce champ suivant une unique direction.

Estimation des teneurs en phases ferrimagnétiques à partir de la susceptibilité magnétique, de l'aimantation rémanente isotherme à saturation (ARIs) et de l'aimantation anhystérétique à saturation (ARAs) :

Les mesures de susceptibilité magnétique de chaque ***cube*** avant la chauffe (carré vide) et après les chauffes à l'air (carré noir) sont présentées ci-dessous (Figure 154). Elles montrent que la susceptibilité magnétique augmente à partir de 250°C indiquant ainsi les premières transformations minéralogiques. Cette augmentation résulte de la création de phases ferrimagnétiques à partir de précurseurs faiblement magnétiques (oxyhydroxydes). A partir de 375°C, la diminution de la susceptibilité magnétique révèle la destruction progressive d'une phase ferrimagnétique en hématite (oxydation ; Cornell et Schwertmann, 2003). Le caractère légèrement erratique des variations vient certainement de l'hétérogénéité intrinsèque au sédiment et des proportions de phases ferrimagnétiques créées puis oxydées en hématite.

Cette évolution de la susceptibilité magnétique avec la température peut être comparée à celle observée sur les courbes thermomagnétiques précédemment étudiées sur de la poudre du bloc 1 (Figure 146). La susceptibilité magnétique commence à augmenter à partir de 250°C pour la poudre du bloc 1 comme pour les cubes. De plus, l'augmentation finale de la susceptibilité magnétique, après la chauffe à 700°C, est comparable entre la poudre du bloc 1 et les cubes.

La diminution de la susceptibilité magnétique dès 375°C sur les cubes n'a pas été observée pour les échantillons du bloc 1 après des chauffes progressives jusqu'à 700°C. Il est probable que l'oxydation en hématite des phases ferrimagnétiques créées a été favorisée par :

- la différence de cycle thermique : température maximale maintenue pendant une heure pour les cubes alors qu'il n'y a pas eu de palier pour les courbes κ(T) ;
- les conditions de chauffe dans le four MMTD18 où le volume d'air donc d'oxygène disponible est beaucoup plus important que dans le KLY.

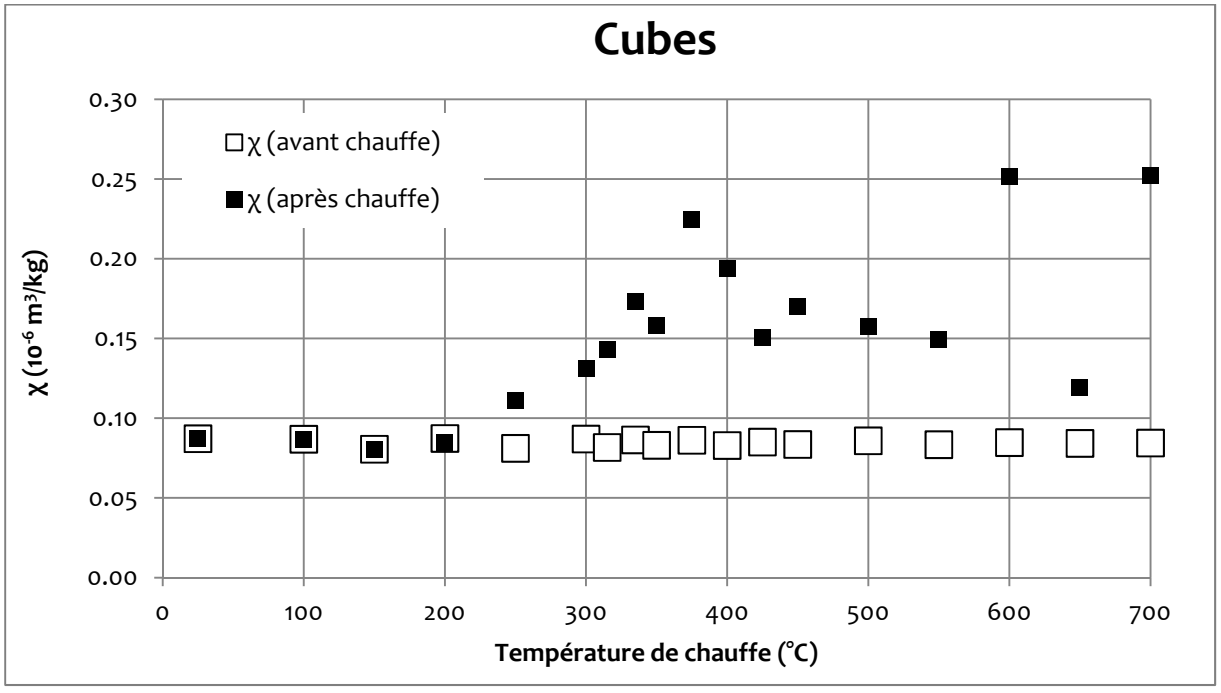


Figure 154 : Susceptibilité magnétique des cubes avant la chauffe (carré vide) et après la chauffe (carré noir).

Pour les prélèvements du ***foyer F6***, la susceptibilité magnétique de chaque prélèvement a été mesurée à un an d'intervalle (Figure 155) : la première mesure a été effectuée quelques jours après le prélèvement (23/06/2010) et la seconde un an plus tard (31/05/2011) au moment où nous avons fait l'ensemble des autres mesures présentées dans la suite (susceptibilité magnétique et aimantation rémanente). Il apparaît, pour quelques points, une évolution de la susceptibilité magnétique.

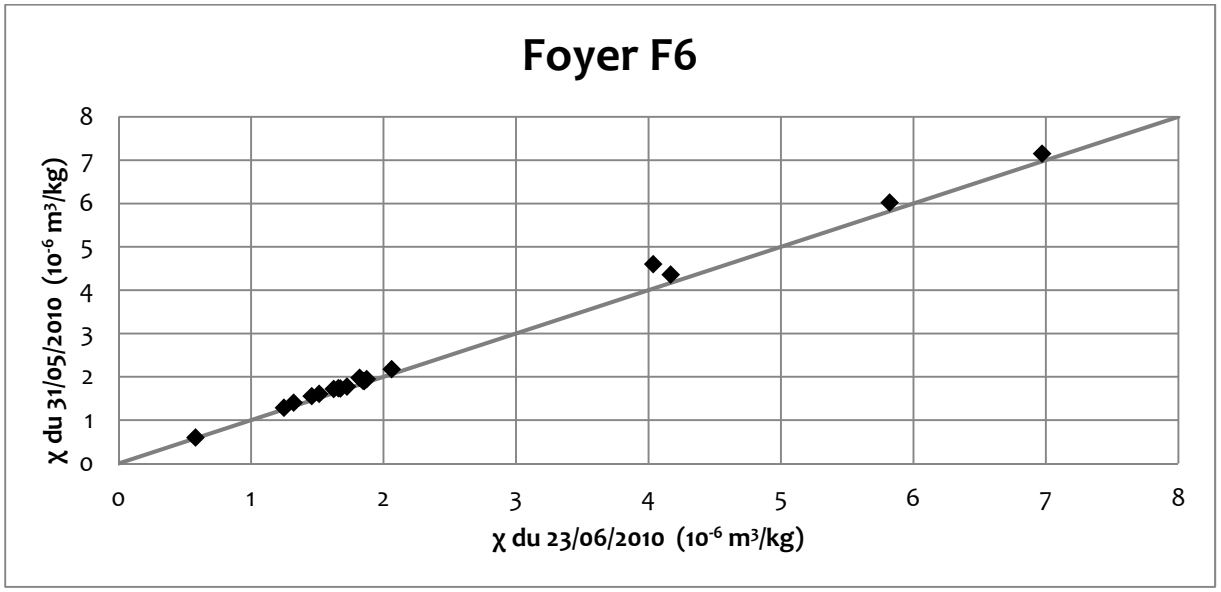


Figure 155 : Valeurs de la susceptibilité magnétique des prélèvements du foyer F6 mesurées à un an d'intervalle : le 23/06/2010, quelques jours après les prélèvements et le 31/05/2011 près d'un an plus tard.

Etant donné le temps écoulé, un séchage des sédiments a eu lieu malgré le confinement dans des boites fermées. Si on corrige la valeur de la susceptibilité magnétique du 31/05/2011 de la variation de la susceptibilité magnétique induite par la perte d'eau (χ_{eau} = - 1 x 10^{-8} m^3/kg), l'ensemble des points sont proche de la droite identité (Figure 156). Il n'y a donc eu aucune modification significative de la susceptibilité magnétique mise à part celle induite par la perte d'eau.

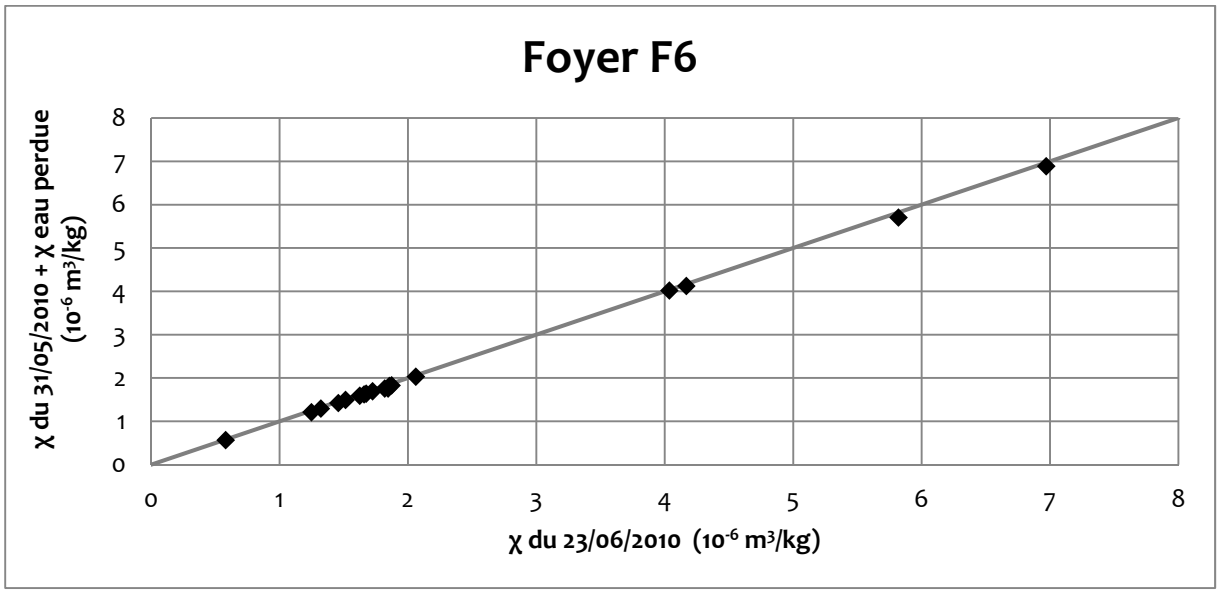


Figure 156 : Comparaison des valeurs de la susceptibilité magnétique des prélèvements du foyer F6 mesurées le 23/06/2010 quelques jours après le prélèvement et le 31/05/2011 après un an pour laquelle on a ajouté la contribution de susceptibilité magnétique de l'eau perdue par séchage.

Les échantillons du ***foyer F6*** se répartissent en trois groupes (Figure 157) qui discriminent le n°13 avec une susceptibilité magnétique faible et les n° 10, 11, 16 et 17 avec des valeurs fortes.

Les prélèvements réalisés sur la ***sole expérimentale*** (*cf. Chapitre 6, II.2*), trois sur le dessus de la sole (n°486, 489 et 491) et trois dans le dessous de la sole (n°485, 488 et 490), montrent les plus fortes valeurs. La susceptibilité magnétique des prélèvements du dessus de la sole est environ sept fois plus élevée que celle des prélèvements du dessous de la sole (Figure 157).

Si on compare les trois ensembles de prélèvements, il apparaît clairement que les cubes, quelle que soit la température de chauffe, ont des valeurs de susceptibilité magnétique bien inférieures aux autres échantillons. Les valeurs de susceptibilité magnétique du foyer F6 sont de 10 à 30 fois supérieures à celles des cubes et celles du dessus de la sole encore 10 fois supérieures.

A des fins de comparaisons, les valeurs de susceptibilité magnétique des prélèvements réalisés pour la thermoluminescence (TL) sur le foyer F4 (symbole x sur la Figure 157) et le foyer F6 (symbole + sur la Figure 157) ont été ajoutés. On observe que les valeurs les plus fortes de la susceptibilité magnétique (χ > 1 x 10^{-6} m^3/kg) sont équivalentes à celles mesurées pour les prélèvements du foyer F6 et ceux du dessous de la sole expérimentale. Pour le foyer F4, on voit des valeurs très faibles induites par la différence de la nature du sédiment qui est plus gréseux donc plus riche en quartz (diamagnétique). Entre ces deux extrêmes, des valeurs de la susceptibilité magnétique entre 0.3 et 1 x 10^{-6} m^3/kg correspondent aux prélèvements TL peu chauffés du foyer F4 et pas chauffés du foyer F6 (prélèvements uniquement pour la TL).

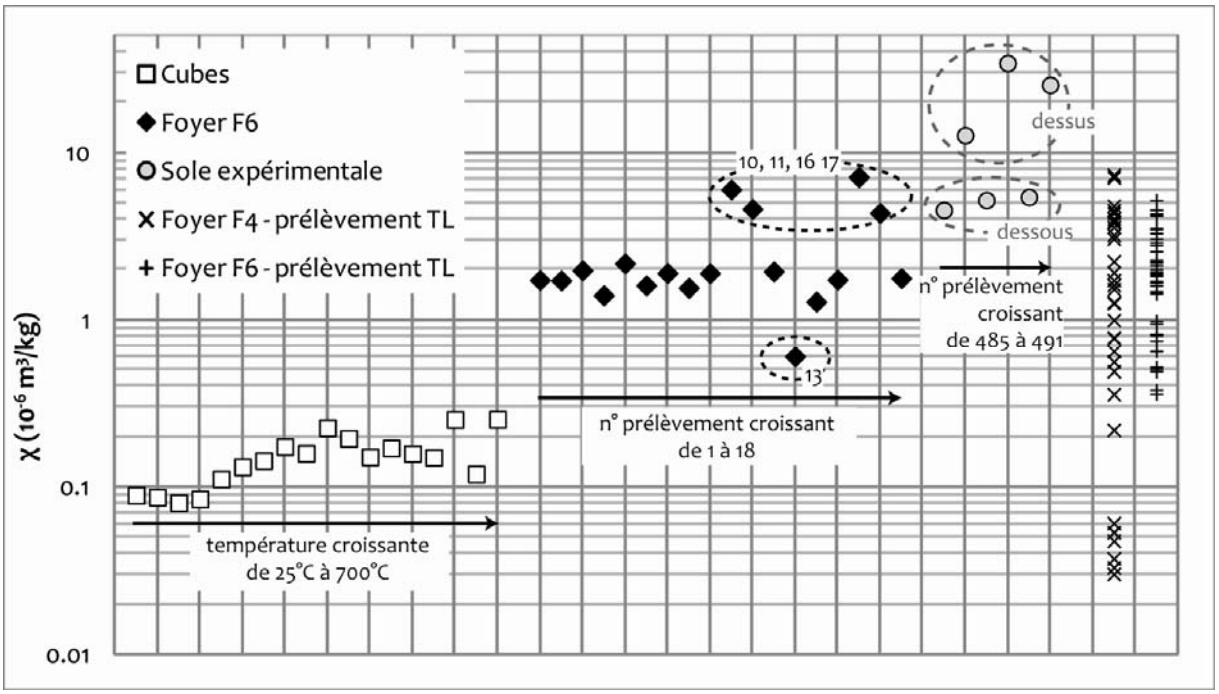


Figure 157 : Susceptibilité magnétique mesurées sur les cubes dont les températures de chauffe s'étalent de 25°C à 700°C, sur les prélèvements du foyer F6 (n° 1 à 18) et sur les prélèvements du dessus (n° 486, 489 et 491) et du dessous (n°485, 488 et 490) de la sole expérimentale. Ont été ajoutées les valeurs de susceptibilité magnétique des prélèvements TL des foyers F4 et F6.

Pour l'ensemble des sédiments chauffés sous l'influence d'un feu, les foyers F4 et F6 et la sole expérimentale, on atteint des valeurs de la susceptibilité magnétique similaires. Seuls les cubes, chauffés en laboratoire, ont des valeurs très inférieures.

Les valeurs de la susceptibilité magnétique susceptibilité magnétique mesurées sur les prélèvements pour l'analyse TL et les prélèvements pour l'analyse magnétique montrent une bonne cohérence pour certains prélèvements et de grandes différences pour d'autres (Figure 158). Ces divergences indiquent d'ores et déjà que les éventuelles comparaisons de paléotempérature entre la TL et le magnétisme devront être prises avec précautions particulièrement concernant les prélèvements pour lesquels la susceptibilité magnétique est très différente.

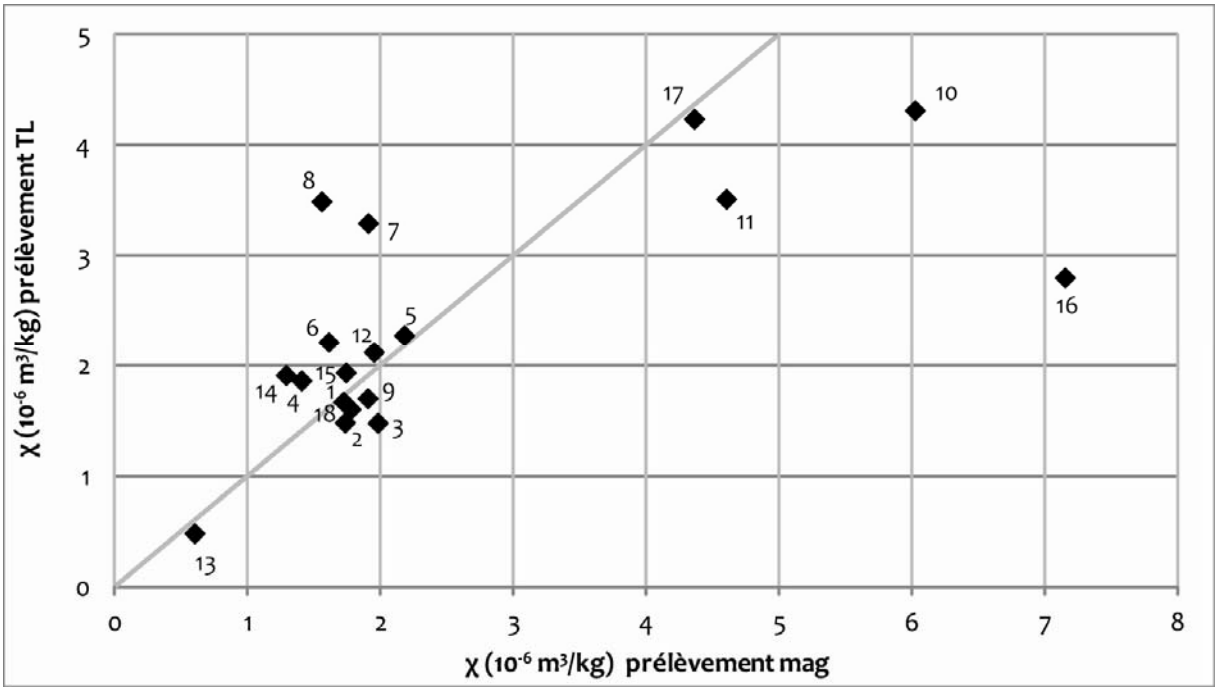


Figure 158 : Comparaison de la susceptibilité magnétique des prélèvements pour la TL en fonction de celle des prélèvements le magnétisme.

Dans la suite, ont été conservés pour les mesures des autres propriétés magnétiques, les cubes chauffés à 100°C, 200° C, 250°C, 300°C, 350°C, 550°C, 700°C et le cube non chauffé ainsi que les prélèvements du foyer F6 et de la sole expérimentale.

L'augmentation de la susceptibilité magnétique traduit une augmentation de la teneur en phases ferrimagnétiques, puisque ces dernières ont des valeurs de la susceptibilité magnétique de plusieurs ordres de grandeur supérieurs aux autres phases. Ce résultat est confirmé par l'augmentation simultanée des aimantations rémanentes à saturation, ARIs et ARAs, avec les plus faibles valeurs pour les cubes, des valeurs intermédiaires pour le foyer F6 et les plus fortes valeurs pour la sole expérimentale (Figure 159).

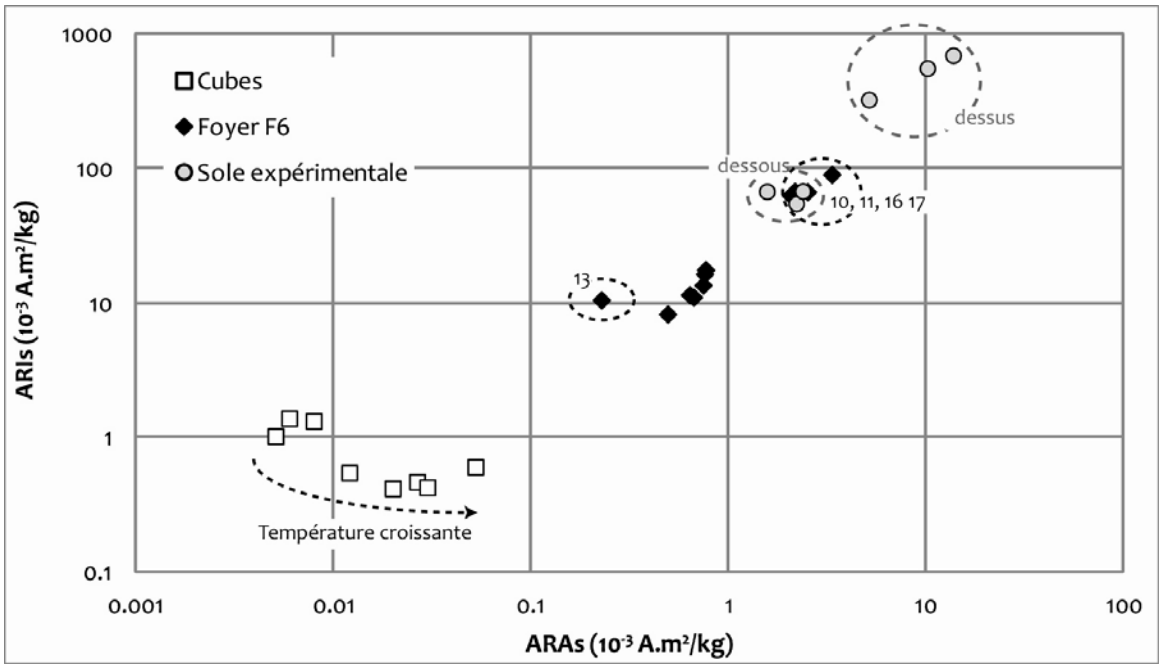


Figure 159 : Aimantation rémanente isotherme à saturation (ARIs) en fonction de l'aimantation rémanente anhystérétique à saturation (ARAs) pour les cubes, le foyer F6 et la sole expérimentale.

En résumé, il apparait que la teneur en phases ferrimagnétiques des cubes est la plus faible. Les prélèvements du foyer F6 montrent des teneurs plus fortes que les cubes et sont séparés en trois ensembles de teneur croissante : le n°13 ; les n°1 à 9, 12, 14, 15 et 18 ; le n°10,11, 16 et 17. Les prélèvements du dessous de la sole ont des teneurs comparables aux prélèvements n°10, 11, 16 et 17 du foyer F6 alors que ceux du dessus de la sole ont des teneurs encore supérieures.

Les cubes indiquent que la teneur en phases ferrimagnétiques augmente avec la chauffe. La minoration des teneurs observées provient probablement de l'atmosphère de chauffe (air sec) complètement différente de celle d'un feu (réductrice et saturée en eau) qui favorise la création des phases ferrimagnétiques. Ainsi, en considérant que la teneur en phases ferrimagnétiques augmente avec la température, on pourrait classer les prélèvements du foyer F6 et de la sole expérimentale par température croissante :

- *n°13*
- *n°1 à 9, 12, 14, 15 et 18*
- *n°10, 11, 16, 17 et les prélèvements du dessous de la sole (n°485, 488, 490)*
- *les prélèvements du dessus de la sole (n°486, 489, 491)*

Si on observe plus précisément le comportement de l'ARIs et de l'ARAs des cubes, il apparait que l'ARIs diminue avec la température alors que l'ARAs et la susceptibilité magnétique augmentent. Ces variations sont le résultat de modifications minéralogiques et de taille de grains. Afin de préciser ces deux points, nous allons maintenant présenter les courbes BF-ARI, AF-ARI et AF-ARA qui permettent d'appréhender les phases magnétiques en présence ainsi que des évolutions dans la taille de grains magnétiques.

Détermination de la minéralogie magnétique et des évolutions de la taille de grains :

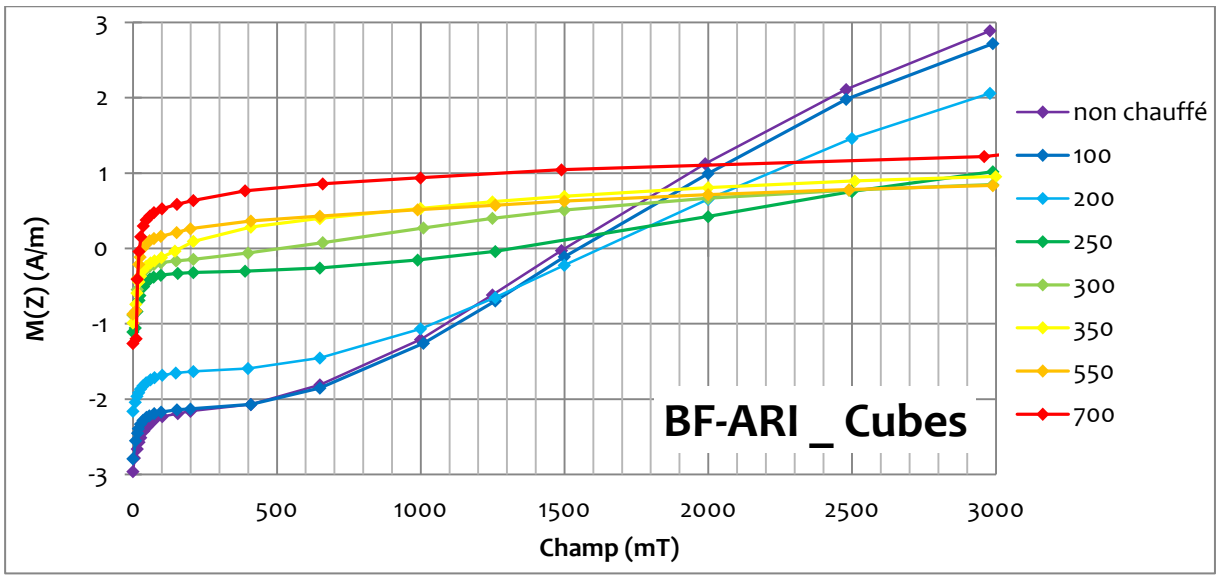
Les courbes BF-ARI, AF-ARI et AF-ARA des cubes sont présentées en valeurs brutes (Figure 160) et normées respectivement à la valeur de l'ARIs ou de l'ARAs (Figure 161). De la même manière, on a représenté les courbes des prélèvements du foyer F6 en valeurs brutes (Figure 163) et normées à l'ARIs (Figure 164). Les courbes AF-ARA des prélèvements du foyer F6 n'ont pas été mesurées pour des raisons de durée de manipulation. Pour la sole expérimentale, les courbes sont exposées en valeurs brutes (Figure 167) et normées à l'ARIs ou à l'ARAs (Figure 168).

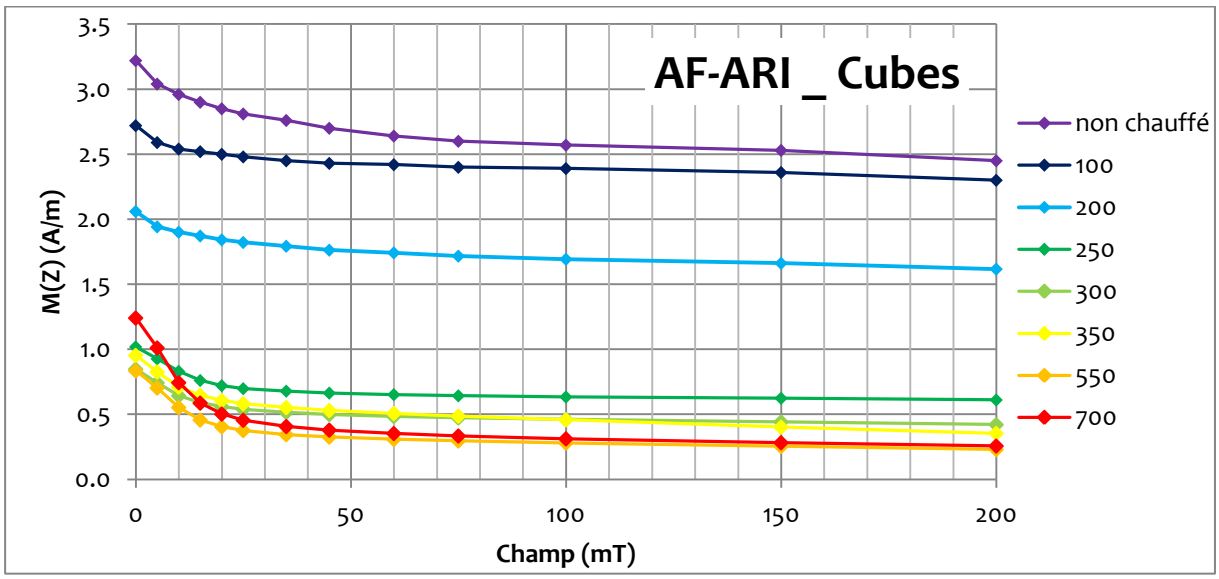
Pour ***les cubes***, l'ensemble des courbes BF-ARI, AF-ARI et AF-ARA montrent des évolutions significatives avec la température de chauffe :

- les courbes BF-ARI des cubes chauffés à T ≤ 200°C (Figure 160 et Figure 161 ; courbes de couleur bleu) montrent un palier autour de 200 mT qui indique la présence d'un minéral de faible coercivité de type magnétite et/ou maghémite.
  On observe ensuite une augmentation continue de l'aimantation jusqu'à 3 T traduisant la présence d'un minéral de forte coercivité. Ici, ce minéral est la goethite car le point d'inflexion n'est amorcé que peu avant 3 T. Si l'hématite était présente en concentration notable, alors un palier net existerait avant 3 T. La faible désaimantation AF à 200mT de l'ARI à 3T (moins de 25 % de l'ARI à 3T désaimantée, Figure 161) indique aussi la présence de goethite.
  De plus, la désaimantation AF de l'ARA montre une valeur de champ pour que l'ARA soit divisée par deux (MDF : *median destructive field*) de 25 mT (Figure 161). Cette valeur de champ, élevée pour des phases ferrimagnétiques seules (MDF ≈ 10-15 mT), indique la présence de phases de forte coercivité (hématite ou goethite).

- les courbes BF-ARI des cubes chauffés de 250°C à 350°C (Figure 161 ; courbes de couleur vert à jaune) montrent une inversion du sens d'inflexion des courbes indiquant la disparition progressive du minéral de forte coercivité, la goethite dont la température de déshydratation avoisine les 250°C (Walter *et al.*, 2001). La création de phases ferrimagnétiques est visible par l'augmentation de l'aimantation portée par les phases de faible coercivité, de 30 % pour 250°C à 50 % pour 350°C (Figure 161).

- les cubes chauffés de 350°C à 700°C (Figure 161, courbes de couleur jaune à rouge) montrent une teneur de plus en plus importante en phases ferrimagnétiques qui portent de 50 % (cube à 350°C) à 75 % (cube à 700°C) de l'ARI (Figure 161, BF-ARI). Cette observation est confirmée par une désaimantation AF de plus en plus efficace (Figure 161, AF-ARI). Cependant, la désaimantation AF à 200 mT n'étant que partielle il y a aussi présence d'un minéral de forte coercivité, l'hématite, présence confirmée par la saturation presque établie à 3T sur les courbes BF-ARI (Figure 161).





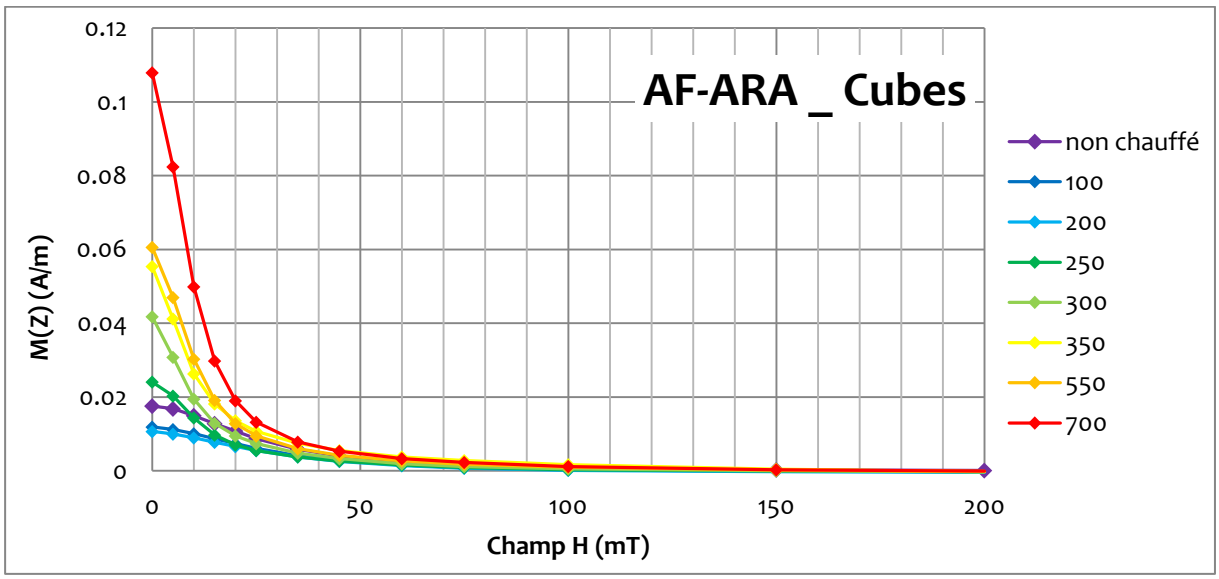
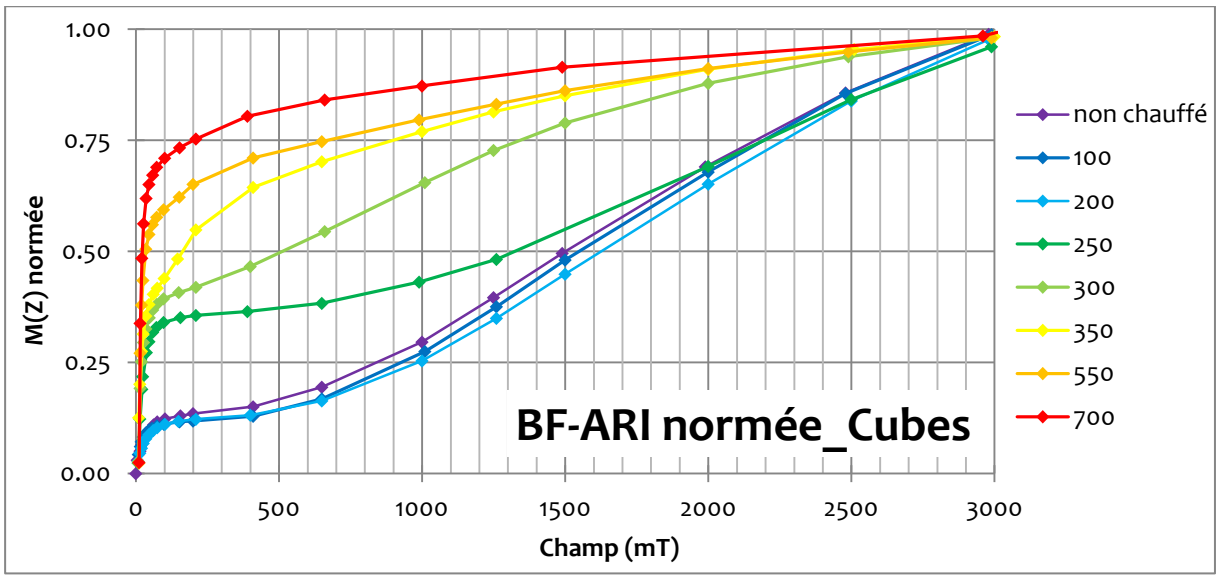
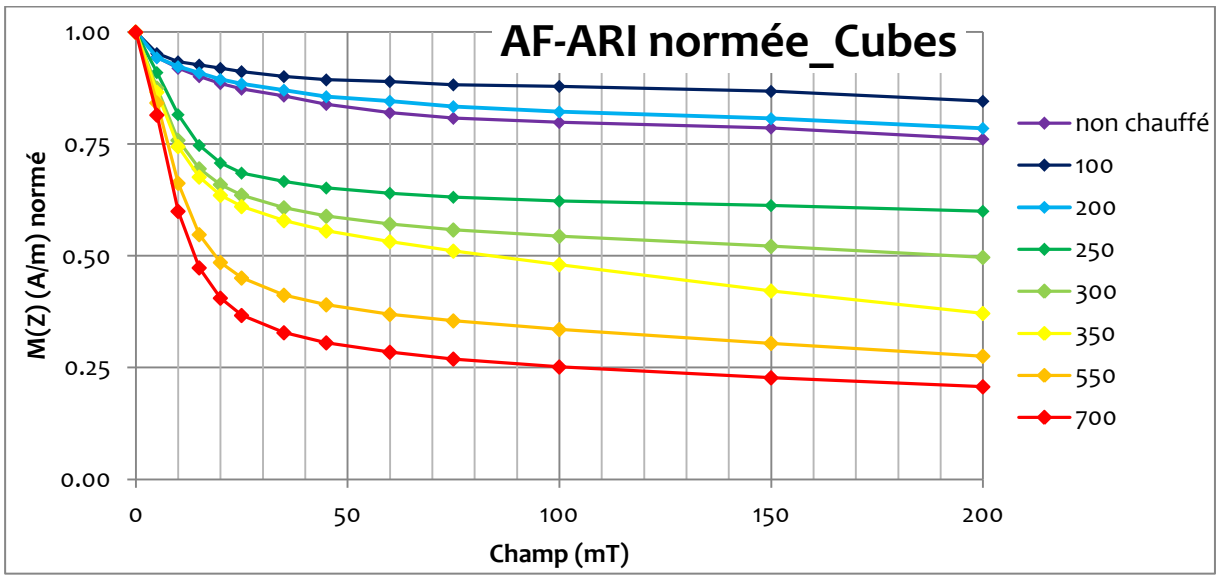


Figure 160 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) et courbes de désaimantation *Alternative-Field* de l'aimantation rémanente anhystérétique (AF-ARA) pour les cubes et en valeurs brutes.





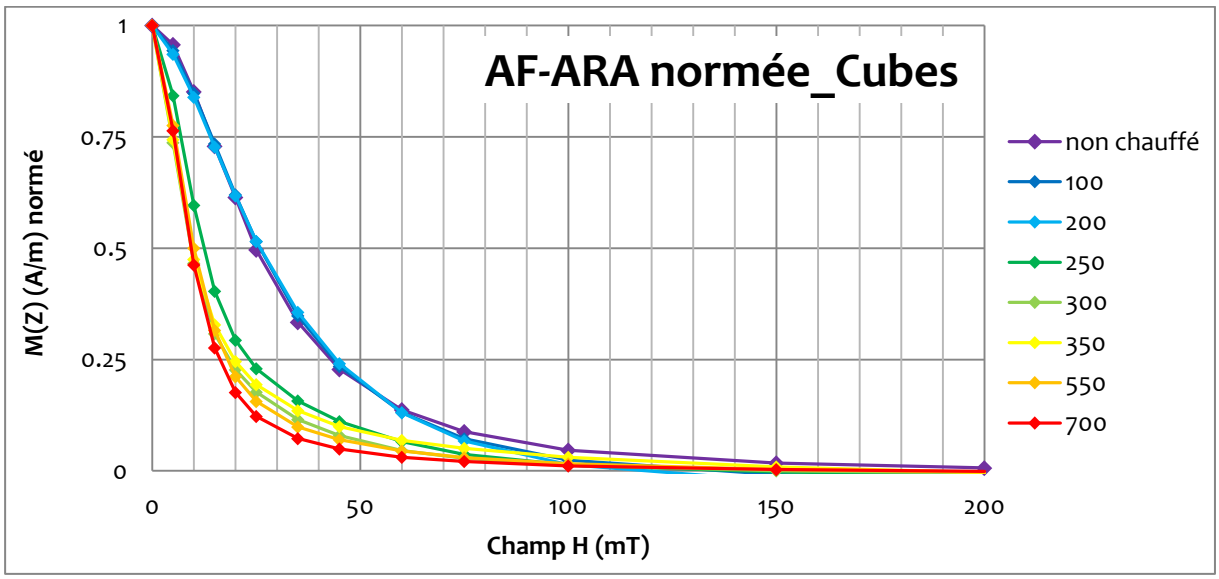


Figure 161 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) et courbes de désaimantation *Alternative-Field* de l'aimantation rémanente anhystérétique (AF-ARA) pour les cubes et en valeurs normées respectivement à l'ARIs et à l'ARAs.

Un recentrage des courbes BF-ARI sur 200 mT (Figure 162) permet d'observer la contribution à l'aimantation :

- des phases ferrimagnétiques pour les champs magnétiques inférieurs à 200 mT.
- des phases antiferromagnétiques canté pour les champs magnétiques supérieurs à 200 mT : les phases ferrimagnétiques ont atteint la saturation à 200 mT donc seules les phases antiferromagnétiques canté continuent de contribuer à l'aimantation.

Cette représentation permet d'observer que la contribution des phases ferrimagnétiques est triplée entre le cube non chauffé et le cube chauffé à 700°C.

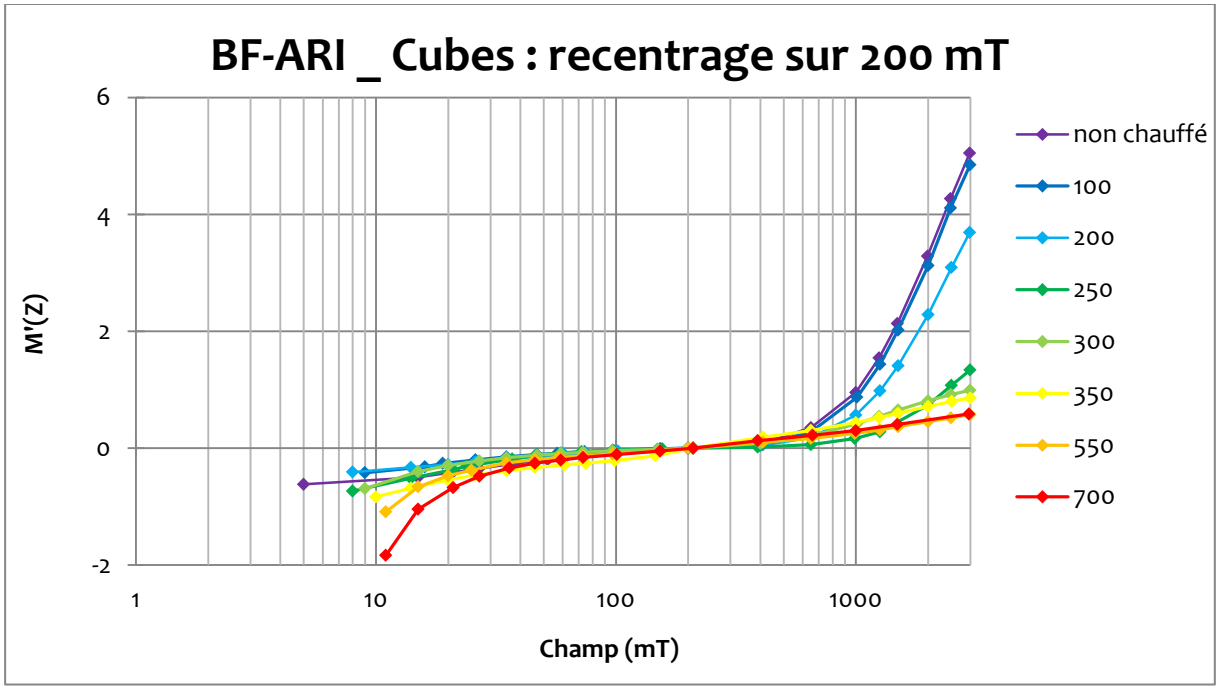


Figure 162 : Courbes d'aimantation *Back-Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI) recentrée à zéro pour 200 mT : M'(z) = [M(z) - M(200 mT)]

En résumé, pour les cubes, l'augmentation de température engendre la transformation de la goethite en phases ferrimagnétiques (magnétite et/ou maghémite) à partir de 250°C. La goethite disparait totalement au-delà de 350°C. Pour les cubes les plus chauffés, l'hématite est identifiée.

Pour ***le foyer F6***, les courbes BF-ARI et AF-ARI (Figure 163 et Figure 164) montrent des différences notables qu'il est possible de regrouper en trois ensembles :

- le n°13 est unique parmi les prélèvements du foyer F6. La courbe BF-ARI montre un palier à 200 mT indiquant la présence de phases de faible coercivité type magnétite et maghémite (Figure 164). L'aimantation augmente ensuite jusqu'à 3 T, sans que la saturation ne soit approchée, traduisant la présence de goethite. L'inflexion de la courbe légèrement au-delà de 1 T ne permet pas de rejeter l'hypothèse de la présence d'hématite. La désaimantation AF à 200 mT de l'ARIs est partielle (50 %) et confirme le mélange de phases de faible coercivité (magnétite/maghémite) et de forte coercivité (goethite et hématite). Si on compare les courbes BF-ARI de ce prélèvement avec celles des cubes chauffés à 250°C et 300°C (Figure 165), on observe un comportement similaire : une proportion de phases ferrimagnétiques comparable à celle du cube à 300°C ainsi qu'une proportion de phases de forte coercivité (hématite et goethite) semblable. La position intermédiaire de la courbe entre celles des deux cubes indique un décalage du point d'inflexion traduisant une destruction intermédiaire de la goethite au profit de l'hématite, ou du moins de manière simultanée.
  La similitude des phases observées pourrait permettre d'estimer une température de chauffe de ce prélèvement entre 250°C et 300°C. Néanmoins, il est aussi possible que la goethite détectée ne soit pas d'origine mais qu'elle se soit formée ensuite étant donnée la présence permanente d'eau dans la grotte des Fraux. Une telle hypothèse est cependant peu probable car sur les 18 prélèvements effectués la goethite n'est détectée que dans celui-ci. De plus, le prélèvement étant en bordure du foyer la présence de goethite et une interprétation de température de 250-300°C sont plausibles.

- les n°10, 11, 16 et 17 forment un ensemble à part parmi les prélèvements du foyer F6. Leurs courbes BF-ARI (Figure 163 et Figure 164) montrent une saturation dès 100 mT indiquant la prédominance de phases ferrimagnétiques (magnétite/maghémite). La goethite n'est pas détectée, ce qui, si on compare avec les cubes, met en évidence une chauffe à une température supérieure à 350°C. L'hématite n'apparait ni sur les courbes BF-ARI, ni sur les courbes de désaimantation AF à 200 mT de l'ARI à 3T (Figure 164) : la saturation de Bf-ARI et la désaimantation AF-ARI sont totales à 200 mT. L'hématite peut cependant être présente mais étant donnée la différence de deux ordres de grandeur entre la capacité d'aimantation de l'hématite et celle de la magnétite, son signal serait masqué par celui des phases ferrimagnétiques.

- les autres prélèvements du foyer F6 présentent des courbes BF-ARI (Figure 164) avec une saturation presque totale à 200 mT traduisant la prédominance des phases ferrimagnétiques (magnétite/maghémite). L'absence de la saturation totale trahit la présence d'une phase de forte coercivité, l'hématite très probablement ou des traces de goethite. Les désaimantations AF à 200mT de l'ARI à 3 T (Figure 164) ne sont pas tout à fait totales (> 85 %) indiquant aussi la présence de phases de forte coercivité. Compte tenu des valeurs de MDF (*median destructive field*) autour de 15 mT (valeur maximale pour des phases ferrimagnétiques), l'hématite ou la goethite sont ici en très faible proportion (MDF de l'hématite autour de 200 mT). Si on regarde les courbes BF-ARI entre 200 mT et 3 T, on parvient à distinguer des prélèvements qui sont à saturation

à 3 T (n°1, 2, 5, 8, 12, 14 et 15 ; pas de goethite) et d'autres pour lesquels l'ARI à tendance à croitre encore (n°3, 4, 6, 7, 9, 18) pour lesquels des traces de goethite sont possibles. Dans ces derniers prélèvements, la goethite peut avoir deux origines : soit une néoformation après le feu, soit une « pollution » de sédiment non chauffé dans le prélèvement.

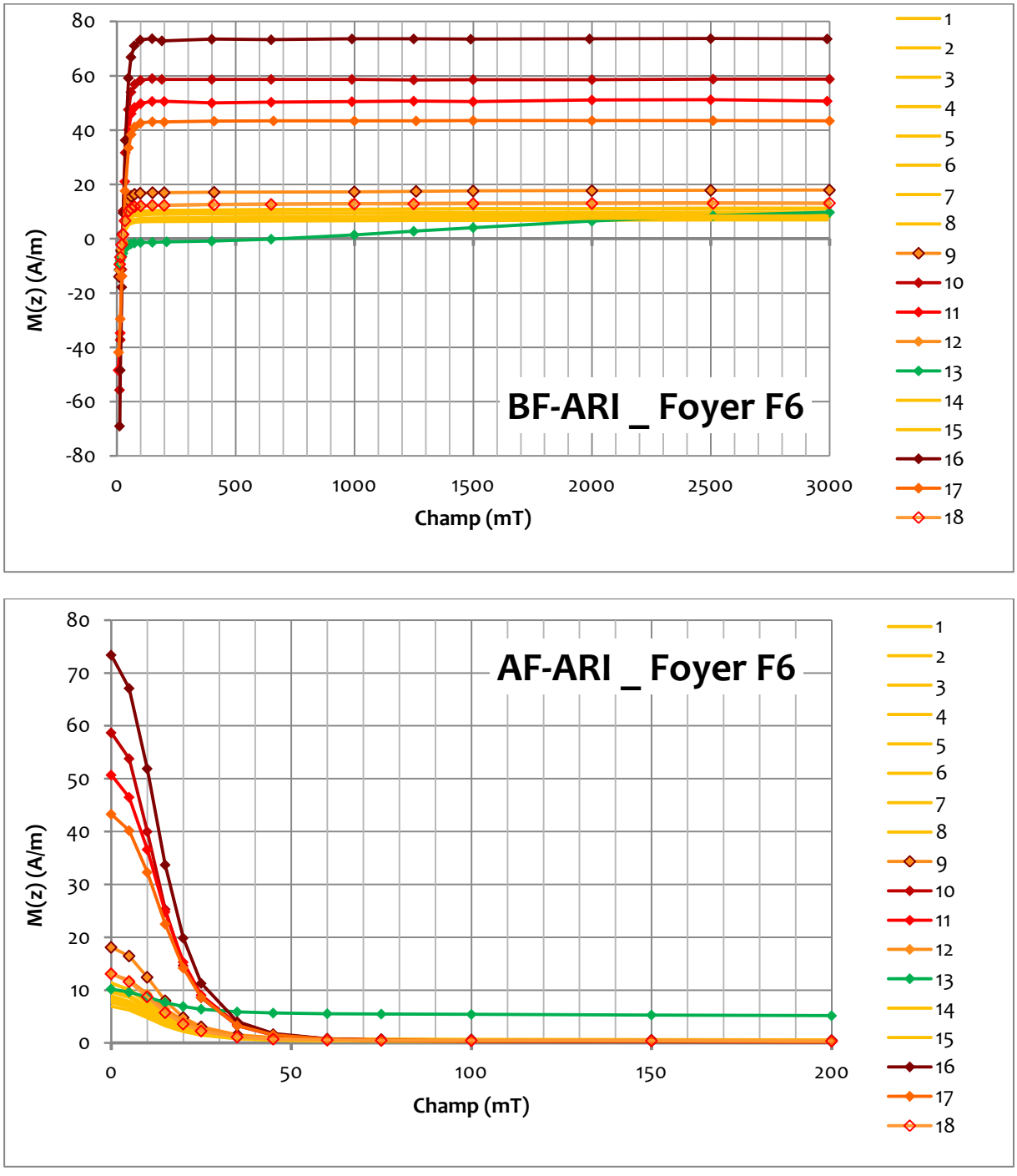
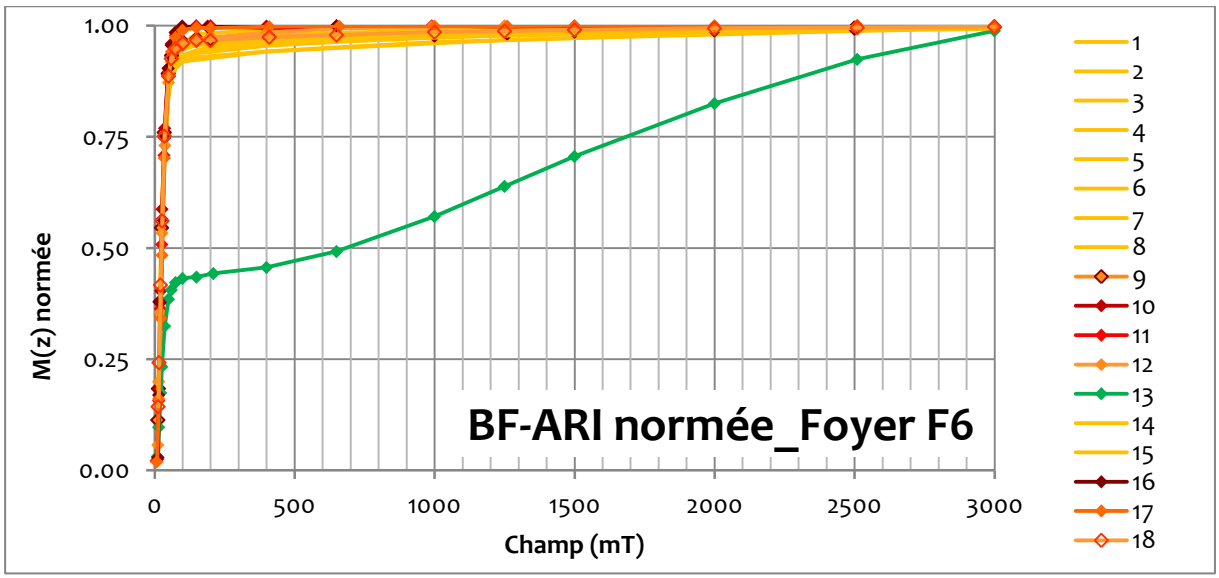


Figure 163 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) pour les prélèvements du foyer F6 et en valeurs brutes.



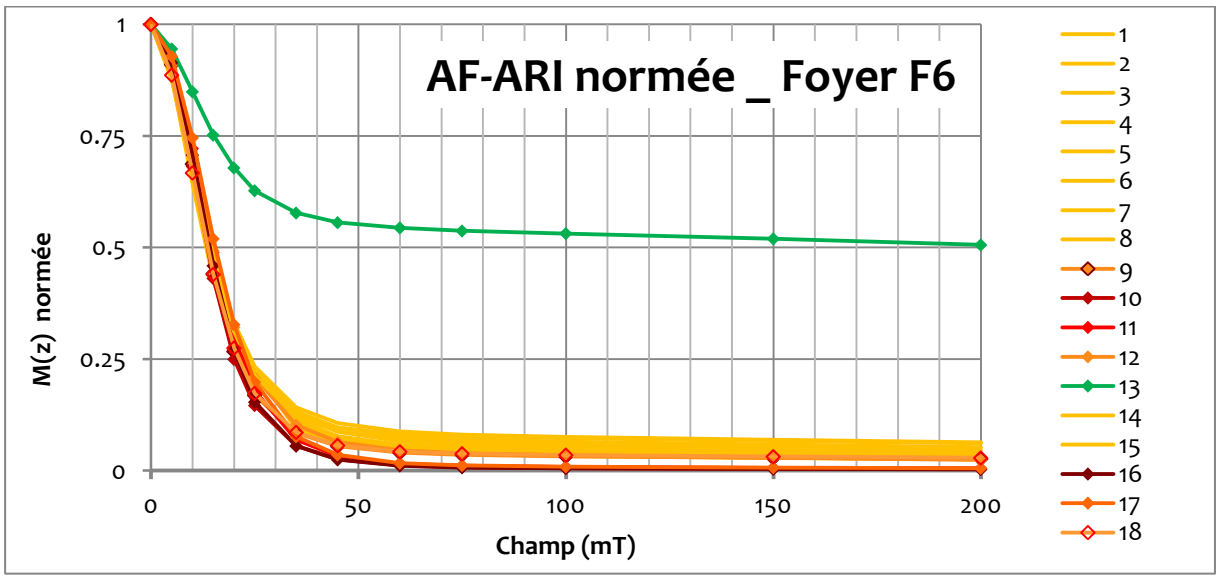


Figure 164 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) pour les prélèvements du foyer F6 et en valeurs normées à l'ARI à saturation (ARIs).

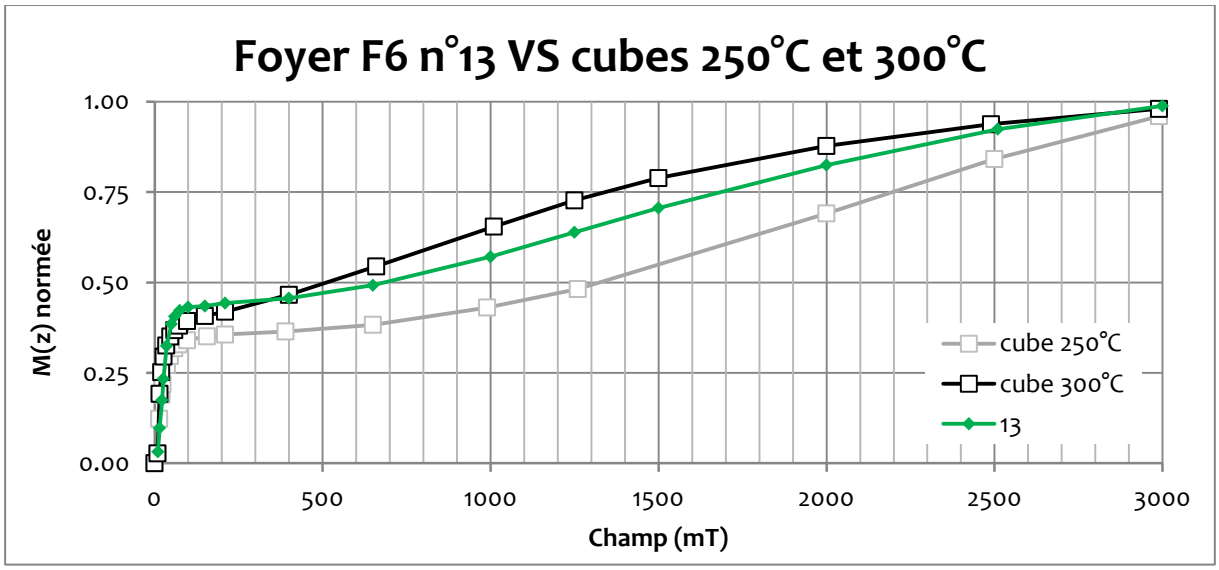


Figure 165 : Comparaison entre les courbes d'aimantation Back-Field de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI) du prélèvement n°13 du foyer F6 et des cubes chauffés à 250°C et 300°C.

La capacité d'aimantation (exprimée par ARIs) augmente avec l'état de saturation à 200 mT (Figure 166) traduisant que plus la teneur en phases ferrimagnétiques est élevée, plus la saturation à 200 mT est atteinte.

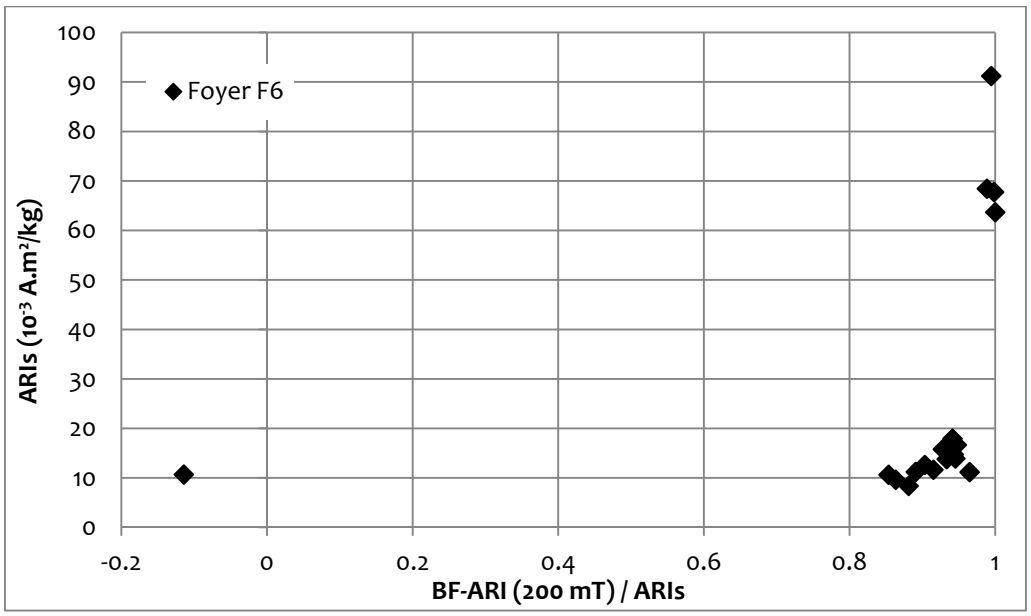


Figure 166 : Aimantation rémanente à saturation (ARIs) en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT.

En résumé, trois groupes sont distingués parmi les prélèvements du foyer F6 :

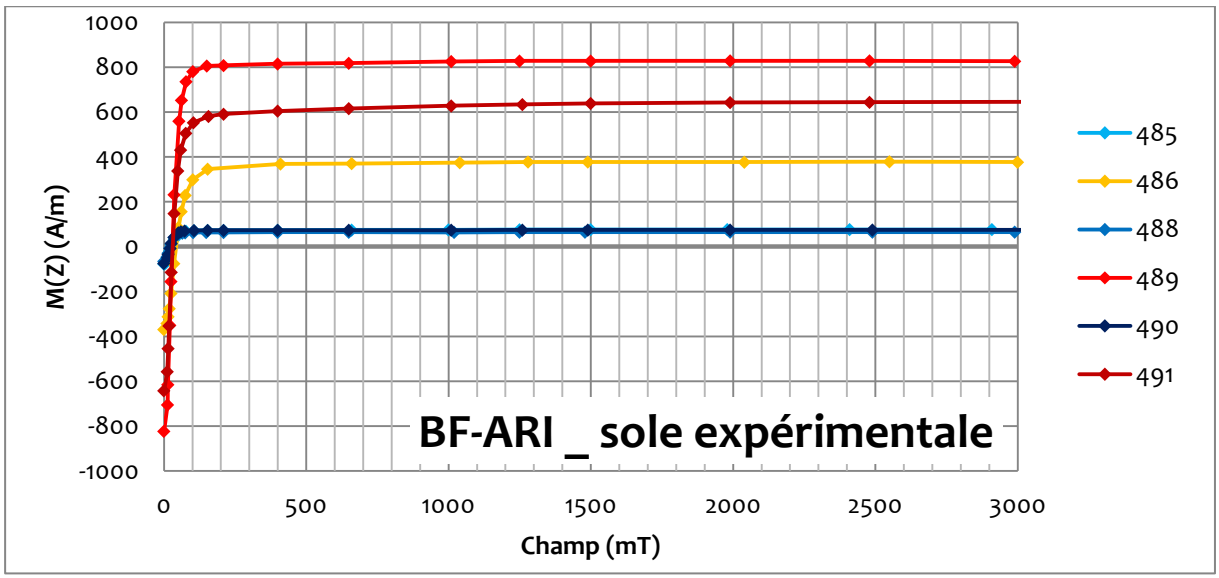
- *un unique échantillon avec des phases ferrimagnétiques, de l'hématite et de la goethite (n°13), a priori moins chauffé que les autres (même si l'hypothèse d'une néoformation de goethite ne peut être totalement exclue) ;*
- *quatre prélèvements avec uniquement des phases ferrimagnétiques (magnétite/maghémite) ;*
- *onze autres prélèvements avec une prépondérance de phases ferrimagnétiques et une présence détectable de l'hématite (ou trace de goethite).*

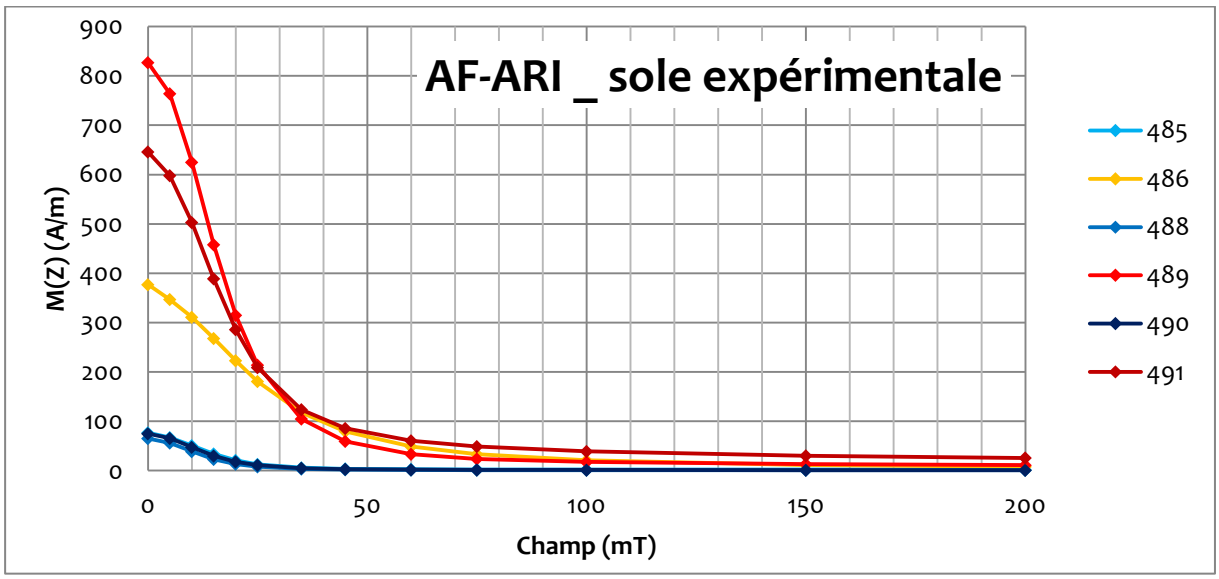
Pour les prélèvements de ***la sole expérimentale*** les courbes BF-ARI, AF-ARI et AF-ARA (Figure 167 et Figure 168) différentient les prélèvements du dessous de la sole (n°485, 488 et 490, courbes bleues) de ceux du dessus de la sole (n°486, 489 et 491, courbes orangées-rouges).

Les courbes d'aimantation BF-ARI (Figure 168) montrent une saturation presque totale dès 200 mT indiquant la prédominance de phases ferrimagnétiques (magnétite/maghémite) avec néanmoins une faible quantité d'hématite mise en évidence par une saturation atteinte vers 2 ou 3 T. La présence d'hématite, en faible proportion compte tenu des valeurs de MDF (≤ 25 mT), est confirmée par les désaimantations AF à 200 mT de l'ARI à 3T qui ne sont pas totales (> 90 % ; Figure 168).

On observe aussi une augmentation de la coercivité visible sur les courbes AF-ARI (Figure 168). Le MDF (*median destructive field*) de l'ARI varie de 12 à 25 mT, et sur les courbes AF-ARA (Figure 168), le MDF de l'ARA varie de 15 à 32 mT. Etant donné la faible contribution de l'hématite, cette augmentation pourrait être induite par diminution de la taille des grains ferrimagnétiques polydomaines (MD) vers pseudo-monodomaines (PSD) sans aborder les monodomaines puisque la désaimantation décroit dès les premiers paliers (Dankers, 1978 ; Dunlop et Özdemir, 1997). Les prélèvements du dessus de la sole (n°486, 489 et 491) possèdent les MDF les plus élevés. Cependant, pour le prélèvement n°486, la valeur de MDF de l'ARA supérieure à 30 mT indique une présence en plus forte proportion de l'hématite.

En résumé, les prélèvements de la sole expérimentale ont une minéralogie dominée par les phases ferrimagnétiques avec tout de même une faible proportion d'hématite. Cette proportion parait augmenter sur le dessus de la sole donc pour des températures de chauffe plus élevées.





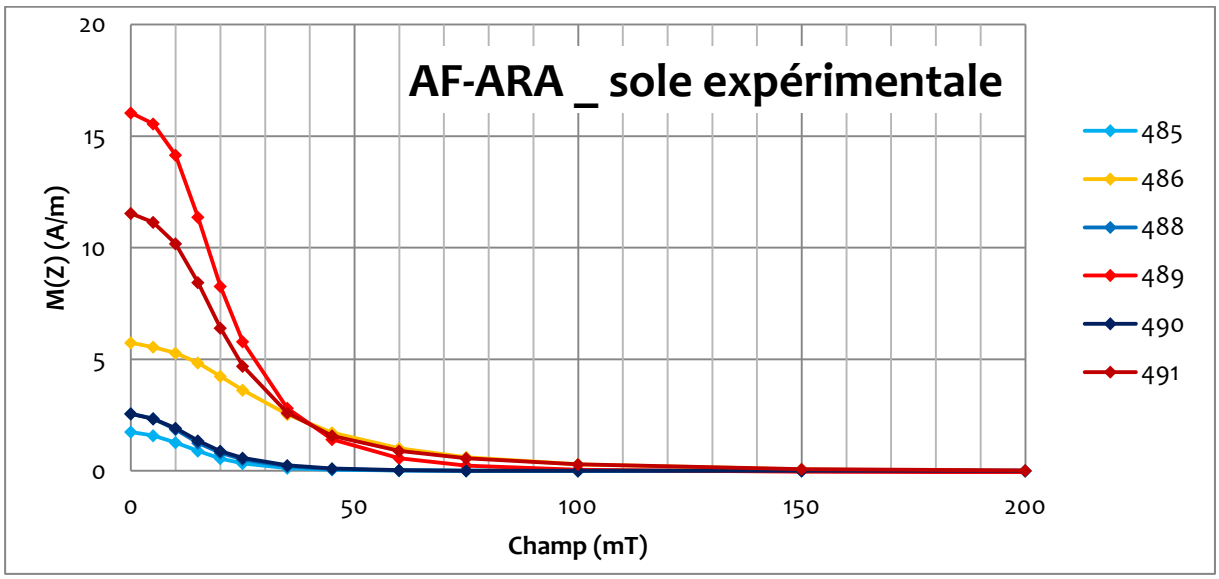


Figure 167 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) et courbes de désaimantation *Alternative-Field* de l'aimantation rémanente anhystérétique (AF-ARA) pour les prélèvements de la sole expérimentale et en valeurs brutes.
Courbes rouges : prélèvements provenant du dessus de la sole ; Courbes bleues du dessous de la sole.

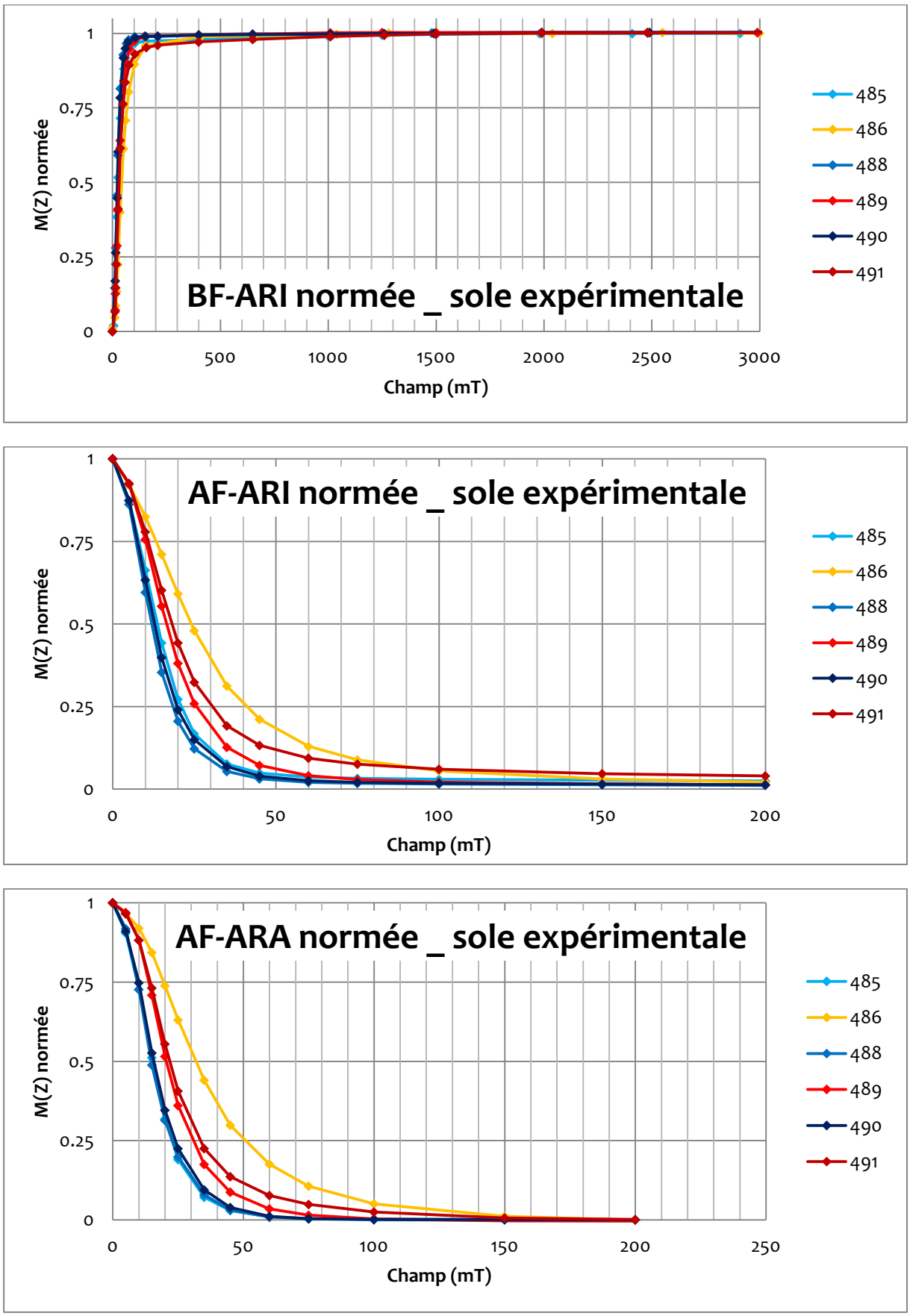


Figure 168 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) et courbes de désaimantation *Alternative-Field* de l'aimantation rémanente anhystérétique (AF-ARA) pour les prélèvements de la sole expérimentale et en valeurs normées respectivement à l'ARI à saturation (ARIs) et à l'ARA à saturation (ARAs).
Courbes rouges : prélèvements provenant du dessus de la sole ; Courbes bleues du dessous de la sole.

Pour pouvoir comparer les évolutions observées sur les cubes, les prélèvements du foyer F6 et ceux de la sole expérimentale à partir des aimantations rémanentes, certains paramètres caractéristiques de la minéralogie magnétique ou de la taille de grain ont été mis en relation :

- le rapport BF-ARI (200 mT) / ARIs correspond à l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT. C'est un rapport caractéristique de la minéralogie et de la teneur en phases ferrimagnétiques : des valeurs négatives indiquent la présence de goethite en plus d'une éventuelle présence de phases ferrimagnétiques et d'hématite ; des valeurs positives mais inférieure à 1 indiquent l'absence de goethite, la présence de phases ferrimagnétiques et d'hématite en proportion de plus en plus faible lorsqu'on s'approche de 1 ; des valeurs de 1 indique la prédominance de phases ferrimagnétiques qui peuvent masquer la présence éventuelle d'hématite. Ce rapport est utilisé comme abscisse dans l'ensemble des figures ci-dessous (Figure 169, Figure 170, Figure 171, Figure 172).
- le rapport AF-ARI (25 mT) / ARIs correspond au reste de l'aimantation rémanente isotherme après une désaimantation *Alternative Field* à 25 mT. Lorsque ce rapport est supérieur ou égal à 0.5, la contribution des phases antiferromagnétiques canté, goethite et/ou hématite n'est pas négligeable (Figure 169) et l'augmentation éventuelle de coercivité est liée à la présence en proportion variable de ces phases plutôt qu'à des modifications de taille de grains ferrimagnétiques. Ceci concerne les cubes chauffés de 25°C à 350°C, le prélèvement n°13 du foyer F6 et le prélèvement n°486 de la sole expérimentale.

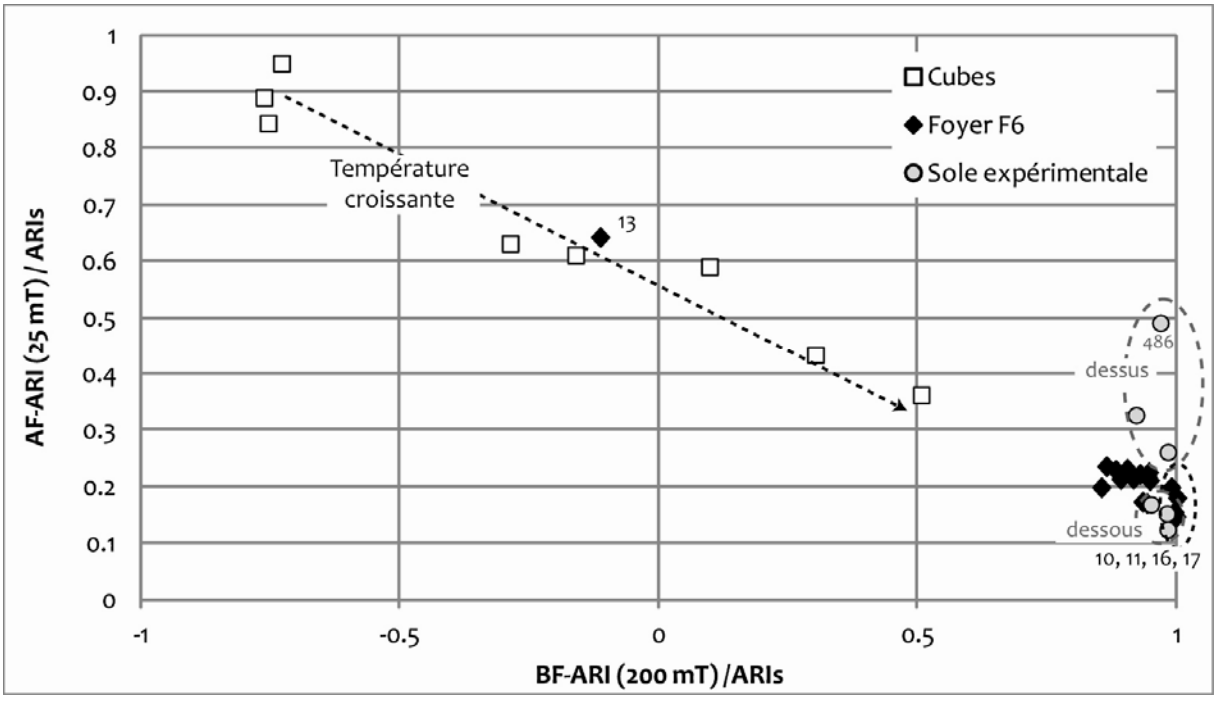


Figure 169 : Reste de l'aimantation rémanente isotherme après une désaimantation à 25 mT en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes, les prélèvements du foyer F6 et ceux de la sole expérimentale.

- le rapport AF-ARI (15 mT) / ARIs correspond au reste de l'aimantation rémanente isotherme après une désaimantation *Alternative Field* à 15 mT. Ce rapport est principalement dépendant de la taille de grains ferrimagnétiques lorsque la contribution à l'aimantation des phases antiferromagnétiques canté (goethite et hématite) est faible. Dans ce cas, lorsque la valeur de ce rapport passe au dessus de 0.5, ceci indique une augmentation de la coercivité liée à une diminution de la taille de grains polydomaines (MD) vers monodomaines (SD) (Figure 170).

Sinon c'est l'évolution de la minéralogie qui est observée : plus le rapport augmente plus il y a de phases de forte coercivité (goethite et/ou hématite).
On peut observer l'augmentation de ce rapport, donc la diminution de taille de grain de MD vers SD, pour les prélèvements du dessus de la sole hormis le n°486 (présence non négligeable d'hématite) par rapport à ceux du dessous de la sole et aux prélèvements du foyer F6.

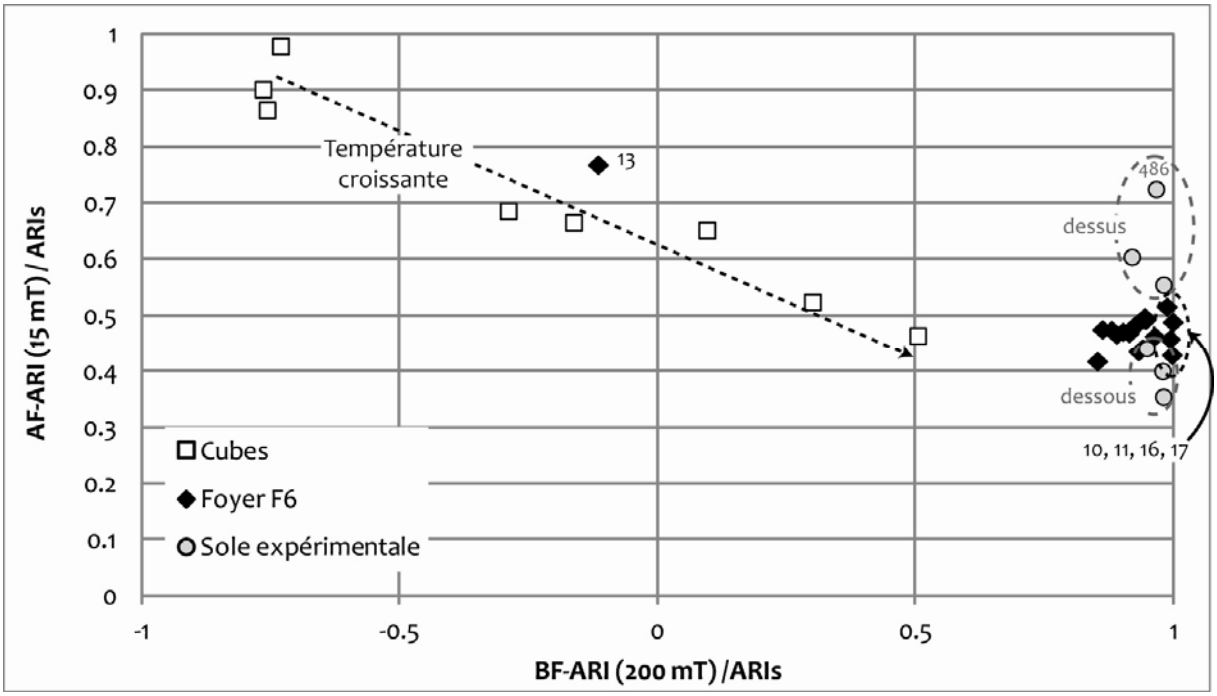


Figure 170 : Reste de l'aimantation rémanente isotherme après une désaimantation à 15 mT en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes, les prélèvements du foyer F6 et ceux de la sole expérimentale.

De la même manière qu'avec les rapports AF-ARI (25 mT) / ARIs et AF-ARI (15 mT) / ARIs, les rapports AF-ARA (25 mT) / ARAs et AF-ARA (15 mT) / ARAs renseignent aussi sur la part de la contribution des phases antiferromagnétiques canté (goethite et/ou hématite) et, si elle est négligeable, sur la taille des grains ferrimagnétiques :

- le rapport AF-ARA (25 mT) / ARAs correspond au reste de l'aimantation rémanente anhystérétique après une désaimantation *Alternative Field* à 25 mT. Lorsque ce rapport est supérieur ou égal à 0.5, la contribution des phases antiferromagnétiques canté, goethite et/ou hématite n'est pas négligeable (Figure 171). C'est le cas des cubes peu chauffés (< 250°C) et du prélèvement n°486 de la sole expérimentale.

- le rapport AF-ARA (15 mT) / ARAs correspond au reste de l'aimantation rémanente anhystérétique après une désaimantation *Alternative Field* à 15 mT. Ce rapport est lui aussi dépendant de la taille de grains ferrimagnétiques si la contribution des phases goethite/hématite est faible. Lorsque ce rapport passe au-delà de 0.5 c'est qu'il y a une augmentation de la coercivité induite par une diminution de la taille de grains polydomaines vers monodomaines (Figure 172). Lorsque la contribution des phases goethite et/ou hématite n'est pas négligeable, c'est l'augmentation de coercivité liée à leur présence qui est visible.

Les résultats sur la sole expérimentale sont les mêmes qu'avec l'AF-ARI mais le manque de données sur le foyer F6 rendent cette propriété inexploitable ici.

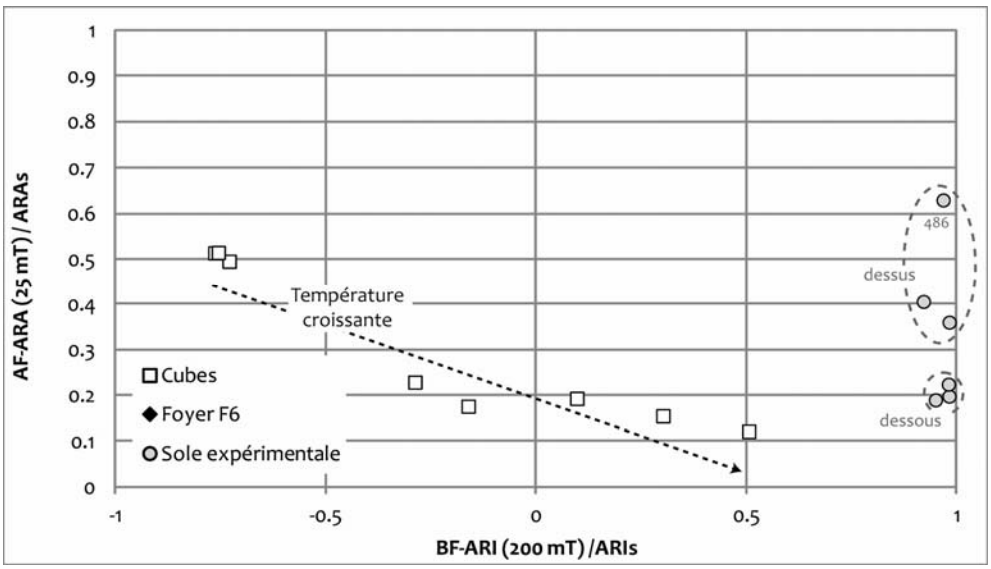


Figure 171 : Reste de l'aimantation rémanente anhystérétique après une désaimantation à 25 mT en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes et les prélèvements de la sole expérimentale.

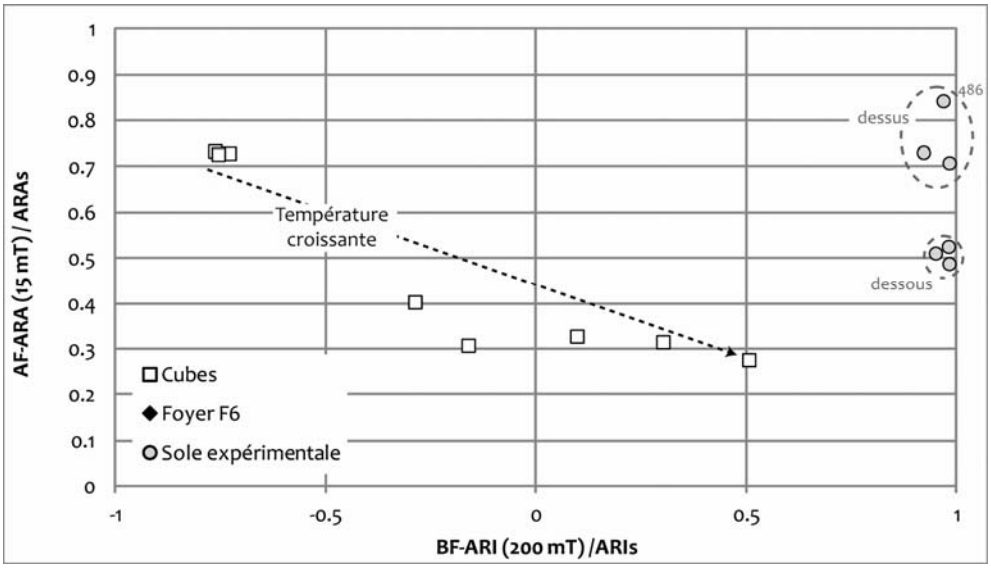


Figure 172 : Reste de l'aimantation rémanente anhystérétique après une désaimantation à 15 mT en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes et les prélèvements de la sole expérimentale.

- le rapport ARAs / ARIs correspond au rapport de l'aimantation rémanente anhystérétique sur l'aimantation rémanente isotherme à saturation. Pour une population de grains monodomaines (SD) et de grains plus gros, l'ARA est plus sensible aux grains SD que l'ARIs (Yamazaki et Ioka, 1997). Le rapport ARAs/ARIs sera donc d'autant plus élevé que la proportion de SD sera importante. Par ailleurs ce rapport est aussi dépendant de la concentration en phases ferrimagnétiques et diminue quand la concentration en magnétite augmente (Sugiura, 1979). Sur la figure ci-dessous (Figure 173), on observe le comportement de ce rapport en fonction de la teneur en phases ferrimagnétiques exprimée par le rapport BF-ARI (200 mT) / ARIs. Pour les ***cubes***, les variations sont dominées par les modifications minéralogiques incluant la disparition de goethite et la création de phases ferrimagnétiques. Pour le ***foyer F6***, ARAs/ARIs diminue quand BF-ARI (200 mT) / ARIs augmente traduisant l'influence dominante de la teneur en phases ferrimagnétiques. Pour la ***sole expérimentale***, ARAs/ARIs est plus faible pour le dessus que pour le dessous alors que BF-ARI (200 mT) / ARIs diminue : ceci traduit une augmentation de la teneur en phases ferrimagnétiques ainsi que l'apparition d'hématite.

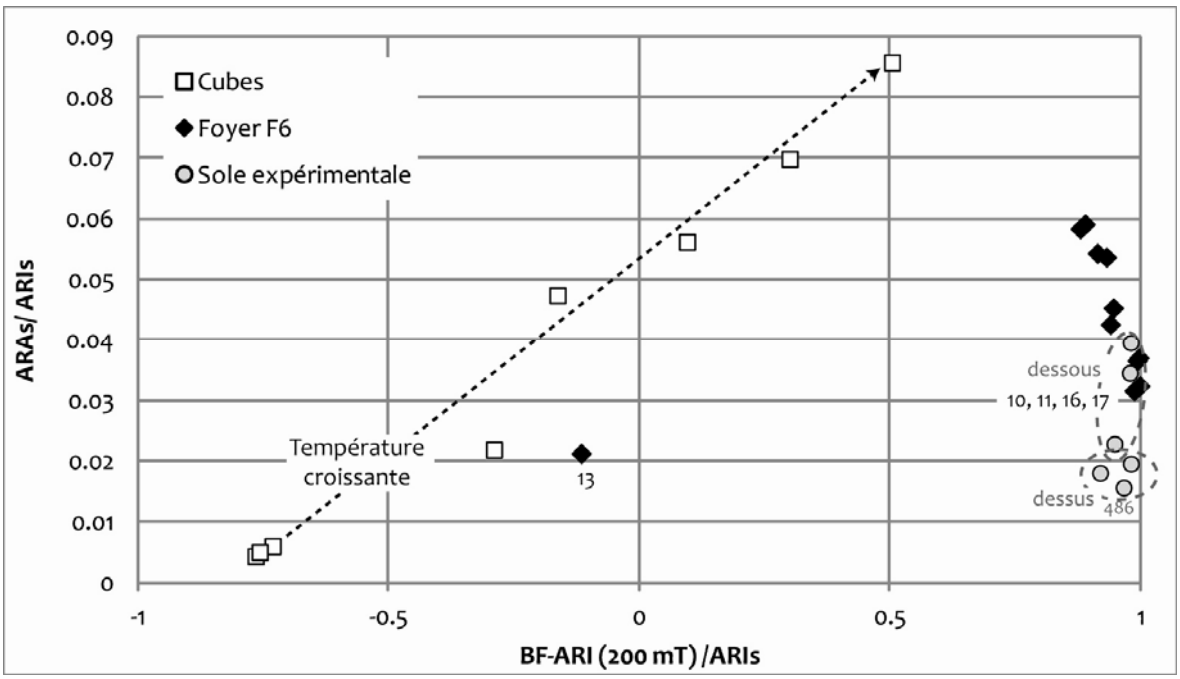


Figure 173 : Rapport de l'aimantation rémanente anhystérétique sur l'aimantation rémanente isotherme à saturation en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes et les prélèvements de la sole expérimentale.

- le champ coercitif rémanent (Hcr) correspond au champ magnétique pour lequel l'aimantation rémanente isotherme devient nulle lors de l'acquisition BF de l'ARI. Il peut être un indicateur de la taille de grains magnétiques lorsque la contribution de phases antiferromagnétiques canté est faible. Pour les ***cubes***, les variations sont dominées par les modifications minéralogiques (Figure 174). Pour le ***foyer F6***, il n'y a pas de modification notable de Hcr. Pour la ***sole expérimentale***, il y a une légère augmentation de Hcr pour les trois prélèvements du dessus de la sole, donc une possible diminution de la taille de grains polydomaines (MD) vers monodomaines (SD) ou une proportion d'hématite plus importante.

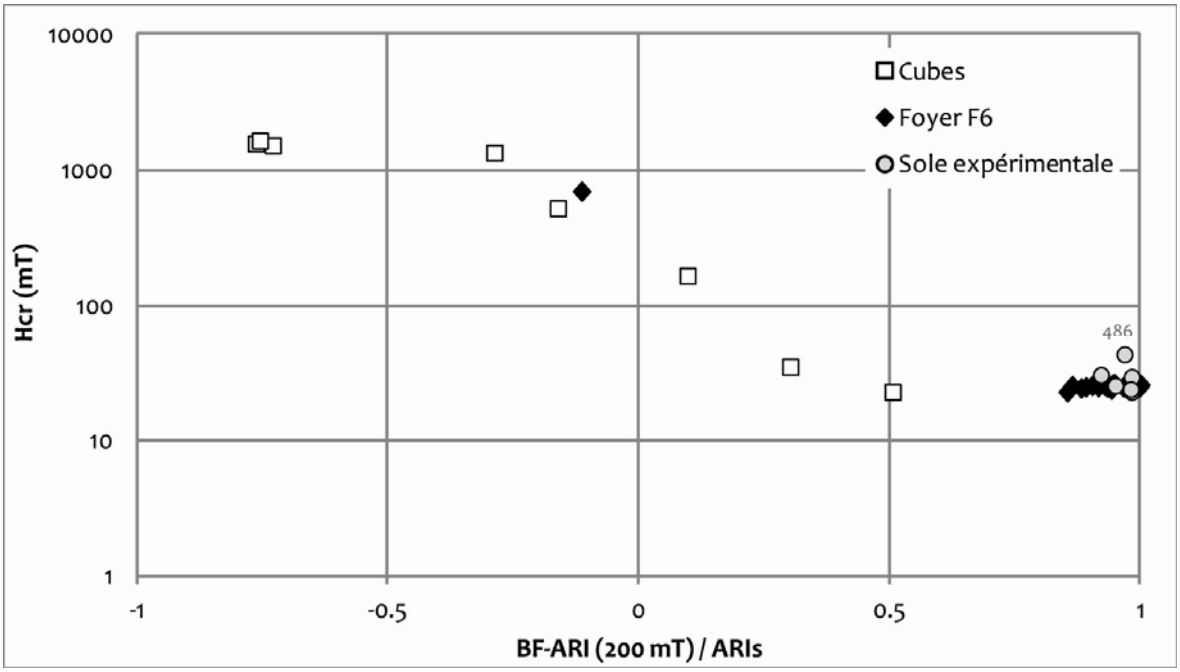


Figure 174 : Variation du champ coercitif rémanent (Hcr) en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes et les prélèvements de la sole expérimentale.

Si on observe maintenant le comportement du rapport ARAs/ARIs en fonction du champ coercitif rémanent (Figure 175) : sachant que Hcr augmente quand la taille de grains magnétiques diminue de polydomaines (MD) vers monodomaines (SD) et que le rapport ARAs/ARIs, quand à lui augmente avec la proportion de grains SD, on aurait pu attendre une croissance d'ARAs/ARIs avec Hcr. Cependant, ce comportement ne se vérifie que si la minéralogie est constante. Les variations de Hcr en fonction de ARAs/ARIs pour le ***foyer F6*** et la ***sole expérimentale*** (Figure 175) montrent que c'est l'influence des changements minéralogiques qui domine puisque Hcr augmente et ARAs diminue par rapport à ARIs avec l'augmentation en proportion des phases antiferromagnétiques canté.

La Figure 175 permet d'observer :

- entre 250°C et 350°C, la destruction de la goethite au profit de la magnétite : diminution de Hcr simultané à un accroissement d'ARAs/ARIs.

- une augmentation de la teneur en phases ferrimagnétiques pour les prélèvements du foyer F6 et de la sole expérimentale, *a priori* lié à la température atteinte : diminution d'ARAs/ARIs et Hcr constant.

- une augmentation de la quantité d'hématite pour les prélèvements de la sole expérimentale les plus chauffés : accroissement de Hcr.

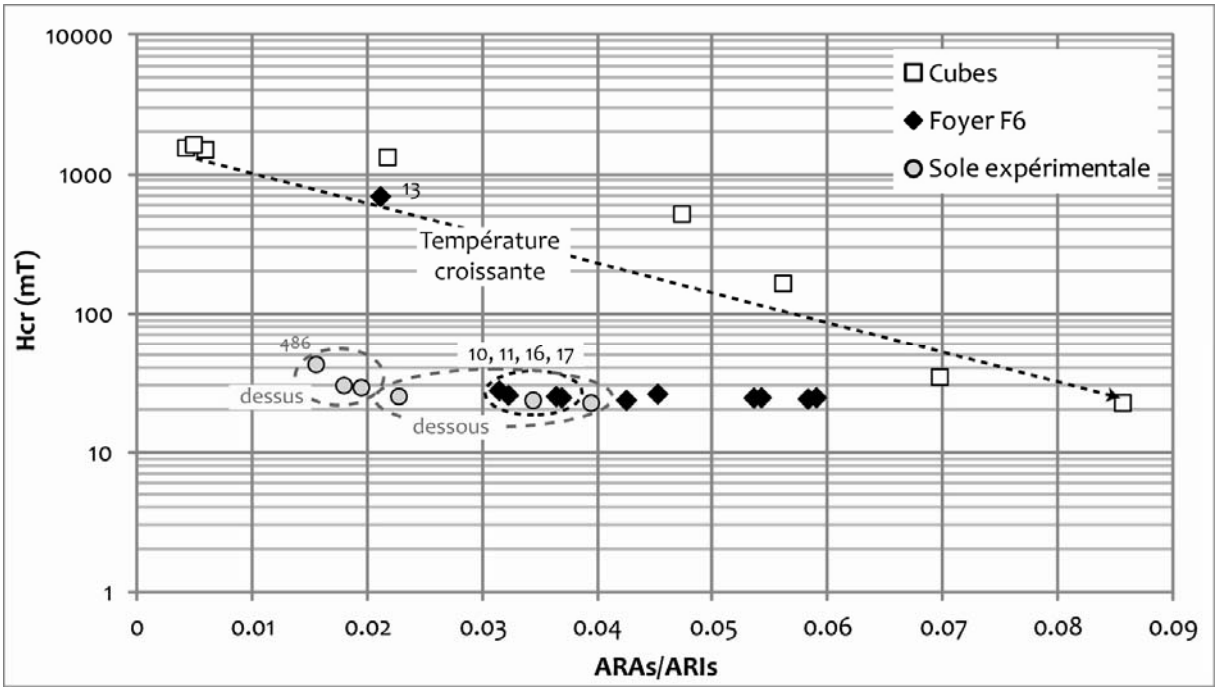


Figure 175 : Champ coercitif rémanent en fonction du rapport de l'aimantation rémanente anhystérétique et de l'aimantation rémanente isotherme à saturation.

En résumé, les mesures des courbes d'aimantation BF-ARI est de désaimantation AF-ARI et AF-ARA permettent d'identifier les phases en présence. Dans notre cas ont été détectées la ***goethite*** *et l'****hématite*** *pour les phases de forte coercivité et la* ***magnétite/maghémite*** *pour les phases ferrimagnétiques de faible coercivité. On remarque que lorsque les prélèvements sont chauffés, cas des cubes chauffés à T > 350°C, des prélèvements du foyer F6 excepté le n°13 et des prélèvements de la sole foyère, se sont les phases ferrimagnétiques qui dominent le signal. La présence d'hématite a été détectée de manière indiscutable sur le prélèvement n°486 du dessus de la sole expérimentale. Pour les autres prélèvements du dessus de la sole (n°489 et 491), l'augmentation de coercivité peut être induite soit par la présence d'hématite en plus faible quantité, soit par une diminution de la taille de grains polydomaines vers monodomaines. Concernant les prélèvements du foyer F6, les variations sont trop minimes pour pouvoir les interpréter en termes de variation de taille de grains. Enfin, les observations faites sur les cubes ne sont pas comparables à celles réalisées sur les autres prélèvements : la minéralogie, goethite aux faibles températures puis hématite aux températures élevées, et son évolution dominent tous les paramètres de rémanence permettant de détecter une éventuelle évolution de taille de grain.*

***

Il apparait que l'évolution de la minéralogie contrôle les variations des propriétés magnétiques de rémanence des sédiments et ne permet pas de séparer l'influence de la taille de grain de monodomaines à polydomaines.

La rémanence est cependant insensible aux grains les plus fins, les grains dits superparamagnétiques, qui ne possèdent pas de rémanence. Pour appréhender leur présence et leur proportion, des mesures de la susceptibilité magnétique en dépendance de fréquence et de la viscosité magnétique par traînage ont été effectuées. Ces mesures renseignent sur la présence de grains superparamagnétiques (SP), à la limite superparamagnétique/monodomaine (SP/SD) et polydomaines (MD, uniquement pour le trainage magnétique).

Détermination de la présence et de la proportion de grains fins superparamagnétiques (SP) et à la limite superparamagnétique/monodomaine (SP/SD) :

La différence de susceptibilité magnétique entre deux fréquences dfχ (dfχ = χ_{500Hz} - χ_{8000Hz}) représentée en fonction de la susceptibilité magnétique à basse fréquence χ_{500Hz} permet d'observer les proportions en grains superparamagnétiques (Figure 176 et Figure 177).

Chaque ensemble de prélèvements semblent se répartir sur des droites (Figure 176). L'existence d'une répartition selon une droite dite de mélange indiquerait un mélange variable entre deux pôles extrêmes : d'un côté le sédiment non chauffé et, à l'opposé, le sédiment chauffé.

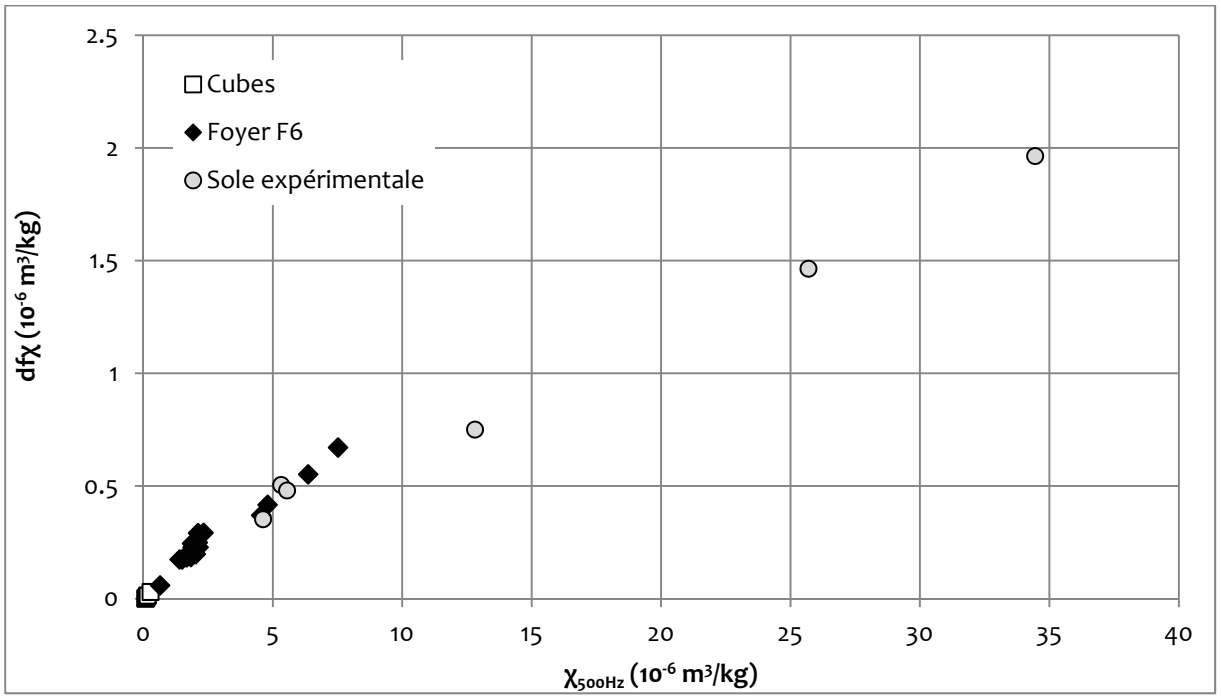


Figure 176 : Différence de susceptibilité magnétique entre 500 Hz et 8000 Hz (dfχ) en fonction de la susceptibilité magnétique à 500 Hz.

Néanmoins, si on observe la répartition de ces points en dilatant chaque axe (représentation log-log, Figure 177), deux comportements se distinguent :

- les ***cubes*** pour lesquels, lorsque la température augmente, la susceptibilité magnétique a un accroissement plus rapide que dfχ c'est-à-dire que les phases créées par la chauffe ont une proportion décroissante en grains superparamagnétiques (SP), ceci s'accentuant avec l'élévation de température de chauffe des cubes.

- les prélèvements du ***foyer F6*** et ceux de la ***sole expérimentale*** semblent se répartir sur des droites. La pente de la sole expérimentale est plus faible que celle du foyer F6. Ainsi il y aurait une proportion plus faible de grains SP dans les prélèvements de la sole expérimentale et plus particulièrement dans les prélèvements du dessus de la sole (les trois points de susceptibilité magnétique très forte, Figure 177).

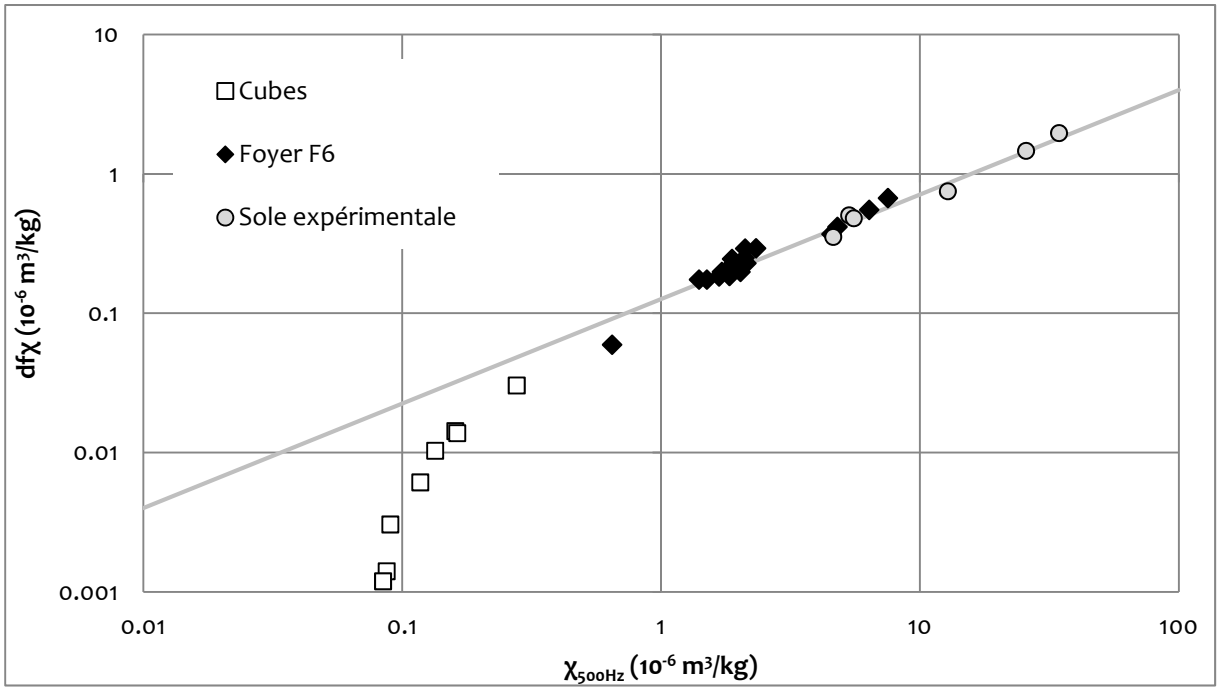


Figure 177 : Représentation log-log de la différence de susceptibilité magnétique entre 500 Hz et 8000 Hz (dfχ) en fonction de la susceptibilité magnétique à 500 Hz.

La susceptibilité magnétique « *background* » c'est-à-dire celle de la matrice dia-paramagnétique des sédiments étudiés pourrait être déterminée puisqu'elle correspond à la valeur de la susceptibilité magnétique pour une différence de susceptibilité magnétique dfχ nulle. Cette détermination n'est cependant valable que si les points se placent sur une droite de mélange entre une matrice de minéralogie constante (fraction para-diamagnétique constante) et une fraction magnétique de signature magnétique inchangée mais en teneur variable.

Les valeurs de la susceptibilité magnétique *background* obtenues par extrapolation (Figure 176) des points pour le ***foyer F6*** et la ***sole expérimentale*** (χ_B (F6) = - 0.81 x 10^{-6} m^3/kg ; χ_B (sole expérimentale) = - 3.12 x 10^{-6} m^3/kg) sont négatives et de deux à trois ordres de grandeurs plus fortes que la susceptibilité magnétique du quartz qui est le minéral diamagnétique le plus courant (de susceptibilité magnétique négative ; χ_{quartz} = -0.5 à -0.6 x 10^{-8} m^3/kg ; Hunt *et al.*, 1995). Ces valeurs contredisent donc une répartition des échantillons sur une droite à minéralogie magnétique constante qui permettrait d'évaluer χ_B.

Pour les ***cubes***, l'obtention de χ_B par extrapolation par une droite n'est visiblement pas possible (Figure 177) puisque la minéralogie évolue fortement avec la chauffe. Cependant, les valeurs de susceptibilité magnétique étant faibles, il est important d'évaluer au mieux une valeur de la susceptibilité magnétique de la matrice para-diamagnétique pour pouvoir l'appliquer en correction à la susceptibilité magnétique pour le calcul de la dépendance de fréquence.

La dépendance de fréquence χdf% correspond au rapport de la différence de susceptibilité magnétique dfχ et de la susceptibilité magnétique basse fréquence. Elle permet de quantifier la proportion de grains superparamagnétiques dans les sédiments.

$$\chi fd\% = 100 \times df\chi / (\chi_{500Hz} - \chi_B)$$

La correction de la valeur de la susceptibilité magnétique basse fréquence par la valeur de susceptibilité magnétique de la matrice dia-paramagnétique n'a d'incidence réelle que sur les cubes dont les valeurs de susceptibilité magnétique sont faibles. Pour le foyer F6 et la sole expérimentale, la modification de χfd% induite par la correction est minime.

Dans la suite, nous avons utilisé une valeur de $\chi_B = 0.069 \times 10^{-6}$ m^3/kg pour les sédiments des Fraux appliquée aux cubes, au foyer F6 et à la sole expérimentale. Cette valeur a été prise inférieure mais proche de la susceptibilité magnétique du cube non chauffé afin que le comportement de χfd% des cubes traduisent au mieux la diminution de la proportion de grains SP avec la chauffe sans que les valeurs de χfd% ne soient trop incohérentes (χfd% maximal théorique de 15%).

Lorsqu'on représente la dépendance de fréquence χfd% en fonction de la susceptibilité magnétique χ (Figure 178), il apparait de fortes variations qui traduisent des variations dans la proportion de grains superparamagnétiques (SP).

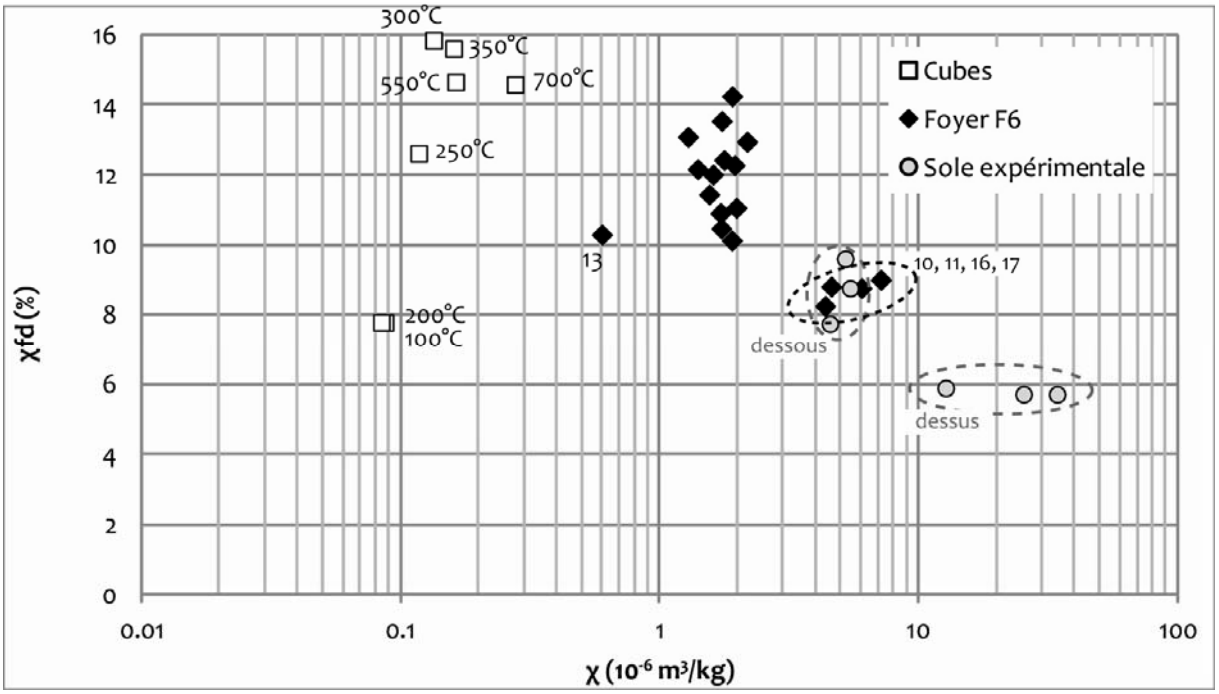


Figure 178 : Dépendance de fréquence χdf% en fonction de la susceptibilité magnétique. Le cube non chauffé n'a pas été placé sur ce graphique, les mesures de la susceptibilité magnétique ayant été faites plus de deux ans après les autres cubes et dans des conditions différentes, elles ne sont pas comparables (χfd% ≈ 15%).

Pour les ***cubes***, le graphique montre d'abord une augmentation de χfd% puis à partir de 300°C une diminution progressive avec la température. Ceci traduit pour les faibles températures les modifications minéralogiques et la création de phases ferrimagnétiques. Ensuite, on observe que la proportion de grains SP dans les phases ferrimagnétiques créées diminue avec la température.

Pour le ***foyer F6*** plusieurs comportements sont visibles : la n°13, isolé par la susceptibilité magnétique donc une teneur en phases ferrimagnétiques plus faible mais avec un χfd% de 10 % ; la majorité des autres prélèvements ont un χfd% entre 10 % et 14 % ; les n°10, 11, 16 et 17 avec une susceptibilité magnétique élevée et une χfd% entre 8 % et 9 %, traduisant une proportion plus faible de grains SP dans ces quatre prélèvements. Néanmoins, des valeurs de χfd > 8% indiquent tout de même une proportion d'environ 50 % de grains SP ferrimagnétiques (Dearing *et al.*, 1996).

Pour la ***sole expérimentale***, les valeurs de χfd% se séparent en deux groupes : d'un côté les prélèvements du dessous de la sole (n°485, 488 et 490) avec des valeurs entre 8 % et 10 % ; d'un autre côté ceux du dessus de la sole (n°486, 489 et 491) avec des valeurs autour de 6 %, c'est-à-dire une plus faible proportion de grains SP et la plus faible de l'ensemble des sédiments étudiés. Les prélèvements du dessous de la sole et les n°10, 11, 16 et 17 du foyer F6 présentent des valeurs comparables de la susceptibilité magnétique et de la dépendance de fréquence indiquant ainsi une proportion similaire en grains SP ferrimagnétiques.

L'évolution de la dépendance de fréquence, à savoir une diminution de χfd% avec l'accroissement de la susceptibilité magnétique, pourrait provenir d'une diminution de la proportion de grains SP par la néoformation de grains SD (*single domain*), résultant directement des transformations minéralogiques, et accompagnée (ou non) de la fusion avec la chauffe de domaines cohérents de phases existantes. L'augmentation de la capacité d'aimantation de manière concomitante à celle de la susceptibilité magnétique appuie l'hypothèse d'une formation de grains SD de phases ferrimagnétiques.

Ces variations de proportions de grains SP et SD ferrimagnétiques peuvent être complétées par des mesures de l'aimantation rémanente visqueuse (ARV) obtenue par trainage magnétique. Cette mesure est sensible aux grains à la limite superparamagnétique / monodomaine (SP/SD) et aux grains polydomaines (de pseudomonodomaine à polydomaine, PSD-MD), mais elle est nulle pour les grains SP et pour les grains monodomaines (SD).

Pour le ***foyer F6***, l'augmentation de l'aimantation rémanente visqueuse (ARV) est réellement corrélée à l'augmentation de la différence de susceptibilité magnétique dfχ (Figure 179) et à l'augmentation de la susceptibilité magnétique χ (Figure 180). Ceci indique que la viscosité magnétique est portée par une population de grains à la limite superparamagnétique / monodomaine (SP/SD) et que la contribution des grains polydomaines à l'ARV n'apparaît pas comme significative.

Pour les ***cubes*** et la ***sole expérimentale***, il y a une tendance à la corrélation indiquant qu'une partie de la viscosité magnétique est portée par une population de grains à la limite SP/SD. Néanmoins, les écarts à la corrélation laissent peut-être apparaître une contribution de grains polydomaines.

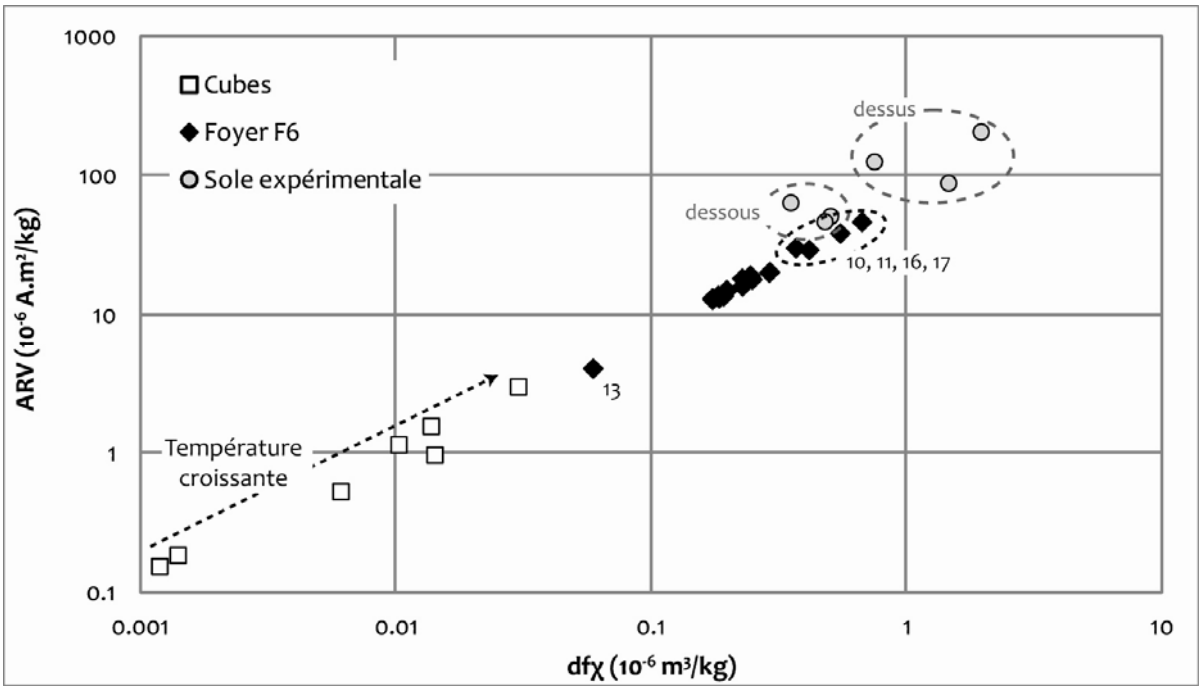


Figure 179 : Aimantation rémanente visqueuse (ARV) en fonction de la différence de susceptibilité magnétique (dfχ).

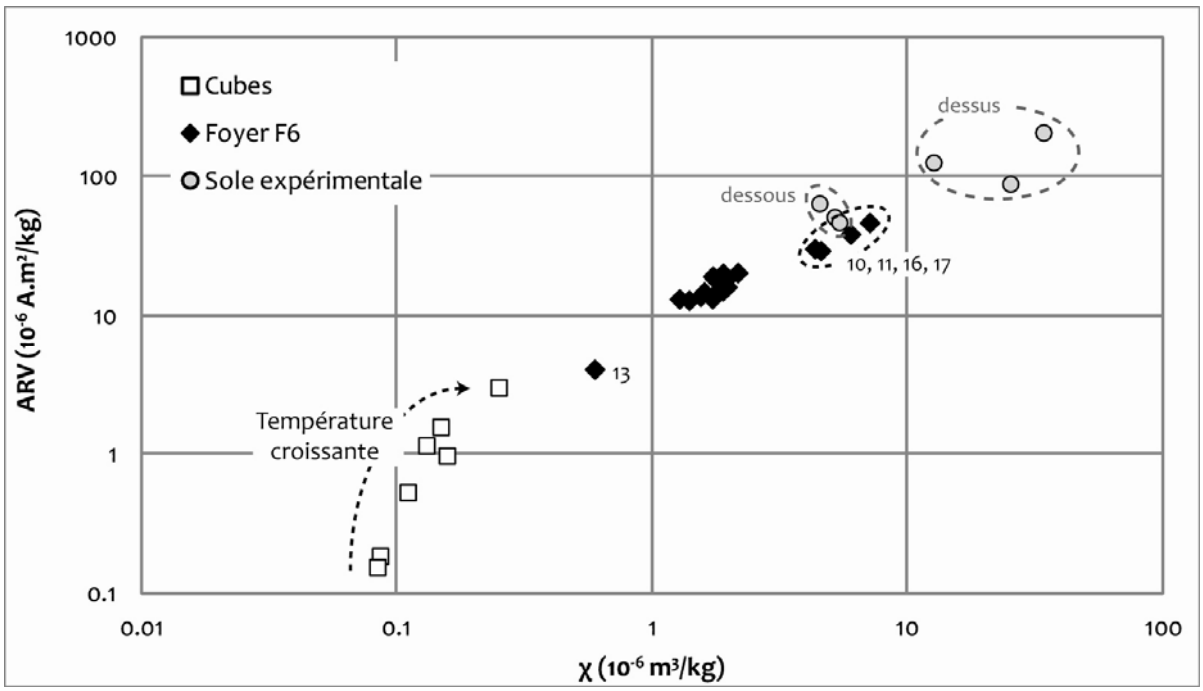


Figure 180 : Aimantation rémanente visqueuse (ARV) en fonction de la susceptibilité magnétique.

La comparaison de la part de l'aimantation rémanente instable (ARV/ARIs) et de la part de la susceptibilité magnétique instable (χfd%) met en évidence (Figure 181) pour le ***foyer F6*** la correspondance entre les deux paramètres : l'ARV est portée par les grains à la limite SP/SD.

Pour les ***cubes***, la part d'aimantation instable augmente d'abord avec la température et, de manière corrélée, à la part de susceptibilité magnétique instable jusqu'à 300-350°C : l'ARV est portée par des grains à la limite SP/SD. A partir de 300-350°C, la part instable de l'aimantation continue de croitre avec la température alors que χfd% diminue. L'augmentation du rapport ARV/ARIs résulte de l'augmentation de l'ARV et de la diminution de l'ARIs qui traduit une augmentation de la proportion de grains polydomaines avec la température.

Pour la ***sole expérimentale***, les prélèvements du dessus montrent une bonne cohérence et une part instable de l'aimantation faible correspondant à un part instable de la susceptibilité magnétique faible. Là encore, il semble que l'aimantation soit principalement portée par les grains à la limite SP-SD. Pour les prélèvements du dessous de la sole, deux d'entre eux sont corrélés aux prélèvements du foyer F6. Par contre, le prélèvement n°485 montre une valeur part d'aimantation rémanente instable élevée par rapport à sa valeur de χfd% : ce prélèvement pourrait contenir une proportion de grains polydomaines plus importante.

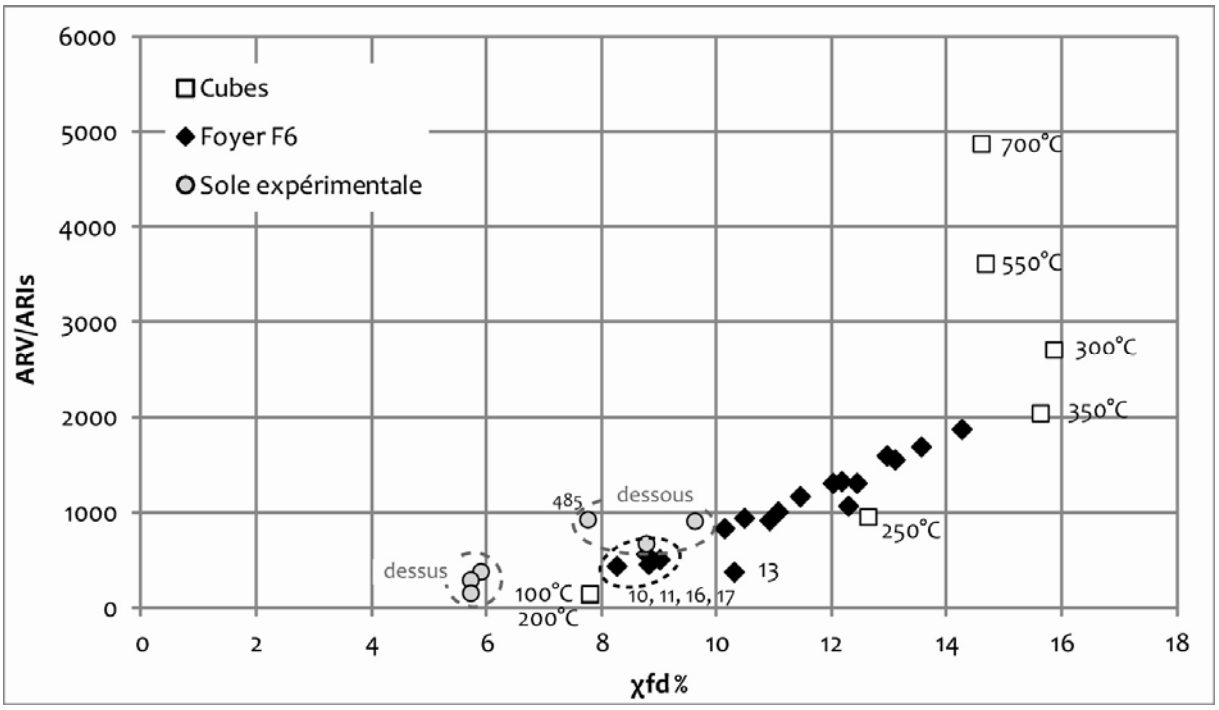


Figure 181 : Comparaison entre la part d'aimantation rémanente instable (rapport de l'aimantation rémanente visqueuse sur l'aimantation rémanente isotherme à saturation) et la part de susceptibilité magnétique instable liée aux grains superparamagnétiques (χfd%).

En résumé, l'analyse des mesures de susceptibilité magnétique en dépendance de fréquence et d'aimantation rémanente visqueuse ont permis d'interpréter leur variation en termes de taille de grains et de proportion relative des populations de grains :

- *pour les **cubes**, l'augmentation de la température de chauffe semble engendrer une diminution de la proportion de grains superparamagnétiques dans les phases ferrimagnétiques créées (χfd % diminue) et une augmentation de la proportion de polydomaines (ARV/ARIs augmente) ;*
- *pour le **foyer F6**, les prélèvements sont caractérisés par une proportion peu variable en grains SP (χfd% entre 10 % et 14 %), sauf pour les prélèvements n°10, 11, 16 et 17 qui ont une dépendance de fréquence plus faible (χfd % autour de 8 %). Etant donné qu'à cette diminution correspond une diminution de l'ARV, il y a probablement une néoformation de grains à la limite SP/SD accompagnée (ou pas) d'une fusion de domaines cohérents (SP -> SD). Le prélèvement n°13 reste à part avec une proportion de grains SP comparable aux autres prélèvements (χfd % autour de 10%).*
- *pour la **sole expérimentale**, on peut distinguer les prélèvements du dessous de la sole de ceux du dessus. Les prélèvements du dessous de la sole ont des caractéristiques similaires aux prélèvements n°10, 11, 16 et 17 du foyer F6. La dépendance de fréquence diminue pour le dessus de la sole indiquant une proportion de grains SP plus faible probablement liée, comme pour le foyer F6, à une néoformation de grains SD accompagnée (ou pas) d'une fusion de domaines cohérents (SP -> SD). Par ailleurs, on se souvient que pour ces mêmes prélèvements, de l'hématite avait été détectée : il est probable que se rajoute aux transformations de taille de grains déjà notées une oxydation des grains de magnétite les plus fins (SP) en hématite : en effet, les grains SP ont une surface d'échange avec l'atmosphère (surface spécifique) très grande qui, aux hautes températures et en présence d'oxygène, permet une oxydation en hématite de ces grains.*

II.4. Bilan sur les évolutions observées de la teneur en phases ferrimagnétiques, de la minéralogie et de la taille de grain

De l'ensemble des propriétés étudiées, il est possible d'établir le tableau récapitulatif suivant (Tableau 27) :

Matériel d'étude		Teneur en phases ferrimagnétiques	Minéralogie	Taille de grains			
				SP	SD	PSD	MD
Cubes		augmente avec T	disparition de la goethite à partir de 250°C apparition phases ferrimagnétiques + hématite	proportion décroissante avec T			
Foyer F6	n°13	-	goethite + hématite + phases ferrimagnétiques	+	-		
	autres	+	phases ferrimagnétiques + (hématite)	+	-		
	n°10, 11, 16, 17	++	phases ferrimagnétiques	-	+		
Sole expérimentale	dessous	++	phases ferrimagnétiques + hématite	-	+		
	dessus	+++		- -	+ +		

- - / - / + / ++ / +++ : proportion relative de teneur en phases ferrimagnétique ou proportion relative d'une population de taille de grains définie

Tableau 27 : Bilan de l'étude des propriétés magnétiques des cubes, du foyer F6 et de la sole expérimentale sur la teneur en phases ferrimagnétiques, la minéralogie magnétique présente ainsi que sur les variations de taille de grain magnétique.

Les résultats obtenus sur les trois ensembles échantillonnés présentent des différences de signature magnétique induites par la variabilité des températures atteintes et de l'atmosphère de chauffe. Une synthèse de l'influence de chacun de ces paramètres est présentée ci-après.

- ***Influence de la température :***

D'un côté, les ***cubes*** présentent une signature magnétique qui évolue fortement avec la température, mais avec des teneurs en phases ferrimagnétiques faibles. Les chauffes successives à l'air de sédiments des Fraux séchés pendant 14 jours sous vide montrent la création de phases ferrimagnétiques ainsi que d'hématite mais dans des proportions qui ne sont pas comparables à celles observées dans le foyer F6 ou la sole expérimentale et ce quelle que soit la température atteinte (Figure 182) :

- Cubes : $\chi < 0.25 \times 10^{-6}$ m^3/kg et absence de saturation de l'ARI à 200 mT, $ARI_{200\ mT}/ARIs < 60\%$;
- Foyer F6 et sole expérimentale : $1 < \chi < 35 \times 10^{-6}$ m^3/kg et $ARI_{200\ mT}/ARIs > 86\%$

Néanmoins, ***les transformations de la minéralogie et les températures associées aux cubes, particulièrement la création de phases ferrimagnétiques à partir de 250°C et la disparition de la goethite d'origine au-delà de 350°C sont des données qui pourront servir dans l'interprétation des autres échantillons (n°13 du foyer F6, détaillé un peu plus bas).***

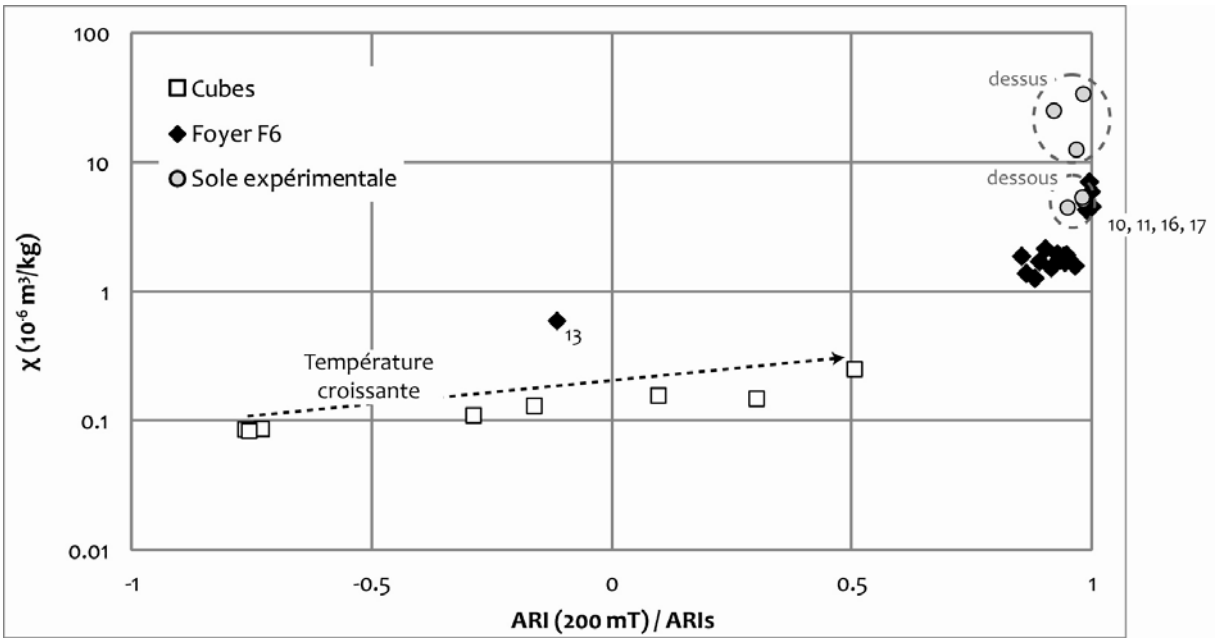


Figure 182 : Susceptibilité magnétique, représentant la teneur en phases ferrimagnétiques, en fonction de l'aimantation rémanente partielle à 200 mT, représentant la minéralogie présente.

D'un autre côté, de la même manière que les cubes semblent minimiser l'évolution de la signature magnétique, la ***sole expérimentale*** semblent constituer un maximum en particulier les prélèvements provenant du dessus de la sole. Rappelons que quatre feux ont été allumés sur ces sédiments des Fraux (encore humides) et que les températures en surface (« dessus de la sole ») ont atteint entre 600°C et 700°C alors que les thermocouples sous la sole ont enregistré des températures entre 400°C et 500°C (« dessous de la sole »). Ainsi un gradient thermique entre le dessus et le dessous de la sole existe. ***Les différences de températures atteintes pourraient expliquer les différences de la signature magnétique du dessus de la sole :***

- ***une plus forte teneur en phases ferrimagnétiques ;***
- ***une diminution de la dépendance de fréquence par une formation de grains monodomaines ferrimagnétiques ou par la destruction de magnétite hyperfine (SP) au profit d'hématite ;***
- ***une augmentation de la coercivité par la présence d'hématite (oxydation aux hautes températures de la magnétite SP) et/ou une évolution de la taille de grains des polydomaines vers monodomaines.***

Enfin, entre ces deux extrêmes se trouve le ***foyer F6***. Le prélèvement n°13 contient de la goethite, qui peut être d'origine ou néoformée après le feu par altération des minéraux présents. Etant donné que la goethite n'a été détectée que sur un unique échantillon qui est, de plus, situé en bordure du foyer, l'hypothèse d'une altération postérieure au feu juste pour ce prélèvement est peu probable. Si on considère cette goethite comme présente à l'origine dans les sédiments, ce prélèvement serait le moins chauffé puisque la goethite est « encore » présente. Compte tenu de la disparition totale de la goethite à 350°C dans les cubes, on peut supposer que le prélèvement ***n°13 n'a pas chauffé au-delà de 350°C***. Les prélèvements n°10, 11, 16 et 17 se distinguent clairement du reste des prélèvements et se situent dans le cœur de chauffe repéré par l'étude TL avec des paléotempératures de 400-450°C (Figure 113). On peut alors considérer que ces prélèvements sont les plus chauffés du foyer F6. La signature magnétique associée est caractérisée par : (1) une forte teneur en phases ferrimagnétiques et (2) une dépendance de fréquence plus faible que les autres prélèvements du foyer F6 (χfd% autour de 8 %), propriétés similaires à celles du dessous de la sole expérimentale. Ceci indique une proximité des températures atteintes, à savoir ***entre 400°C et 500°C pour les n°10, 11, 16 et 17*** et les prélèvements du dessous de la sole. Les ***autres prélèvements, a priori chauffés à des températures inférieures entre 350°C et 400°C***, possèdent des concentrations en phases ferrimagnétiques plus faibles mais une proportion plus importante de grains SP (χfd% entre 10 % et 14 %).

Les températures estimées pour le foyer F6 par comparaison de la signature magnétique de ses prélèvements avec les cubes (minéralogie) et avec les prélèvements de la sole foyère sont regroupées dans le tableau ci-dessous (Tableau 28) :

n° prélèvement	Epaisseur de rubéfaction (mm)	Température Signature magnétique (°C)
1	10	350-400
2	12	350-400
3	9	350-400
4	10	350-400
5	5	350-400
6	15	350-400
7	11	350-400
8	5	350-400
9	7	350-400
10		**400-500**
11	25	**400-500**
12	19	350-400
13	7	250-350
14	16	350-400
15	14	350-400
16	26	**400-500**
17	23	**400-500**
18		350-400

Tableau 28 : Récapitulatif des températures obtenues par l'étude de la signature magnétique.

Les conditions de chauffes utilisées pour les cubes ne sont pas réellement une bonne simulation pour étudier les évolutions de la signature magnétique avec la température. En revanche, la sole expérimentale offre des éléments de comparaison associés à des températures atteintes (enregistrées par les thermocouples). On peut synthétiser les résultats de l'évolution de la signature magnétique des sédiments des Fraux chauffés par un feu sur une échelle de température (Figure 183) :

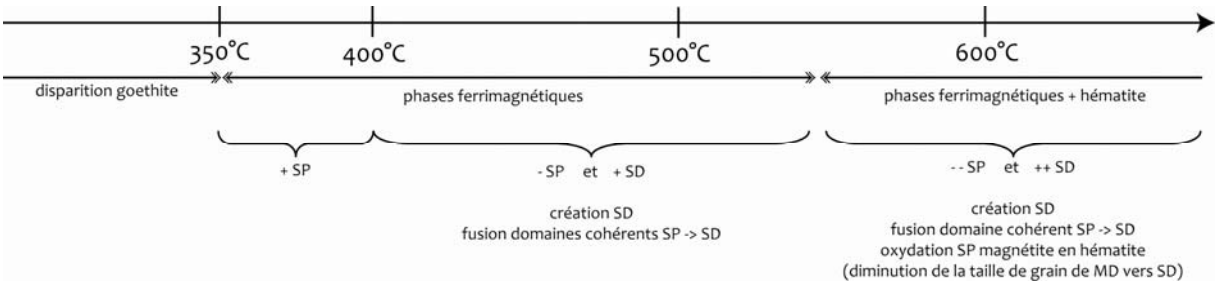


Figure 183 : Proposition d'évolution de la minéralogie et de la taille de grains magnétiques des sédiments des Fraux chauffés par un feu en fonction de la température (SP : superparamagnétique ; SD : monodomaine ; MD : polydomaine ; - - / - / + / ++ : proportion relative d'une population de taille de grain définie).

La question se pose alors de comprendre pourquoi les transformations minéralogiques des cubes sont minorées. L'une des différences majeures entre les sédiments des cubes et les sédiments du foyer F6 ou de la sole expérimentale est l'état de séchage au moment de la chauffe. Des tests ont été réalisés afin d'éprouver l'hypothèse d'une influence de l'humidité des sédiments sur les transformations minéralogiques. L'objectif est d'observer si la présence de vapeur d'eau, induite par le séchage progressif des sédiments étudiés, entraîne des modifications.

- ***Influence de l'atmosphère de chauffe : pression partielle d'O_2, saturation en vapeur d'eau***

Les différences dans la signature magnétique des sédiments de la grotte des Fraux, chauffés dans des conditions variables, indiquent l'importance de ces conditions : les ***cubes*** sont issus de **chauffes successives, à l'air, de sédiments secs** alors que le ***foyer F6*** et la ***sole expérimentale*** ont été soumis à des **chauffes en atmosphère réductrice saturée en vapeur d'eau** par à la combustion du bois, qui dégage entre autre du CO, du CO_2 et de la vapeur d'eau, sur des sédiments saturés en eau. Ces derniers sont à 100% d'humidité dans la grotte et sèchent progressivement pendant le feu. Ce phénomène est visible pour la sole expérimentale par le palier de température à 100°C enregistré par les thermocouples (Figure 58, chauffe 1). Ce séchage progressif induit une atmosphère saturée en vapeur d'eau. La pression partielle d'O_2 est ainsi abaissée par la consommation d'O_2 dans la combustion du bois et par les gaz dégagés par la combustion (CO) et la vapeur d'eau (combustion du bois et séchage des sédiments). Une telle atmosphère, réductrice, devrait alors favoriser la création de magnétite au dépend de l'hématite.

Pour éprouver cette hypothèse quelques tests ont été effectués pour tenter de déterminer l'influence d'une atmosphère de vapeur d'eau lors de la chauffe des sédiments des Fraux.

Le montage expérimental décrit sur la Figure 184, nous a permis d'injecter un flux de vapeur d'eau dans un four dans lequel nous avons chauffé du sédiment des Fraux en mesurant la température et la quantité d'O_2. Néanmoins, la sonde à oxygène utilisée (sonde SGM7, Zirox) ne permettait pas la mesure d'une variation de pression partielle d'O_2 induite par de la vapeur d'eau car celle-ci se condense avant la mesure de pression partielle d'O_2. Un test a été réalisé en injectant du CO_2 avec lequel la pression partielle d'oxygène a été abaissée jusqu'à 3 %. La comparaison entre le flux de CO_2 de 4 litres par minute à 20°C soit environ 10 l/min à 500°C avec le flux de vapeur d'eau injecté d'environ 50 l/min à 500°C (3.3 litres d'eau évaporés en 4 heures d'expérimentation) semble indiquer que l'atmosphère dans le four était bien saturée en vapeur d'eau.

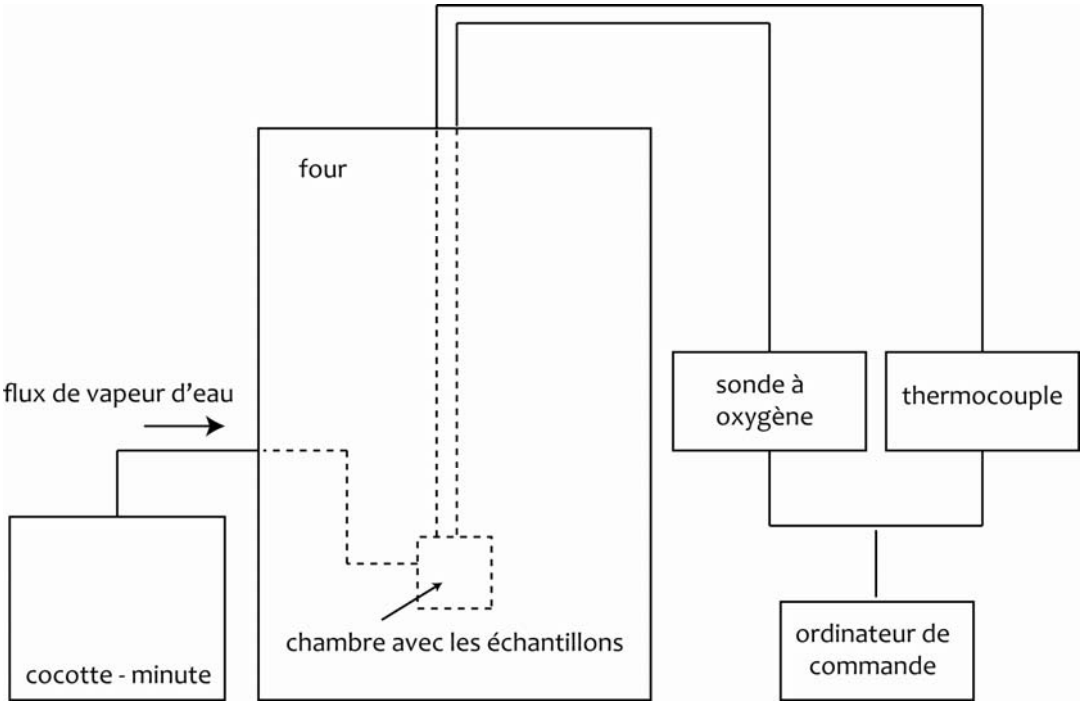


Figure 184 : Montage expérimental pour tester l'influence d'une atmosphère saturée en vapeur d'eau sur les transformations de la minéralogie magnétique.

Le sédiment des Fraux a été étudié sous deux formes :

- de la poudre séchée en étuve provenant d'un sédiment prélevé en 2008 (sédiment sec, représenté par des losanges sur la Figure 185)
- du sédiment encore humide (15 % massique d'eau) utilisé pour construire la sole expérimentale prélevé un an et demi auparavant (09/2010), mis sous la forme de petites billes pour la chauffe au moment de l'expérimentation (sédiment humide, représenté par des ronds sur la Figure 185).

Les températures maximales atteintes lors des chauffes sont représentées par différentes couleurs (Figure 185 ; Tableau 29) : 325°C en bleu, 500°C en vert et 550°C en orange.

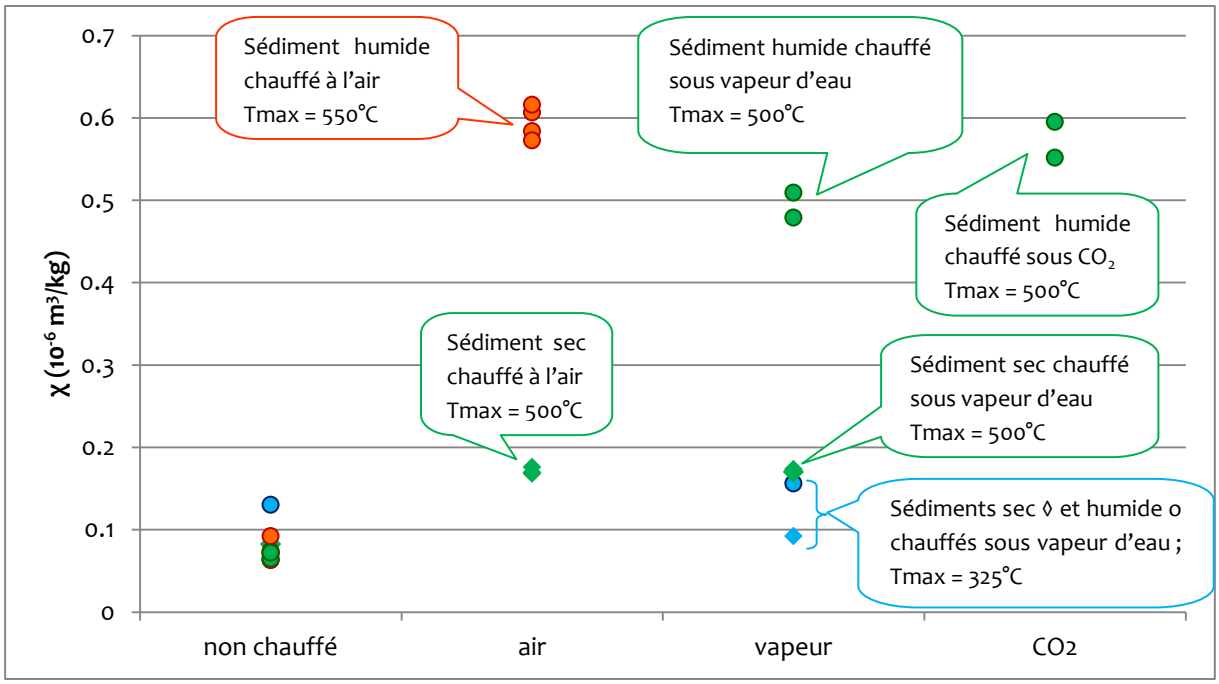


Figure 185 : Susceptibilité magnétique mesurée sur les sédiments de Fraux avant et après chauffe, en atmosphère d'air (21 % d'O_2), en atmosphère de vapeur d'eau (≈ 3 % d'O2 estimé) et sous CO_2 (3 % d'O_2). Losange : sédiment séché en étuve et chauffé sous forme de poudre ; Rond : sédiment humide de la sole expérimentale. La couleur du symbole représente la température maximale atteinte : bleu=325°C, vert=500°C et orange=550°C.

		T (°C)	non chauffé	air	vapeur	CO_2
Sec	1	500	0.0824	0.1762		
	2	500	0.0821	0.1683		
	3	500	0.0815	0.1697		
	4	325	0.0810		0.0925	
	5	500	0.0835		0.1736	
	6	500	0.0827		0.1702	
Humide	7	550	0.0708	0.5840		
	8	550	0.0725	0.6068		
	9	550	0.0924	0.6161		
	10	550	0.0633	0.5728		
	11	325	0.1305		0.1564	
	12	500	0.0635		0.5094	
	13	500	0.0743		0.4791	
	14	500	0.0651			0.5953
	15	500	0.0722			0.5518

Tableau 29 : Susceptibilité magnétique mesurées sur les sédiments des Fraux avant et après la chauffe en fonction de l'état de séchage du sédiment, de la température maximale atteinte et de l'atmosphère de chauffe (air, vapeur ou CO_2).

Cette expérience apporte les résultats suivant :

- la susceptibilité magnétique du sédiment utilisé (sec ou humide) avant la chauffe est plutôt homogène de $\chi = (0.08 \pm 0.01) \times 10^{-6}$ m^3/kg.
- de manière générale, la chauffe sur le sédiment encore humide entraine une plus forte augmentation de susceptibilité magnétique que sur le sédiment sec pour une température de 500°C.
- pour le sédiment humide, la chauffe à l'air entraine une augmentation d'un facteur 6, celle avec la vapeur d'eau d'un facteur 5 et celle sous CO_2 entre les deux, tout en gardant en mémoire que la température atteinte à l'air est légèrement supérieure (plus de modifications minéralogiques possibles, donc un accroissement supérieur de la susceptibilité magnétique).

Ainsi, dans les conditions expérimentales testées, il ne semble pas que la présence de vapeur d'eau lors de la chauffe ait plus favorisé l'augmentation de la susceptibilité magnétique par la création de magnétite que pendant les chauffes à l'air ou sous CO_2. Il est toutefois possible que la diminution de la pression partielle d'O_2 n'ait pas été suffisante pour entrainer la création préférentielle de magnétite.

Des tests complémentaires sous la forme de mesure de courbes thermomagnétiques (une chauffe unique à 600°C, Figure 186) ont été réalisés sur le **sédiment utilisé pour la sole expérimentale encore humide ou après un séchage à l'air**, et sur un fragment de **sédiment fraîchement prélevé à la grotte des Fraux, quelques jours avant la mesure**. Ce dispositif a été utilisé car le volume d'air présent dans le tube de mesure du KLY est très faible. On pouvait alors penser que l'évaporation de l'eau contenue dans les matériaux serait suffisante pour saturer l'atmosphère en vapeur d'eau.

La susceptibilité magnétique après refroidissement présente des augmentations plus fortes que celles observées dans le four :

- pour le sédiment de la sole expérimentale séché à l'air, χ passe de 0.25 à 3.8×10^{-6} m^3/kg : x 15
- pour le sédiment de la sole expérimentale humide, χ passe de 0.16 à 3.9×10^{-6} m^3/kg : x 24
- pour le sédiment « frais », χ passe de 0.21 à 6.2×10^{-6} m^3/kg : x 30

Sur le sédiment « frais » la susceptibilité magnétique après chauffe ($6.2\ 10^{-6}$ m^3/kg) est comparable à celle mesurée sur les échantillons du foyer F6 ($\chi = 7.10^{-6}$ m^3/kg maximum). Cette dernière expérimentation, sur le sédiment frais c'est-à-dire prélevé dans la grotte des Fraux quelques jours avant la mesure, permettrait de reproduire l'augmentation de la susceptibilité magnétique due à la chauffe d'un feu.

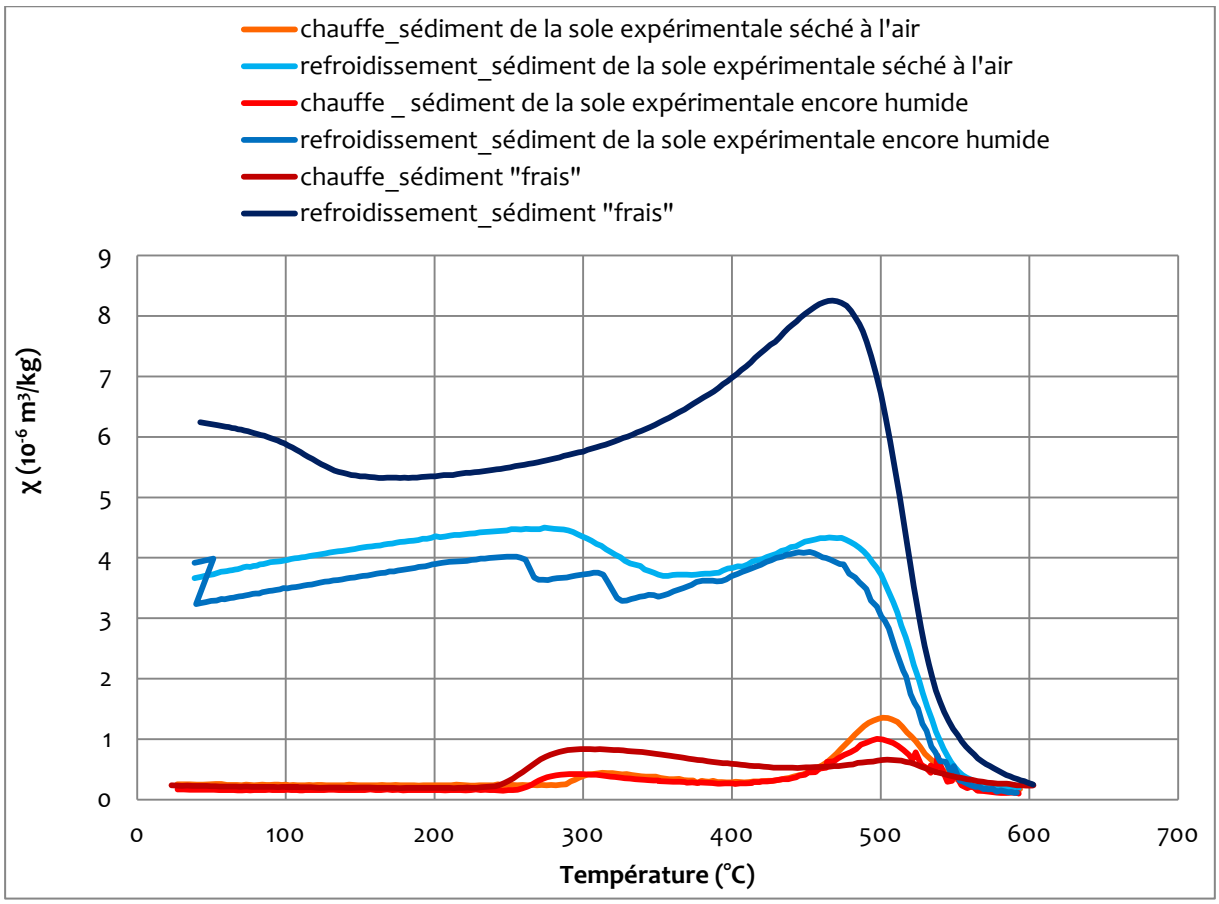


Figure 186 : Courbes κ(T), un cycle de chauffe-refroidissement unique à 600°C sur le sédiment des Fraux utilisé pour la sole expérimentale encore humide ou après un séchage à l'air et sur un sédiment très récemment sorti de la grotte (« frais »).

On peut aussi observer que plus le sédiment est frais (Figure 186), plus la susceptibilité magnétique augmente entre 250°C et 300°C et plus il y a un décalage progressif de cette première transformation vers les basses températures : sédiment séché à 290°C, sédiment encore humide à 270°C et sédiment frais à 240°C. De plus, l'augmentation de la susceptibilité magnétique visible à partir de 450°C pendant la chauffe, qui correspond au pic Hopkinson de la magnétite, est d'autant plus forte que le sédiment a séché.

Deux interprétations sont possibles : soit il y a dans le sédiment frais une phase minérale précurseur à la création de phases ferrimagnétiques qui disparait progressivement avec le temps et le séchage ; soit la présence de vapeur d'eau favorise les transformations minéralogiques des précurseurs à des températures légèrement plus faibles. Des mesures de diffraction des rayons X ont été effectuées sur du sédiment encore humide et sur du sédiment séché depuis plus d'un an et, dans les deux cas, la goethite et la lépidocrocite ont été détectées. Si on considère ces deux phases comme les principaux précurseurs, ce serait donc l'hypothèse d'une influence de la présence de la vapeur d'eau qu'il faudrait considérer.

Ces tests indiquent que les conditions d'expérimentation consistant à chauffer un sédiment saturé en eau dans un petit volume engendrent des valeurs de la susceptibilité magnétique qui se rapprochent de celle du foyer F6. Le confinement du sédiment dans le tube de quartz (utilisé pour les mesures thermomagnétiques) ne permet pas de renouvellement de l'air donc de l'oxygène au contact du sédiment. Ainsi l'humidité présente dans le matériau s'évapore au fur et à mesure de la chauffe et peut saturer l'atmosphère de ce petit volume en vapeur d'eau favorisant la création de magnétite.

- ***Influence du cumul des chauffes :***

Les différences d'augmentation de susceptibilité magnétique observées sont très importantes entre une chauffe à 700°C (x 170 pour le bloc 1, Figure 142) et plusieurs chauffes progressives (x 3 pour les cubes, Figure 154, et pour les courbes thermomagnétiques par palier de températures croissantes, Figure 146). Etant donné que le sédiment utilisé pour ces trois mesures est extrait du même bloc de sédiment (bloc 1), la plus faible augmentation de la susceptibilité magnétique pour des chauffes cumulées pourrait provenir de la multiplication des chauffes successives à l'air. En effet, pour une chauffe à l'air donnée, les transformations possibles sont : la déshydratation de la lépidocrocite en maghémite autour de 250°C, la transformation de la goethite en magnétite ou plus probablement en hématite autour de 250°C, une oxydation de la maghémite et de la magnétite en hématite au-delà de 300-400°C. Pour des chauffes successives, les phases ferrimagnétiques créées lors de la chauffe précédente sont donc susceptibles de s'oxyder en hématite. La susceptibilité magnétique ne présentera alors qu'une faible augmentation pour des chauffes accumulées à l'air.

Cette influence du cumul des chauffes se présente différemment en atmosphère réductrice puisque l'oxydation des phases ferrimagnétiques en hématite ne se fait pas. On pourrait ainsi supposer que plus les chauffes s'accumulent, plus la susceptibilité magnétique augmente jusqu'à ce que l'ensemble des précurseurs (lépidocrocite, goethite et hématite) ait été transformés (réduits).

Un des aspects qui entre aussi en jeu est l'humidité du sédiment abordée ci-dessus. Nous avons vu que la présence de vapeur d'eau pourrait engendrer une atmosphère réductrice par un appauvrissement en oxygène et favoriser la création de magnétite. Tant que le sédiment est humide, donc pour la ou les premières chauffes suivant leur intensité et leur durée, l'atmosphère sera saturée en vapeur d'eau. Pour les chauffes suivantes ayant lieu en l'absence de vapeur d'eau, si la durée entre deux chauffes reste faible, la magnétite créée pourra être oxydée en hématite et la susceptibilité magnétique diminuera.

III. Conclusion

Les propriétés magnétiques des sédiments des Fraux ont été exploitées afin de tester leur potentiel paléothermométrique.

Dans un premier temps, les températures de déblocage de l'aimantation rémanente, indicateur potentiel de la température de chauffe, ont été étudiées. Le paléothermomètre basé sur cette propriété permet de distinguer les prélèvements chauffés à moins de 250°C puis, au-delà, il semble y avoir une graduation dans les températures de déblocage qui correspond à celle observée pour les paléotempératures TL avec un décalage constant d'environ 110°C induit par les différences de cinétique des deux propriétés.

Des mesures de la susceptibilité magnétique à chaque désaimantation permettent aussi de séparer les prélèvements suivant leur histoire thermique. Cette information thermométrique est liée à l'épaisseur de rubéfaction de sédiment qui traduit une durée de chauffe et de propagation de la chaleur dans le sédiment.

Dans un second temps, l'analyse des sédiments d'un foyer archéologique, d'un foyer expérimental et de sédiments chauffés en laboratoire a montré des différences importantes de la signature magnétique dépendantes de la température, des conditions de chauffe et du cumul ou non de chauffes :

- Les sédiments chauffés en laboratoire suivant des cycles thermiques connus (cubes) ont permis de suivre les transformations minéralogiques et de repérer des températures caractéristiques :
  250°C : la goethite commence à se transformer en magnétite
  350°C : toute la goethite a disparu.

- Le foyer expérimental offre des éléments de comparaison pour la signature magnétique (minéralogie et taille de grain) mais uniquement pour des températures élevées, supérieures à 400°C.

Les évolutions de la minéralogie magnétique avec la température permettent d'aboutir à un paléothermomètre pour les sédiments chauffés par un feu. Parmi l'ensemble des paramètres magnétiques testés, la Figure 175 mettant en relation le champ coercitif rémanent Hcr et le rapport de l'aimantation rémanente anhystérétique à saturation sur l'aimantation rémanente isotherme à saturation (ARAs/ARIs) a servi de base pour construire un paléothermomètre (Figure 187) dont les variations sont explicitées ci-après :

- un Hcr > 300 mT implique la présence de goethite. En supposant que cette goethite ne soit pas le résultat d'une altération postérieure au feu, alors les prélèvements contenant de la goethite n'ont pas chauffé à plus de 350°C. Au sein de ce groupe « avec goethite », plus ARAs/ARIs augmente plus la température est élevée en allant du non-chauffé à 300-350°C (création de magnétite à partir de la goethite). Les cubes chauffés à 550°C et 700°C n'ont pas été pris en compte dans la construction de ce paléothermomètre étant donné la minoration de teneur en phases ferrimagnétiques induites par la différence d'atmosphère de chauffe.

- pour les prélèvements chauffés au-delà de 350°C par un feu (atmosphère réductrice saturée en eau qui entraine la formation de magnétite) :

    . pour 350°C < T < 550°C : Hcr est compris entre 20 et 25 mT et l'augmentation de la température implique une augmentation de la teneur en phases ferrimagnétiques donc une diminution d'ARAs/ARIs.

    . pour T > 550°C : La teneur en phases ferrimagnétiques continue d'augmenter et il y a une création d'hématite par oxydation de magnétite SP donc ARAs/ARIs continue de diminuer mais Hcr augmente.

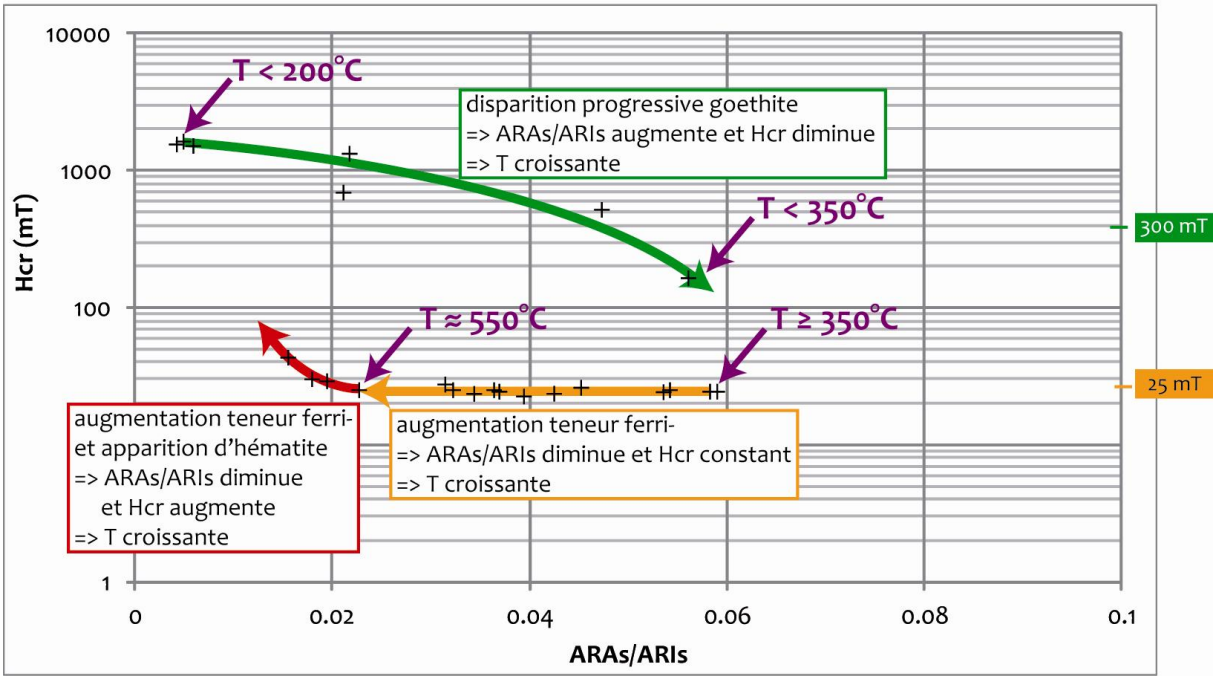


Figure 187 : Paléothermomètre établi en mettant en relation le champ coercitif rémanent (Hcr) et le rapport de l'aimantation rémanente anhystérétique à saturation sur l'aimantation rémanente isotherme à saturation (ARAs/ARIs). Chaque cadre de couleur explique

Pour finaliser ce paléothermomètre il faudra analyser les propriétés magnétiques d'un échantillonnage gradué en température chauffé dans les conditions similaires à celle d'un feu archéologique. Une atmosphère réductrice saturée en vapeur d'eau semble être l'atmosphère à reproduire pour pouvoir simuler en laboratoire les transformations due à la chauffe d'un feu sur un sédiment humide. Pour continuer ce travail, on pourrait poursuivre les expérimentations dans le tube de quartz du KLY (AGICO) en mesurant les pressions partielles d'O_2 et de H_2O dans ce petit volume lors de la chauffe pour définir l'atmosphère nécessaire aux accroissements de susceptibilité magnétique voulus. Une fois ces conditions connues, il serait intéressant de créer un

nouvel échantillonnage avec différentes températures de chauffe pour pouvoir vérifier l'évolution graduelle de la signature magnétique. On pourrait aussi s'intéresser à l'effet du cumul des chauffes en atmosphère réductrice.

En outre, une autre piste à exploiter serait la réalisation d'un autre feu expérimental pour créer un échantillonnage de sédiments chauffés par un feu c'est-à-dire en atmosphère non contrôlée mais *a priori* similaire à celle d'un feu archéologique. L'important sera de contrôler les températures pour obtenir un échantillonnage de sédiment non chauffé jusqu'à très chauffé.

Synthèse intermédiaire : partie IV

La caractérisation thermique des foyers a été appréhendée tout d'abord au travers des propriétés de ***luminescence des grains de quartz et de la fraction fine polyminérale.*** Des paléotempératures équivalentes ont ainsi été déterminées sur des prélèvements provenant de structures de combustion archéologiques. De plus, la méthodologie de comparaison avec des référentiels thermiques établis suivant un protocole thermique bien défini et à partir de sédiments de la grotte des Fraux a été validée par des prélèvements d'histoire thermique connue issus d'un foyer expérimental.

L'***association des données de paléotempératures TL et de la susceptibilité magnétique*** mesurée *in situ* a permis d'étalonner la susceptibilité magnétique en intervalles de température afin de cartographier en température les foyers. Malgré l'influence de l'hétérogénéité des matériaux et de l'épaisseur de sédiment affectée par la chauffe sur la susceptibilité magnétique, les structures cartographiées et les paléotempératures associées sont cohérentes : un cœur de chauffe avec des valeurs de susceptibilité magnétique fortes et les paléotempératures TL les plus élevées puis, autour, des valeurs de la susceptibilité magnétique et des paléotempératures décroissantes en s'éloignant du cœur de chauffe.

Par ailleurs, un foyer archéologique (foyer F6) a fait l'objet de prélèvements pour une analyse des ***propriétés magnétiques des sédiments chauffés*** afin d'évaluer le potentiel paléothermométrique des températures de déblocage de l'aimantation rémanente naturelle et de la signature magnétique (minéralogie et taille de grain). La signature magnétique de ces prélèvements a été comparée à celle de sédiments chauffés en laboratoire ou par un feu expérimental.

Cette étude montre que les deux approches permettent d'obtenir des informations de température de chauffe. Néanmoins, les évolutions observées pour la signature magnétique nécessiteraient d'être confirmées par un échantillonnage d'histoire thermique connue et graduée (les cubes n'étant pas vraiment satisfaisants) et dont la chauffe serait effectuée dans une atmosphère réductrice et saturée en vapeur d'eau comme celle d'un feu.

Il est ainsi possible de comparer la répartition des températures estimées pour le foyer F6 à partir de chacune des approches (Figure 188 et Tableau 30) : la TL, les températures de déblocage, la signature magnétique. Dans les trois cas, les prélèvements qui ont les paléotempératures les plus fortes se regroupent dans un cœur de chauffe autour des prélèvements n° 10, 11, 16 et 17. Les autres prélèvements ont des paléotempératures inférieures à 400°C. Les structures thermiques obtenues sont donc cohérentes entre elles.

Les paléotempératures TL et les températures de déblocage de l'aimantation rémanente mettent en évidence des prélèvements peu chauffés avec des températures inférieures à 250°C. On aurait pu s'attendre à détecter de la goethite en quantité dans ces prélèvements puisque qu'à cette température la goethite commence juste à disparaitre. Cependant, seules d'éventuelles traces de goethite ont été mises en évidence dans ces prélèvements. On rappellera que pour l'analyse de la signature magnétique seule la partie superficielle (premier cm) a été prélevée donc uniquement la partie rubéfiée la plus impactée par la chauffe. Les températures obtenues constituent alors une valeur maximale des températures atteintes.

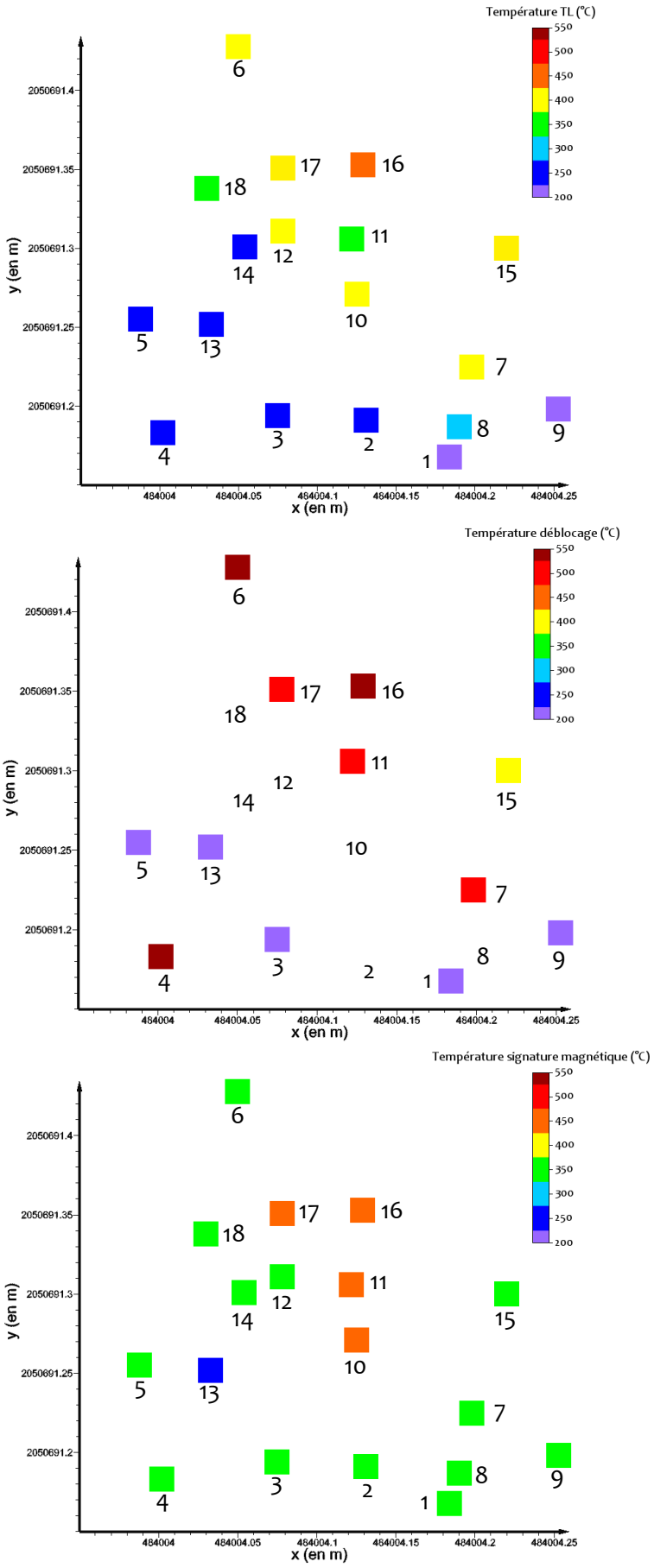


Figure 188 : Comparaison de la répartition des paléotempératures TL, des températures de déblocage de l'aimantation rémanente et des paléotempératures estimées par la signature magnétique.

n° prélèvement	Epaisseur de rubéfaction (mm)	Température		
		TL (°C)	Température déblocage (°C)	Signature magnétique (°C)
1	10	200	200	350-400
2	12	250	nd	350-400
3	9	250	200	350-400
4	10	250	530	350-400
5	5	250	200	350-400
6	15	400	530	350-400
7	11	400	500	350-400
8	5	300	nd	350-400
9	7	200	200	350-400
10		400		400-500
11	25	350	500	400-500
12	19	400	nd	350-400
13	7	250	200	250-350
14	16	250	nd	350-400
15	14	425	400	350-400
16	26	450	560	400-500
17	23	425	500	400-500
18		350		350-400

Tableau 30 : Tableau de synthèse des paléotempératures TL, des températures de déblocage et des paléotempératures déterminées par la signature magnétique pour le foyer F6.

Quelques points montrent des discordances marquées, par exemple le n°4 des températures de déblocage et le n°11 des températures TL. Outre les raisons déjà évoquées, entre autre la différence de cinétique, les prélèvements TL et magnétique sont différents pour un même point et il peut exister un gradient thermique entre la carotte et son pourtour.

La thermoluminescence reste la méthode la plus robuste, pour le moment, puisque validée par l'échantillonnage expérimental. L'estimation des paléotempératures en surface des trois structures de combustion archéologiques étudiées identifie *a priori* des intensités de chauffe différentes puisque les paléotempératures maximales enregistrées par les sédiments varient de 350°C pour le foyer F8, 450°C pour le foyer F6 et 550°C pour la sole foyère du foyer F4.

* *
*

Pour appréhender cette notion d'intensité de chauffe, des feux expérimentaux complémentaires ont été réalisés. Les données de température acquises lors des expérimentations ont aussi permis la construction d'un modèle numérique de la propagation de la chaleur dans les sédiments.

Partie V : Feux expérimentaux et modélisation numérique

Introduction

Dans le cadre de cette thèse, trois feux expérimentaux ont été réalisés sur trois natures différentes de support :

- substrat en argile du commerce
- sole en sédiment argileux (grotte des Fraux) sur substrat en argile du commerce
- sole en sédiment argileux (grotte des Fraux) sur substrat gréseux (grotte des Fraux).

Seul ce dernier support, constitué entièrement de matériaux issus de la grotte des Fraux, a fait l'objet de prélèvements pour les mesures de TL et des propriétés magnétiques mentionnées dans les chapitres précédents.

L'ensemble des trois feux a été instrumenté (thermocouples) et les courbes de températures ont été enregistrées pour les différentes chauffes effectuées. En outre, les impacts thermiques visuels (rubéfaction, craquèlement) ont été relevés ainsi que les quantités de bois utilisées.

Nous allons maintenant exploiter ces données pour :

- comparer les températures atteintes à celles que nous avons déterminées sur les foyers archéologiques ;
- comparer les impacts thermiques à ceux observés sur les foyers archéologiques ;
- évaluer les quantités d'énergie mises en jeu ;
- mettre en place un modèle numérique de la propagation de la chaleur dans le sédiment pour tenter d'estimer la durée d'utilisation et l'intensité de chauffe des foyers archéologiques.

Chapitre 10 : Expérimentation de feux

Les feux expérimentaux ont été entrepris afin de pouvoir comparer les données acquises sur les feux archéologiques, à savoir la couleur des sédiments, les températures atteintes en surface et les dimensions des zones impactées par le feu, à celles de feux réels. Les expérimentations apporteront des informations complémentaires sur les quantités de combustibles nécessaires et ainsi sur l'énergie dégagée par la combustion dont une partie est utilisée pour chauffer le sédiment. Il s'agit de pouvoir établir des équivalences en termes de température, de durée, d'énergie, entre les chauffes expérimentales et celles archéologiques à partir des impacts sur les sédiments.

La réalisation de feux en milieu souterrain aurait été la plus appropriée. Cependant les contraintes de sécurité et d'accessibilité dans un tel milieu nous ont incités à choisir d'expérimenter en plein air, notre intérêt se portant pour le moment sur les impacts observés et enregistrés par les sédiments sous l'influence du feu.

Ces expérimentations n'auraient pu se faire sans l'aide précieuse d'Albane Burens, Laurent Carozza, Pierre Guibert et François Lévêque, que je remercie.

Plusieurs études se sont intéressées à l'impact du feu sur les sédiments (March et Ferreri, 1989 ; Canti et Linford, 2000 ; Fiorentino et d'Oronzo, 2010 ; Miller *et al.*, 2010 ; Bentsen, 2011 ; Liedgren et Östlund, 2011). Toutefois, chaque matériau possède des propriétés thermiques qui lui sont propres. Les matériaux enregistrent cet impact (rubéfaction, craquèlement, températures atteintes) de manière différente suivant leur nature, leur degré d'humidité… Il est donc nécessaire d'évaluer ces propriétés pour les sédiments des Fraux (sédiment argileux et gréseux).

I. Construction des substrats expérimentaux

I.1. **Instrumentation**

Les substrats des feux expérimentaux ont été instrumentés avec des thermocouples de type K (Chromel-Alumel) pouvant supporter des températures allant jusqu'à 1200°C. Quelques 60 thermocouples sont reliés, par l'intermédiaire de trois multiplexeurs, à un système d'acquisition piloté par le logiciel « BenchLink Data Logger » (Figure 189). Chaque multiplexeur regroupe vingt thermocouples numérotés du n°101 à 120 pour le premier, n°201 à 220 pour le second et n°301 à 320 pour le troisième. Ce dispositif permet de sélectionner les thermocouples, l'intervalle de temps entre deux enregistrements et de suivre en temps réel l'évolution des températures.

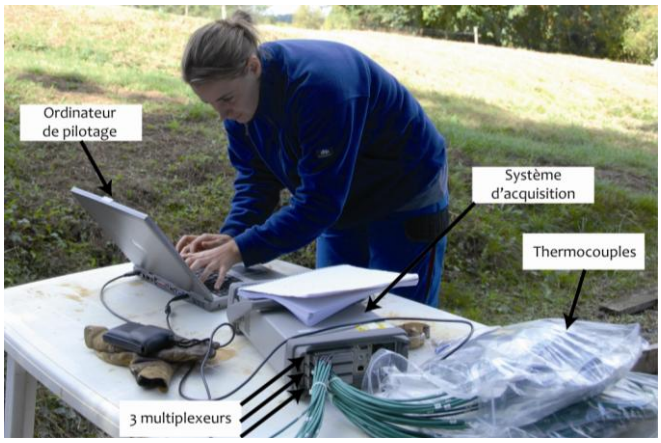


Figure 189 : Dispositif d'enregistrement des températures : 60 thermocouples (type K), reliés à 3 multiplexeurs connectés à un système d'acquisition (34972A, Aquitek) piloté en externe par le logiciel « Benching Data Logger ».

I.2. **Objectif et mise en place de chaque substrat**

Les trois substrats construits reprennent des configurations présentes parmi les structures de combustion de la grotte des Fraux et permettent d'aborder différents aspects de l'impact thermique du feu sur les sédiments.

I.2.1. Substrat 1 en sédiment argileux : le modèle homogène

L'objectif de cette première expérimentation est la conduite de feux sur un matériau homogène afin de pouvoir étudier la propagation de la chaleur dans un tel milieu. Ce substrat sera à la base du modèle numérique établi dans le *chapitre 11*.

Le modèle archéologique, référence pour ce feu expérimental, est le foyer F6 : foyer à plat sur un substrat très argileux caractérisé par la présence en faible quantité de grès sableux. Les traces de rubéfaction associées à cette structure s'étendent sur 30 cm de diamètre environ et 2.5 cm de profondeur au maximum.

La réplique expérimentale a été construite en argile industrielle (argile de Provence, CF141R, Ceradel). Le cadre délimitant le substrat est de 70 cm de coté, comblé par un volume de 100 kg d'argile. Le remplissage a été réalisé à partir de parallélépipèdes d'argile de 12 cm x 12 cm x 2 cm en plusieurs couches, une première couche de 4 cm d'épaisseur puis quatre couches de 2 cm d'épaisseur, entre lesquelles des thermocouples ont été placés (Figure 190, Tableau 31).

Trois chauffes successives, séparées par des phases de refroidissement de la structure ont été opérées sur ce substrat. Le paramètre de chauffe à respecter était une surface au sol de 30 à 35 cm de diamètre conformément aux observations de rubéfaction du foyer archéologique de référence.

I.2.2. Substrat 2 : sole argileuse sur substrat argileux

Le sédiment argileux constituant la sole ayant été extrait de la grotte, il sera intéressant d'examiner son comportement au feu (rubéfaction, fissuration) pour pouvoir comparer ces observations à celles des feux archéologiques.

Ce second substrat correspond à un autre foyer archéologique : sole de cuisson aménagée sur le sol argileux du secteur 8 de la grotte des Fraux.

La sole expérimentale a été préparée à partir d'un sédiment argileux (prélevé dans le secteur 2) dégraissé à l'aide de sable de grès (bloc de grès broyé finement provenant de la grotte). Après une nuit de séchage à 20°C, la sole a été aménagée sur le socle d'argile industrielle préalablement décrit (socle ayant déjà subi trois chauffes). La sole a été modelée en deux étapes permettant le positionnement d'une série intermédiaire de thermocouples (Figure 191, Tableau 32). Les thermocouples n°207 à 220 sont aux mêmes coordonnées que précédemment. Les thermocouples n°201 à 206 ont été repositionnés et de nouveaux thermocouples ont été ajoutés (n°311 à 320) dans et sur la sole.

Deux chauffes successives ont été opérées, avec quelques heures de refroidissement de la structure entre les deux.

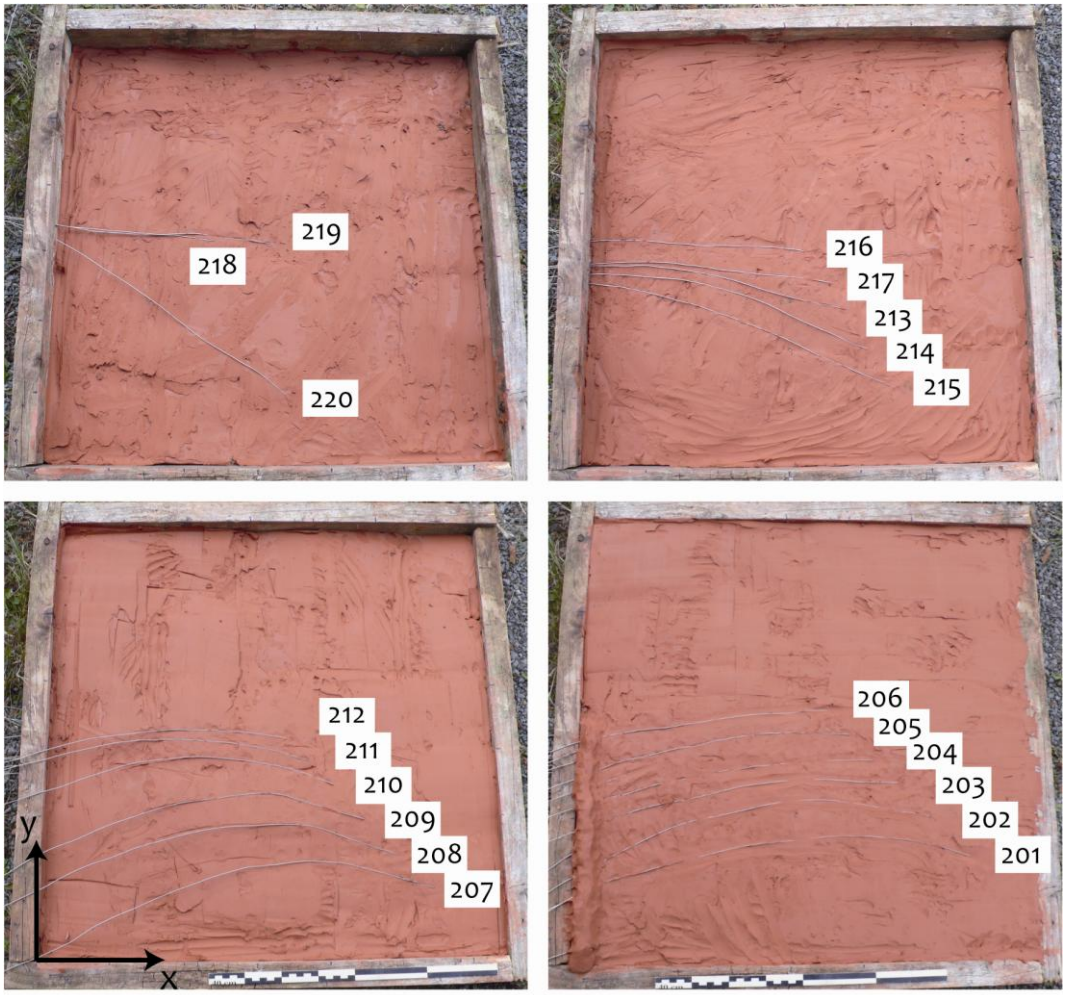


Figure 190 : Positionnement des thermocouples n°201 à 220 au sein du substrat 1 homogène d'argile industrielle.

n°	x	y	z	n°	x	y	z
201	56.0	14.5	-2.0	211	38.0	29.0	-2.6
202	50.5	20.3	-1.4	212	35.0	32.5	-2.2
203	46.5	25.4	-1.2	213	38.8	23.2	-4.3
204	42.5	28.6	-1.0	214	41.8	17.0	-5.0
205	39.4	32.5	-0.1	215	45.0	11.6	-5.8
206	35.5	36.0	0.0	216	34.5	32.0	-4.0
207	55.5	9.5	-4.0	217	36.8	27.4	-4.2
208	50.5	14.7	-3.7	218	23.5	33.5	-4.2
209	45.7	20.0	-3.0	219	32.0	34.0	-6.2
210	41.5	25.3	-2.8	220	34.5	10.0	-7.3

Tableau 31 : Coordonnées des thermocouples n°201 à 220 dans le substrat 1. x et y sont pris à partir du coin intérieur en bas à gauche. z est une coordonnée relative par rapport à un point extérieur et ramené à zéro pour le point le plus haut (n°206).

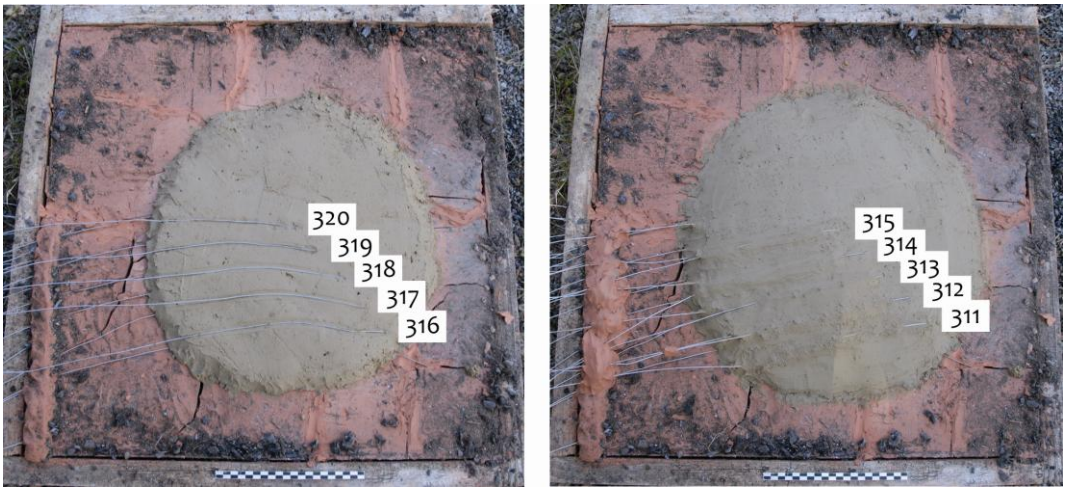


Figure 191 : Positionnement des thermocouples n°311 à 320 au sein de la sole aménagée sur le substrat industriel.

n°	x	y	z	n°	x	y	z	n°	x	y	z
201	55.5	13.0	-2.0	311	49.0	19.0	0.7	316	49.0	18.0	0.0
202	52.0	19.0	-1.8	312	47.0	23.0	1.5	317	46.5	21.0	1.0
203	44.5	25.5	-1.4	313	43.5	26.0	2.5	318	44.5	25.0	1.0
204	43.0	29.0	-1.4	314	40.5	29.0	3.2	319	40.5	29.0	1.5
205	39.0	33.0	-0.8	315	36.5	32.5	4.0	320	37.5	32.5	2.0
206	34.0	36.0	0.3								

Tableau 32 : Coordonnées des thermocouples n°201 à 206 et n°311 à 320 dans le substrat 2. x et y sont pris à partir du coin intérieur en bas à gauche. z est une coordonnée relative par rapport à un point extérieur et ramené à zéro pour le n°206 (substrat 1).

I.2.3. Substrat 3 : sole argileuse sur substrat gréseux

Ce dernier modèle expérimental, dont la construction a été détaillée dans le *chapitre 6*, reprend la configuration du foyer F4. Cette structure a d'ores et déjà permis la validation du protocole paléothermométrique TL et a montré des similitudes fortes de la minéralogie magnétique avec celle du foyer F6.

Afin de simplifier l'accès aux informations de positionnement des thermocouples et à la construction du substrat, les données principales sont rappelées ici (Tableau 33, Figure 192). La sole expérimentale constituée d'un sédiment argileux provenant de la grotte des Fraux a été déposée sur un substrat gréseux allant du bloc de grès au fond du cadre à du grès finement broyé sous la sole (Figure 192). L'hétérogénéité des matériaux utilisés pour la construction de ce substrat (grès plus ou moins broyés et sédiment argileux) va permettre d'évaluer les impacts thermiques produits sur un substrat variable.

Quatre chauffes successives ont été réalisées sur ce substrat avec des phases de refroidissement entre chaque chauffe variables dans la durée.

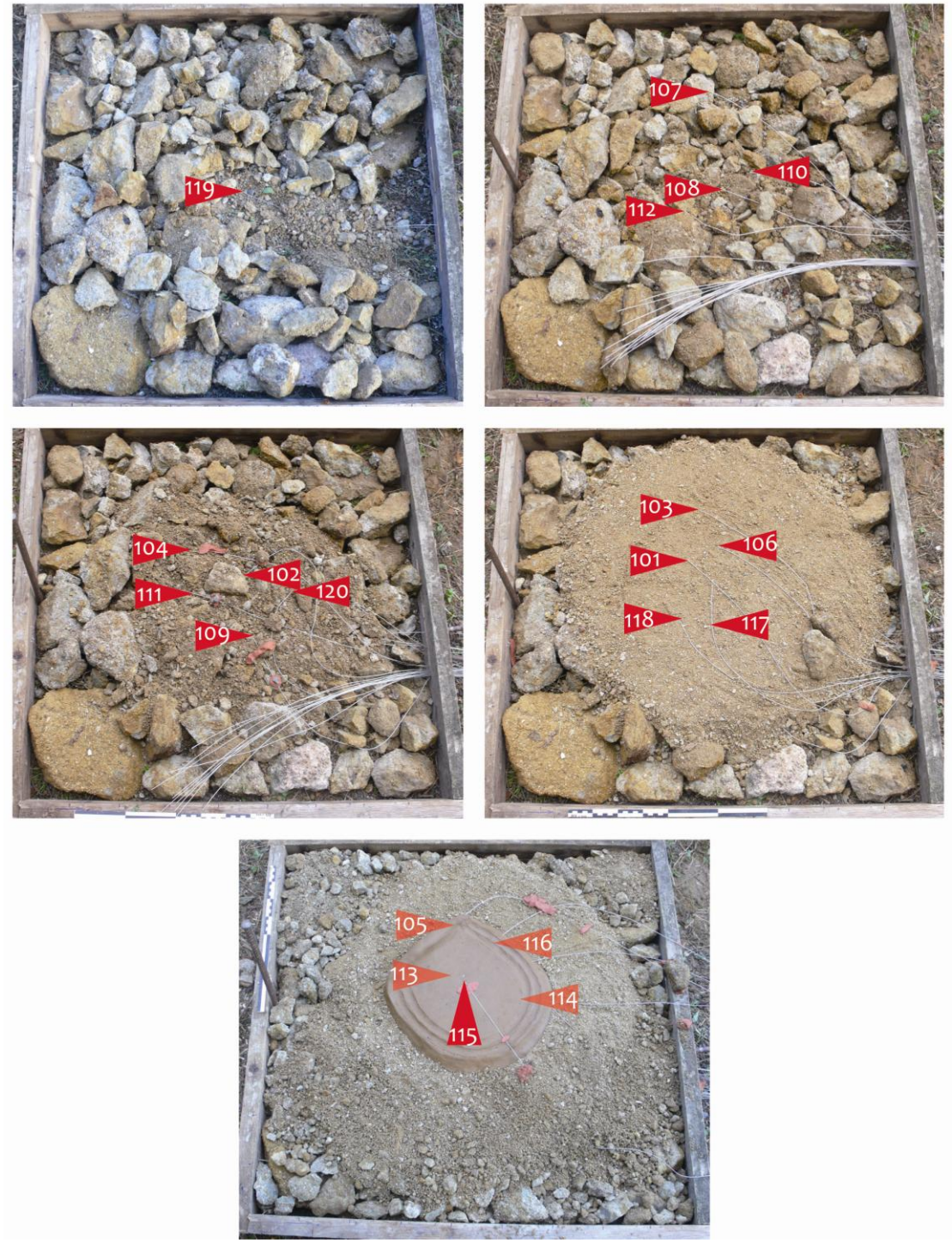


Figure 192 : Positionnement des thermocouples n°101 à 120 dans le substrat 3.

n°	x	y	z	n°	x	y	z	n°	x	y	z
101	42.0	55.8	-2.0	108	47.0	44.0	-8.0	115	44.6	53.0	-0.4
102	50.2	53.2	-6.9	109	50.0	37.0	-7.0	116	52.0	64.0	-1.3
103	46.0	69.5	-1.8	110	55.5	45.5	-8.1	117	47.6	49.4	-2.8
104	38.0	59.5	-6.2	111	35.8	48.7	-6.3	118	39.2	41.2	-2.0
105	38.2	64.5	0.0	112	41.5	42.5	-8.2	119	47.5	48.0	-11.3
106	48.7	58.9	-2.8	113	44.5	54.5	-1.3	120	61.0	49.2	-7.3
107	47.5	73.5	-7.0	114	55.0	49.0	-1.3				

Tableau 33 : Coordonnées des thermocouples n°101 à 120 dans le substrat 3. x et y sont pris à partir du coin intérieur en bas à gauche. z est une coordonnée relative par rapport à un point extérieur et ramené à zéro pour le point le plus haut (n°105).

II. Les feux expérimentaux

Dans un premier temps, les caractéristiques du combustible ainsi que les quantités de bois consommés lors des combustions vont être présentés. Ensuite, les courbes de températures obtenues pour chaque chauffe sur chacun des substrats expérimentaux seront exposées afin d'en extraire des informations sur la propagation de la chaleur dans ces trois milieux.

II.1. **Le combustible**

Un élément important dans la conduite d'un feu est le combustible défini par son espèce, sa longueur, son diamètre, son taux d'humidité.

Les espèces identifiées comme combustibles à la grotte des Fraux sont du type hêtre, frêne et chêne (Carozza, 2011). Ces espèces, comme l'ensemble des feuillus ont un pouvoir calorifique compris entre 18.5 et 19.2 MJ/kg de bois (valeur pour 0 % d'humidité ; Francescato, 2008). Les résineux possèdent un pouvoir calorifique légèrement supérieur de 18.8 à 19.8 MJ/kg (valeur pour 0 % d'humidité ; Francescato, 2008). Parmi les feuillus, essences qui nous intéressent, le pouvoir calorifique ne varie pas énormément d'une espèce à l'autre (8 % maximum ; ADEME, 2001).

Par contre l'état d'humidité du bois a une importance prépondérante, bien plus que l'espèce (Figure 193, gauche). En effet, plus le bois est humide, plus l'énergie nécessaire pour évaporer cette eau est importante (2.44 MJ/kg d'eau), énergie alors non disponible pour chauffer l'environnement (sédiment, air…). Le bois fraichement coupé possède entre 40 % et 50 % d'humidité (en masse), taux pour lequel le pouvoir calorifique est d'environ 8 MJ/kg. En six mois de séchage, ce taux d'humidité peut diminuer de moitié (Francescato, 2008) et ainsi presque doubler le pouvoir calorifique associé.

Dans le cas des foyers des Fraux, nous n'avons pas d'information sur l'état de conservation (bois sain, bois mort) et de séchage du bois (bois vert, bois sec) utilisé comme combustible. Des observations anatomiques des charbons (altérations dues à des champignons) et des fentes de retrait (dues à l'évaporation de l'eau) seraient peut-être un moyen d'accéder à ces informations (Théry-Parisot et Texier, 2006 ; Théry-Parisot et Henry, 2012).

L'ensemble des feux ont été réalisés avec une unique essence, du châtaignier. Ce bois, de plusieurs années de séchage, était constitué de branches de 5 à 7 cm de diamètre environ qui ont été coupées en bûches de 30 cm de long et fendues (Figure 193, droite). L'humidité du bois n'ayant pas été mesurée, nous prendrons une valeur de 20 % (pour un bois séché plus d'un an ; Francescato, 2008) soit un pouvoir calorifique de 15MJ/kg.

C'est la disponibilité sur place de ce bois, donné par M. Jean Fargeot, maire de Saint-Martin-de-Fressengeas, qui a principalement orienté notre choix. De plus, le châtaignier est un bois dont les propriétés thermiques sont proches de celles des espèces hêtre-frêne-chêne.

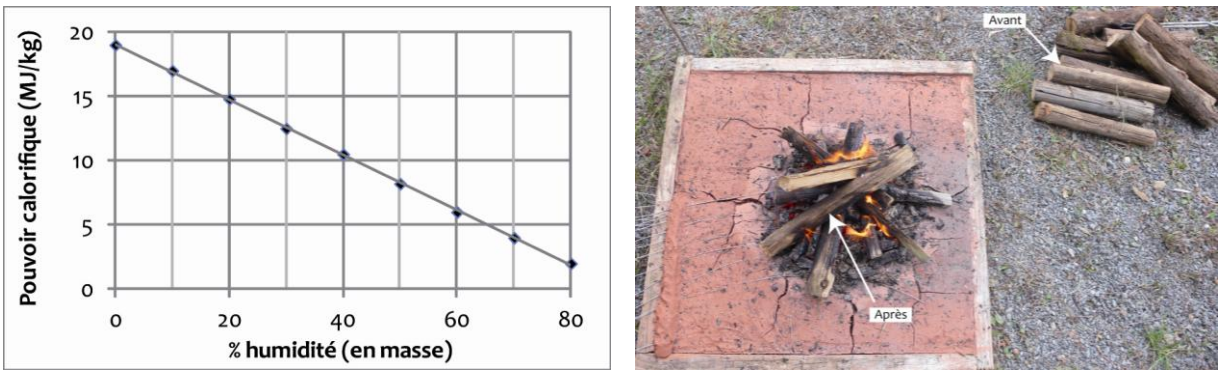


Figure 193 : gauche : variation du pouvoir calorifique en fonction de l'humidité du bois. © Francescato, 2008
droite : dimensions du combustible (30 cm de long par 5 à 7 cm de diamètre).

II.2. Les feux

Plusieurs feux ont successivement été allumés sur chaque substrat. Les données relatives à ces chauffes sont exposées, entre autre, dans le tableau 18 qui regroupe les informations sur :

- la durée de l'alimentation en combustible pour chaque chauffe ;

- les températures maximales atteintes pour chaque profondeur où les thermocouples ont été positionnés. Données à relier aux courbes de températures pour chaque chauffe (Figure 194) ;

- des évènements remarquables tels que par exemple le retrait éventuel des braises à la fin d'une combustion ainsi que des notes sur l'évolution des températures (palier à 100°C) ;

- l'aspect du substrat après chaque chauffe (à associer aux photographies, Figure 195).

Les trois pages suivantes synthétisent l'ensemble des données acquises lors de ces expérimentations.

substrat	chauffe	alimentation combustible début	alimentation combustible fin	température max atteinte (°C) 0cm	-2cm	-4cm	-6cm	-8cm	-11cm	commentaires sur les températures et la conduite du feu	aspect de la surface
sédiment argileux (substrat 1)	1	17h10	18h30 80 min	600	100	80	70			. Palier à 100°C important : évaporation de l'eau du sédiment . Chute des températures à 160 min : retrait des braises et cendres de la surface	. A l'emplacement du feu : argile cuite (rouge/noire) . Autour : argile crue . craquèlement : retrait lié au séchage brutal de l'argile qui suit les parallélépipèdes de construction
	2	10h30	12h15 105 min	900	250	150	80				. Sous le feu : argile rubéfiée (1 cm d'épaisseur) . Auréole séchée de 5 cm ; autour : argile crue . craquèlement plus important
	3	15h20 290 min	17h20 410 min	700	350	220	130				. Zone rubéfiée : 2 cm d'épaisseur au centre du feu . Zone séchée : 6 cm dépaisseur au centre mais 2 cm en périphérie
				0cm	-2cm	-4cm	-6cm	-8cm			
sole sur sédiment argileux (substrat 2)	1	11h30	13h30 120 min	600	450	200	100	90		. Palier à 100°C (1h) dans et sous la sole (humide) . Effet visible de la forme biseautée des bords de la sole : températures sur les bords montent plus vite que celles au centre . n°201 : pic associé à l'écartement des braises	. Traces de rubéfaction : au centre, une zone noircie par l'atmosphère réductrice du feu ; autour rouge-orangée . craquèlement lié au séchage trop brutal de la sole
	2	16h20 290 min	17h30 360 min	800	600	350	200	140		. Chute des températures à 460 min : retrait des braises et charbons de la surface	. Rubéfaction sur l'épaisseur de la sole, noire au centre et rouge orangée en périphérie
				0cm	-1cm	-2cm	-6cm	-8cm	-11cm		
sole sur sédiment gréseux (substrat 3)	1	12h50 15 min	17h 265 min	600	650	400	200	100	80	15 min de séchage forcé (sèche-cheveux) 1h40 de séchage par ajout de braises 1h20 de feu autour de la sole puis feu sur la sole	. Sole : rubéfiée, noircie et craquèlement . Grès : rubéfiés à l'emplacement des braises de séchage
	2	10h35	12h05 100 min	800	750	460	230	180	90	. Chute des températures à 200 min : retrait des braises et charbons de la surface	. Test de cuisson d'aliment d'origine animale : reste de matières grasses consommées par la chauffe 3
	3	14h50 260 min	17h10 400min	620	750	550	330	290	180	. Les grès sous la sole et en profondeur ont tous dépassé les 100°C . Pas de vidange des braises: refroidissement très lent (non enregistré en totalité)	. Pas de modifications particulières
	4	11h45	13h30 110 min	810	700	530	270	230	130	. Chute des températures à 130 min : retrait des braises et charbons . Chute des températures à 410 et 460 min : démontage de la structure	. Nouveau test de cuisson qui laisse des résidus de graisses

Tableau 34 : Principales caractéristiques des chauffes : heure de début et de fin ; les températures maximales atteintes à chaque profondeur mesurée ; précisions sur la conduite du feu ; descriptif de l'aspect des substrats.

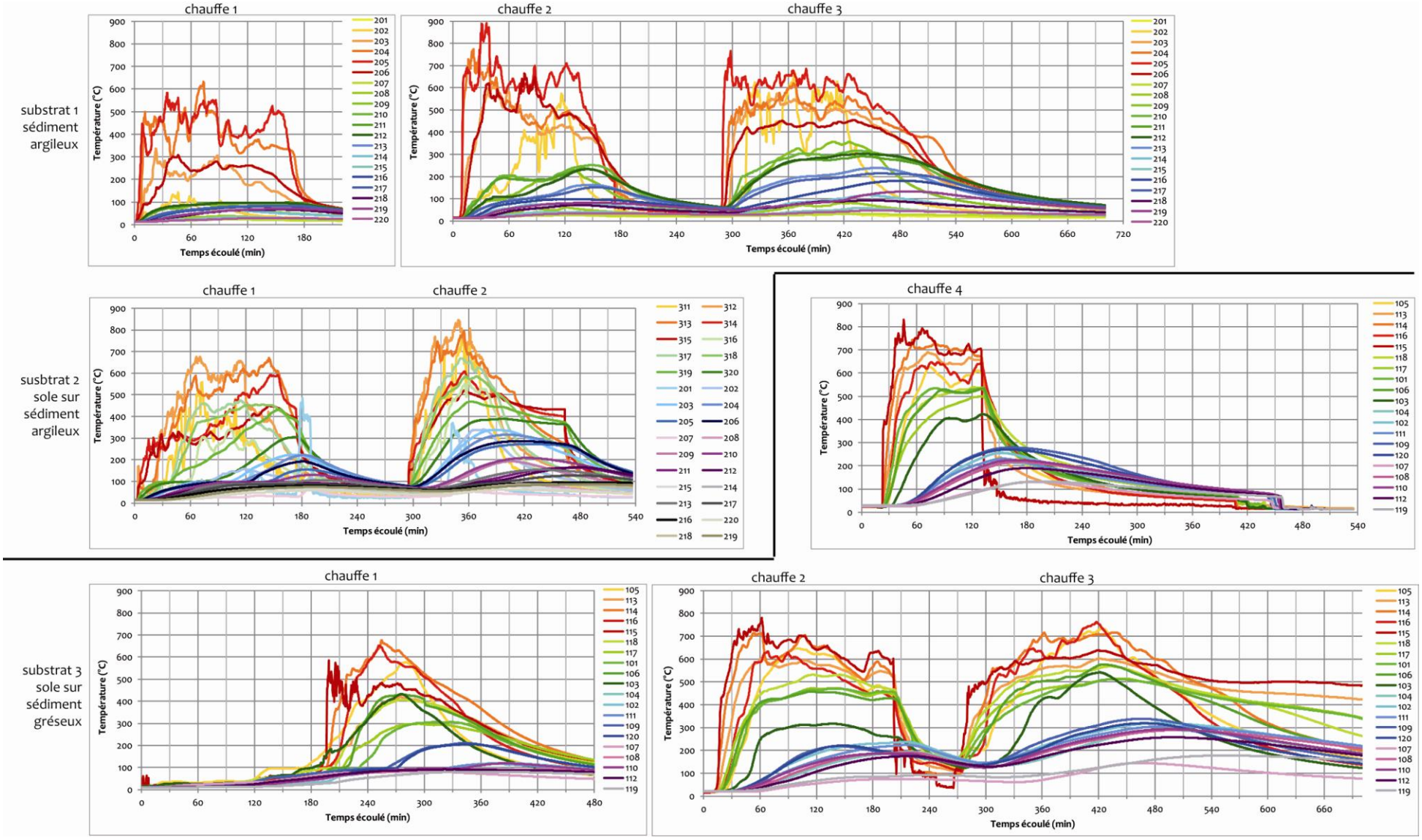


Figure 194 : Courbes de température enregistrées pour chaque chauffe sur les trois substrats. En rouge, en surface puis en allant de plus en plus en profondeur le vert, bleu, violet et gris. Chaque gamme de couleur correspond à une profondeur du tableau précédent.

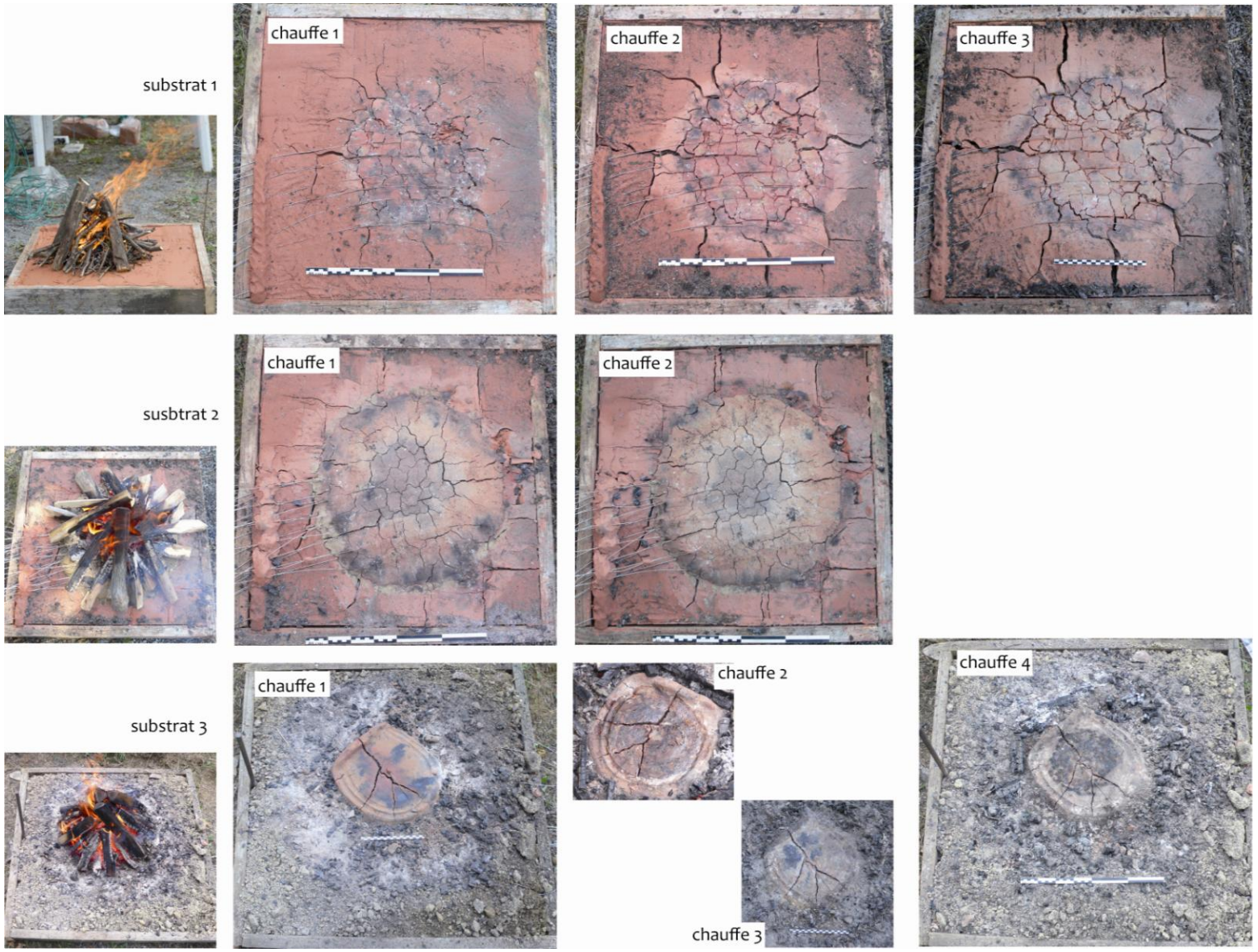


Figure 195 : Evolution de l'aspect (couleur, craquèlement) des trois substrats avec les chauffes.

II.3. **Analyses des données issues des expérimentations**

Les données recueillies lors de ces expérimentations concernent les températures atteintes, les quantités de combustible consommé, les rubéfactions et les craquèlements observés. Chaque élément peut être comparé entre les différents substrats, pour les différentes chauffes mais aussi avec les données et observations issues de l'étude des foyers archéologiques.

II.3.1. Combustible

La durée d'alimentation du feu ainsi que les quantités de combustible brûlé pour chaque chauffe sont reportées dans le tableau suivant (Tableau 35). Le combustible a été positionné en « tipi » pour l'ensemble des combustions (Figure 195, gauche). Les feux ont été alimentés en bois de manière à assurer une combustion continue suivant un régime le plus constant possible a l'exception de la chauffe 3 sur le substrat 3 où l'alimentation a été plus soutenue.

Les vitesses de combustion du bois indiquent des valeurs environ deux fois plus faibles pour les chauffes du substrat 1 (sédiment argileux) et la première chauffe du substrat 2 (sole sur sédiment argileux) que pour les autres chauffes des substrats 2 et 3 (sole sur sédiment gréseux).

De plus, pour un substrat donné, la vitesse de combustion augmente à chaque nouvelle chauffe (Tableau 35). Ce phénomène est certainement à associer avec l'état de séchage progressif du sédiment détaillé dans le paragraphe suivant.

substrat	chauffe	durée d'alimentation (h)	masse de bois brûlé (kg)	énergie dégagée (MJ)	vitesse de combustion (kg/h)	puissance (MJ/h)	puissance (kW)
1	1	1.33	4.6	69	3.5	51.8	14.4
	2	1.75	6.3	95	3.6	54.0	15.0
	3	2.00	8.0	120	4.0	60.0	16.7
2	1	2.50	10.0	150	4.0	60.0	16.7
	2	1.17	8.6	129	7.4	110.6	30.7
3	1	4.17	28.0	420	6.7	100.8	28.0
	2	1.67	11.5	173	6.9	103.5	28.8
	3	2.33	19.5	293	8.4	125.4	34.8
	4	1.75	12.8	192	7.3	109.7	30.5

Tableau 35 : Durée d'alimentation du feu, masse de bois brulé et énergie dégagée (pour 15 MJ/kg théorique) pour chaque chauffe et chaque substrat (1 : sédiment argileux ; 2 : sole sur sédiment argileux ; 3 : sole sur sédiment gréseux). On en déduit une vitesse et une puissance de combustion.

II.3.2. Températures atteintes

La première chauffe sur un substrat atteint des températures moindres (600°C) que les chauffes suivantes (700-800°C). Ce phénomène est à associer avec le palier à 100°C observé sur l'ensemble des courbes enregistrées, que le substrat soit argileux ou gréseux (Figure 194). Ces deux observations trouvent leur explication dans l'évolution de l'humidité du sédiment : lors de la première chauffe, une partie de l'énergie dégagée par la combustion est absorbée pour évaporer l'eau du substrat en commençant par la surface (palier à 100°C des thermocouples proches de la surface). Lors de la chauffe suivante, la couche de sédiment supérieure (qui a séché à la chauffe 1) conduit la chaleur sans l'absorber et permet aux couches inferieures de sécher. Et ainsi de suite, le palier à 100°C disparaît des courbes au fur et à mesure des chauffes et les températures enregistrées augmentent (Figure 194, Tableau 34).

Ce séchage progressif du sédiment influe probablement sur les vitesses de combustion du bois précédemment décrites.

Lors de la première chauffe, le sédiment, très humide, absorbe une part importante de l'énergie dégagée par la combustion pour sécher et évaporer l'eau présente. L'énergie ainsi utilisée n'est pas disponible pour entretenir une combustion intense du bois ce qui entraine des vitesses de combustion faibles. De plus, l'eau qui s'échappe sous forme de vapeur d'eau appauvrit l'atmosphère de combustion en comburant (oxygène) et diminue aussi les vitesses de combustion.

A l'inverse, lorsque le sédiment a séché, une plus grande part de l'énergie dégagée par la combustion sert à la combustion du bois qui se consume plus rapidement. Les consommations de bois les plus importantes correspondent effectivement aux chauffes où les sédiments sont autour de 450-500°C à 2 cm de profondeur (Figure 194).

Les structures expérimentales reprenant des configurations proches des foyers archéologiques étudiés, il est intéressant de comparer les paléotempératures déterminées par TL aux températures enregistrées par les premiers centimètres de sédiment :

- pour le substrat 1 (réplique du foyer F6) les températures dans les deux premiers centimètres sont comprises en moyenne entre 300°C et 600°C (3ème chauffe). La température atteinte par le premier centimètre, qui correspond à l'épaisseur prélevée pour la TL sur le foyer F6, est donc comprise entre ces deux valeurs. Les paléotempératures déterminées par TL d'une valeur de 450°C maximum sont tout à fait cohérentes avec cet intervalle.

- pour le substrat 3, la sole expérimentale enregistre des valeurs supérieures à 500°C qui concordent avec les paléotempératures obtenues sur la sole du foyer F4. En ce qui concerne les grès autour de la sole expérimentale, leur température a dépassé les 250°C puisqu'ils sont rubéfiés. Malheureusement aucune mesure de température n'a été réalisée sur les grès autour de la sole pour enregistrer les températures induites par le feu ou par l'écartement des braises de vidange. Il aurait été intéressant de voir s'il existe des différences de températures engendrées par ces deux phénomènes.

II.3.3. Rubéfaction

La rubéfaction du substrat apparaît en surface dès la première chauffe et se propage en surface et en profondeur avec l'accumulation des chauffes. Le démontage des structures à la suite des expérimentations a permis de mesurer les épaisseurs affectées :

- pour le substrat 1 la rubéfaction concerne les deux premiers centimètres c'est-à-dire les sédiments qui ont chauffé à plus de 250°C. Cette épaisseur est du même ordre de grandeur que celle observée sur le foyer F6 (modèle archéologique) qui atteint au maximum 2.5 cm.
- pour le substrat 2, la sole est rubéfiée sur toute son épaisseur (4 cm au centre) avec des températures sous la sole supérieures à 300°C.
- pour le substrat 3, la sole est rubéfiée ainsi que les grès finement broyés (sable) qui supportent la sole (Figure 196). Autour, un bandeau de 15 cm de large de grès a été rubéfié par le feu et/ou l'écartement des braises pendant les vidanges. On observe ensuite un bandeau de grès secs puis autour le grès broyé est toujours humide (Figure 196). Lorsqu'on regarde en profondeur, les grès finement broyés sont rubéfiés, la couche de grès plus grossièrement broyé aussi. Au-delà, les températures n'ont pas atteint des valeurs suffisantes pour que la rubéfaction apparaisse. Au fond du cadre, les blocs de grès sont encore humides.

Pour ces deux derniers substrats, les structures archéologiques étant intactes, il n'y a pas de données de comparaison pour l'épaisseur de rubéfaction. Néanmoins, pour le foyer F4, on retrouve aussi une zone rubéfiée autour de la sole.

Figure 196 : Démontage de la sole. Les grès sous-jacents très rubéfiés sont entourés de grès rubéfiés par le feu et/ou l'écartement des braises, de grès secs puis de grès humides.

II.3.4. Craquèlement

Le craquèlement des sédiments argileux a été systématique sur les trois structures. Ce phénomène figure le retrait de volume dû à un séchage trop rapide du sédiment. Un long séchage préalable aux chauffes ainsi qu'un dégraissage plus important pourraient réduire cet effet.

- substrat 1 : les fissures se sont créées préférentiellement suivant les morceaux de sédiment avec lesquels on avait construit le substrat (parallélépipède de 12x12x2 cm), aussi bien en surface qu'en profondeur. Malgré les précautions prises pendant la construction, les joints ont constitué les faiblesses de la structure. Sous le feu, le craquèlement est plus important

(nombreux petits polygones de dessiccation) probablement parce qu'à cet emplacement le gradient thermique est plus fort.

- substrat 2 : de nombreuses fissures sont aussi apparues malgré le dégraissage de l'argile et la nuit de séchage. Les gradients de température importants imposés à la sole ont engendré ces fissures. Elles sont là aussi concentrées en plus petits polygones de dessiccation au centre.
- substrat 3 : la sole s'est morcelée en quatre fragments à la première chauffe bien qu'elle ait fait l'objet d'un séchage préalable (qui n'était visiblement pas suffisant). Il est à noter que la moitié contenant les thermocouples ne s'est pas fissurée, les thermocouples ayant probablement renforcé la structure localement.

Sur ce point, les comparaisons avec les foyers archéologiques sont limitées du fait de la ré-humidification constante, dans la grotte, de l'encaissant argileux. Cependant, sur la sole du foyer F4, une large fissure reste visible (en bas sur le cliché de la sole, Figure 43) comparable à celles de la sole expérimentale.

II.3.5. Humidité et vitesse de séchage du sédiment

La vitesse de séchage du sédiment se propage en profondeur à des vitesses différentes (Tableau 36). Cette différence est la conséquence de deux phénomènes conjugués : le matériau en lui-même et la morphologie de sa mise en œuvre. Le milieu gréseux est bien plus poreux que le sédiment argileux : l'eau a ainsi plus de facilité à s'évaporer. Ainsi, au bout de 4h de chauffe, pour le milieu argileux, seul les deux premiers centimètres ont une température supérieure à 100°C alors que pour le substrat 3 c'est plus de 8 cm de grès broyé qui ont dépassé les 100°C. Par ailleurs, les soles argileuses sèchent plus vite que le milieu compact. Leur position en relief présente en effet une surface d'interaction avec l'extérieur plus importante. Bien sûr, l'épaisseur de la sole entre en jeu, le temps de séchage augmentant avec l'épaisseur.

Le facteur humidité relié à la porosité du matériau est celui qui régit majoritairement la vitesse de propagation de la chaleur.

Temps de chauffe nécessaire pour atteindre T = 100°C							
	surface	**- 1 cm**	**- 2 cm**	**- 4 cm**	**- 6 cm**	**- 8 cm**	**- 11 cm**
substrat 1	10 min		4h	5h	9h		
substrat 2	20 min		1h	2h			
substrat 3	1 min	20 min	30 min		1h30	3h30	7h

Tableau 36 : Temps de chauffe nécessaire pour que la température enregistrée par les thermocouples aux différentes profondeurs, dépasse les 100°C (substrat 1 : sédiment argileux ; substrat 2 : sole sur sédiment argileux ; substrat 3 : sole sur sédiment gréseux).

II.3.6. Capacité calorifique

Lors des refroidissements, la différence de capacité calorifique du substrat argileux ou gréseux est visible, particulièrement pour les chauffes n°3 du substrat 1 et n°4 du substrat 3. En effet, pour le milieu argileux, lorsque la chauffe en surface s'arrête, les températures des couches sous jacentes suivent ce refroidissement. Par contre, les sédiments gréseux, qui ont une capacité calorifique supérieure, conservent mieux la chaleur et, au cours du refroidissement de la structure, ont des températures supérieures à la surface.

III. Bilan

Les feux expérimentaux réalisés, en reprenant les configurations de certaines structures de combustion archéologiques offrent de solides éléments de comparaison. Les températures atteintes dans les premiers centimètres, ainsi que les rubéfactions (en surface et en profondeur) présentent des valeurs et extensions similaires aux foyers archéologiques. De plus, les stigmates visibles étant comparables, on peut proposer que les feux expérimentaux constituent un modèle valable pour les feux archéologiques quant aux quantités d'énergie mises en jeu.

L'importance de l'humidité des sédiments au moment de la chauffe est prépondérante par son contrôle sur les températures atteintes. Elle influe aussi fortement sur les quantités de bois consommé et la consommation de bois est d'autant plus importante que le substrat est sec. Au début, lorsque le sédiment est humide, la consommation de bois est moyenne donc l'énergie dégagée par sa combustion n'est pas très important. Par la suite, lorsque le sédiment commence à sécher, la consommation de bois augmente ce qui accroît la quantité d'énergie dégagée et induit une propagation de la chaleur.

Il est vraisemblable que la réalisation des expérimentations en plein air a attisé le feu. Mais d'un autre côté, nous ne connaissons pas encore les conséquences d'un milieu confiné sur les températures atteintes (réflexions de la chaleur sur les parois, mouvements d'air d'alimentation et de fumées).

Par ailleurs, au sein de la grotte des Fraux, les sédiments sont saturés en eau (milieu souterrain à 100 % d'humidité). Le feu sur ces substrats entraine d'abord un séchage du sédiment avant de l'impacter en termes de chauffe et de rubéfaction en profondeur. Un temps minimum de séchage des premiers centimètres de sédiment peut être déduit des chauffes expérimentales. Il est d'environ 4h pour un sédiment argileux et de 1h pour un sédiment gréseux (surmonté d'une sole argileuse sèche en 30 min environ).

* *
*

Ces expérimentations sont une source d'informations quant à la propagation de la chaleur dans un milieu homogène (sédiment argileux) et hétérogène (sole d'argile et sédiment gréseux). Ces données (température à différentes profondeurs) vont maintenant être utilisées pour mettre en place un modèle numérique de propagation de la chaleur dans les sédiments.

Chapitre 11 : Modélisation numérique de la propagation de la chaleur dans le sédiment

Le travail de simulation constituant ce chapitre a été réalisé en collaboration avec Delphine Lacanette (I2M, Bordeaux) que je remercie chaleureusement.

I. Objectifs des modélisations numériques

L'objectif du développement d'un modèle numérique de la propagation de la chaleur dans le sédiment est de pouvoir retrouver une durée de fonctionnement équivalente d'une structure à partir des températures de surface et de la profondeur de rubéfaction correspondant au front de température aux alentours de 250°C. Par ailleurs, les modélisations offrent un cadre théorique pour la propagation de la chaleur comme vecteur des impacts du feu sur les sédiments.

II. La simulation numérique

Le recours à la simulation est nécessaire pour résoudre les équations de conduction de la chaleur dans un milieu. Le code de mécanique des fluides numérique utilisé ici est le code thétis (http://thetis.enscbp.fr) développé dans le département TREFLE de l'I2M depuis plus de 20 ans.

L'équation générale de propagation de la chaleur est :

$$\lambda . \Delta T + \overrightarrow{grad\,\lambda} . \overrightarrow{grad\,T} + P = \rho\, C_p \frac{\partial T}{\partial t}$$

où :

λ est la conductivité thermique fonction des variables spatiales et du temps ($W.m^{-1}.K^{-1}$) ;
T la température (K)
ΔT est le Laplacien de la température : $\Delta T = \partial^2T/\partial x^2 + \partial^2T/\partial y^2 + \partial^2T/\partial z^2$;
P est une source de chaleur interne au système ($J.s^{-1}.m^{-3}$) ;
ρ est la masse volumique ($kg.m^{-3}$) ;
C_p est la capacité calorifique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)
t est le temps (s)

En se basant sur les températures enregistrées pendant les expérimentations, dans un premier temps nous avons réalisé des simulations de conduction de la chaleur dans un sédiment homogène (cas du substrat 1, sédiment argileux), en modifiant le paramètre de conductivité thermique λ jusqu'à retrouver au mieux les températures expérimentales.

Les simulations de conduction de la chaleur ont été réalisées dans un milieu encaissant en 2D, de 1.5 m de large par 15 cm de profondeur (Figure 197, gauche) reprenant ainsi l'épaisseur de sédiment du substrat expérimental.

L'étude s'est concentrée sur le cas du substrat 1 (sédiment argileux) car il constitue le cas le plus simple d'un sédiment unique, idéal pour une approche théorique. De plus, ce substrat est la réplique expérimentale du foyer F6 pour lequel nous disposons d'information de température (paléotempératures TL) et de profondeur de propagation (2.5 cm : rubéfaction à 250°C).

Simulation du cas « homogène » : substrat 1

Le substrat 1, constitué d'un unique sédiment argileux, a été considéré en premier lieu comme étant un milieu homogène. Cependant, dans ce cas, aucune simulation n'a permis de retrouver les températures expérimentales et ce quelles que soient les valeurs caractéristiques thermophysiques (ρ, λ et C_p) choisies. L'hypothèse d'homogénéité n'est donc pas valide.

Comme nous l'avons remarqué dans le chapitre précédent, le taux d'humidité du sédiment contrôle la montée des températures. Pendant la chauffe, il y a donc une épaisseur de sédiment sec, une épaisseur de sédiment en cours de séchage (« intermédiaire »), et une couche encore humide. C'est pourquoi nous avons choisi de construire un modèle dont la structure est découpée en trois couches (Figure 197, gauche) afin de simuler au mieux ces différences de séchage.

Dans cette structure, la masse volumique et la capacité calorifique sont fixées à des valeurs moyennes pour un sédiment argileux : $\rho = 1500\ kg.m^{-3}$

$C_p = 1000\ J.kg^{-1}.K^{-1}$

La comparaison des températures expérimentales et simulées se fait pour la troisième chauffe du substrat 1. Cette chauffe a été choisie car c'est celle pour laquelle le sédiment a le plus séché et ainsi les températures ne sont plus bloquées à 100°C dans l'ensemble du sédiment. Les températures de références sont lues au niveau des thermocouples n°206, 212, 216 et 219, disposés sur une verticale au centre du feu. Ils permettent de suivre la propagation de la chaleur suivant la profondeur z. Le n°206 donne une température de surface moyenne de 500°C, température choisie pour la source de chaleur des simulations.

Les températures expérimentales à retrouver sont, pour deux heures de chauffe à 500°C :

n°212 : z = 2.2 cm : T_{exp} = 300°C
n°216 : z = 4.0 cm : T_{exp} = 180°C
n°219 : z = 6.2 cm : T_{exp} = 130°C

Les valeurs de la conductivité thermique sont croissantes avec l'humidité (Oti, 2010) car l'eau est un meilleur conducteur que l'air qui se substitue à l'eau pendant le séchage. Après de nombreux tests, le meilleur résultat (Figure 197, droite) est donné par les valeurs ci-dessous. En effet, pour d'autres valeurs choisies, les écarts entre les températures expérimentales et les températures simulées étaient supérieurs.

sédiment humide : $\lambda = 0.4\ W.m^{-1}.K^{-1}$
sédiment intermédiaire : $\lambda = 0.3\ W.m^{-1}.K^{-1}$
sédiment sec : $\lambda = 0.2\ W.m^{-1}.K^{-1}$

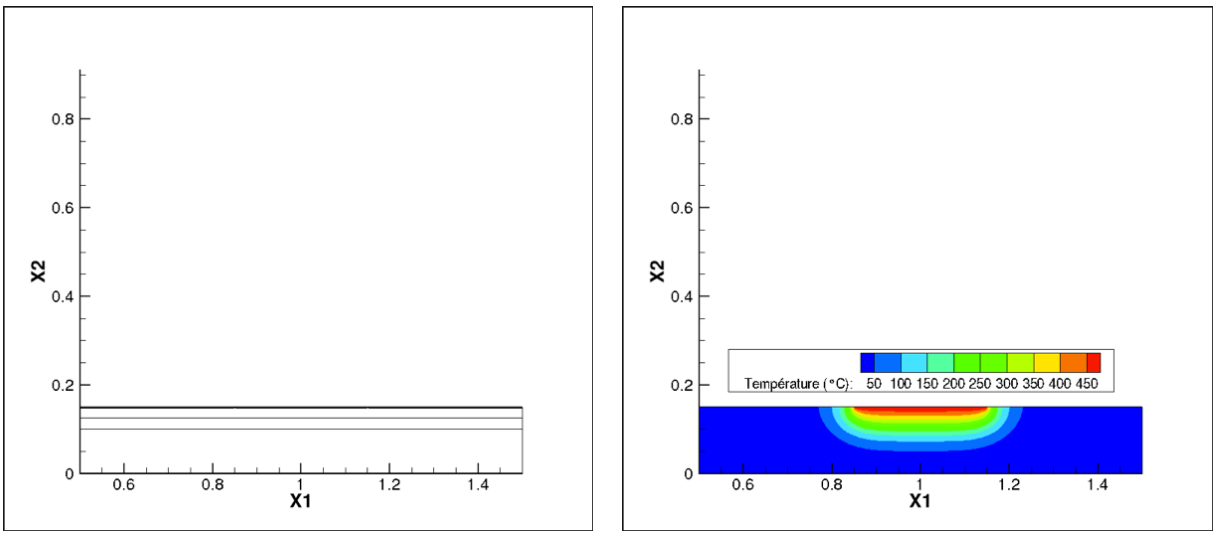


Figure 197 : Modèle numérique construit en trois couches de conductivité thermique variable. A gauche, la structure du modèle ; A droite, la simulation de la propagation de la chaleur dans ce modèle. (© D. Lacanette)

Les températures obtenues à la profondeur des thermocouples sont de :

z = 2.2 cm : T_{sim} = 300°C
z = 4.0 cm : T_{sim} = 190°C
z = 6.2 cm : T_{sim} = 110°C

Ces températures sont les plus proches possibles des températures expérimentales. Le modèle numérique permet ainsi d'estimer les températures atteintes en profondeur pour une source de chaleur fixée à 500°C, dans un sédiment argileux composé de couches à différents états de séchage. Il permet également de retrouver les valeurs de conductivités qui étaient inconnues.

La simulation de l'effet du séchage par un modèle en trois couches est la manière la plus simple de traiter ce phénomène. Une méthode plus complète consisterait à remplacer la conductivité thermique ici constante par une conductivité thermique variable avec le temps, la profondeur et les températures atteintes (Muhieddine *et al.*, 2011).

III. Analyse théorique des données expérimentales de températures

Dans le cas présent, on s'intéresse à la conduction de la chaleur :

- dans un milieu homogène où la conductivité thermique ne dépend pas du point considéré ni de la température donc le produit scalaire de $\overrightarrow{grad}\lambda$. $\overrightarrow{grad}T$ est nul.
- dans un milieu sans source de chaleur interne : P = 0.
- dans un milieu semi-infini c'est-à-dire pour lequel l'épaisseur du milieu est suffisante pour qu'on puisse négliger l'existence d'une face inférieure et se ramener à un cas théorique plus simple.

L'équation de la chaleur à résoudre est alors :

$$\lambda\left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2}+\frac{\partial^2 T}{\partial y^2}+\frac{\partial^2 T}{\partial z^2}\right)=\rho\, C_p \frac{\partial T}{\partial t}$$

Compte tenu de la faible profondeur de diffusion, on considère que le feu est infini, ou de manière équivalente, que les dimensions horizontales n'interviennent pas. L'équation devient alors :

$$\lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2}=\rho\, C_p \frac{\partial T}{\partial t}$$

où ρ est la masse volumique (kg.m^{-3}), C_p la capacité calorifique (J.kg^{-1}.K^{-1}), λ la conductivité thermique (W.m^{-1}.K^{-1}), T la température (K), t le temps (s), et z la distance à la source (profondeur par rapport à la surface dans notre cas, en mètre).

On définit la diffusivité thermique a (m^2.s^{-1}) qui pilote le transfert de chaleur comme :

$$a=\frac{\lambda}{\rho\, C_p}=\frac{\partial T/\partial t}{\partial^2 T/\partial z^2}$$

La solution de l'équation de la chaleur unidirectionnelle est de la forme (Jannot, 2011) :

$$T(z,t)=\alpha+\beta\times\frac{2}{\sqrt{\pi}}\int_0^{\frac{z}{2\sqrt{at}}} e^{-u^2}du$$

avec pour conditions aux limites :

$$\lim_{t\to\infty} T(z,t)=T_{feu}$$

$$\lim_{z\to\infty} T(z,t)=T_0$$

où T_{feu} est la température imposée en surface pour simuler la chauffe par le feu et T_o la température initiale du milieu.

Les conditions aux limites impliquent :

$$T(z,t) = T_{feu} + (T_0 - T_{feu}) \times \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\frac{z}{2\sqrt{at}}} e^{-u^2} du$$

où la fonction d'erreur de Gauss « erf » est définie par (Jannot, 2011) :

$$\frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\frac{z}{2\sqrt{at}}} e^{-u^2} du = \text{erf}\left(\frac{z}{2\sqrt{at}}\right)$$

On peut alors écrire :

$$\frac{T(z,t) - T_{feu}}{T_0 - T_{feu}} = \text{erf}\left(\frac{z}{2\sqrt{at}}\right)$$

En considérant T_{feu} = 500°C et T_0 = 20°C (température la plus basse mesurée dans les sédiments au début de la chauffe 3 ; Figure 194) on peut donc calculer le premier terme de l'équation pour chaque thermocouple à un instant t donné.

De plus, il existe des tables permettant d'obtenir w à partir de erf(w) (Jannot, 2011), on peut donc connaître w.

$$w = \frac{z}{2\sqrt{at}}$$

donc :

$$a = \frac{z^2}{4tw^2}$$

Nous allons pouvoir calculer la diffusivité a à partir des températures enregistrées par les trois thermocouples utilisés pour la modélisation (n°212, 216 et 219 ; Figure 198) et à différents instants t de la chauffe (350 min, 380 min et 410 min soit 1h, 1h30 et 2h après le début de la chauffe à t_0 = 290 min).

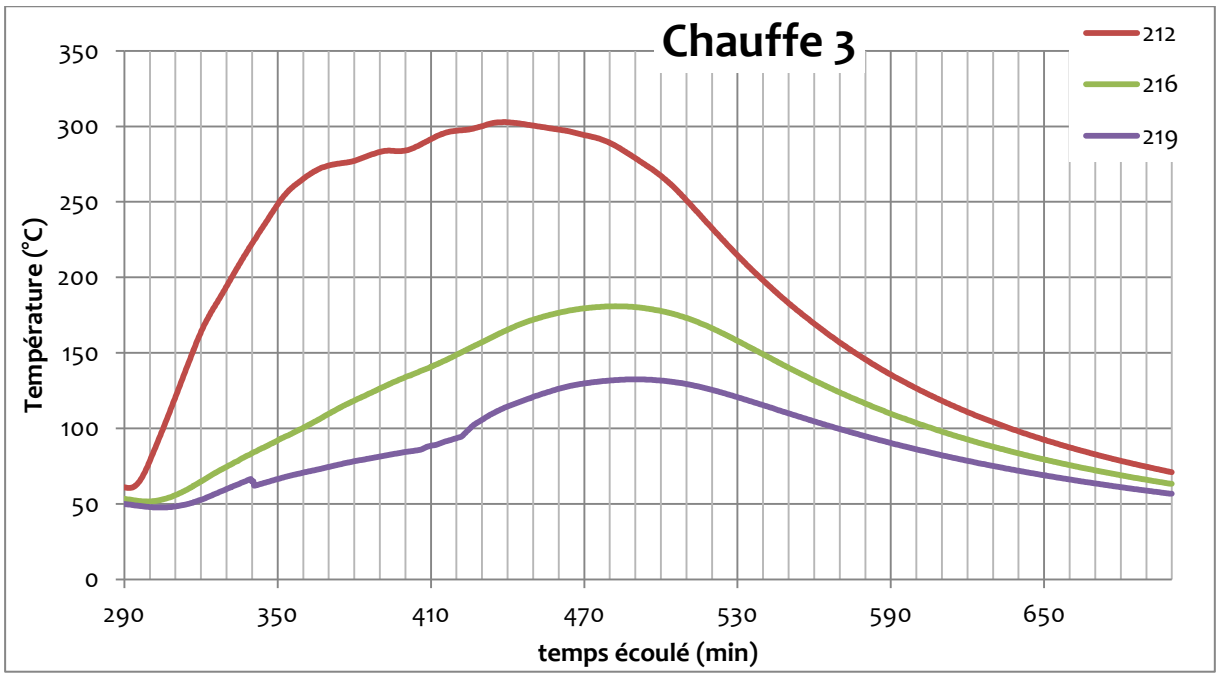


Figure 198 : Courbes de température des trois thermocouples témoins choisis pour la modélisation.

Le tableau ci-dessous regroupe les résultats :

Température T(z, t) en °C				
Thermocouple	**z (m)**	**t = 350 min**	**t = 380 min**	**t = 410 min**
n°212	0.022	249	277	292
n°216	0.04	92	119	141
n°219	0.062	67	78	89

erf w = [T(z, t) - Tfeu] / [To - Tfeu]				
Thermocouple	**z (m)**	**t = 350 min**	**t = 380 min**	**t = 410 min**
n°212	0.022	0.5239	0.4640	0.4339
n°216	0.04	0.8497	0.7945	0.7482
n°219	0.062	0.9030	0.8784	0.8570

w (à partir de tables numériques)				
Thermocouple	**z (m)**	**t = 350 min**	**t = 380 min**	**t = 410 min**
n°212	0.022	0.5040	0.4380	0.4060
n°216	0.04	1.0180	0.8950	0.8110
n°219	0.062	1.1760	1.0960	1.0380

$a = z^2/(4tw^2)$				
Thermocouple	**z (m)**	**t = 350 min**	**t = 380 min**	**t = 410 min**
n°212	0.022	1.32×10^{-7}	1.17×10^{-7}	1.02×10^{-7}
n°216	0.04	1.07×10^{-7}	9.25×10^{-8}	8.45×10^{-8}
n°219	0.062	8.03×10^{-8}	6.17×10^{-8}	5.16×10^{-8}

Tableau 37 : Calcul de la diffusivité thermique a à partir des températures de trois thermocouples (n°212, 216 et 219) disposés à trois profondeurs (respectivement 0.022 m, 0.04 m et 0.062 m) et prises à trois instant t donné (350 min, 380 min et 410 min). La connaissance de la température T (z, t) permet de calculer la valeur de erf(w), puis de w à partir de tables numériques puis de a.

On observe que les valeurs de la diffusivité thermique a diminuent avec le temps pour une même profondeur. Ceci traduit l'effet du séchage du sédiment, qui, en perdant de l'eau, devient moins conducteur à la chaleur.

On notera aussi que l'équation utilisée pour parvenir à la diffusivité thermique ci-dessus est normalement valable pour un a constant. L'intégration d'une diffusivité thermique variable avec le temps et la profondeur dans l'équation rendrait l'analyse théorique des données, telle que nous l'avons entreprise, difficile.

Les valeurs de a calculées avec les valeurs thermophysiques utilisées pour construire le modèle numérique ($a = \lambda/\rho.C_p$; $\lambda = 0.2 / 0.3 / 0.4$ $W.m^{-1}.K^{-1}$; $\rho = 1500$ $m^3.kg^{-1}$ et $Cp = 1000$ $J.kg^{-1}.K^{-1}$) donnent une diffusivité thermique du même ordre de grandeur que les valeurs déterminées ci-dessus :

$a_{modèle}$ (sédiment sec) $= 1.33 \times 10^{-7}$ $m^2.s^{-1}$
$a_{modèle}$ (sédiment intermédiaire) $= 2.00 \times 10^{-7}$ $m^2.s^{-1}$
$a_{modèle}$ (sédiment humide) $= 2.67 \times 10^{-7}$ $m^2.s^{-1}$

On retrouve ici la décroissance de la diffusivité thermique avec le séchage du sédiment.

L'analyse de ces données aurait pu intervenir au préalable aux essais de simulation de propagation de la chaleur afin de contraindre les valeurs de conductivité thermique testée. Néanmoins, la recherche manuelle des valeurs de conductivité thermique nous a permis d'observer et d'appréhender l'influence d'une augmentation ou diminution de la conductivité thermique d'une couche sur la propagation de la chaleur dans tout le milieu.

L'exploitation théorique des données expérimentales par le calcul de la diffusivité ainsi que les simulations numériques permettent d'estimer la conductivité thermique du milieu argileux. Ces valeurs devront être validées par une mesure en laboratoire de la conductivité thermique du sédiment et ce pour différents états de séchage.

IV. Application à un exemple archéologique : le foyer F6

Le modèle numérique de propagation de la chaleur dans un sédiment argileux va maintenant être utilisé pour reconstituer une histoire thermique du foyer F6 (foyer archéologique de référence).

Le foyer F6 est modélisé par la structure suivante :

- *une zone centrale de 2 mm d'épaisseur et 30 cm de largeur, dont la température est imposée à 450°C (paléotempératures maximales obtenues par TL). C'est la source de chaleur, simulant le feu.*

- *un substrat argileux donc les caractéristiques thermophysiques sont similaires à celles du modèle précédent : $\rho = 1500\ m^3.kg^{-1}$; $Cp = 1000\ J.kg^{-1}.K^{-1}$; $\lambda = 0.2 / 0.3 / 0.4\ W.m^{-1}.K^{-1}$*

Les valeurs thermophysiques sont à affiner par des mesures de ces caractéristiques sur les sédiments argileux des Fraux. Néanmoins, celles utilisées permettent une première estimation de temps de fonctionnement de la structure.

L'information nécessaire pour pouvoir utiliser ce modèle et obtenir une estimation de durée de chauffe est une donnée sur la profondeur de l'impact thermique. Parmi les foyers étudiés, cette information n'est disponible que pour le foyer F6 pour lequel l'épaisseur maximale de rubéfaction est de 2.5 cm (Tableau 7). Dans le cas des Fraux, la rubéfaction apparait à 250°C ce qui implique que le front de température à 250°C a atteint ces 2.5 cm de profondeur.

Une estimation du temps de fonctionnement de la structure est déterminée sachant que :

- d'après les feux expérimentaux, il faut au moins 4h de chauffe pour que les températures du sédiment dépassent les 100°C.
- la simulation numérique dans le modèle décrit ci-dessus donne une durée de fonctionnement de 2h30 pour que les températures à 2.5 cm atteignent 250°C.

Ainsi un total de 6h30 minimum de feu serait nécessaire pour obtenir les stigmates de chauffe observés pour le foyer F6.

V. Bilan

Les données de température acquises lors des feux expérimentaux ont permis la mise en place d'un modèle numérique de propagation de la chaleur dans un milieu argileux en cours de séchage. Ce modèle a été utilisé pour déterminer une durée minimale de fonctionnement des structures de combustion archéologiques lorsque des informations, telles que la profondeur de rubéfaction représentant la propagation du front de température à 250°C, sont connues. Ainsi, ***l'intensité de la chauffe par l'intermédiaire des températures et de la durée de fonctionnement d'un foyer est une information accessible***.

Le foyer F6 constitue l'exemple de structure de combustion qui repose sur un sédiment principalement argileux et dont la profondeur de rubéfaction est connue. La combinaison des expérimentations et du modèle numérique permet de déterminer une durée minimale d'utilisation de 6h30. Cette estimation suppose soit une chauffe continue, soit des chauffes rapprochées dans le temps pour lesquelles le sédiment n'a pas le temps de se ré-humidifier. Une condition supplémentaire est que la rubéfaction soit présente à 250°C.

Le modèle numérique établi ne constitue que les prémices prometteuses d'un modèle plus abouti où les valeurs thermophysiques seront mesurées sur les sédiments étudiés :

- masse volumique
- capacité calorifique
- conductivité thermique

De plus, la conductivité thermique devra être variable avec le temps, la profondeur et les températures atteintes pour prendre en compte :

- le séchage du sédiment
- la perte de chaleur due à l'évaporation de l'eau.

Synthèse intermédiaire : partie IV

Les feux expérimentaux et la modélisation numérique de la propagation de la chaleur dans les sédiments ont permis d'apporter des éléments d'interprétation sur le fonctionnement des structures de combustion.

Tout d'abord, ***l'importance de l'humidité des sédiments sur la propagation de la chaleur*** a été mise en évidence. Elle implique une durée minimale de chauffe nécessaire au séchage des sédiments (palier à 100°C) avant que les températures puissent augmenter jusqu'à rubéfier les sédiments (250°C) et au-delà. Cette durée dépend du sédiment substrat et de sa porosité.

Le modèle numérique permet ensuite d'estimer une ***durée minimale de fonctionnement*** pour que les températures à une certaine profondeur atteignent 250°C (limite visible par la rubéfaction des sédiments). Ce modèle a été construit pour un sédiment argileux et n'est applicable en l'état que pour le foyer F6. Il donne alors un temps minimal de fonctionnement de 6h30 pour ce foyer. Le modèle établi serait applicable pour le foyer F8 si l'épaisseur de rubéfaction était connue. Par contre, un autre modèle devrait être construit pour le foyer F4 compte tenu de l'hétérogénéité des matériaux substrats.

Ensuite les ***quantités de combustible*** utilisé pendant les feux expérimentaux ont été enregistrées permettant de remonter à une ***quantité d'énergie produite et de bois consommé*** par unité de temps. Cette quantité est variable suivant le substrat et la chauffe. Elle va de 14 kW (3.5 kg de bois par heure) pour la première chauffe sur le sédiment argileux (humide) à 34 kW (8.4 kg de bois par heure) pour la troisième chauffe sur la sole sur sédiment gréseux.

* *
*

La présentation des résultats de ce doctorat touche à sa fin. Dans la partie suivante, nous proposons une synthèse de ce travail reprenant les principaux résultats, les acquis méthodologiques et les apports archéologiques.

Partie VI :

Synthèse et perspectives

I. Synthèse des principaux résultats

Les recherches effectuées pendant ce doctorat se sont attachées à répondre à la problématique suivante :

Quelle méthodologie mettre en œuvre pour quantifier l'intensité de chauffe de sédiments, substrats des foyers, dans le contexte de la grotte des Fraux ?

Les approches développées regroupent des mesures *in situ* et en laboratoire de la thermoluminescence et des propriétés magnétiques, des expérimentations de feux et une modélisation numérique de la propagation de la chaleur dans les sédiments. Les mesures de thermoluminescence et de magnétisme réalisées sur les sédiments présentent chacune des évolutions marquées avec la chauffe et ont été utilisées élaborer des paléothermomètres indépendants.

Pour parvenir à estimer l'intensité de chauffe des structures de combustion archéologiques, la méthodologie mise en place est la suivante :

I.1. déterminer les paléotempératures atteintes par les sédiments à la surface des foyers par des mesures de TL et/ou de magnétisme ;

I.2. estimer un temps minimal de fonctionnement en injectant les données de paléotempératures dans un modèle numérique de propagation de la chaleur établi à partir des données de températures enregistrées lors de feux expérimentaux.

I.3. évaluer l'intensité de chauffe par une équivalence temps - température

Cette méthodologie s'appuie sur l'étude combinée de trois ensembles de sédiments chauffés :

- des sédiments de la grotte des Fraux chauffés en laboratoire suivant des conditions connues (cycles thermiques et atmosphère) ;

- trois foyers archéologiques qui présentent diverses morphologies : sole de cuisson reposant sur un substrat sablo-argileux ou foyer à plat de taille variable dans un sédiment plutôt argileux ;

- trois foyers expérimentaux dont les configurations reprennent celles de foyers archéologiques. L'un des foyers expérimentaux, construit entièrement en matériaux issus de la grotte des Fraux, a été utilisé comme élément de validation des paléothermomètres TL et comme point de comparaison pour les évolutions des propriétés magnétiques avec la chauffe.

I.1. Détermination des paléotempératures

Tout d'abord les ***propriétés de TL*** ont été mesurées sur des échantillons archéologiques après extraction de la granulométrie choisie (grain de quartz 200-500 µm ou fraction polyminérale 3-12 µm). Elles ont été confrontées à celles de références thermiques fabriquées en laboratoire. La comparaison de l'intensité et de la forme des signaux TL, qu'elle soit visuelle ou résultant d'un calcul statistique, permet d'estimer une paléotempérature ou un intervalle de température pour chaque prélèvement. Les mesures réalisées sur le foyer expérimental ont validé ce protocole de comparaison. Le paléothermomètre élaboré nous semble donc robuste.

Cette approche nécessite cependant des prélèvements qui, bien que de petit volume (prélèvements de moins de 2 g), endommagent les structures de combustion. C'est pourquoi, afin de pouvoir éventuellement étendre l'analyse à d'autres structures nous avons tenté ***d'étalonner en température la susceptibilité magnétique mesurée in situ*** qui est une mesure non destructive. La susceptibilité magnétique est dépendante :

- de la composition des matériaux qui peut être variable dans le même substrat de foyer (sédiments argileux, gréseux, charbonneux) ;
- de l'épaisseur de sédiment affecté par la chauffe (environ 2 cm investigué par la mesure de contact).

Toutefois, l'étalonnage en température est possible en considérant des intervalles de susceptibilité magnétique associés à des intervalles de températures de 100°C chacun. De plus, la susceptibilité magnétique, qui présente de fortes valeurs à l'emplacement des foyers par rapport à celle du substrat, a permis la délimitation de ces structures. Les cartes en température obtenues sur les trois foyers archéologiques étudiés laissent apparaitre les zones les plus chauffées (> 350°C) sur un fond peu ou pas chauffé.

Par ailleurs, nous avons tenté d'établir deux paléothermomètres à partir des propriétés magnétiques.

Dans un premier temps, l'étude des ***températures de déblocage de l'aimantation rémanente*** a permis d'aboutir à un paléothermomètre séparant sans ambiguïté les prélèvements peu chauffés (T<250°C). La gradation des températures pour les prélèvements chauffés corrèle avec celle des paléotempératures TL avec toutefois des valeurs supérieures d'environ 110°C pour les températures de déblocage. Cette supériorité étant probablement induite par des différences de cinétique d'enregistrement des deux phénomènes mesurés, les températures de déblocage reflètent plus une température maximale atteinte.

Dans un second temps, la ***signature magnétique*** (minéralogie et taille de grain) de sédiments de la grotte des Fraux chauffés sous diverses conditions a été analysée à partir de mesures des propriétés magnétiques de l'aimantation induite (susceptibilité magnétique) et rémanente (ARI, ARA, ARV). Ces mesures mettent en évidence des évolutions marquées de la minéralogie magnétique ainsi que de la taille de grain avec la température. Le paléothermomètre mis en place repose sur l'évolution du champ coercitif rémanent en fonction du rapport ARAs/ARIs (aimantation rémanente anhystérétique / aimantation rémanente isotherme à saturation). Des différences ont cependant été observées entre les sédiments chauffés en laboratoire d'un côté et ceux chauffés par un feu de l'autre. Ces différences sont engendrées par la variabilité de l'atmosphère de chauffe, à l'air sec pour le laboratoire et réductrice saturée en

vapeur d'eau pour le feu. Ce dernier implique une anoxie par la consommation d'O_2 dans combustion du bois et par une évaporation de l'eau contenue dans les sédiments. Ces deux paramètres (diminution de la pression partielle d'O_2 et présence de vapeur d'eau) favorisent la création de phases ferrimagnétiques (magnétite/maghémite). La comparaison entre le foyer archéologique (F6) et un échantillonnage d'histoire thermique connue (sole expérimentale) permet de montrer les principales évolutions de la signature magnétique avec la chauffe. Il manque cependant une progression continue dans les températures de l'échantillonnage de référence (sole expérimentale) pour pouvoir certifier et compléter l'évolution graduelle de cette signature.

I.2. **Estimation d'un temps minimal de fonctionnement**

Nous avons ensuite estimé un temps minimal de chauffe d'une structure à partir d'un modèle numérique de propagation de la chaleur dans les sédiments et des informations de température de surface, et plus particulièrement les paléotempératures obtenues par TL.

Pour ce travail, nous nous sommes appuyés sur les données acquises lors des feux expérimentaux et notamment sur les températures atteintes suivant la profondeur et le temps de chauffe. Elles ont servi de support et de paramètre de référence pour construire le modèle numérique de propagation de la chaleur dans un sédiment argileux.

Le modèle établi, très simple, prend tout de même en compte différents états de séchage du sédiment (sec, en cours de séchage et humide) par une adaptation de la conductivité thermique du milieu. Il a été utilisé pour étudier le foyer F6, constitué d'un sédiment principalement argileux, et pour évaluer un temps minimal de fonctionnement. Ce foyer est, pour le moment, le seul pour lequel une telle analyse est possible puisque la donnée qui nous permet d'estimer cette durée est l'épaisseur de rubéfaction de sédiment qui correspond à la limite de propagation du front de température à 250°C. Des trois foyers étudiés, cette information n'est disponible que pour le foyer F6. Il faut aussi tenir compte du fait qu'il faut d'abord sécher le sédiment avant que les températures ne commencent à augmenter. Ce « retard » est estimé à partir des résultats expérimentaux. Le temps additionnel nécessaire pour chauffer les sédiments à 250°C à la profondeur voulue est donné par le modèle numérique.

I.3. **Évaluation de l'intensité de chauffe**

L'intensité de chauffe correspond à l'énergie dégagée par la combustion du bois dont une part se propage dans les sédiments. Elle peut être exprimée par une équivalence de températures atteintes pendant un certain temps. Le temps minimal de fonctionnement permet d'évaluer la quantité de bois consommé ainsi que l'énergie produite par la combustion.

Notre exemple d'application, le foyer F6, présente ainsi des paléotempératures maximales de 400-450°C et un temps minimal de fonctionnement continu de 6h30. La quantité de bois correspondant serait d'environ 20 kg pour une énergie totale dégagée par la combustion de 300 MJ. On peut donc apporter des données thermométriques, temporelles et énergétiques assez complètes sur le fonctionnement d'un foyer.

II. Quels sont les apports pour l'étude des foyers de la grotte des Fraux ?

Ce travail a permis la mise en place d'une méthodologie de caractérisation thermique des foyers. Les foyers étudiés sont peu nombreux mais présentent tout de même des différences notables. Les informations qui peuvent être extraites de cette caractérisation aboutissent dans l'un des cas (F6) à une équivalence de l'intensité de chauffe en temps-température-énergie et dans les deux autres cas à des valeurs de températures ponctuelles et cartographiques.

Les cartes en température des foyers F4, F6 et F8 caractérisent trois comportements différents :

- le ***foyer F8*** est une lentille charbonneuse assez étendue (1 m de diamètre environ) mais dont les paléotempératures maximales ne sont que de 300-350°C ;

- le ***foyer F6*** est une petite zone rubéfiée très délimitée (30 cm de diamètre environ) dont les paléotempératures maximales atteignent 400-450°C ;

- le ***foyer F4*** est constitué d'une sole de cuisson entourée de sédiments dont la chauffe est variable (mélange probable de sédiments chauffés et non chauffés) et qui sont fortement charbonneux. La sole présente des paléotempératures supérieures à 500°C. De plus, elle est associée à une petite zone rubéfiée assez délimitée dont les paléotempératures maximales atteignent 500°C. Cette zone n'est ni clairement détachée de la sole ce qui permettrait de la définir comme un foyer à plat, ni clairement associée pour l'interpréter par exemple comme une zone de dépôt de braise ou de brandons.

A partir (1) des observations de terrain sur la typologie des structures de combustion, la présence de rubéfaction et de charbons, (2) des cartographies de susceptibilité magnétique pour la délimitation des structures, leurs tailles, et (3) des paléotempératures (ponctuelles et cartographiques), on peut établir plusieurs caractéristiques définissant les foyers étudiés (Tableau 38).

Néanmoins pour que les caractéristiques collectées soient intéressantes en termes d'interprétations pour la grotte des Fraux, il faudrait étendre cette approche à d'autres structures de combustion pour estimer s'il y a ou non des différences d'une structure à l'autre et de quelle amplitude. *A priori*, des différences devraient être observées puisque déjà sur les trois foyers étudiés les paléotempératures maximales varient, reflétant une gradation dans l'intensité de chauffe. Ainsi les paléotempératures peuvent être un premier indice. Mais pour des structures où les températures de surface seront identiques, l'analyse de la propagation de la chaleur en profondeur précisera les différences entre structures.

	Foyer F4			Foyer F6	Foyer F8
	sole	autour de la sole	zone rubéfiée isolée		
Typologie	Sole de cuisson	Zone de vidange ?	?	Foyer à plat	Foyer à plat
Diamètre (cm)	38	50	30	30	100
Forte présence de charbon	non	oui	non	non	oui
Rubéfaction profondeur (cm)	oui (?)	oui (?)	oui (?)	oui 2.5	peu (?)
Paléotempérature TL maximale	500-550°C	de non chauffé à 600°C	500°C	450°C	350°C
Intensité de chauffe (qualitatif)	très intense	« mixte »	intense	intense	Faible à moyenne
Intensité de chauffe (quantitatif)				durée minimale : 6h30 combustible : 20 kg énergie : 300 MJ	

Tableau 38 : Caractéristiques des foyers étudiés.

Ce n'est qu'après une étude plus exhaustive des structures de combustion et leur classification suivant les caractéristiques précédentes qu'il sera peut être possible de repérer par exemple des similitudes des structures par secteur, par conformation de galerie ou en relation avec des manifestations pariétales ou des dépôts de mobiliers.

III. Quels sont les apports méthodologiques et les conditions d'application ?

Pour ce qui est des **paléothermomètres élaborés à partir de la TL**, l'apport méthodologique est notable. En effet, bien que quelques études se soient intéressées à l'intérêt de la TL pour appréhender l'histoire thermique de matériaux chauffés, aucune n'avait atteint ces températures et poussé jusque là la comparaison des courbes des référentiels thermiques et des échantillons archéologiques. L'utilisation de la variance relative et de la classification hiérarchique comme traitement complémentaire à la comparaison visuelle est aussi une approche novatrice qui est indispensable pour la détermination des paléotempératures.

La ***condition sine qua non*** pour pouvoir appliquer cette approche paléothermométrique TL ***est de disposer de sédiments identiques, géologiquement parlant, à ceux des substrats des foyers***. Sans ces sédiments jumeaux, la construction de référentiel n'est pas valable car les caractéristiques TL, c'est-à-dire le cortège de centres pièges (nature et abondances relatives), ne seront pas comparables et l'évolution du signal TL avec le cycle thermique ne sera pas exploitable. Un milieu souterrain conservé intact constitue de ce fait un objet d'étude privilégié.

Par ailleurs, il est préférable de travailler sur une phase minérale unique telle que les grains de quartz. Nous avons constaté en effet qu'il y a moins de variabilité du signal TL que dans une phase polyminérale et que le paléothermomètre qui en résulte est plus robuste. Cette méthodologie est transposable à d'autres sites à condition de recréer un référentiel thermique propre au substrat local.

Dans le cadre d'un projet[8] initié sur la fin du temps de la thèse, des mesures de TL ont été réalisées sur des fragments de calcaires provenant de parois et plafonds de la grotte Chauvet (Brodard et Guibert, 2010 ; 2011). La calcite étant un minéral luminescent, il nous a paru intéressant de tester notre méthodologie sur ce matériau puisque la question était de savoir si les rubéfactions observées étaient bien le résultat d'une chauffe et non d'une transformation chimique. Ainsi, un référentiel thermique a été établi suivant les mêmes cycles thermiques que ceux créés pour les Fraux. Les signaux TL montrent aussi une évolution marquée jusque 350°C mais au-delà il n'est pas possible de différencier les températures. Cependant, les changements observés sur la couleur du calcaire avec la température permettent de donner une limite supérieure aux paléotempératures puisque le calcaire rosit à partir de 250°C et qu'au-delà de 400°C il devient gris. Cette application de la méthode sur un autre matériau (calcite), un autre site archéologique (la grotte Chauvet), une période beaucoup plus lointaine (environ 37 000 ans) confirme son potentiel (Brodard *et al*., 2012).

L'étalonnage en température de la susceptibilité magnétique mesurée in situ et la construction de cartes en température montrent des points positifs et négatifs. Les deux principaux avantages d'une approche cartographique de la susceptibilité magnétique sont :

- sa non-destructivité
- l'instantanéité des mesures et de leur représentation (aucun traitement numérique n'est nécessaire).

[8] : Collaboration avec l'équipe scientifique en charge de l'étude de la grotte Chauvet et en particulier : Catherine Ferrier (PACEA, Bordeaux 1), Evelyne Debard (Lyon 2), Bertrand Kervazo (MCC-CNP, Périgueux) et Jean-Michel Geneste (PACEA et MCC-CNP).

Les cartographies de susceptibilité magnétique ont aussi montré leur intérêt pour la localisation et la délimitation des structures de combustion qui affleurent. Elles mettent en évidence des variations d'intensité de la susceptibilité magnétique reliées aux températures atteintes par les sédiments. La mise en œuvre est aisée sur des zones restreintes mais non applicable sur des surfaces importantes à des fins de détection. En effet, il s'agit d'une mesure point par point et la détection n'opère que sur les deux premiers cm de sédiments. Des indices de chauffe recueillis au préalable sont donc nécessaires pour localiser les zones à cartographier.

L'étalonnage de la susceptibilité magnétique avec les paléotempérature TL ne peut se faire valeur à valeur du fait de la variabilité de la susceptibilité magnétique. Toutefois, lorsqu'on considère des intervalles de susceptibilité magnétique et de températures, afin de lisser les effets de l'hétérogénéité des matériaux, les informations apportées sur la structure thermique des foyers sont pertinentes. Ce couplage ne peut s'effectuer que si la susceptibilité magnétique du sédiment montre des variations avec la chauffe. La présence de précurseurs magnétiques est indispensable pour que le feu engendre des modifications minéralogiques et des variations de la susceptibilité magnétique.

En ce qui concerne **l'analyse des propriétés magnétiques**, les bases pour deux paléothermomètres indépendants ont été mises en place. La détermination des températures de déblocage de l'aimantation rémanente complétée par les observations de l'évolution de la susceptibilité magnétique après chaque palier de la désaimantation thermique permet d'estimer une température de chauffe. L'utilisation de ce paléothermomètre est bien sûr conditionnée par la présence de minéraux magnétiques dans les sédiments.

La signature magnétique, c'est-à-dire la minéralogie et la taille de grains magnétiques, montre une évolution significative en fonction de la température. Ceci permet d'établir un paléothermomètre fondé sur les variations du champ coercitif rémanent en fonction du rapport ARAs/ARIs (aimantation rémanent anhystérétique / aimantation rémanente isotherme à saturation). Ce paléothermomètre n'est *a priori* fonctionnel que pour des sédiments contenant des précurseurs (oxyhydroxydes de fer) qui se transforment en phases ferrimagnétiques avec la chauffe. Le sédiment des Fraux était en cela très propice.

Pour renforcer le paléothermomètre il faudra créer un ***échantillonnage chauffé à des températures connues et dans une atmosphère similaire à celle d'un feu*** c'est-à-dire soit par un feu réel soit en reconstituant cette atmosphère en laboratoire. Cette dernière possibilité nécessitera une atmosphère réductrice qui correspond à la consommation de l'oxygène par la combustion du bois et une atmosphère saturée en vapeur d'eau puisque le feu engendre un séchage progressif des sédiments qui charge l'atmosphère en vapeur d'eau. Ce sont les feux expérimentaux et l'observation du palier à 100°C dans les températures qui nous ont mis sur la piste de l'influence de la vapeur d'eau. La mise en évidence de l'importance de sa présence dans l'atmosphère de chauffe sur les transformations minéralogiques est un des apports fondamentaux de ce travail.

Finalement, **l'intensité de chauffe** a été exprimée par une ***équivalence « temps - température - énergie »*** à partir de la réalisation des feux expérimentaux et de la construction d'un modèle numérique de propagation de la chaleur. Celui-ci a été établi pour un foyer sur sédiment argileux. Cependant, d'autres modèles numériques peuvent être construits avec des valeurs de conductivité thermique adaptées au substrat.

Un autre point indispensable est la connaissance de ***l'épaisseur de rubéfaction***. Or cela implique un prélèvement assez destructif puisque dans toute l'épaisseur du foyer. Ce dernier point est problématique puisqu'il va à l'encontre d'une des conditions de l'étude qui est de conserver au maximum l'intégrité des structures de combustion. S'il n'est pas possible de prélever en profondeur, il faudra se contenter des températures superficielles sans pouvoir accéder aux informations de durée de fonctionnement, d'énergie dégagée par la combustion et de quantité de bois consommé. Par contre, si le prélèvement est possible, toutes ces informations sont accessibles. Dans ce cas, un prélèvement au barycentre thermique du foyer, dans le cœur de chauffe, permettrait d'obtenir l'épaisseur de rubéfaction maximale. Pour localiser cet emplacement, les mesures de la susceptibilité magnétique sont bien adaptées puisqu'elles dépendent de l'intensité de la chauffe : température et profondeur de sédiment impacté.

Une dernière condition est que le sédiment change de couleur avec la chauffe pour pouvoir estimer l'épaisseur de rubéfaction. Les précurseurs présents (oxyhydroxydes et oxydes de fer) jouent là aussi un rôle déterminant et il faut connaître les températures caractéristiques de changements minéralogiques donc colorimétriques.

Remarques et recommandations issues de l'expérience :

Thermoluminescence

- *prélever dans le sédiment-substrat sur le premier centimètre et pas dans des couches charbonneuses sus-jacentes.*
- *mesurer la radioactivité locale pour appliquer aux références thermiques une dose la plus proche possible de la dose naturelle réellement reçue par les sédiments archéologiques.*

Magnétisme

- *effectuer les prélèvements selon un axe diamétral qui déborde du foyer pour avoir la totalité de la gamme de température depuis le centre du foyer jusqu'au non chauffé.*
- *construire le référentiel en chauffant en laboratoire les échantillons de sédiment (cubes) dans des conditions proches de celles d'un feu (milieu réducteur et saturé en vapeur d'eau) ou directement dans un feu réel.*

Les mesures magnétiques ne nécessitant pas de préparation des prélèvements, la méthode magnétique est relativement rapide par rapport aux mesures de TL. Par contre, elle est plus destructive.

Feux expérimentaux

- *faire sécher les soles plus longuement pour éviter les fissurations.*
- *positionner des thermocouples en surface autour du feu : mesure des températures atteintes et quantification du rayonnement.*

Simulation numérique

- *mesurer les caractéristiques thermophysiques (conductivité thermique λ, masse volumique ρ et capacité calorifique C_p) sur le matériau local de façon à injecter les bonnes valeurs de diffusivité thermique a dans le modèle de propagation de la chaleur.*
- *prendre en compte la chaleur latente d'évaporation de l'eau dans le code de calcul utilisé.*

IV. Perspectives

D'un point de vue méthodologique, le paléothermomètre fondé sur la signature magnétique des oxydes de fer est à finaliser :

- soit par la réalisation d'un feu expérimental dont on contrôle les températures pour obtenir un échantillonnage avec des températures graduelles ;

- soit par la chauffe de sédiments en laboratoire, par exemple dans le tube de quartz du KLY, afin de reproduire une atmosphère comparable à celle d'un feu sur des sédiments humides c'est-à-dire réductrice et saturée en vapeur d'eau.

Les effets du cumul des chauffes à l'air ou en atmosphère réductrice sur la signature magnétique sont également à étudier pour valider le paléothermomètre.

Par ailleurs, l'approche cartographique des foyers par la mesure du champ magnétique est en cours de développement mais permet déjà de localiser des anomalies magnétiques associées aux structures de combustion. L'une des pistes à explorer est de voir si l'intensité des anomalies peut être reliée aux paléothermomètres TL et magnétique. En effet, cette approche est non destructive et permet des cartographies d'une surface importante avec *a priori* des variations dans l'intensité des anomalies. Elle apporte aussi une information sur l'intégrité physique des structures (sédiments en place ou non).

Dans le cadre plus large de l'étude de la grotte des Fraux, il serait intéressant d'étudier un plus grand nombre de foyers pour pourvoir par exemple analyser les relations entre typologie et intensité de chauffe des structures de combustion. Par la suite, il faudrait examiner les associations éventuelles entre les foyers et les autres vestiges à partir de l'emplacement des structures, de leur typologie et de leur intensité de chauffe. On pourrait chercher à savoir si à proximité de chaque panneau orné il y a un foyer de telle typologie et telle intensité qui pourrait alors s'apparenter à un feu d'éclairage pour la réalisation des manifestations pariétales. On pourrait aussi se demander si ces structures sont toujours du même côté du panneau orné par rapport à l'entrée supposée de la grotte. Une indication sur les circulations de gaz et fumées émises par les feux pourrait alors être obtenue.

Les foyers de la grotte des Fraux témoignent de la réalisation de nombreux feux dans un espace confiné, les dimensions de la cavité étant restreintes. Des expérimentations de feux réalisées en milieu souterrain pourraient permettre de voir l'influence d'un milieu confiné sur la combustion, les quantités de combustible consommé, les températures atteintes dans le substrat, dans l'air et sur les parois. Pour cela certains paramètres pourront directement être comparés aux résultats des expérimentations en plein air : les températures du substrat et les quantités de combustible consommé en un temps donné. Les autres paramètres, températures de l'air et des parois, émissions de gaz et de fumées, seront autant de données supplémentaires pour comprendre le fonctionnement des feux en milieu souterrain.

En complément, l'approche des feux par la modélisation numérique permet de tester l'influence de la température de surface, de la taille du foyer, du temps de chauffe sur l'impact thermique des sédiments. L'étape suivante serait l'intégration dans le code Thétis d'un modèle de combustion pour quantifier les émissions de gaz et de fumées d'un feu. Ensuite, il sera possible de tester l'effet de l'allumage d'un ou plusieurs feux sur l'atmosphère de la cavité, de déterminer les circulations d'air et les mouvements de convection qui se mettent en place… Dans ce cadre, les données d'intensité de chauffe, c'est-à-dire de températures maximales et de temps de fonctionnement des structures de combustion, seront particulièrement importantes pour paramétrer les simulations.

Le travail effectué dans ce doctorat a ainsi posé les bases d'un nouvel outil de caractérisation thermique des foyers et plus largement de caractérisation du milieu souterrain où ces feux ont été allumés. En couplant la détermination des paléotempératures par TL, l'évaluation de l'extension du foyer par cartographie magnétique et la simulation numérique de la propagation de la chaleur on peut déterminer l'intensité de chauffe d'un foyer, c'est-à-dire un couple temps - température. A partir de cette donnée, et en l'intégrant dans un modèle numérique de la cavité, il sera alors possible d'apporter une contribution importante à la compréhension du mode de vie dans la grotte.

Ces recherches sur les feux en milieu souterrain sont vraiment captivantes. Elles sont présentes dans d'autres sites et pour d'autres époques comme, par exemple, à la grotte Chauvet (Vallon-Pont-D'arc, Ardèche) où l'impact thermique des feux sur les parois et plafonds pose question.

Le projet IThEM, « Les traces de feu de la grotte Chauvet : Des Impacts Thermiques sur les parois à la caractérisation des feux, Expérimentation et Modélisation » a été initié dans le cadre du Labex Sciences Archéologiques de Bordeaux (LaScArBx). Ce projet vise à appréhender les types de feux qui ont été réalisés dans la grotte Chauvet et qui ont engendré des impacts thermiques (rubéfactions et écaillements des parois) sur des surfaces de plusieurs mètres carrés et à des hauteurs de plus de 3 m. Un objectif supplémentaire est de déterminer les fonctions possibles qui se rattachent à ces feux : éclairage, production de charbon comme colorant... On s'intéresse aussi à l'emplacement de ces feux et aux fonctions associées selon la morphologie des secteurs concernés par la rubéfaction dans la grotte Chauvet puisqu'on retrouve ces impacts thermiques dans trois morphologies totalement différentes : une galerie haute et étroite (galerie des Mégacéros) ; une petite salle de 2 à 3 m de diamètre (diverticule des Ours) et au niveau du porche d'entrée de la grotte (secteur d'Entrée).

Pour répondre à ces interrogations, dans un premier temps, nous avons prévu d'effectuer des feux expérimentaux dans une carrière souterraine (calcaire à astéries) pour comprendre le fonctionnement d'un feu en milieu souterrain mais aussi caractériser les impacts thermiques observés, les dimensions du foyer pour reproduire les impacts thermiques de la grotte Chauvet, les températures atteintes dans l'air et dans les parois suivant la dimension du feu et du combustible, les modifications hygrométriques du milieu souterrain, les flux d'air qui se mettent

en place, les produits de combustion obtenus (charbons, suies)… L'interdisciplinarité qui caractérise ce projet va permettre d'appréhender tous ces aspects qui sont déterminants pour la compréhension et l'analyse des feux. Dans un second temps, lorsque les paramètres d'un feu type seront définis pour obtenir les impacts thermiques voulus, l'objectif est de se rapprocher du contexte de Chauvet en reconstituant une paroi en calcaire urgonien (similaire à celui de la grotte) dans la carrière. Avant cela une étape intermédiaire est prévue avec une paroi reconstituée en calcaire à astéries pour évaluer les différences induites par une paroi reconstituée et non « d'un bloc ».

Dans l'étude de la grotte Chauvet, comme dans le cas de la grotte des Fraux, l'étude des foyers constitue un élément inséparable de l'étude globale des sites. Essayer de comprendre les divers rôles de ces foyers, leurs modes de fonctionnement en milieu souterrain et leurs impacts sur l'environnement ouvre de nombreuses perspectives de recherches liées à l'activité humaine et nous réserve encore de belles découvertes…

Bibliographie

A

ADEME, 2001. *Mesures des caractéristiques des combustibles bois*. Agence de l'Environnement et de la Maitrise de l'Energie : 34 p.

Albert R. M., Bar-Yosef O., Meignen L., Weiner S., 2003. Quantitative phytolith study of hearths from the Natufian and Middle Paleolithic levels of Hayonim cave (Galilee, Israel). *Journal of Archaeological Science* 30 : 461-480.

Aldeias V., Goldberg P., Sandgathe D., Berna F., Dibble H. L., McPherron S. P., Turq A., Rezek Z., 2012. Evidence for Neandertal use of fire at Roc de Marsal (France). *Journal of Archaeological Science* 39 : 2414-2423.

Ambert P., 2002. Utilisation préhistorique de la technique minière d'abattage au feu dans le district cuprifère de Cabrières (Hérault). *Comptes Rendus de l'Académie des sciences, série Palevol* 1 : 711-716.

Arcenegui V., Mataix-Solera J., Zornoza R., Pérez-Bejarano A., Mataix-Beneyto J., Gómez I., 2010. Estimation of the maximum temperature reached in burned soils using near-infrared spectroscopy: Effects of soil sample pre-treatments. *Geoderma* 158 : 85-92.

Audouze F., 1989. Foyers et structures de combustion domestiques aux âges des métaux. *In Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 327-334.

Aujoulat N., Chevillot C., 1991. Une découverte exceptionnelle à Saint-Martin-de-Fressengeas (Dordogne) : la grotte des "Fraux". *Bulletin de la Société Préhistorique Française* 88, 2 : 40-43.

B

Backhouse P. N., Johnson E., 2007. Where were the hearths: an experimental investigation of the archaeological signature of prehistoric fire technology in the alluvial gravels of the Southern Plains. *Journal of Archaeological Science* 34 : 1367-1378.

Banerjee S. K., King J., Marvin J., 1981. A rapid method for magnetic granulometry with applications to environmental studies. *Geophysical Research Letters 8*, 4 : 333-336.

Baxter M., 2003. *Statistics in archaeology*. Arnold, London : 292 p.

Bazile F., Guillerault P., Monnet C., Onoratini G., 1989. Nouvelles approches des foyers paléolithiques : l'exemple de Fontgrasse (Vers-Pont-du-Gard - Gard). In *Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 11-17.

Bechtel F., Gourdon-Platel N., Etcheverry M.-P., Gess J.-P., Schvoerer M., 1996. Marqueurs technologiques et céramique : détection par leur luminescence de composés silicatés formés au cours de la cuisson. In L'*archéométrie dans les pays européens de langue latine, Actes du colloque de Périgueux (1995), Revue d'Archéométrie* suppl : 125-131.

Becker H., Göksu H. Y., Regulla D. F., 1994. Combination of archaeomagnetism and thermoluminescence for precision dating. *Quaternary Geochronology (Quaternary Science Reviews)* 13 : 563-567.

Beeching A., Gascó J., 1989. Les foyers de la Préhistoire récente du Sud de la France (descriptions, analyses, et essais d'interprétation). *In Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 275-292.

Bellomo R. V., 1993. A methodological approach for identifying archaeological evidence of fire resulting from human activities. *Journal of Archaeological Science* 20 : 525-553.

Bentsen S. E., 2007. A social instrument: examining the *Chaîne Opératoire* of the Hearth. *In Fire as an Instrument: The Archaeology of Pyrotechnologies*, D. Gheorghiu dir : 19-24.

Bentsen S. E., 2012. Size matters: Preliminary results from an experimental approach to interpret Middle Stone Age hearths. *Quaternary International* 270 : 95-102.

Berna F., Behar A., Shahack-Gross R., Berg J., Boaretto E., Gilboa A., Sharon I., Shalev S., Shilstein S., Yahalom-Mack N., Zorn R. J., Weiner S., 2007. Sediment exposed to high temperatures: reconstructing pyrotechnological processes in Late Bronze and Iron Age Strata at Tel Dor (Israel). *Journal of Archaeological Science* 34 : 358-373.

Binford L. R., 1996. Hearth and home, the spatial analysis of ethnographically documented rock shelter occupations as a template for distinguishing between human and hominid use of sheltered space. *In Middle Paleolithic and Middle Stone Age Settlement Systems*, N. Conard, Wendorf, F. dir.: A.B.A.C.O, Edizioni, Forlì, Italy : 229-239.

Borradaile G. J., Kissin S. A., Stewart J. D., Ross W. A., Werner T., 1993. Magnetic and optical methods for detecting the heat treatment of chert. *Journal of Archaeological Science* 20 : 57-66.

Borredon M. E., Boureau E., Déglise X., Vaca-Garcia C., 2012. Bois. *Encyclopedia Universalis* [consulté le 10/08/2012].

Braadbaart F., Poole I., Huisman H. D. J., Van Os B., 2012. Fuel, fire and heat: an experimental approach to highlight the potential of studying ash and char remains from archaeological contexts. *Journal of Archaeological Science* 39 : 836-847.

Braunlich P., Scharmann A., 1964. Ein einfaches Modell für die Deutung der Thermolumineszenz und der thermisch stimulierten Leitfähigkeit von Alkalihalogeniden. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei* 177, 3 : 320-336.

Brodard A., Guibert P., 2010. Etat de chauffe de calcaires rubéfiés de la grotte Chauvet. *In : Etudes pluridisciplinaires à la grotte Chauvet-Pont d'Arc (Ardèche), rapport d'activité 2010*, J.-M. Geneste dir. : 165-172.

Brodard A., Guibert P., 2011. Des rubéfactions de calcaires de la grotte Chauvet à l'intensité de la chauffe. *In : Etudes pluridisciplinaires à la grotte Chauvet-Pont d'Arc (Ardèche), rapport d'activité 2011*, J.-M. Geneste dir. : 187-190.

Brodard A., Guibert P., Ferrier C., Kervazo B., Debard E., Geneste J.-M., 2012. From heating marks to intensity of fires: thermal characterization by thermoluminescence of reddened wall in the Chauvet cave and fire experimentations. *39th International Symposium on Archaeometry*, 28 mai - 01 juin 2012, Louvain (Belgique).

C

Caltagirone J. P., 1994. Sur l'interaction fluide-poreux : application au calcul des efforts exercés sur un obstacle par un fluide visqueux. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences série IIb*, 318 : 571-577.

Calvo-Rathert M., Carrancho A., Stark F., Villalaín J. J., Hill M., 2012. Are burnt sediments reliable recorders of geomagnetic field strength? *Quaternary Research* 77 : 326-330.

Canti M. G., Linford N., 2000. The effects of fires on archaeological soils and sediments: temperature and colour relationships. *Proceedings of the Prehistoric Society* 66 : 385-395.

Carozza L., 2008. *Grotte des Fraux - Saint-Martin-de-Fressengeas (Dordogne) : Rapport de fouille programmée tri-annuelle 2008-2010, première année*, Service Régional de l'Archéologie d'Aquitaine, Bordeaux : 90 p.

Carozza L., 2009. *Grotte des Fraux - Saint-Martin-de-Fressengeas (Dordogne) : Rapport de fouille programmée tri-annuelle 2008-2010, seconde année*, Service Régional de l'Archéologie d'Aquitaine, Bordeaux : 152 p.

Carozza L., Burens A., Billaud Y., Ferullo O., Bourrillon R., Petrognani S., Tosello G., Goineaud E. et Goineaud M. 2009. L'horizontal et le vertical - L'Âge du bronze de la grotte des Fraux (Saint-Martin-de-Fressengeas - Dordogne). *In De méditerranée et d'ailleurs... Mélanges offerts à Jean Guilaine* : Archives d'Ecologie Préhistorique, Toulouse : 159-172, 8 fig.

Carozza L., 2010. *L'Âge du bronze de la grotte des Fraux - Saint-Martin-de-Fressengeas (Dordogne). Rapport de fouille programmée tri-annuelle 2008-2010, troisième année*, Service Régional de l'Archéologie d'Aquitaine, Bordeaux : 225 p.

Carozza L., 2011. *L'Âge du bronze de la grotte des Fraux - Saint-Martin-de-Fressengeas (Dordogne). Rapport de fouille programmée annuelle*, Service Régional de l'Archéologie d'Aquitaine, Bordeaux : 98 p.

Carrancho A., Villalaín J. J., Angelucci D. E., Dekkers M. J., Vallverdú J., Vergès J. M., 2009. Rock-magnetism analyses as a tool to investigate archaeological fired sediments: a case study of Mirador cave (Sierra de Atapuerca, Spain). *Geophysical Journal International* 179 : 79-93.

Carrancho A., Villalaín J. J., 2011. Different mechanisms of magnetisation recorded in experimental fires: Archaeomagnetic implications. *Earth and Planetary Science Letters* 312 : 176-187.

Carrancho Á., Villalaín J. J., Vergès J. M., Vallverdú J., 2012. Assessing post-depositional processes in archaeological cave fires through the analysis of archaeomagnetic vectors. *Quaternary International* 275 : 14-22.

Cartault J.-L., Clair B., Kapp D., 2012. Incendies. *Encyclopedia Universalis* [consulté le 10/08/2012].

Chantret F., Couterne A., Daly L., Mauger M., 1989. Étude thermodilatométrique et variations des propriétés magnétiques en fonction de la température de silex de différentes origines. *In Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 19-28.

Chevalier G., Castelnau D., 1996. Le feu. *La Recherche* 290.

Cliquet D., Dumont J. L., Dupont J. P., Fosse G., Jouis M., Lanoe B., Mante C., Morel J., Quillard J., Thiébault S., Vilgrain G., 1989. Approche d'une étude comparative des matières organiques de foyers préhistoriques et de foyers expérimentaux. L'exemple du gisement moustérien de Saint-Germain-des-Vaux (Manche). *In Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 29-36.

Coey J. M. D., Bouchez R., Dang N. V., 1979. Ancient techniques. *Journal of Applied Physics* 50 : 7772-7777.

Collinson D. W., 1983. *Methods in rock magnetism and palaeomagnetism. Techniques and instrumentation*. Londres : Chapman and Hall : 503 p.

Conedera M., Tinner W., Neff C., Meurer M., Dickens A. F., Krebs P., 2009. Reconstructing past fire regimes: methods, applications, and relevance to fire management and conservation. *Quaternary Science Reviews* 28 : 555-576.

Cornell R. M., Schwertmann U., 2003. *The Iron Oxides - Structure, Properties, Reactions, Occurences and Uses*. VCH Ed : 573 p.

Coudret P., Larrière M., Valentin B., 1989. Comparer des foyers : une entreprise difficile. *In Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 37-44.

Courty M.-A., Carbonell E., Vallverdú Poch J., Banerjee R., 2012. Microstratigraphic and multi-analytical evidence for advanced Neanderthal pyrotechnology at Abric Romani (Capellades, Spain). *Quaternary International* 247 : 294-312.

Cudennec Y., Lecerf A., 2005. Topotactic transformations of goethite and lepidocrocite into hematite and maghemite. *Solid State Sciences* 7 : 520-529.

D

Dankers P. H. M., 1978. *Magnetic properties of dispersed natural iron-oxides of known grain-size*. Phd thesis, Utrecht : 143 p.

Day R., Fuller M. D. and Schmidt V. A., 1977. Hysteresis properties of titanomagnetites: grain size and composition dependence. *Physics of the Earth and Planetary Interiors* 13 : 260-267.

De Lima J. F., Navarro M. S., Valerio M. E. G., 2002. Effects of thermal treatment on the TL emission of natural quartz. *Radiation Measurements* 35 : 155-159.

Dearing J. A., Dann R. J. L., Hay K., Lees J. A., J L. P., Maher B. A., 1996. Frequency-dependent susceptibility measurements of environmental materials. *Geophysical Journal International* 124 : 228-240.

Dekkers M. J., 1997. Environmental magnetism: an introduction. *Geologie en Mijnbouw* 76 : 163-182.

Deloye A., 2012. Combustibles solides. Charbon - Échantillonnage et essais, caractérisation. *Dossier Techniques de l'Ingénieur* be8532 : 17 p.

Dinesen A. R., Pedersen C. T., Bender Koch C., 2001. The thermal conversion of lepidocrocite (γ-FeOOH) revisited. *Journal of thermal analysis and calorimetry* 64 : 1303-1310.

Djerrab A., Baills H., Hedley I., Larque P., 2000. Apports de la susceptibilité magnétique à l'étude des remplissages des sites préhistoriques, exemple : la grotte des Conques (Vingrau, Pyrénées-Orientales). *Quaternaire* 11, 1 : 53-63.

Djerrab A., Hedley I., Vézian R., 2001. La grotte du Portel ouest (Loubens, Ariège) : nouvelles données stratigraphiques par l'étude de la susceptibilité magnétique. *Quaternaire* 12, 3 : 157-168.

Djerrab A., Hedley I., Nespoulet R., Chiotti L., 2007. Contribution des méthodes magnétiques à l'étude du remplissage du site préhistorique de l'abri pataud (Les Eysies-de-Tayac, Dordogne, France). *Paleo* 19 : 218-302.

Du Trémolet de Lacheisserie E., 2000. *Magnétisme - I. Fondements*. Collection Grenoble Sciences : 497 p.

Dunlop D. J., 1981. The rock magnetism of fine particles. *Physics of the Earth and Planetary Interiors* 26.

Dunlop D. J., Özdemir Ö., 1997. *Rock magnetism: Fundamentals and frontiers*. Cambridge University Press : 296 p.

Dunlop D. J., Özdemir Ö., 2007. Magnetizations in Rocks and Minerals. *Treatise on Geophysics* 5 : 277-336.

Dunnell R. C., Mccutcheon P. T., Ikeya M., Toyoda S., 1994. Heat treatment of mill creek and dover cherts on the Malden Plain, Southeast Missouri. *Journal of Archaeological Science* 21 : 79-89.

Duttine M., Guibert P., Perraut A., Lahaye C., Bechtel F., Villeneuve G., 2005. Effects of thermal treatment on TL and EPR of flints and their importance in TL-dating: application to French Mousterian sites of Les Forêts (Dordogne) and Jiboui (Drôme). *Radiation Measurements* 39 : 375-385.

E

El Bellaoui B., 1982. *Le problème paléogéographique du Numidien : contribution de la thermoluminescence et de l'exoscopie des grains de quartz à sa résolution*. Université de Paris-Sud, Centre d'Orsay. 132 p.

Evans M. E., Heller F., 2003. *Environmental magnetism; Principles and Applications of Enviromagnetics*. Elsevier Science ed.

F

Fabian K., 2009. Thermochemical remanence acquisition in single-domain particle ensembles: A case for possible overestimation of the geomagnetic paleointensity. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems* 10, 6.

Fiorentino G., d'Oronzo C., 2010. Une approche archéobotanique et expérimentale pour identifier des épisodes de feu successifs dans des structures foyères sur le sanctuaire d'Apollon à Hierapolis (Turquie). *In Taphonomie de la combustion des résidus organiques et des structures de combustion en contexte archéologique*, Valbonne (27-29 mai 2008), I. Théry-Parisot, L. Chabal, S. Costamagno dir., *P@leoethnologie* 2 : 59-68.

Forster T., Evans M.E., Heller F., 1994. The frequency dependence of low field susceptibility in loess sediments. *Geophysical Journal International* 118 : 636-642.

Francescato V., Antonini E., Zuccoli Bergomi L., 2008. *Wood fuels handbook*. AIEL - Italian Agriforest Energy Association : 83 p.

Frère-Sautot M.-C., 2003. *Le feu domestique et ses structures au Néolithique et aux Ages des métaux*. Actes du Colloque de Bourg-en-Bresse et Beaune. Mémoires du Musée de préhistoire d'Ile-de-France : Ed. Montagnac.

Gascó J., 2000. *L'Âge du bronze dans la moitié sud de la France. Histoire de la France préhistorique de -2000 à -800 ans* : La Maison des roches : 125 p.

Gascó J., 2002. Structures de combustion et préparation des végétaux de la Préhistoire récente et de la Protohistoire en France méditerranéenne. *Civilisations* [en ligne] 49 : 285-309.

Gascó J., 2003. Contribution pour une proposition de vocabulaire des structures de combustion. *In Le feu domestique et ses structures au Néolithique et aux Âges des métaux, Actes du colloque de Bourg-en-Bresse et Beaune* (2000), M.-C. Frère-Sautot dir., Ed. Montagnac : 109-112.

Gascó J., Muller-Pelletier C., 2004. L'étude des foyers de la Préhistoire : historique, modalités, variantes et perspectives nouvelles. *In XXVIe Congrès Préhistorique de France : Un siècle de construction du discours scientifique en Préhistoire*, Avignon (21-25 septembre 2004), Société Préhistorique Française : 323-339.

Gehring A. U., Hofmeister A. M., 1994. The transformation of lepidocrocite during heating: a magnetic and a spectroscopic study. *Clays and Clay Minerals* 42, 4 : 409-415.

Gendler T. S., Shcherbakov V. P., Dekkers M. J., Gapeev A. K., Gribov S. K., McClelland E., 2005. The lepidocrocite-maghemite-haematite reaction chain - I. Acquisition of chemical remanent magnetization by maghemite, its magnetic properties and thermal stability. *Geophysical Journal International* 160 : 815-832.

Gialanella S., Girardi F., Ischia G., Lonardelli I., Mattarelli M., Montagna M., 2010. On the goethite to hematite phase transformation. *Journal of thermal analysis and calorimetry* 102, 3 : 867-873.

Godfrey-Smith D. I., Ilani S., 2004. Past thermal history of goethite and hematite fragments from Qafzeh Cave deduced from thermal activation characteristics of the 110°C TL peak of enclosed quartz grains. *Archéosciences - Revue d'Archéométrie* 28 : 185-190.

Godfrey-Smith D. I., Boucher-Bert L., Von Bitter P. H., Storck P. L., 2005. Thermal activation characteristics ant thermoluminescence of chert from the Red Wing, Ontario region, and its putative heat treatment in prehistory. *Geochronometria - Journal on Methods and Applications of Absolute Chronology* 24 : 13-20.

Göksu H. Y., Weiser A., Regulla D. F., 1989. 110°C TL peak records the ancient heat treatment of flint. *Ancient TL* 7, 1 : 15-17.

Göksu H. Y., Wieser A., Regulla D. F., Vogenauer A., 1991. A routine analysis for the determination of the firing temperature of flint tools. *Archaeometry* 90 : 265-274.

Goldberg P., Berna F., 2010. Micromorphology and context. *Quaternary International* 214 : 56-62.

Goldberg P., Dibble H. L., Berna F., Sandgathe D., McPherron S. P., Turq A., 2012. New evidence on Neanderthal use of fire: Examples from Roc de Marsal and Pech de l'Azé IV. *Quaternary International* 247 : 325-340.

Guillot P. L., 1979. *Carte géologique de la France 1/50 000 : Thiviers (XIX-33)* : Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM) : notice n°735, 60 p.

H

Halgedalh S. L., 1998. Revisiting the Lowrie-Fuller test: alternating field demagnetization characteristics of single-domain through multidomain glass-ceramic magnetite. *Earth and Planetary Letters* 160 : 257-271.

Heimann R. B., 1982. Firing technologies and their possible assessment by modern analytical methods. *In Ceramics as archaeological material*, Washington - Gaithersburg (1982), J. S. Olin, A. D. Franklin dir., Smithsonian Institution Press : 89-96.

Henry D., 2012. The palimpsest problem, hearth pattern analysis, and Middle Paleolithic site structure. *Quaternary International* 247 : 246-266.

Herries A. I. R., Kovacheva M., Kostadinova M., Shaw J., 2007. Archaeo-directional and -intensity data from burnt structures at the Tracian site of Halka Bunar (Bulgaria): The effect of magnetic mineralogy, temperature and atmosphere of heating in antiquity. *Physics of the Earth and Planetary Interiors* 162 : 199-216.

Herries A. I. R., Fisher E. C., 2010. Multidimensional GIS modeling of magnetic mineralogy as a proxy for fire use and spatial patterning: Evidence from the Middle Stone Age sea cave of Pinnacle Point 13B (Western Cape, South Africa). *Journal of Human Evolution* 59 : 306-320.

Hervé G., 2012. *Datation par archéomagnétisme des terres cuites archéologiques en France au premier millénaire av. J.-C. - Etalonnage des variations du champ géomagnétique en direction et intensité*. Thèse de l'Université Michel de Montaigne, Bordeaux. 332 p.

Hrouda F., Müller P., Hanak J., 2003. Repeated progressive heating in susceptibility vs. temperature investigation: a new palaeotemperature indicator? *Physics and Chemistry of the Earth* 28 : 653-657.

Hunt C. P., Moskowtitz B. M., Banerjee S. K. 1995. Magnetic Properties of Rocks and Minerals. *In Rock Physics and Phase Relations - A Handbook of Physical Constants*, T. J. Arhens ed.: 189-204.

I

Inizan M. L., Tixier J., 2000. L'émergence des arts du feu : le traitement thermique des roches siliceuses. *Paléorient* 26, 2 : 23-36.

J

Jani M. G., Halliburton L. E., Kohnke E. E., 1983. Points defects in crystalline SiO_2: thermally stimulated luminescence above room temperature. *Journal of Applied Physics* 54 : 6321-6328.

Jannot Y., 2011. *Transferts thermiques*. Ecole des Mines, Nancy : 161 p.

Jordanova D., Jordanova N., 1999. Magnetic characteristics of different soil types from Bulgaria. *Studia geophysica et geodaetica* 43 : 303-318.

Jordanova N., Petrovsky E., Kovacheva M., Jordanova D., 2001. Factors determining magnetic enhancement of burnt clay from archaeological sites. *Journal of Archaeological Science* 28 : 1137-1148.

K

Katz S., Halperin A., 1988. The low temperature phosphorescence and thermoluminescence of quartz crystals. *Journal of Luminescence* 39 : 137-143.

Koul D. K., Singhvi A. K., Nambi K. S. V., Bhat C. L., Gupta P. K., 1996. Feasibility of estimating firing temperature using the 110°C TL peak of quartz. *Applied Radiation and Isotopes* 47, 2 : 191-194.

Koul D. K., 2006. Role of alkali ions in limiting the capacity of the 110°C peak of quartz to remember the firing temperature. *Applied Radiation and Isotopes* 64 : 110-115.

Koul D. K., Chougaonkar M. P., 2011. An attempt to estimate firing temperature using OSL pre-dose sensitization of quartz. *Geochronometria - Journal on Methods and Applications of Absolute Chronology* 38, 3 : 217-222.

L

Labenski de Kanter F., Duhalde S., Saragovi C., March R. J., 1994. Mössbauer study of sediment alteration produced by heat treatment. *Hyperfine Interactions* 83 : 437-441.

Lacanette D., Malaurent P., Caltagirone J.-P., Brunet J., 2007. Etude des transferts de masse et de chaleur dans la grotte de Lascaux. *Karstologia* 50 : 19-30.

Lacanette D., Vincente S., Sarthou A., Malaurent P., Caltagirone J. P., 2009. An Eulerian/Lagrangian method for the numerical simulation of incompressible convection flows interacting with complex obstacles: Application to the natural convection in the Lascaux cave. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 52: 2528-2542.

Lahaye C., Godfrey-Smith D. I., Guibert P., Bechtel F., 2006. Equivalent thermal history (HE) of ferruginous sandstones based on the thermal activation characteristics of quartz. *Radiation Measurements* 41 : 995-1000.

Laloy J., 1981. Recherche d'une méthode pour l'exploitation des témoins de combustion préhistorique. Paris : *Cahiers du Centre de Recherches Préhistoriques* : 166 p.

Lebon M., 2010. Caractérisation des ossements chauffés en contexte archéologique - étude comparative de matériel moderne et fossile par spectroscopie infrarouge. *In Taphonomie de la combustion des résidus organiques et des structures de combustion en contexte archéologique*, Valbonne (27-29 mai 2008), I. Théry-Parisot, L. Chabal, S. Costamagno dir., *P@leoethnologie* 2 : 149-162.

Le Borgne E., 1955. Susceptibilité magnétique anormale du sol superficiel. *Annales de Géophysique* 11 : 399-419.

Le Borgne E., 1960. Influence du feu sur les propriétés magnétiques du sol et sur celles du schiste et du granite. *Annales de Géophysique* 16 : 159-196.

Lecoanet H., Lévêque F., Segura S., 1999. Magnetic susceptibility in environmental applications: comparison of field probes. *Physics of the Earth and Planetary Interiors* 115 : 191-204.

Legigan P. 2002. Application de l'exoscopie des quartz à la reconstitution des environnements sédimentaires. *In Géologie de la préhistoire*. Paris : Association pour l'étude de l'environnement géologique de la préhistoire : 571-587.

Le Ribault L., 1977. *L'exoscopie des quartz, techniques et méthodes sédimentologiques*. Paris, Masson : 150 p.

Leroi-Gourhan A., Brézillon M., 1972. Fouilles de Pincevent. La section 36. Essai d'analyse ethnographique d'un habitat magdalénien. *Gallia préhistoire* supplément 7, CNRS ed. 2 : 331 p.

Leroi-Gourhan A., 1973. *Séminaire sur les structures d'habitat, les témoins de combustion*. Collège de France, Laboratoire d'Ethnologie Préhistorique. Paris : 43 p.

Leroi Gourhan A., 1997. *Dictionnaire de la préhistoire*. Quadrige, Presses Universitaires de France.

Leveau P., 2012. Histoire du paysage. *Encyclopedia Universalis* [consulté le 07/06/2012].

Liedgren L. G., Östlund L., 2011. Heat, smoke and fuel consumption in high mountain stállo-hut, northern Sweden - Experimental burning of fresh birch wood during winter. *Journal of Archaeological Science* 38 : 903-912.

Linford N., Canti M. G., 2001. Geophysical evidence for fires in Antiquity: preliminary results from an experimental study. *Archaeological Prospection* 8 : 211-225.

Linford N., Platzman E., 2004. Estimating the approximate firing temperature of burnt archaeological sediments through an unmixing algorithm applied to hysteresis. *Physics of the Earth and Planetary Interiors* 147 : 197-207.

Lucquin M., 2012. Combustion. *Encyclopedia Universalis* [consulté le 10/08/2012].

Lugassi R., Ben-Dor E., Eshel G., 2010. A spectral-based method for reconstructing spatial distributions of soil surface temperature during simulated fire events. *Remote Sensing of Environment* 114 : 322-331.

Macphail R. I., Courty M.-A., Goldberg P., 1990. Soil micromorphology in archaeology. *Endeavour, New Series* 14, 4 : 163-171.

Maher B. A., 1998. Magnetic properties of modern soils and Quaternary loessic paleosols: paleoclimatic implications. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology* 137 : 25-54.

Maki D., Homburg J. A., Brosowske S. D., 2006. Thermally activated mineralogical transformations in archaeological hearths: inversion from maghemite phase to haematite form. *Archaeological Prospection* 13 : 207-227.

March R. J., Ferreri J.-C., 1989. Sobre el estudio de estructuras de combustión arqueológicas mediante replicaciones y modelos numericos. *In Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 59-68.

March R. J., Baldessari A., Ferreri J.-C., Grande A., Gros E.-G., Morello O., Rodano R., 1989. Etude des structures de combustion archéologiques d'Argentine. *Bulletin de la Société Préhistorique Française* 86, 10-12 : 384-392.

March R. J., Wünsch G., 2003. Loupes et lentilles obscures : à propos de la fonction des structures de combustion. *In Le feu domestique et ses structures au Néolithique et aux Âges des métaux, Actes du colloque de Bourg-en-Bresse et Beaune* (2000), M.-C. Frère-Sautot dir., Ed. Montagnac : 311-318.

Marmet E., Bina M., Fedoroff N., Tabbagh A., 1999. Relationships between human activity and the magnetic properties of soils: a case study in the medieval site of Roissy-en-France. *Archaeological Prospection* 6, 3 : 161-170.

Mathé P. E., 1996. *Application du paléomagnétisme et du magnétisme des roches à l'étude des processus d'altération supergène*. PhD Thesis, Université d'Aix-Marseille III. 210 p.

Mathé V., Lévêque F., 2005. Trace magnetic minerals to detect redox boundaries and drainage effects in a marshland soil in western France. *European Journal of Soil Science* 56 : 737-751.

Mc Keever S. W. S., Chen R., 1997. Luminescence Models. *Radiation Measurements* 27, 5-6 : 625-661.

Meignen L., Bar-Yosef O., Goldberg P., Weiner S., 2000. Le feu au paléolithique moyen : recherches sur les structures de combustion et le statut des foyers. L'exemple du Proche-Orient. *Paléorient* 26, 2 : 9-22.

Miller C. E., Conard N. J., Goldberg P., Berna F., 2010. Analyse micromorphologique de structures de combustion expérimentales anthropiquement remaniées. *In Taphonomie de la combustion des résidus organiques et des structures de combustion en contexte archéologique*, Valbonne (27-29 mai 2008), I. Théry-Parisot, L. Chabal, S. Costamagno dir., *P@leoethnologie* 2 : 25-37.

Mirti P., 1998. On the use of colour coordinates to evaluate firing temperatures of ancient pottery. *Archaeometry* 40, 1 : 45-57.

Morinaga H., Inokuchi H., Yamashita H., Ono A., Inada T., 1999. Magnetic detection of heated soils at paleolithic sites in Japan. *Geoarchaeology: An International Journal* 14, 5 : 377-399.

Morris A., 2003. A palaeomagnetic and rock glossary. *Tectonophysics* 377 : 211-228.

Muhieddine M., Canot E., March R. J., Delannay R., 2011. Coupling heat conduction and water-steam flow in saturated porous medium. *International Journal for Numerical Methods in Enginnering* 85 : 1390-1414.

N

Néel L., 1951. Le traînage magnétique. *Le Journal de Physique et le Radium* 12 : 339-351.

Néel L., 1952. Théorie du traînage magnétique de diffusion. *Le Journal de Physique et le Radium* 13, 5 : 249-264.

Niftah S., Debanath A., Miskovsky J.-C., 2005. Origine du remplissage sédimentaire des grottes de Témara (Maroc) d'après l'étude des minéraux lourds et l'étude exoscopique des grains de quartz. *Quaternaire* 16, 2 : 73-83.

O

O'Reilly W., 1976. Magnetic minerals in the crust of the earth. *Reports on Progress in Physics* 39 : 857-908.

O'Reilly W., 1984. *Rock and mineral magnetism*. Blackie & Son ed., Glasgow : 220 p.

Oldfield F., Crowther J., 2007. Establishing fire incidence in temperate soils using magnetic measurements. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology* 249 : 362-369.

Olive M., 1989. Etiolles : quels foyers pour quels usages ? *In Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 197-207.

Olive M., Taborin Y., 1989. *Nature et fonction des foyers préhistoriques*. Actes du Colloque International de Nemours. Mémoires du Musée de préhistoire d'Ile-de-France : Ed. APRAIF.

Ontañón R., 2003. Sols et structures d'habitat du Paléolithique supérieur, nouvelles données depuis les Cantabres : la Galerie Inférieure de La Garma (Cantabrie, Espagne). *L'anthropologie* 107 : 333-363.

Oti J. E., Kinuthia J. M., Bai J., 2010. Design thermal values for unfired clay bricks. *Materials and Design* 31 : 104-112.

Özdemir Ö., Banerjee S. K., 1982. A preliminary magnetic study of soil samples from west-central Minnesota. *Earth and Planetary Science Letters* 59 : 393-403.

Özdemir Ö., Banerjee S. K., 1984. High temperature stability of maghemite (γ-Fe_2O_3). *Geophysical Research Letters* 11, 3 : 161-164.

Özdemir Ö., Dunlop D. J., 2000. Intermediate magnetite formation during dehydration of goethite. *Earth and Planetary Science Letters* 177 : 59-67.

P

Périnet G., 1964. Détermination par diffraction X de la température de cuisson d'un ossement calciné. Application au matériel préhistorique. *C.R. Acad. Sc. Paris* 258 : 4115-4116.

Perlès C., 1977. *Préhistoire du feu*. Paris, Masson : 182 p.

Peters C., Church J., Coles G., 2000. Mineral magnetism and archaeology at Galson on the Isle of Lewis, Scotland. *Physics and Chemistry of the Earth* 25, 5 : 455-460.

Peters C., Dekkers M. J., 2003. Selected room temperature magnetic parameters as a function of mineralogy, concentration and grain size. *Physics and Chemistry of the Earth* 28 : 659-667.

Pétronille M., 2009. *Contribution à la caractérisation du type d'occupation des sols à partir des propriétés magnétiques*. Thèse de doctorat de l'Institut de Physique du Globe de Paris, Université Pierre et Marie Curie - Paris 6 : 354 p.

Polymeris G. S., Sakalis A., Papadopoulou D., Dallas G., Kitis G., Tsirliganis N. C., 2007. Firing temperature of pottery using TL and OSL techniques. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 580 : 747-750.

Prevost-Dermarkar S., 2002. Les foyers et les fours domestiques en Égée au Néolithique et à l'Âge du bronze. *Civilisations* [en ligne] 49 : 223-237.

R

Randall J. T., Wilkins M. H. F., 1945. Phosphorescence and electron traps. *Proceedings of the Royal Society of London A* 184 : 366-407.

Rasmussen K. L., De La Fuente G. A., Bond A. D., Mathiesen K. K., Vera S. D., 2012. Pottery firing temperatures: a new method for determining the firing temperature of ceramics and burnt clay. *Journal of Archaeological Science* 39 : 1705-1716.

Roberts A. P., 1995. Magnetic properties of sedimentary greigite (Fe_3S_4). *Earth and Planetary Science Letters* 134 : 227-236.

Robins G. V., 1984. The study of heated and charred archaeological materials with electron spin resonance spectroscopy. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* 6 : 31-43.

Rogaume Y., Autret E., 2012. Production de chaleur à partir de bois - Emission atmosphériques - Notions de base. *Dossier Techniques de l'Ingénieur* be8750 : 16 p.

Roque C., Guibert P., Vartanian E., Vieillevigne E., Bechtel F., 2004a. Changes in luminescence properties induced by thermal treatments; a case study at Sipan and Trujillo Moche sites (Peru). *Radiation Measurements* 38 : 119-126.

Roque C., Guibert P., Duttine M., Vartanian E., Chapoulie R., Bechtel F., 2004b. Dependence of luminescence characteristics of irradiated quartz with the thermal treatment and consequences for TL dating. *Geochronometria - Journal on Methods and Applications of Absolute Chronology* 23 : 1-8.

S

Sanders J. P., Gallagher P. K., 2003. Thermomagnetometric evidence of γ-Fe_2O_3 as an intermediate in the oxidation of magnetite. *Thermochimica Acta* 406 : 241-243.

Saporta G., 2006. *Probabilités, analyse des données et statistique. 2e édition révisée et augmentée*. Editions TECHNIP. Paris : 622 p.

Schwertmann U., 1984. The double dehydroxylation peak of goethite. *Thermochimica Acta* 78 : 34-46.

Sievers C., Wadley L., 2008. Going underground: experimental carbonization of fruiting structures under hearths. *Journal of Archaeological Science* 35 : 2909-2917.

Sigiura N., 1979. ARM, TRM and magnetic interactions: concentration dependence. *Earth and Planetary Science Letters* 42 : 451-455.

Sordoillet D., 2009. Géoarchéologie de sites préhistoriques : le Gardon (Ain), Montou (Pyrénées-Orientales) et Saint-Alban (Isère). *Documents d'Archéologie Française dAf* 103 : 188 p.

Spencer J. Q., Sanderson D. C. W., 1994. Mapping thermal exposure by luminescence thermometry. *Radiation Measurements* 23 : 465-468.

Stapert D., 1989. The ring and sector method, intrasite spatial analysis of Stone Age sites, with special reference to Pincevent. *Palaeohistoria* 31 : 1-57.

Steen D., Dupont D., 2012. Colorimétrie - Mesure des couleurs de surface. *Dossier Techniques de l'Ingénieur* r6442 : 14 p.

Swezey C., 1998. The identification of eolian sands and sandstones. *C.R. Acad. Sci. Paris, Science de la terre et des planètes* 327 : 513-518.

Taborin Y., 1989. Le foyer : document et concept. *In Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 77-80.

Thellier E., 1938. Sur l'aimantation des terres cuites et ses applications géophysiques. *Annales de l'Institut de Physique du Globe*, Paris 16 : 157- 302.

Thellier E., 1951. Propriétés magnétiques des terres cuites et des roches. *Le Journal de Physique et le Radium* 12 : 205.

Théry-Parisot I., 2002. Fuel management (bone and wood) during the lower Aurignacian in the Pataud rock shelter (lower palaeolothic, Les Eyzies de Tayac, Dordogne, France). Contribution of experimentation. *Journal of Archaeological Science* 29 : 1415-1421.

Théry-Parisot I., Texier P.-J., 2006. La collecte du bois de feu dans le site moustérien de la Combette (Bonnieux, Vaucluse, France) : implications paléo-économiques et paléo-écologiques. Approche morphométrique des charbons de bois. *Bulletin de la Société Préhistorique Française* 103, 3 : 453-463.

Théry-Parisot I., Renault-Miskovsky J., Girard M., Brugal J. P., Kervazo B., 2008. Etude paléobotanique des dépôts du Pléistocène supérieur de la grotte de Coudoulous II (Tour-de-Faur, Lot, France). *Quaternaire* 19, 3 : 205-216.

Théry-Parisot I., Chabal L., Chrzavzez J., 2010. Anthracology and taphonomy, from wood gathering to charcoal analysis. A review of the taphonomic processes modifying charcoal assemblages, in archaeological contexts. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology* 291 : 142-153.

Théry-Parisot I., Henry A., 2012. Seasoned or green? Radial cracks analysis as a method for identifying the use of green wood as fuel in archaeological charcoal. *Journal of Archaeological Science* 39 : 381-388.

Thiébault S., 1989. Apport de l'analyse anthracologique à la connaissance des combustibles ligneux. *In Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 81-88.

Thiébault S., 2012. Archéologie : méthodes et techniques. *Encyclopedia Universalis* [consulté le 7/06/2012].

Thompson R., Oldfield F., 1986. *Environmental Magnetism*. Allen and Unwin Ltd, Londres : 227 p.

Tite M. S., 1969. Determination of the firing temperature of ancient ceramics by measurement of thermal expansion: a reassessment. *Archaeometry* 11 : 132-143.

Toyoda S., Ikeya M., Dunnell R. C., Mccutcheon P. T., 1993. The use of Electron Spin Resonance (ESR) for determination of prehistoric lithic heat treatment. *Applied Radiation and Isotopes* 44, 1-2 : 227-231.

Trabaud L., 1979. Etude du comportement du feu dans le Garrigue de chêne kermes à partir des températures et des vitesses de propagation. *Annals of Forest Science* 36, 1 : 13-38.

V

Valentin B., 1989. Nature et fonctions des foyers de l'habitation n°1 à Pincevent. *In Nature et fonction des foyers préhistoriques, Actes du Colloque International de Nemours* (1987), M. Olive, Y. Taborin dir., Mémoire du Musée de Préhistoire d'Île de France, Ed. APRAIF : 209-219.

Valladas H., 1980. Investigation of thermoluminescence of burnt sandstones from prehistoric sites. *Nuclear Instruments and Methods* 175 : 230-232.

Valladas H., 1981. Thermoluminescence de grès de foyers préhistoriques : estimation de leur température de chauffe. *Archaeometry* 23 : 221-229.

Visocekas R., 1979. *Estimation of temperature beneath archaeological campfires using carbon stable isotope composition of soil organic matter*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, Paris VI : 259 p.

W

Wadley L., 2012. Some combustion features at Sibudu, South Africa, between 65,000 and 58,000 years ago. *Quaternary International* 247 : 341-349.

Walter D., Buxbaum G., Laqua W., 2001. The mechanism of the thermal transformation from goethite to hematite. *Journal of thermal analysis and calorimetry* 63 : 733-748.

Watson I. A., Aitken M. J., 1985. Firing temperature analysis using the 110°C TL peak of quartz. *Nuclear Tracks* 10, 4-6 : 517-520.

Wattez J., 1988. Contribution à la connaissance des foyers préhistoriques par l'étude des cendres. *Bulletin de la Société Préhistorique Française* 5, 10-12 : 325-366.

Weisgerber G., Willies L., 2000. The use of fire in prehistoric and ancient mining: firesetting. *Paléorient* 26, 2 : 131-149.

Werts S. P., Jarhen A. H., 2007. Estimation of temperature beneath archaeological campfires using carbon stable isotope composition of soil organic matter. *Journal of Archaeological Science* 34 : 850-857.

Y

Yamazaki T., Ioka N., 1997. Cautionary note on magnetic grain-size estimation using the ratio of ARM to magnetic susceptibility. *Geophysical Research Letters* 24, 7 : 751-754.

Liste des Figures

Figure 1 : Cartographie des structures de combustion au sein du réseau de la grotte des Fraux. © A. Burens. 26

Figure 2 : Principales typologies des foyers. 32

Figure 3 : A- Représentation schématique de la structure de la zone d'occupation autour du foyer, pour une, trois ou quatre personnes ; B- Illustration de la relation entre l'analyse en anneau et l'occupation de la zone autour du foyer ; C- Représentation de l'analyse en secteur montrant la direction des vents (© Henry, 2012). 34

Figure 4 : Représentation des coordonnées colorimétriques dans l'espace CIELAB 76. 38

Figure 5 : Intensité du signal TL en fonction du temps et des évènements enregistrés par le matériau. 57

Figure 6 : Représentation énergétique des pièges des grains de quartz (Mc Keever et Chen, 1997) : 58

Figure 7 : four à chambre 60

Figure 8 : appareillage de mesure de TL © C. Lahaye. 60

Figure 9 : Exemple d'un signal TL (vitesse de chauffe 4°C/s). 61

Figure 10 : Illustration du comportement diamagnétique. En champ magnétique nul, les moments élémentaires ne sont pas individualisés et toute aimantation disparaît. 64

Figure 11 : Illustration du comportement paramagnétique. Les moments élémentaires s'alignent sur le champ magnétique appliqué. Après coupure du champ, aucune aimantation rémanente ne subsiste. 64

Figure 12 : Illustration du comportement ferromagnétique au sens strict, ferrimagnétique, antiferromagnétique et antiferromagnétique canté. 65

Figure 13 : Rotation progressive des spins entre deux domaines au sein de la paroi de Bloch. 67

Figure 14 : Variation de l'aimantation rémanente à saturation (Mrs), de la susceptibilité magnétique (κ) et du champ coercitif rémanent (Hcr) en fonction du diamètre des grains ferromagnétiques (d'après Thompson et Oldfield, 1986). SP : Superparamagnétique ; SD : *single-domain* ; PSD : *pseudo single domain* ; MD : *multi-domain*. 68

Figure 15 : Courbe d'aimantation M et état des domaines magnétiques en fonction du champ appliqué H pour un matériau ferromagnétique au sens large : courbe de première aimantation et cycle d'hystérésis. 69

Figure 16 : Transformations des oxyhydroxydes et oxydes de fer possibles suivant les conditions de température et d'atmosphère de la chauffe. RT : *room temperature*. (Cornell et

Schwertmann, 2003 ; Cudennec et Lecerf, 2005 ; Dinesen *et al.*, 2001 ; Dunlop et Özdemir, 2007 ; Marmet *et al.*, 1999 ; Özdemir et Dunlop, 2000 ; Walter *et al.*, 2001). ..73

Figure 17 : Effet Hopkinson 78

Figure 18 : Mise en évidence de la susceptibilité magnétique background χ_B de la matrice diamagnétique et paramagnétique d'un matériau. Ferromagnétique s.l. : ferromagnétique au sens large qui regroupe ferromagnétique au sens strict, ferrimagnétique et antiferromagnétique canté. 79

Figure 19 : Four à désaimantation MMTD18 (Magnetic Measurement). 81

Figure 20 : Susceptibilimètre KT-9 (Exploranium). © cliché : A. Burens. 81

Figure 21 : Susceptibilimètre KLY-4S associé au CS-4, AGICO. L'appareillage est ici en configuration de mesure de κ(T). 82

Figure 22 : SM100-SM105, ZHinstruments. 82

Figure 23 : A gauche, blindage en mumetal (interne) et fer doux (externe) permettant une atténuation du champ magnétique externe ; à droite, support placé dans la pièce de manière à ce que les échantillons soient placés axialement au champ magnétique terrestre (CMT) local. 83

Figure 24 : Chambre à champ magnétique atténué où sont effectuées les mesures d'aimantation à l'aide du magnétomètre spinner JR-6A (AGICO), les impulsions de champ magnétique (MMPM 10) et les désaimantations en champ alternatif (DTECH 2000). 83

Figure 25 : Localisation géographique de la grotte des Fraux, Saint-Martin-de-Fressengeas, Dordogne. 91

Figure 26 : Grotte des Fraux, topographie du réseau. 92

Figure 27 : Carte géologique illustrée par un extrait de la légende spécifique aux Fraux (Thiviers XIX-33). 93

Figure 28 : Localisation de l'ensemble des vestiges liés à fréquentation humaine dans la grotte des Fraux. © A. Burens (Carozza, 2011 : p. 79) 94

Figure 29 : Restitution 3D de l'entrée dans le secteur 13 de la grotte des Fraux. © INSA Strasbourg. 95

Figure 30 : Localisation des prélèvements datés par radiocarbone. © L. Carozza (Carozza, 2011 : p. 19) 96

Figure 31 : Synthèse des données chronologiques. 97

Figure 32 : Grand panneau, Secteur 13, grotte des Fraux. © R. Bourillon et S. Petrognani (Carozza, 2010 : p.81). 98

Figure 33 : Cartographie des foyers ; Grotte des Fraux. © A. Burens. 100

Figure 34 : Secteur 13, salle du pilier, grotte des Fraux. © cliché : A. Burens 101

Figure 35 : Relevés archéologiques de la zone 1, secteur 13, grotte des Fraux. © relevés : L. Carozza. 102

Figure 36 : Structures de combustion, zone 1, secteur 13, grotte des Fraux. © cliché : A. Burens.. 103

Figure 37 : Secteur 13, galerie dont le sol monte progressivement, grotte des Fraux. © cliché : A. Burens..... 103

Figure 38 : Replat du secteur 13 où se situe le foyer F4, grotte des Fraux. © cliché A. Burens. 104

Figure 39 : Foyer F4, secteur 13, grotte des Fraux. © relevé : L. Carozza. 104

Figure 40 : Secteur 18, première partie ; Grotte des Fraux. © cliché : A. Burens..... 106

Figure 41 : Secteur 18, première partie ; grotte des Fraux. © relevés : L. Carozza. 106

Figure 42 : Localisation des trois foyers étudiés F4, F6 et F8 dans le secteur 13, grotte des Fraux. (d'après A. Burens). 111

Figure 43 : Foyer F4, secteur 13 - zone 3, grotte des Fraux. © cliché : A. Burens. 112

Figure 44 : Relevé du foyer F4, secteur 13, grotte des Fraux. © relevé : L. Carozza 112

Figure 45 : Foyers F6 et F8, grotte des Fraux. © cliché : A. Burens. 113

Figure 46 : Cartographie de susceptibilité magnétique superposée au relevé archéologique du foyer F4, secteur 13, grotte des Fraux. 114

Figure 47 : Cartographie de susceptibilité magnétique (en SI) du foyer F4, secteur 13, grotte des Fraux. 115

Figure 48 : Localisation et cartographie de susceptibilité magnétique du foyer F4 ainsi que emplacement des prélèvements. © cliché : A. Burens..... 117

Figure 49 : Prélèvements réalisés sur le foyer F4 localisés par les croix sur un cliché du foyer F4 (© A. Burens) et sur la cartographie de susceptibilité magnétique. 118

Figure 50 : Vue d'ensemble de la zone de cartographie de susceptibilité magnétique et état des foyers avant les prélèvements. © cliché : A.Burens. 120

Figure 51 : Cartographie de susceptibilité magnétique des foyers F6 et F8 et emplacement des prélèvements. Les zones grisées sont des points non mesurés. © cliché : A. Burens. . 120

Figure 52 : Localisation des prélèvements sur le foyer F8. 121

Figure 53 : Localisation des prélèvements sur le foyer F6. Les échantillons 1 à 18 (carrés blancs) correspondent à l'emplacement des carottes (archéomagnétisme) et des prélèvements jumeaux pour la TL et la minéralogie magnétique. Les prélèvements 19 à 36 (croix blanches) ont été mesurés en TL. 122

Figure 54 : Matériel de prélèvement des carottes et prélèvement n°16. © cliché : G. Hervé. 123

Figure 55 : Prélèvements réalisés pour l'analyse de la minéralogie magnétique. 124

Figure 56 : Préparation de la sole expérimentale, reproduction de la sole du foyer F4 : dégraissage par un mélange sédiment argileux + grès broyé ; mise en forme suivie d'un séchage d'un jour ; réalisation des tracés sur l'argile de consistance « cuir ». 128

Figure 57 : Positionnement des thermocouples n°101 à 120 dans le foyer expérimental. 129

Figure 58 : Courbes de températures enregistrées pendant les quatre feux allumés sur le substrat expérimental. 129

Figure 59 : Récapitulatif de l'histoire thermique des prélèvements choisis dans les grès broyés pour les mesures de TL. Pour une meilleure lisibilité, les couleurs choisies ne correspondent pas à celles des courbes des thermocouples. 130

Figure 60 : Localisation des prélèvements de la sole foyère expérimentale pour les mesures de TL. 130

Figure 61 : Cartographie de viscosité magnétique de la sole expérimentale et emplacement des prélèvements 131

Figure 62 : Variation des couleurs des prélèvements de la sole expérimentale (code des couleurs des sols, Cailleux). 131

Figure 63 : Signal TL géologique pour lequel l'ajout de dose n'entraine pas d'augmentation du signal. On parle de saturation. 140

Figure 64 : Synthèse des signaux TL mesurés sur les échantillons archéologiques et les références thermiques avec les correspondances entre les différentes étapes. 141

Figure 65 : Signaux TL types aux différentes étapes d'évolution d'un échantillon archéologique (cf. Figure 64). Le signal « juste après la chauffe archéologique » est un signal TL virtuel car inaccessible aux mesures. 142

Figure 66 : Signaux TL types aux différentes étapes de traitement des références thermiques (cf. Figure 64). 143

Figure 67 : Signaux TL (fraction 200 - 500 µm du quartz) naturels (traits pleins) et naturels + dose (traits pointillés) des prélèvements n° 1, 5 et 26 du foyer F4 (vitesse de chauffe de 4°C/s). 149

Figure 68 : Signaux TL (fraction 200 - 500 µm du quartz) naturels (traits pleins) et naturels + dose (traits pointillés) des prélèvements 26, 11, et 16b du foyer F6 (vitesse de chauffe de 4°C/s). 149

Figure 69 : Signaux TL (fraction 200 - 500 µm du quartz) naturels (traits pleins) et naturels + dose (traits pointillés) des prélèvements 16 et 25 du foyer F4 (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C). 149

Figure 70 : Signal TL résiduel des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz après les cycles de chauffe dans le four. Aucun signal n'étant visible en deçà de 150°C, la courbe a été tronquée. (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C) 152

Figure 71 : Signal TL résiduel + dose (12 Gy) des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C). 152

Figure 72 : Variation de l'intensité du pic à 110°C des courbes de signal résiduel + dose des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz. 153

Figure 73 : Signal TL naturel simulé des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C). 154

Figure 74 : Signal TL naturel simulé + dose des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C). 155

Figure 75 : Variation de l'intensité du pic à 110°C des courbes de signal TL naturel simulé + dose des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz. 155

Figure 76 : Variation du rapport d'intensité maximale entre les composantes de haute température (> 300°C) et le pic à 110°C du signal naturel simulé + dose des références thermiques sur fraction grossière (200-500µm) du quartz. 155

Figure 77 : Mise en parallèle des signaux naturel simulé avec et sans ajout de dose pour chaque référence thermique sur fraction grossière (200-500µm) du quartz (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C). 156

Figure 78 : Exemple de signaux TL naturel et naturel + dose de certains prélèvements archéologiques (F4-1, F4-5, F4-26 ; fraction 200-500 µm du quartz) et comparaison (visuelle) avec les références thermiques les plus proches (vitesse de chauffe de 4°C/s). 158

Figure 79 : Exemples de signaux TL naturel et naturel + dose de certains prélèvements archéologiques (F6-26, F6-11 et F6-16b ; fraction 200-500 µm du quartz) et comparaison (visuelle) avec les références thermiques les plus proches (vitesse de chauffe de 4°C/s). 159

Figure 80 : Exemples de représentation des variances relatives pour les prélèvements F4-1, F4-5, F4-26, F6-26, F6-11, F6-16b..... 161

Figure 81 : Classification hiérarchique des échantillons du foyer F4 et des références thermiques (en gras). 163

Figure 82 : Classification hiérarchique des prélèvements des foyers F6-F8 et des références thermiques (en gras). Codes utilisés pour les prélèvements : numéro de prélèvement + a ou b (nat 1 ou nat 2) ; 163

Figure 83 : Signal TL résiduel et résiduel + dose sur la fraction 200 - 500 µm du quartz du foyer expérimental (vitesse de chauffe de 4°C/s). 167

Figure 84 : Signal naturel simulé (traits pleins) et naturel simulé + dose (traits pointillés) sur la fraction 200 - 500 µm du quartz du foyer expérimental (vitesse de chauffe de 4°C/s). 167

Figure 85 : Comparaison visuelle des courbes naturelles simulées des prélèvements du foyer expérimental avec les références thermiques les plus proches (vitesse de chauffe de 4°C/s). 168

Figure 86 : Représentation des variances relatives pour les prélèvements du foyer expérimental. 169

Figure 87 : Classification hiérarchique des prélèvements du foyer expérimental et des références thermiques (en gras). Code utilisé pour les références : T (Témoin) + température + SN (Simulation naturel) ; prélèvements : n° BDX + a ou b (nat 1 ou nat 2). 170

Figure 88 : Cycles thermiques enregistrés par les thermocouples correspondant aux prélèvements. Sur la gauche du graphique sont représentés les intervalles « min-max » de chauffe de chaque échantillon pendant au moins une heure. 171

Figure 89 : Signaux TL naturels (traits pleins) et naturels + dose (traits pointillés) des prélèvements F4-18, F4-19 et F4-21 de la sole foyère du foyer F4 (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C). 174

Figure 90 : Signaux TL naturels (traits pleins) et naturels + dose (traits pointillés) des prélèvements F6-26, F6-11, et F6-16b du foyer F6 (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C). 174

Figure 91 : Signal naturel simulé des références thermiques sur fraction fine polyminérale (3 - 12 µm). Sur l'agrandissement seuls les signaux concernés ont été laissés pour une meilleure de lisibilité des courbes. (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/5°C). 176

Figure 92 : Signal naturel simulé + dose (20 Gy) des références thermiques sur fraction fine polyminérale (3 - 12 µm) (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/5°C). 177

Figure 93 : Variations d'intensité du pic à 110°C avec la température de chauffe Tmax des courbes du signal naturel simulé + dose des références thermiques sur fraction fine polyminérale (3 - 12 µm). 177

Figure 94 : Variation du rapport d'intensité maximale entre les composantes TL pour T > 250°C et le pic à 110°C du signal naturel simulé + dose des références thermiques sur fraction fine polyminérale (3 - 12 µm). 177

Figure 95 : Mise en parallèle des signaux TL naturels simulés avec et sans ajout de dose pour chaque référence thermique argileuse (BDX 12693). 178

Figure 96 : Signaux TL naturel et naturel + dose des prélèvements de la sole foyère (F4) sur la fraction 3 - 12 µm polyminérale et comparaison avec les références thermiques les plus proches (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C pour les échantillons archéologiques et en coups/5°C pour les références thermiques). 180

Figure 97 : Exemples de signaux TL de prélèvements de foyer F6 mesurés sur la fraction fine 3 - 12 µm polyminérale et comparaison avec les références thermiques les plus proches

(vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C pour les échantillons archéologiques et en coups/5°C pour les références thermiques). 181

Figure 98 : Evolution de la variance relative des prélèvements de la sole foyère F4-18, F4-19 et F4-21 (fraction 3 - 12 µm polyminérale). 183

Figure 99 : Exemple d'évolution de la variance relative de trois prélèvements du foyer F6, F6-26, F6-11 et F6-16b (fraction 3 - 12 µm polyminérale).....183

Figure 100 : Classification hiérarchique de F4-18, F4-19 et F4-21 et des références chauffées à plus de 400°C. 184

Figure 101 : Classification hiérarchique de l'ensemble des prélèvements des foyers F6 et F8 ainsi que des références thermiques chauffées en deçà de 550°C. Codes échantillons : n° + a ou b (nat 1 ou nat 2). 185

Figure 102 : Localisation des prélèvements dans le réseau de la grotte des Fraux. © relevé et DAO : Y. et C. Billaud ; cliché : A. Burens. 189

Figure 103 : Prélèvements de sédiments argileux provenant de la grotte des Fraux et des formations superficielles (les deux en bas à droite).....190

Figure 104 : Signal TL naturel simulé (noir) et naturel simulé + dose (gris) pour les sédiments argileux de la grotte des Fraux prélevés pour l'étude de leur variabilité (vitesse de chauffe de 4°C/s). 191

Figure 105 : Variation de l'intensité du pic à 110°C du signal TL naturel simulé (à gauche) et naturel simulé + dose (à droite) en fonction de l'intensité du pic du quartz (DRX sur poudre). 192

Figure 106 : Localisation des prélèvements sur la sole expérimentale : 193

Figure 107 : Courbes de températures des thermocouples insérés dans la sole expérimentale (jaune à rouge) et sous la sole (vert) au cours des quatre feux.....193

Figure 108 : Signaux résiduel, résiduel + dose, naturel simulé et naturel simulé + dose des prélèvements de la sole expérimentale étudiés sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm). (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/°C).....195

Figure 109 : Références thermiques de la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm) correspondantes aux échantillons de la sole expérimentale (vitesse de chauffe de 4°C/s ; intensité TL en coups/5°C).....195

Figure 110 : Variance relative des prélèvements de la sole expérimentale étudiés sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm).....196

Figure 111 : Classification hiérarchique des prélèvements de la sole expérimentale étudiés sur la fraction fine polyminérale (3-12 µm).....197

Figure 112 : Localisation des températures associées aux prélèvements provenant du foyer F4. © cliché : A. Burens. 200

Figure 113 : Localisation des températures associées aux prélèvements provenant des foyers F6 et F8. © cliché : A. Burens. 200

Figure 114 : Capteur du magnétomètre G858, Geometrics. 203

Figure 115 : Tachéomètre Trimble VX. 203

Figure 116 : Fusion des données de susceptibilité magnétique (SI, petits carrés), de champ magnétique (nanoTesla = nT, courbes) et de relevé archéologique (© relevé : L. Carozza). 204

Figure 117 : Foyer F4, cartographie du champ magnétique (courbes isochamp, nT) superposée à la cartographie de susceptibilité magnétique (petit carré, SI). 205

Figure 118 : Foyers F4, F6 et F8, susceptibilité magnétique de terrain, divisée par une masse volumique moyenne ρ=1800 kg/m^3, en fonction de la susceptibilité magnétique de laboratoire mesurée sur les prélèvements. 209

Figure 119 : Foyers F4, F6 et F8, susceptibilité magnétique de terrain, divisée soit par une masse volumique de ρ=1800 kg/m^3 pour les prélèvements sans charbons et de ρ=650 kg/m^3 pour les zones principalement constituées de charbon, en fonction de la susceptibilité magnétique de laboratoire mesurée sur les prélèvements. 210

Figure 120 : Ecart relatif entre la susceptibilité magnétique de laboratoire et celle de terrain en fonction de l'épaisseur de rubéfaction observée sur les carottes prélevées. 211

Figure 121 : Foyer F4 (haut) et F6-F8 (bas), carte de susceptibilité magnétique de terrain (petit carré, SI) et paléotempérature TL (gros carré, °C). 212

Figure 122 : Susceptibilité magnétique de terrain (κ) en fonction des paléotempératures TL pour le foyer F4 (A, B et C), le foyer F6 (D) et le foyer F8 (E). 213

Figure 123 : Corrélations de la susceptibilité magnétique de terrain et de la paléotempérature TL approchée par une fonction empirique de la forme $\kappa = aT+b$ pour 25°C < T < 300°C et $\kappa = A \exp(a'T^2 + b'T + c')$ pour T > 300°C. Corrélation en gris pour le foyer F6 (et F8) et en noir pour le foyer F4. Au-delà des températures maximales atteintes pour chaque foyer, les pointillés sont une extrapolation supposée des corrélations. 215

Figure 124 : Foyers F6 et F8, cartographie en température. © cliché : A. Burens. 217

Figure 125 : Carte en température du foyer F4 avec la totalité des points représentés (haut) ou une fois écarté les points provenant de zones fortement charbonneuses (bas). © relevé : L. Carozza. 218

Figure 126 : Aimantation rémanente naturelle en fonction de la susceptibilité magnétique volumique et droite de valeur Qn = 1 et Qn = 10 du coefficient de Kœnigsberger. 223

Figure 127 : Coefficient de Kœnigsberger classé par valeur croissante pour les prélèvements du foyer F6. 224

Figure 128 : Coefficient de Kœnigsberger en fonction de l'épaisseur de rubéfaction visible sur les carottes prélevées. 224

Figure 129 : Coefficient de Kœnigsberger en fonction de la paléotempérature TL déterminée pour chaque échantillon jumeaux dans le chapitre 7. 225

Figure 130 : Coefficients de Kœnigsberger (étoile) superposés aux paléotempératures TL (disque) à l'emplacement de chaque prélèvement du foyer F6 (coordonnées en Lambert 2 étendu). 225

Figure 131 : Susceptibilité magnétique des prélèvements du foyer F6 à chaque étape de désaimantation thermique. Les couleurs ont été choisies pour différencier les comportements de la susceptibilité magnétique : en rouge les échantillons avec des valeurs plutôt stables et fortes de la susceptibilité magnétique, en gris-noir ceux avec des valeurs stables plus faibles ; en vert les échantillons pour lesquels la susceptibilité magnétique augmente graduellement de 250°C à 500°C environ et en bleu ceux qui présentent une augmentation importante de la susceptibilité magnétique entre 250°C et 300°C. 227

Figure 132 : Mise en évidence de la relation entre l'épaisseur de rubéfaction et les groupes constitués à partir de l'évolution de la susceptibilité magnétique mesurée à chaque étape de la désaimantation thermique de l'ARN. 228

Figure 133 : Représentation des différences vectorielles de l'aimantation entre deux étapes de désaimantation thermique pour l'ensemble des paliers de température et pour chaque échantillon. La longueur de la flèche correspond à l'intensité, l'angle à la déclinaison et la couleur à l'inclinaison. 229

Figure 134 : Représentation des différences vectorielles de l'aimantation entre deux étapes de désaimantation thermique pour l'ensemble des paliers de température et pour chaque échantillon après avoir retiré les composantes entre la température ambiante et 200°C. La longueur de la flèche correspond à l'intensité, l'angle à la déclinaison et la couleur à l'inclinaison. 231

Figure 135 : Représentation des différences vectorielles de l'aimantation entre deux étapes de désaimantation thermique pour les paliers de température > 200°C et sans les mesures aberrantes de la série 2. La longueur de la flèche correspond à l'intensité, l'angle à la déclinaison et la couleur à l'inclinaison. 232

Figure 136 : Représentation des différences vectorielles de l'aimantation entre deux étapes de désaimantation thermique pour les domaines de températures où l'aimantation est stable. 233

Figure 137 : Intensité de l'aimantation rémanente naturelle résiduelle après chaque palier de désaimantation thermique à température croissante. 235

Figure 138 : Intensité de l'aimantation rémanente naturelle, normée à l'ARN maximale, après chaque palier de désaimantation à température croissante pour les prélèvements n°1, 3, 5, 8, 9 et 13. 235

Figure 139 : Intensité de l'aimantation rémanente naturelle, normée à l'ARN maximale, après chaque palier de désaimantation à température croissante pour les prélèvements n°11, 16 et 17 du groupe 3. 236

Figure 140 : Intensité de l'aimantation rémanente naturelle, normée à l'ARN maximale, après chaque palier de désaimantation à température croissante pour les prélèvements du groupe 2. 237

Figure 141 : Comparaison des températures de déblocage de l'aimantation rémanente (T deb) en fonction des paléotempératures TL. 239

Figure 142 : Courbe thermomagnétique réalisée sur le bloc 1 en rouge pendant la chauffe unique à 700°C et en bleu pendant le refroidissement. La figure du bas est un agrandissement sur la courbe κ(T) pendant la chauffe sur laquelle on a fait figurer le signal du four vide avec une origine arbitraire pour ne pas gêner la lecture.....242

Figure 143 : Dérivée première des courbes thermomagnétiques (dχ/dT) en fonction de la température pour le bloc 1 pendant la chauffe (haut, rouge) et le refroidissement (bas, bleu)..... 243

Figure 144 : Courbe thermomagnétique réalisée sur le bloc 2, en rouge pendant la chauffe unique à 700°C et en bleu pendant le refroidissement. La figure du bas est un agrandissement sur la courbe κ(T) pendant la chauffe sur laquelle on a fait figurer le signal du four vide avec une origine arbitraire. 244

Figure 145 : Dérivée première des courbes thermomagnétiques (dχ/dT) en fonction de la température pour le bloc 2 pendant la chauffe (haut, rouge) et le refroidissement (bas, bleu)..... 245

Figure 146 : Courbes thermomagnétiques réalisées sur le bloc 1 avec une température maximale croissante de 100°C pour la première chauffe à 700°C pour la dernière. Les chauffes sont en traits plein et les refroidissements en pointillés. La courbe thermomagnétique de la chauffe unique à 700°C est juxtaposée en fond..... 248

Figure 147 : Courbes thermomagnétiques réalisées sur le bloc 2 avec une température maximale croissante de 100°C pour la première chauffe à 700°C pour la dernière. Les chauffes sont en traits plein et les refroidissements en pointillés. La courbe thermomagnétique de la chauffe unique à 700°C est juxtaposée en fond..... 248

Figure 148 : Comparaison des valeurs de la susceptibilité magnétique des cubes avant séchage et après séchage. 250

Figure 149 : Comparaison des valeurs de la susceptibilité magnétique des cubes avant séchage et après séchage mais corrigée de la variation de susceptibilité magnétique induite par l'eau perdue. 250

Figure 150 : Evolution de la couleur des sédiments de la grotte des Fraux avec la température de chauffe. La rubéfaction apparaît dès 250°C..... 251

Figure 151 : Comparaison deux à deux des paramètres L*, a* et b* en fonction de la température atteinte par le cube. 252

Figure 152 : Représentation en 3D des coordonnées L*, a*, b* en fonction de la température de chauffe des cubes. 253

Figure 153 : Spectre de réflectance dans le visible des cubes chauffés (intensité lumineuse en fonction de la longueur d'onde). Chaque spectre est associé à une température de chauffe (°C) du cube. 254

Figure 154 : Susceptibilité magnétique des cubes avant la chauffe (carré vide) et après la chauffe (carré noir). 256

Figure 155 : Valeurs de la susceptibilité magnétique des prélèvements du foyer F6 mesurées à un an d'intervalle : le 23/06/2010, quelques jours après les prélèvements et le 31/05/2011 près d'un an plus tard. 257

Figure 156 : Comparaison des valeurs de la susceptibilité magnétique des prélèvements du foyer F6 mesurées le 23/06/2010 quelques jours après le prélèvement et le 31/05/2011 après un an pour laquelle on a ajouté la contribution de susceptibilité magnétique de l'eau perdue par séchage. 257

Figure 157 : Susceptibilité magnétique mesurées sur les cubes dont les températures de chauffe s'étalent de 25°C à 700°C, sur les prélèvements du foyer F6 (n° 1 à 18) et sur les prélèvements du dessus (n° 486, 489 et 491) et du dessous (n°485, 488 et 490) de la sole expérimentale. Ont été ajoutées les valeurs de susceptibilité magnétique des prélèvements TL des foyers F4 et F6. 258

Figure 158 : Comparaison de la susceptibilité magnétique des prélèvements pour la TL en fonction de celle des prélèvements le magnétisme. 259

Figure 159 : Aimantation rémanente isotherme à saturation (ARIs) en fonction de l'aimantation rémanente anhystérétique à saturation (ARAs) pour les cubes, le foyer F6 et la sole expérimentale. 260

Figure 160 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) et courbes de désaimantation *Alternative-Field* de l'aimantation rémanente anhystérétique (AF-ARA) pour les cubes et en valeurs brutes. 262

Figure 161 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) et courbes de désaimantation *Alternative-Field* de l'aimantation rémanente anhystérétique (AF-ARA) pour les cubes et en valeurs normées respectivement à l'ARIs et à l'ARAs. 263

Figure 162 : Courbes d'aimantation *Back-Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI) recentrée à zéro pour 200 mT : M'(z) = [M(z) - M(200 mT)] 264

Figure 163 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) pour les prélèvements du foyer F6 et en valeurs brutes. 266

Figure 164 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) pour les prélèvements du foyer F6 et en valeurs normées à l'ARI à saturation (ARIs). 267

Figure 165 : Comparaison entre les courbes d'aimantation Back-Field de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI) du prélèvement n°13 du foyer F6 et des cubes chauffés à 250°C et 300°C. 267

Figure 166 : Aimantation rémanente à saturation (ARIs) en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT. 268

Figure 167 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) et courbes de désaimantation *Alternative-Field* de l'aimantation rémanente anhystérétique (AF-ARA) pour les prélèvements de la sole expérimentale et en valeurs brutes. 270

Figure 168 : Courbes d'aimantation *Back-Field* et de désaimantation *Alternative Field* de l'aimantation rémanente isotherme (BF-ARI et AF-ARI) et courbes de désaimantation *Alternative-Field* de l'aimantation rémanente anhystérétique (AF-ARA) pour les prélèvements de la sole expérimentale et en valeurs normées respectivement à l'ARI à saturation (ARIs) et à l'ARA à saturation (ARAs). 271

Figure 169 : Reste de l'aimantation rémanente isotherme après une désaimantation à 25 mT en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes, les prélèvements du foyer F6 et ceux de la sole expérimentale. 272

Figure 170 : Reste de l'aimantation rémanente isotherme après une désaimantation à 15 mT en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes, les prélèvements du foyer F6 et ceux de la sole expérimentale. 273

Figure 171 : Reste de l'aimantation rémanente anhystérétique après une désaimantation à 25 mT en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes et les prélèvements de la sole expérimentale..... 274

Figure 172 : Reste de l'aimantation rémanente anhystérétique après une désaimantation à 15 mT en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes et les prélèvements de la sole expérimentale..... 274

Figure 173 : Rapport de l'aimantation rémanente anhystérétique sur l'aimantation rémanente isotherme à saturation en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes et les prélèvements de la sole expérimentale. 275

Figure 174 : Variation du champ coercitif rémanent (Hcr) en fonction de l'aimantation rémanente isotherme partielle à 200 mT, pour les cubes et les prélèvements de la sole expérimentale. 275

Figure 175 : Champ coercitif rémanent en fonction du rapport de l'aimantation rémanente anhystérétique et de l'aimantation rémanente isotherme à saturation. 276

Figure 176 : Différence de susceptibilité magnétique entre 500 Hz et 8000 Hz (dfχ) en fonction de la susceptibilité magnétique à 500 Hz. 278

Figure 177 : Représentation log-log de la différence de susceptibilité magnétique entre 500 Hz et 8000 Hz (dfχ) en fonction de la susceptibilité magnétique à 500 Hz..... 279

Figure 178 : Dépendance de fréquence χdf% en fonction de la susceptibilité magnétique. Le cube non chauffé n'a pas été placé sur ce graphique, les mesures de la susceptibilité magnétique ayant été faites plus de deux ans après les autres cubes et dans des conditions différentes, elles ne sont pas comparables (χfd% ≈ 15%). 280

Figure 179 : Aimantation rémanente visqueuse (ARV) en fonction de la différence de susceptibilité magnétique (dfχ). 282

Figure 180 : Aimantation rémanente visqueuse (ARV) en fonction de la susceptibilité magnétique. 282

Figure 181 : Comparaison entre la part d'aimantation rémanente instable (rapport de l'aimantation rémanente visqueuse sur l'aimantation rémanente isotherme à saturation) et la part de susceptibilité magnétique instable liée aux grains superparamagnétiques (χfd%). 283

Figure 182 : Susceptibilité magnétique, représentant la teneur en phases ferrimagnétiques, en fonction de l'aimantation rémanente partielle à 200 mT, représentant la minéralogie présente. 285

Figure 183 : Proposition d'évolution de la minéralogie et de la taille de grains magnétiques des sédiments des Fraux chauffés par un feu en fonction de la température (SP : superparamagnétique ; SD : monodomaine ; MD : polydomaine ; - - / - / + / ++ : proportion relative d'une population de taille de grain définie). 287

Figure 184 : Montage expérimental pour tester l'influence d'une atmosphère saturée en vapeur d'eau sur les transformations de la minéralogie magnétique..... 288

Figure 185 : Susceptibilité magnétique mesurée sur les sédiments de Fraux avant et après chauffe, en atmosphère d'air (21 % d'O_2), en atmosphère de vapeur d'eau (≈ 3 % d'O2 estimé) et sous CO_2 (3 % d'O_2). Losange : sédiment séché en étuve et chauffé sous forme de poudre ; Rond : sédiment humide de la sole expérimentale. La couleur du symbole représente la température maximale atteinte : bleu=325°C, vert=500°C et orange=550°C. 289

Figure 186 : Courbes κ(T), un cycle de chauffe-refroidissement unique à 600°C sur le sédiment des Fraux utilisé pour la sole expérimentale encore humide ou après un séchage à l'air et sur un sédiment très récemment sorti de la grotte (« frais »). 291

Figure 187 : Paléothermomètre établi en mettant en relation le champ coercitif rémanent (Hcr) et le rapport de l'aimantation rémanente anhystérétique à saturation sur l'aimantation rémanente isotherme à saturation (ARAs/ARIs). Chaque cadre de couleur explique. 294

Figure 188 : Comparaison de la répartition des paléotempératures TL, des températures de déblocage de l'aimantation rémanente et des paléotempératures estimées par la signature magnétique. 298

Figure 189 : Dispositif d'enregistrement des températures : 60 thermocouples (type K), reliés à 3 multiplexeurs connectés à un système d'acquisition (34972A, Aquitek) piloté en externe par le logiciel « Benching Data Logger ». 305

Figure 190 : Positionnement des thermocouples n°201 à 220 au sein du substrat 1 homogène d'argile industrielle. 307

Figure 191 : Positionnement des thermocouples n°311 à 320 au sein de la sole aménagée sur le substrat industriel. 308

Figure 192 : Positionnement des thermocouples n°101 à 120 dans le substrat 3. 309

Figure 193 : gauche : variation du pouvoir calorifique en fonction de l'humidité du bois. © Francescato, 2008 311

Figure 194 : Courbes de température enregistrées pour chaque chauffe sur les trois substrats. En rouge, en surface puis en allant de plus en plus en profondeur le vert, bleu, violet et gris. Chaque gamme de couleur correspond à une profondeur du tableau précédent. 313

Figure 195 : Evolution de l'aspect (couleur, craquèlement) des trois substrats avec les chauffes. 315

Figure 196 : Démontage de la sole. Les grès sous-jacents très rubéfiés sont entourés de grès rubéfiés par le feu et/ou l'écartement des braises, de grès secs puis de grès humides. 318

Figure 197 : Modèle numérique construit en trois couches de conductivité thermique variable. A gauche, la structure du modèle ; A droite, la simulation de la propagation de la chaleur dans ce modèle. (© D. Lacanette) 323

Figure 198 : Courbes de température des trois thermocouples témoins choisis pour la modélisation. 325

Liste des Tableaux

Tableau 1 : Informations apportées par chaque discipline ayant trait aux structures de combustion. 48

Tableau 2 : Principaux oxydes, oxyhydroxydes et sulfures de fer associés à quelques unes de leurs propriétés magnétiques (Mrs : aimantation rémanente à saturation ; Hc : champ coercitif) ; RT = *room temperature*. (Cornell et Schwertmann, 2003 ; Dunlop et Özdemir, 1997 ; Hunt *et al*., 1995 ; Mathé et Lévêque, 2005 ; Özdemir et Banerjee, 1984). 72

Tableau 3 : Apport des propriétés magnétiques à la détermination de la taille de grain et/ou de la minéralogie magnétique en vue d'une estimation de température. 76

Tableau 4 : Récapitulatifs des dates ^{14}C obtenues après calibration (logiciel OxCal v4.1.7 Bronk Ramsey (2010) ; r5 Athmosphéric data from Reimer *et al*. 2009) 97

Tableau 5 : Numéros et descriptif des prélèvements du foyer F4. 119

Tableau 6 : Numéro et description des prélèvements du foyer F8. 122

Tableau 7 : Descriptif des carottes prélevées pour l'étude archéomagnétique, données recueillies par G. Hervé. 123

Tableau 8 : Numéros et descriptif des prélèvements du foyer F6. 125

Tableau 9 : Coordonnées des thermocouples n°101 à 120 dans le substrat 3. x et y sont pris à partir du coin intérieur en bas à gauche. z est une coordonnée relative par rapport à un point extérieur et ramené à zéro pour le point le plus haut (n°105). 128

Tableau 10 : Exemple du traitement numérique utilisé pour calculer la variance relative. 160

Tableau 11 : Matrice des intégrales de l'intensité TL pour le foyer F4 et les références thermiques, base de la classification hiérarchique. 162

Tableau 12 : Foyer F4, numéros des prélèvements et paléotempératures déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique sur la fraction 200-500 µm du quartz ainsi que la combinaison des trois (nc : non chauffé). 165

Tableau 13 : Foyer F6, numéros des prélèvements et paléotempératures déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique sur la fraction 200-500 µm du quartz (nc : non chauffé). 165

Tableau 14 : Foyer F8, numéros des prélèvements et paléotempératures déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique sur la fraction 200-500 µm du quartz (nc : non chauffé). 166

Tableau 15 : Histoire thermique réelle et intervalle min-max de chauffe. 171

Tableau 16 : Corrélation entre les températures visuelles, la variance relative, la classification hiérarchique et les intervalles min-max de chauffe pendant au moins 1h..... 172

Tableau 17 : Sole du foyer F4, numéros des prélèvements et paléotempératures déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm). 186

Tableau 18 : Foyers F6 et F8, numéros des prélèvements et paléotempératures déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm). 186

Tableau 19 : Sole expérimentale, température déterminées visuellement, par le calcul de la variance relative et par la classification hiérarchique (fraction fine polyminérale 3-12 µm). 197

Tableau 20 : Foyer F8, mise en correspondance des paléotempératures déterminées sur la fraction fine polyminérale 3 - 12 µm et la fraction grossière 200 - 500 µm du quartz. La dernière colonne présente une valeur déterminée au mieux au regard des 6 valeurs précédentes. 198

Tableau 21 : Foyer F6, mise en correspondance des paléotempératures déterminées sur la fraction fine polyminérale 3 - 12 µm et la fraction grossière 200 - 500 µm du quartz. La dernière colonne présente une valeur déterminée au mieux au regard des 6 valeurs précédentes. 199

Tableau 22 : Foyer F4, numéros de prélèvement et valeurs de la susceptibilité magnétique de terrain (κ) et de laboratoire (χ). La masse volumique moyenne choisie pour traduire κ en une grandeur à normalisation massique est de 1800 kg/m^3..... 207

Tableau 23 : Foyer F6, numéros et valeurs de susceptibilité magnétique de terrain (κ) et de laboratoire (χ). La masse volumique moyenne choisie pour traduire κ en une grandeur à normalisation massique est de 1800 kg/m^3. 208

Tableau 24 : Foyer F8, numéros et valeurs de susceptibilité magnétique de terrain (κ) et de laboratoire (χ). La masse volumique moyenne choisie pour traduire κ en une grandeur à normalisation massique est de 1800 kg/m^3. 208

Tableau 25 : Récapitulatif des données relatives aux prélèvements pour l'archéomagnétisme (carottes) et comparaison avec les paléotempératures TL déterminées sur les prélèvements jumeaux. Les données sont classées par épaisseur de rubéfaction croissante. 234

Tableau 26 : Récapitulatif des données relatives aux prélèvements « carottes » du foyer F6 : épaisseur de rubéfaction en mm ; coefficient de Kœnigsberger Qn ; description qualitative de l'évolution de la susceptibilité magnétique avec les chauffes des désaimantations thermiques ; comportements de l'ARN sur les domaines de températures de désaimantation thermique ; températures de déblocage déterminées si possible, nd = non déterminé ; paléotempératures TL. 238

Tableau 27 : Bilan de l'étude des propriétés magnétiques des cubes, du foyer F6 et de la sole expérimentale sur la teneur en phases ferrimagnétiques, la minéralogie magnétique présente ainsi que sur les variations de taille de grain magnétique. 284

Tableau 28 : Récapitulatif des températures obtenues par l'étude de la signature magnétique. 286

Tableau 29 : Susceptibilité magnétique mesurées sur les sédiments des Fraux avant et après la chauffe en fonction de l'état de séchage du sédiment, de la température maximale atteinte et de l'atmosphère de chauffe (air, vapeur ou CO_2). 289

Tableau 30 : Tableau de synthèse des paléotempératures TL, des températures de déblocage et des paléotempératures déterminées par la signature magnétique pour le foyer F6.. 299

Tableau 31 : Coordonnées des thermocouples n°201 à 220 dans le substrat 1. x et y sont pris à partir du coin intérieur en bas à gauche. z est une coordonnée relative par rapport à un point extérieur et ramené à zéro pour le point le plus haut (n°206). 307

Tableau 32 : Coordonnées des thermocouples n°201 à 206 et n°311 à 320 dans le substrat 2. x et y sont pris à partir du coin intérieur en bas à gauche. z est une coordonnée relative par rapport à un point extérieur et ramené à zéro pour le n°206 (substrat 1). 308

Tableau 33 : Coordonnées des thermocouples n°101 à 120 dans le substrat 3. x et y sont pris à partir du coin intérieur en bas à gauche. z est une coordonnée relative par rapport à un point extérieur et ramené à zéro pour le point le plus haut (n°105)..... 309

Tableau 34 : Principales caractéristiques des chauffes : heure de début et de fin ; les températures maximales atteintes à chaque profondeur mesurée ; précisions sur la conduite du feu ; descriptif de l'aspect des substrats. 312

Tableau 35 : Durée d'alimentation du feu, masse de bois brulé et énergie dégagée (pour 15 MJ/kg théorique) pour chaque chauffe et chaque substrat (1 : sédiment argileux ; 2 : sole sur sédiment argileux ; 3 : sole sur sédiment gréseux). On en déduit une vitesse et une puissance de combustion. 316

Tableau 36 : Temps de chauffe nécessaire pour que la température enregistrée par les thermocouples aux différentes profondeurs, dépasse les 100°C (substrat 1 : sédiment argileux ; substrat 2 : sole sur sédiment argileux ; substrat 3 : sole sur sédiment gréseux). 319

Tableau 37 : Calcul de la diffusivité thermique a à partir des températures de trois thermocouples (n°212, 216 et 219) disposés à trois profondeurs (respectivement 0.022 m, 0.04 m et 0.062 m) et prises à trois instant t donné (350 min, 380 min et 410 min). La connaissance de la température T (z, t) permet de calculer la valeur de erf(w), puis de w à partir de tables numériques puis de a..... 326

Tableau 38 : Caractéristiques des foyers étudiés. 337

Annexes

Annexe 1 :
Foyer F4 - signaux TL naturel et naturel + dose mesurés sur la fraction 200-500 µm du quartz ... 383

Annexe 2 :
Foyer F6 - signaux TL naturel et naturel + dose mesurés sur la fraction 200-500 µm du quartz ... 393

Annexe 3 :
Foyer F8 - signaux TL naturel et naturel + dose mesurés sur la fraction 200-500 µm du quartz 401

Annexe 4 :
Foyer F4 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz) 403

Annexe 5 :
Foyer F6 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz) 409

Annexe 6 :
Foyer F8 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz) 417

Annexe 7 :
Foyer F6 - Signaux TL naturel et naturel + dose mesurés sur la fraction fine polyminérale (3-12 µm) 421

Annexe 8 :
Foyer F8 - Signaux TL naturel et naturel + dose mesurés sur la fraction fine polyminérale (3-12 µm) 431

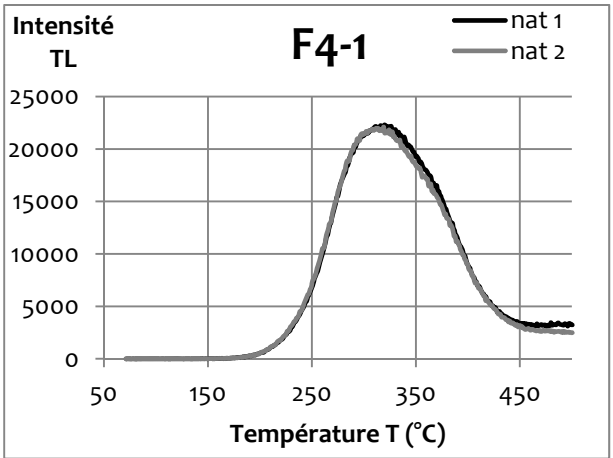
Annexe 9 :
Foyer F6 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale) 433

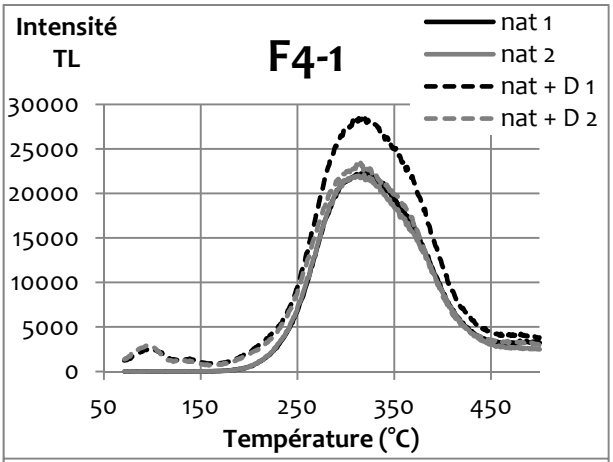
Annexe 10 :
Foyer F8 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale) 441

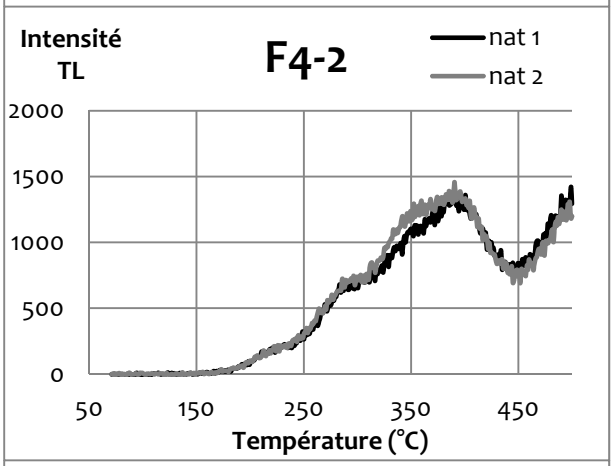
Annexe 11 :
Etude de la variabilité des sédiments argileux de la grotte des Fraux : rapport d'analyse 441

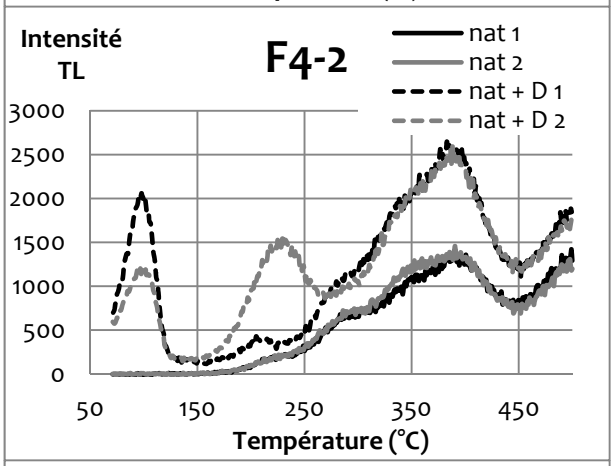
Annexe 12 :
Brodard *et al*., 2012 473

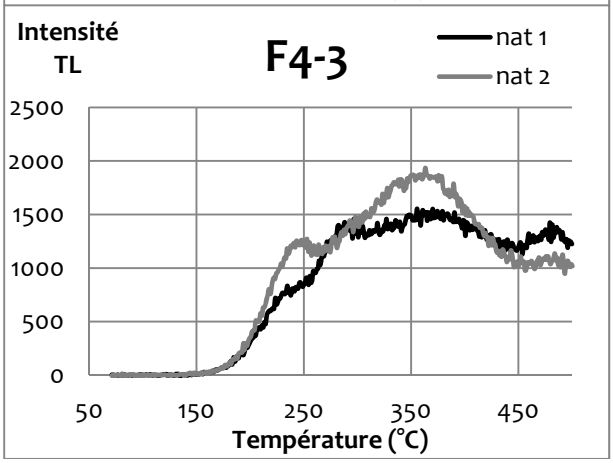
Annexe 1 : Foyer F4 - signaux TL naturel et naturel+dose mesurés sur la fraction 200-500 µm du quartz

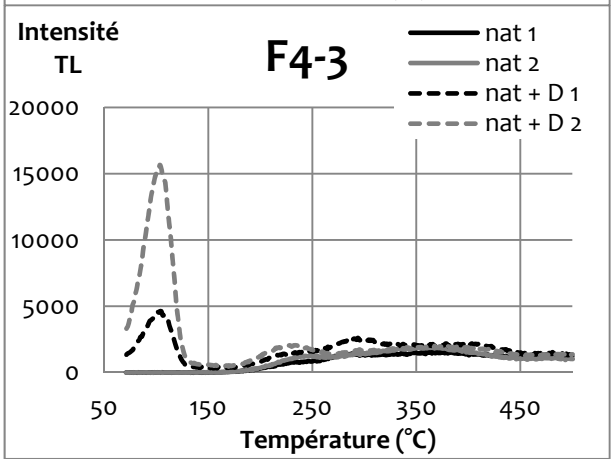




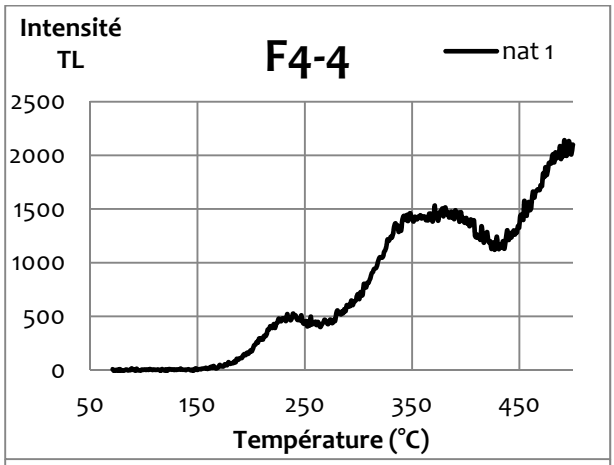


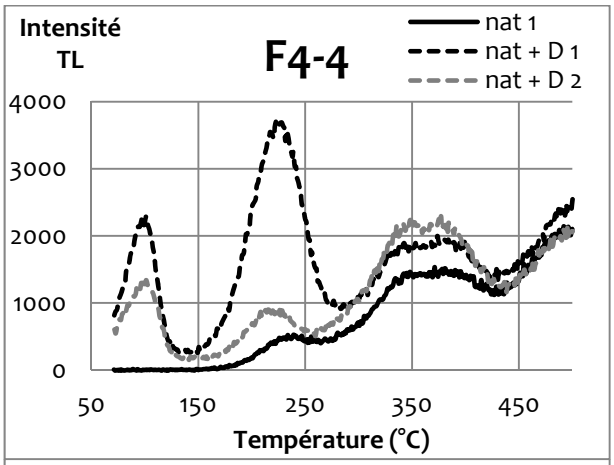


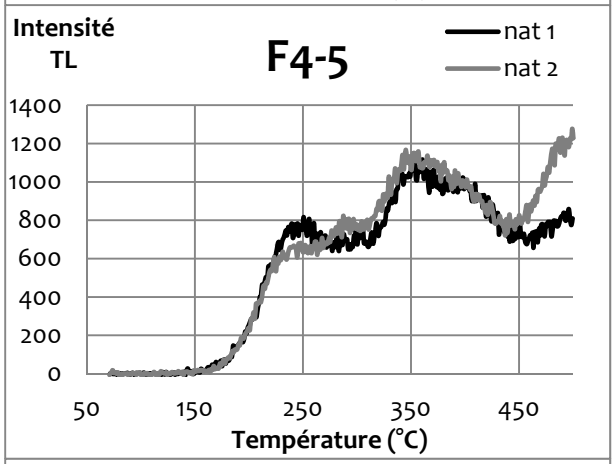


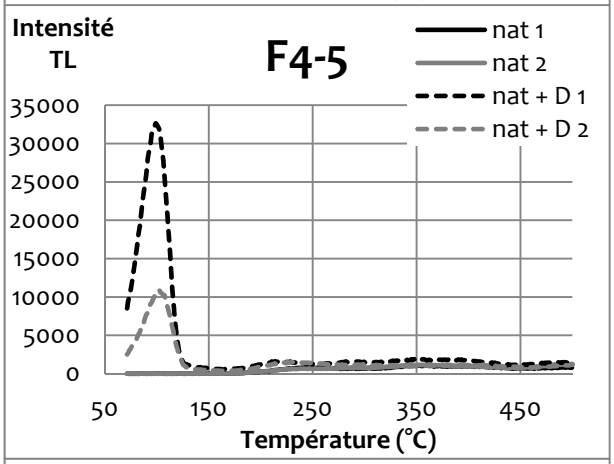


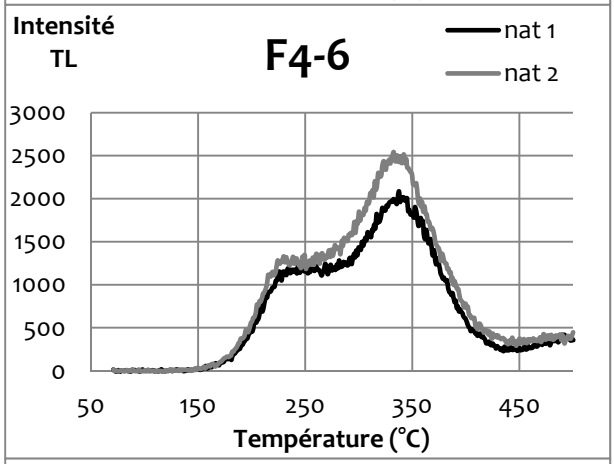
Annexe 1 : Foyer F4 - fraction 200-500 µm du quartz

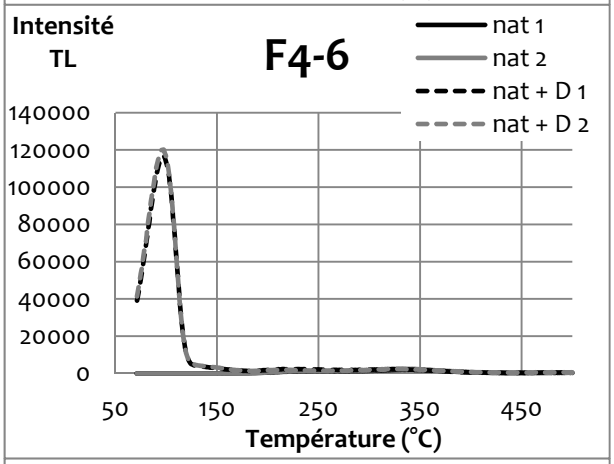


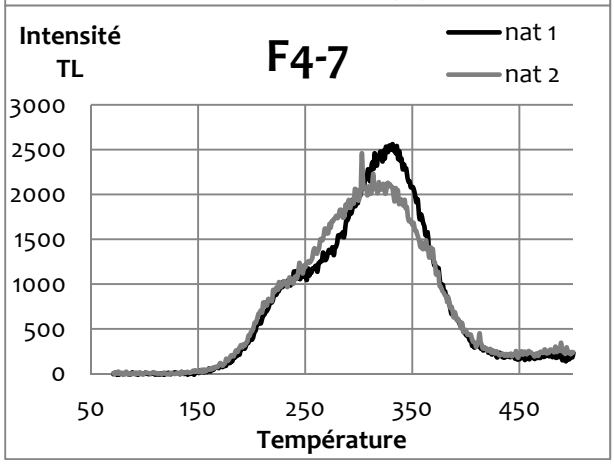


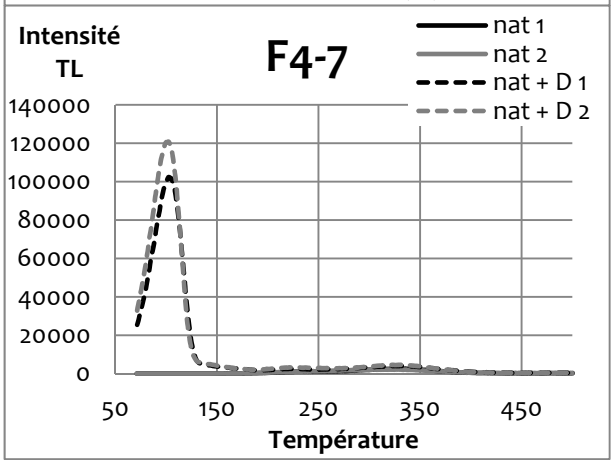




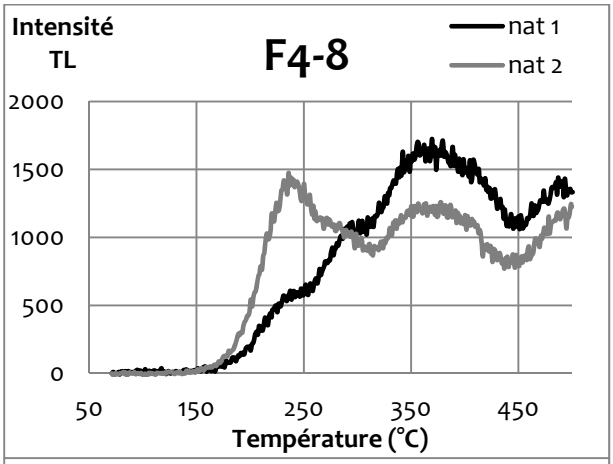


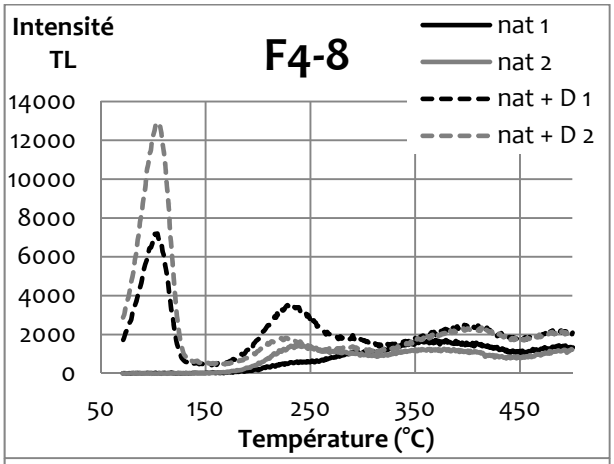


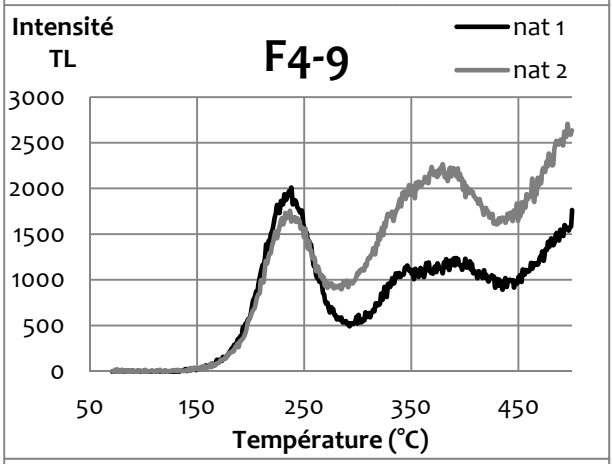


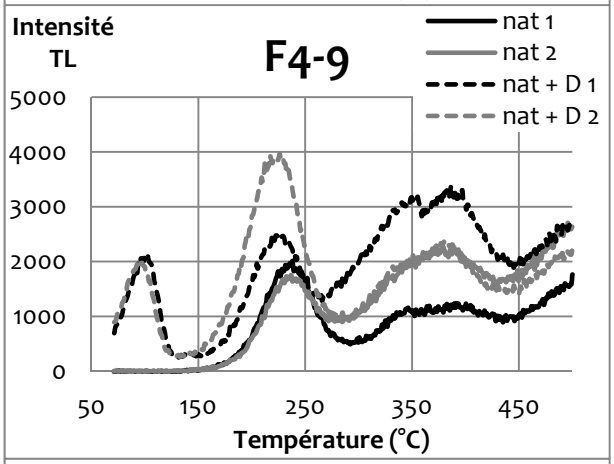


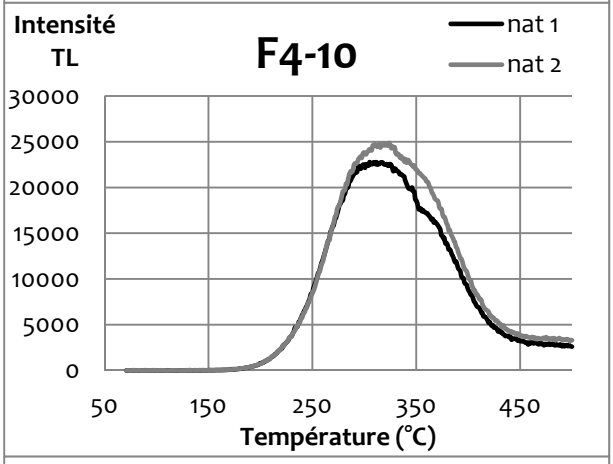
Annexe 1 : Foyer F4 - fraction 200-500 µm du quartz

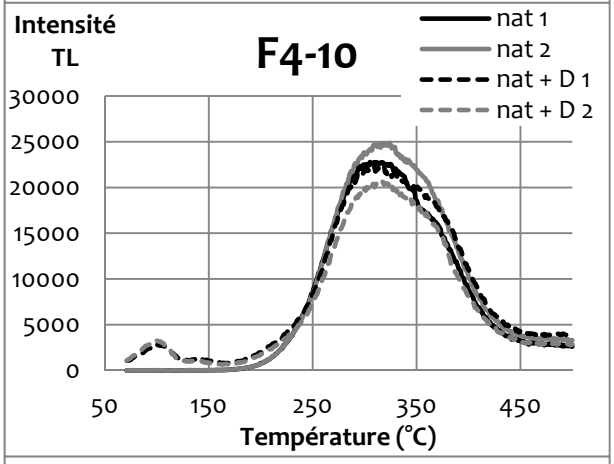


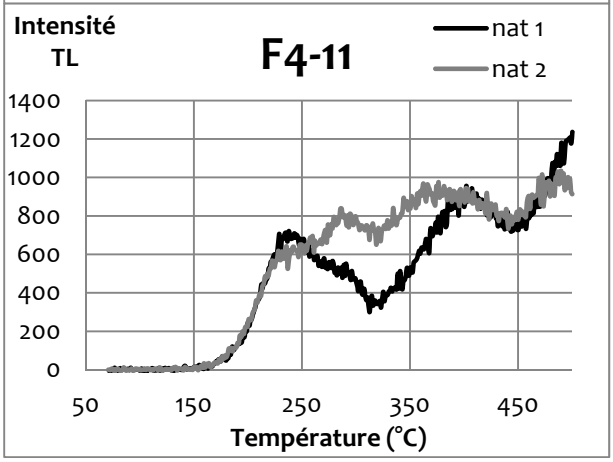


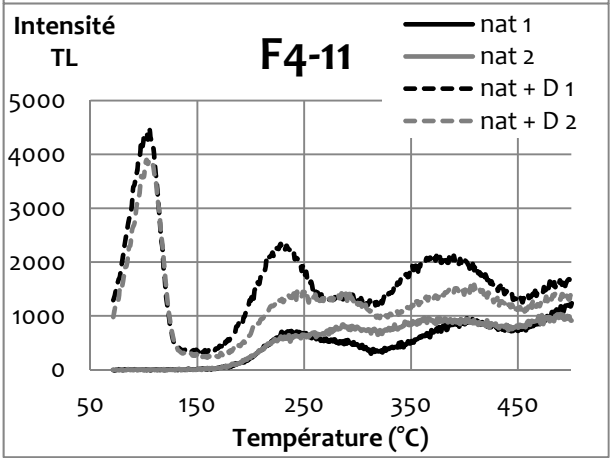




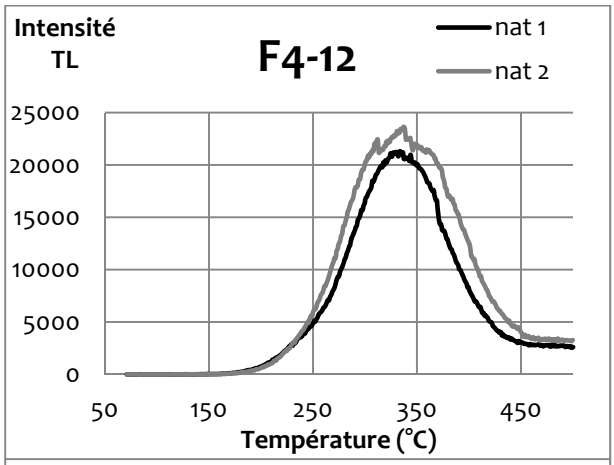


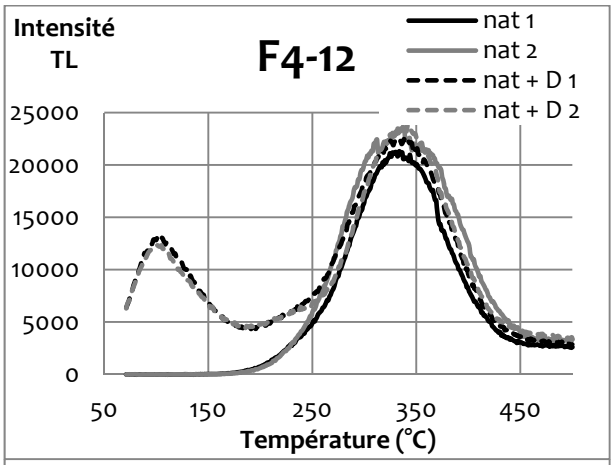


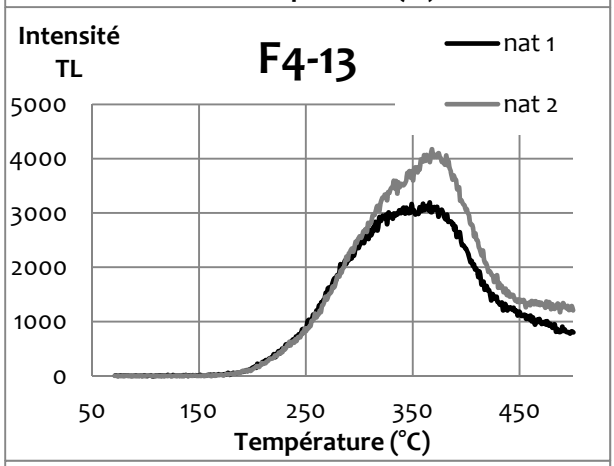


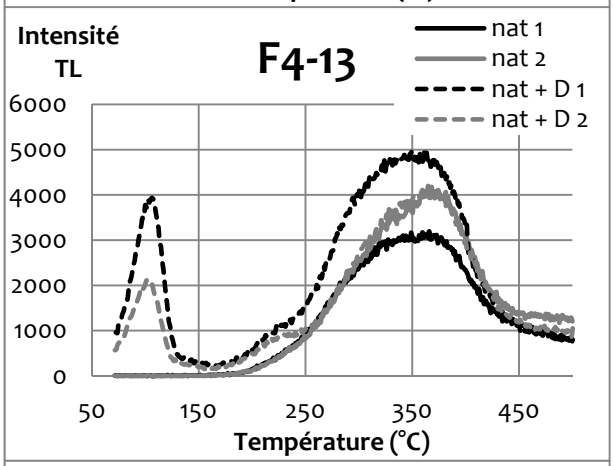


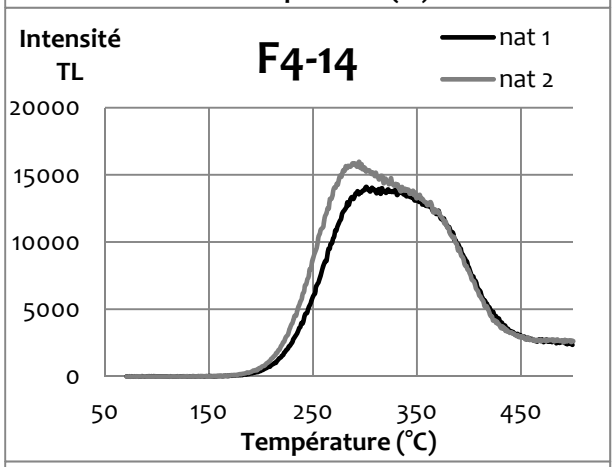
Annexe 1 : Foyer F4 - fraction 200-500 µm du quartz

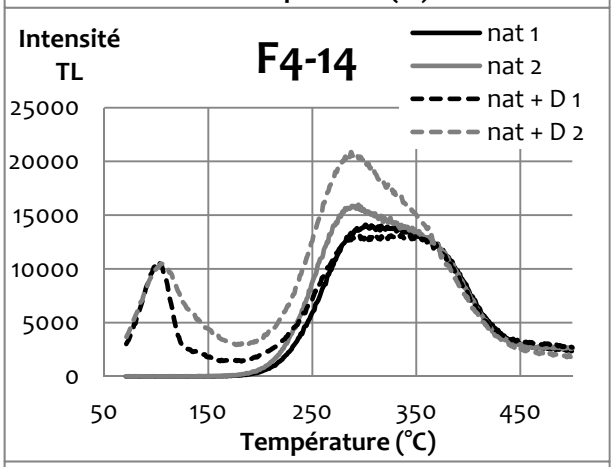


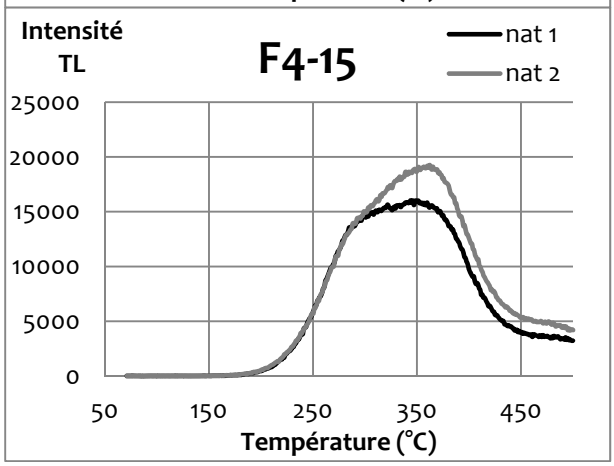


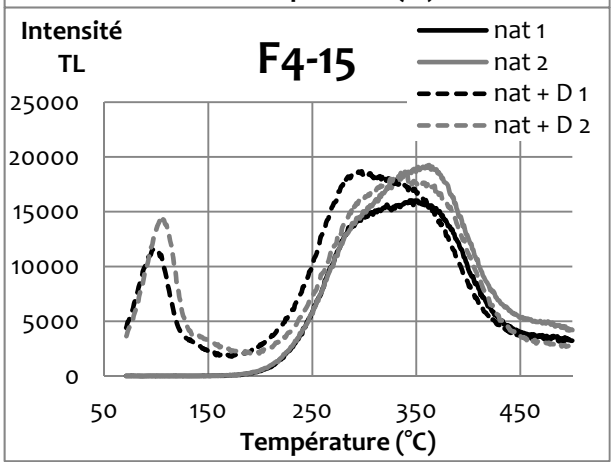




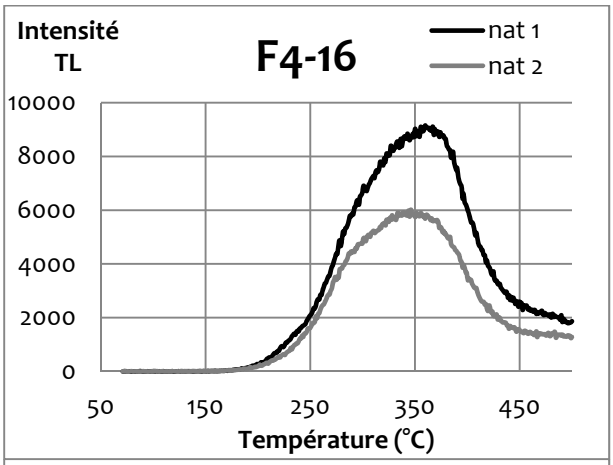


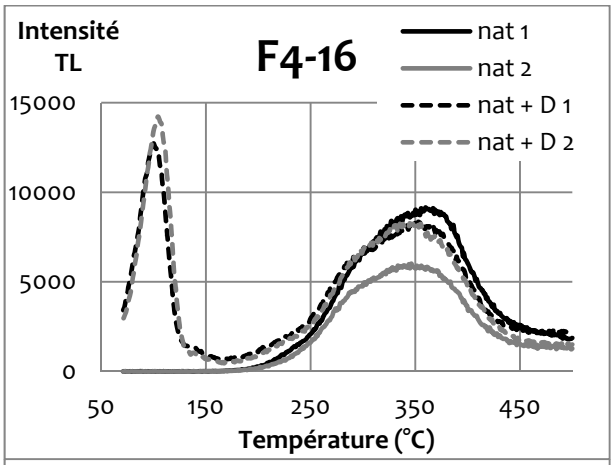


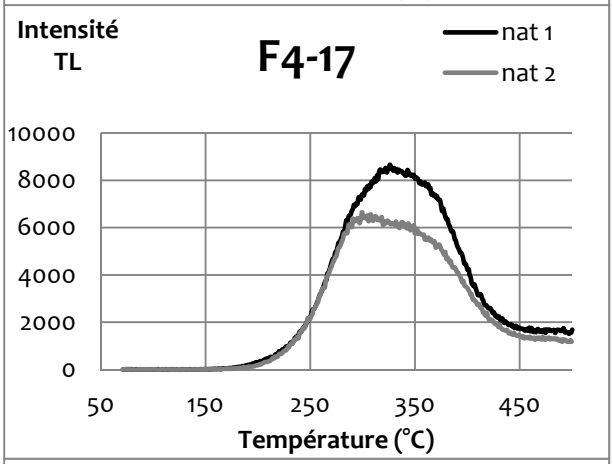


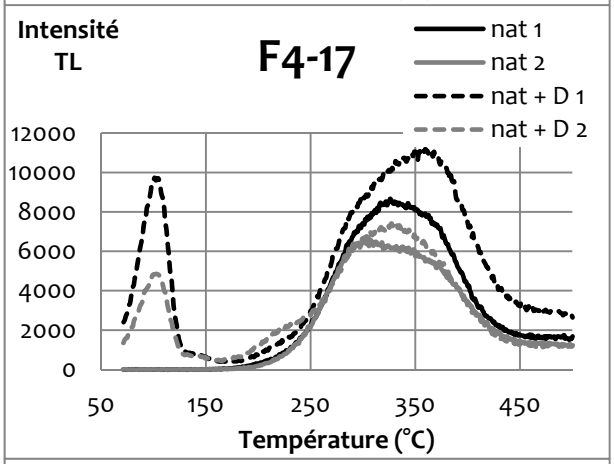


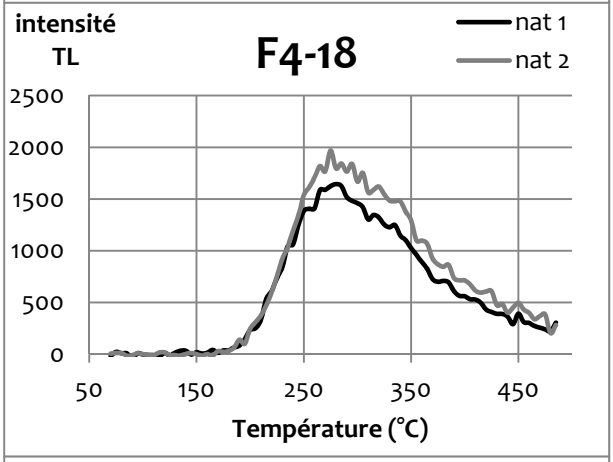
Annexe 1 : Foyer F4 - fraction 200-500 µm du quartz

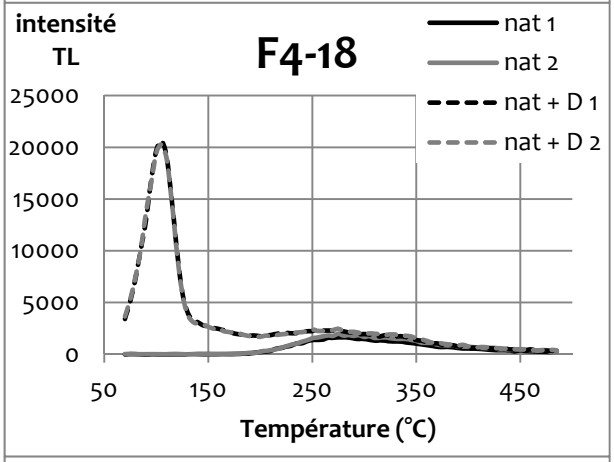


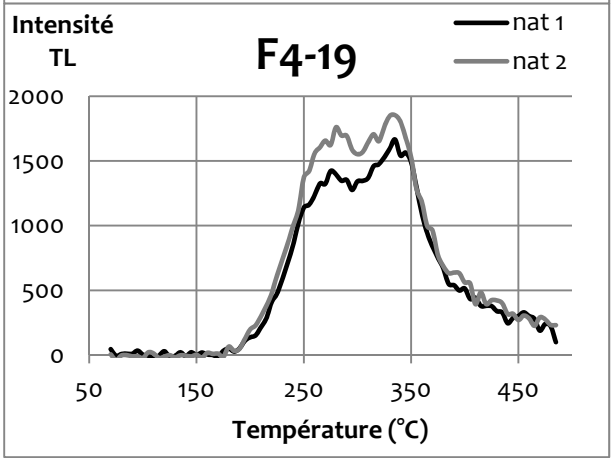


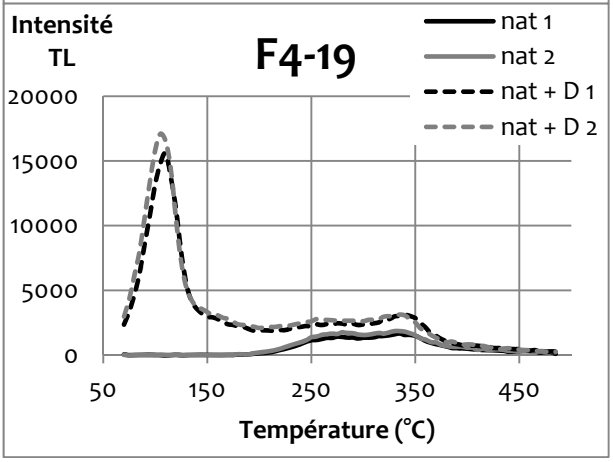




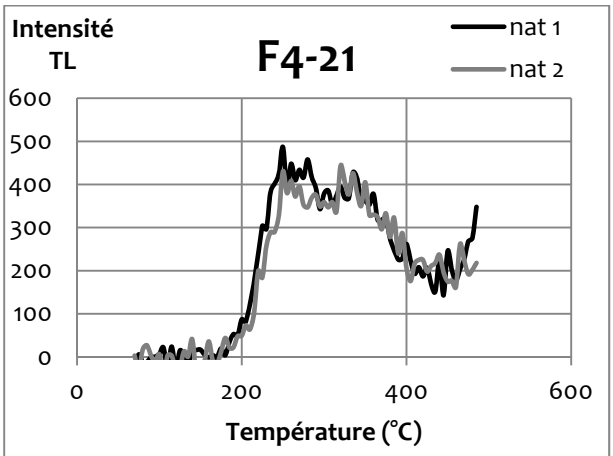


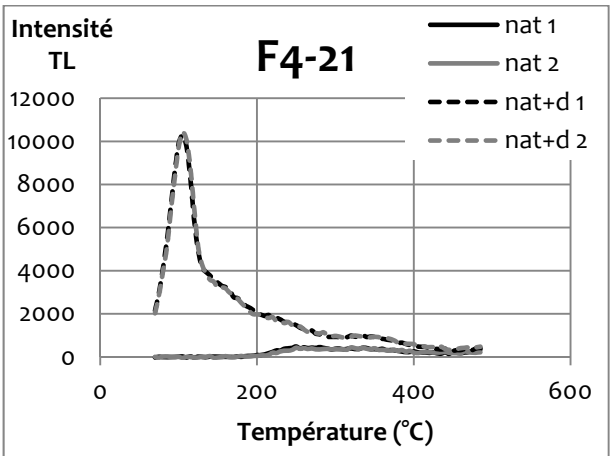


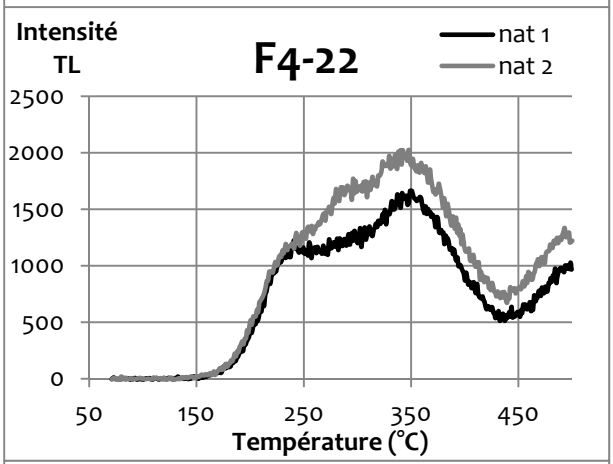


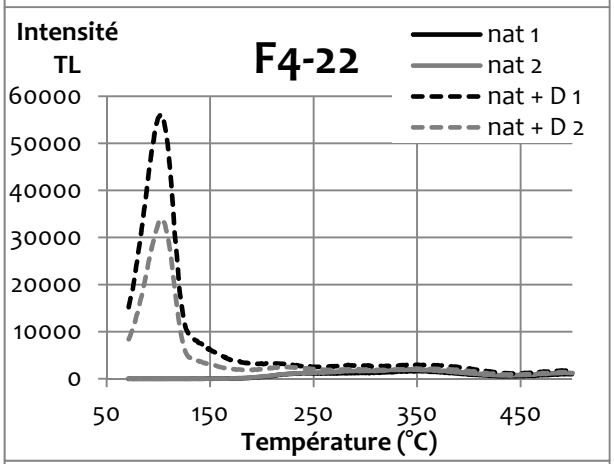


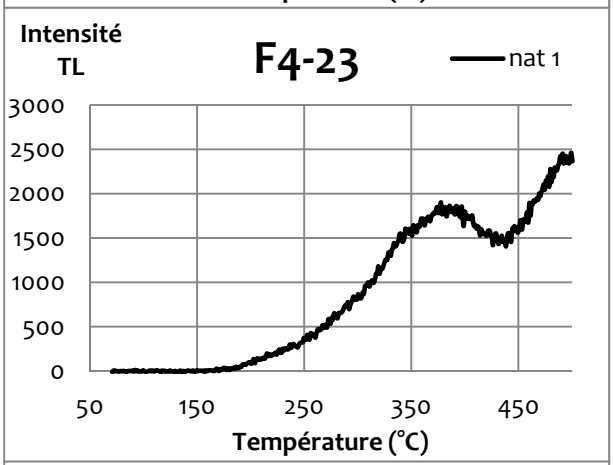
Annexe 1 : Foyer F4 - fraction 200-500 µm du quartz

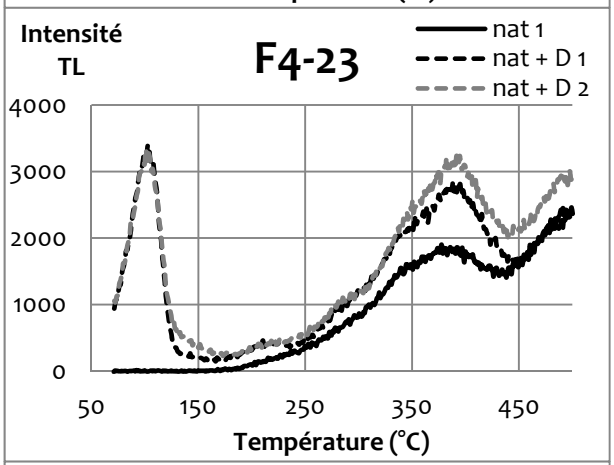


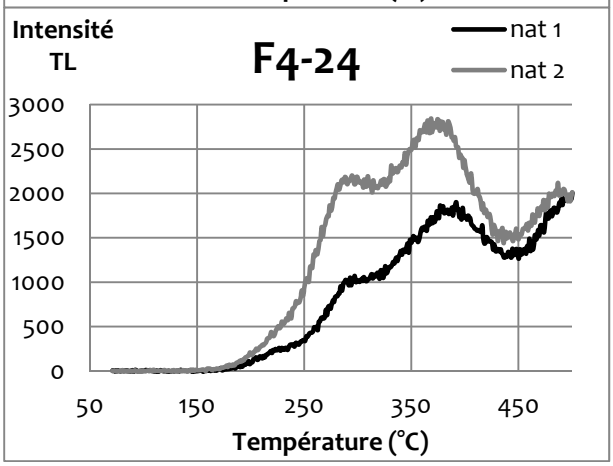


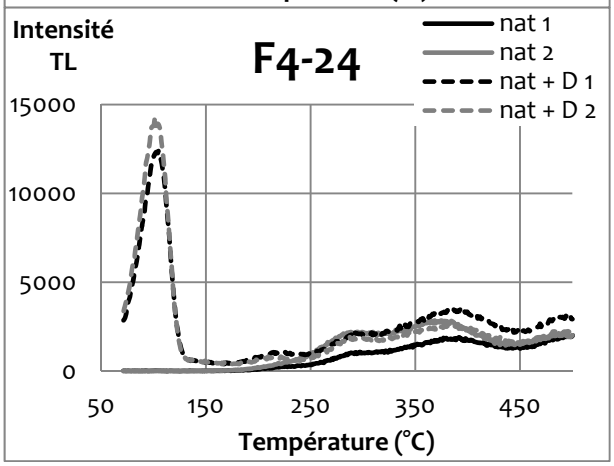




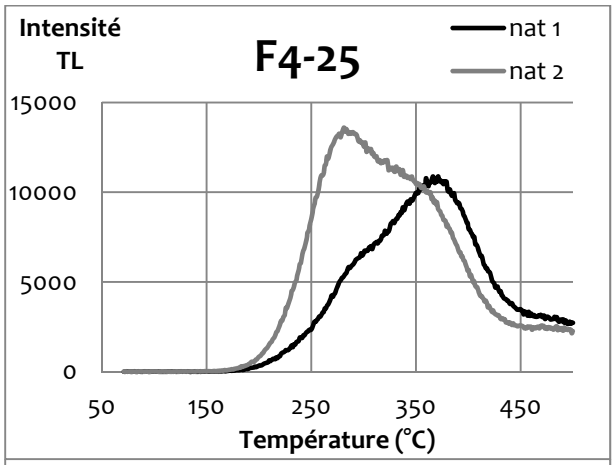


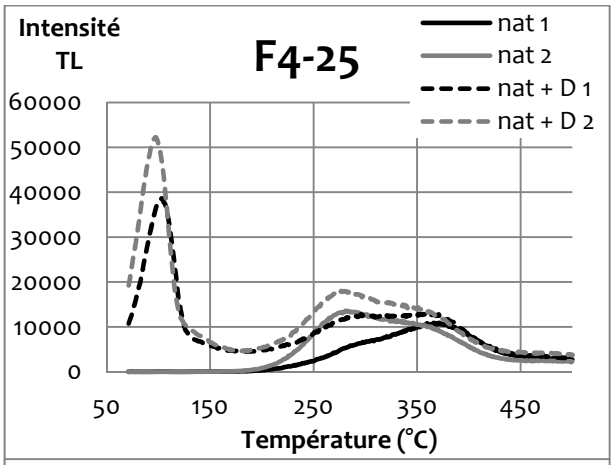


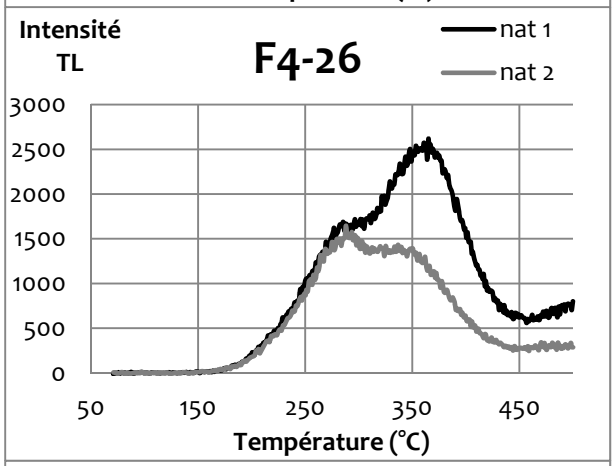


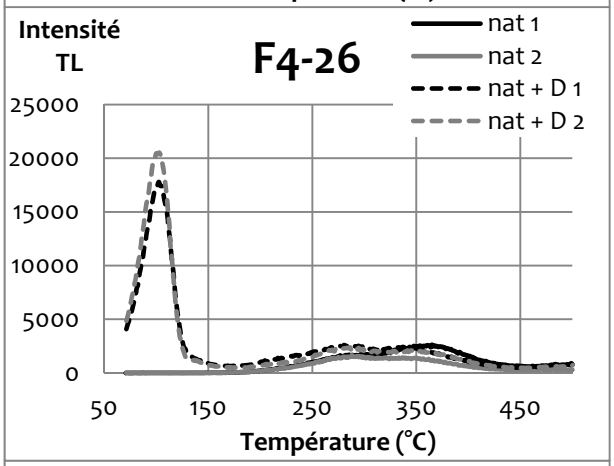


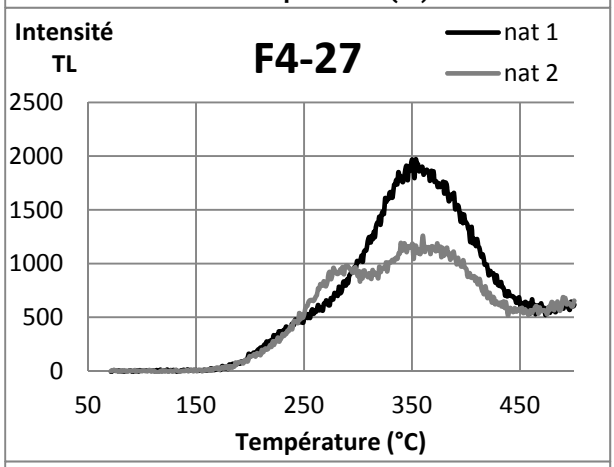
Annexe 1 : Foyer F4 - fraction 200-500 µm du quartz

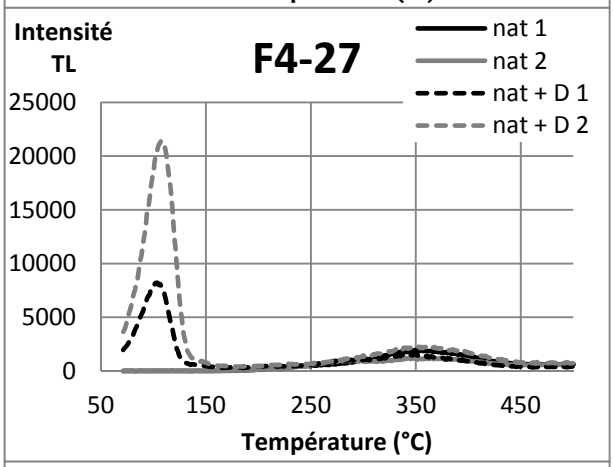


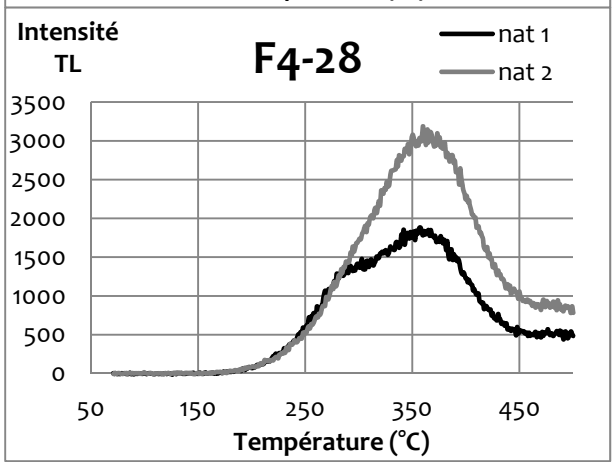


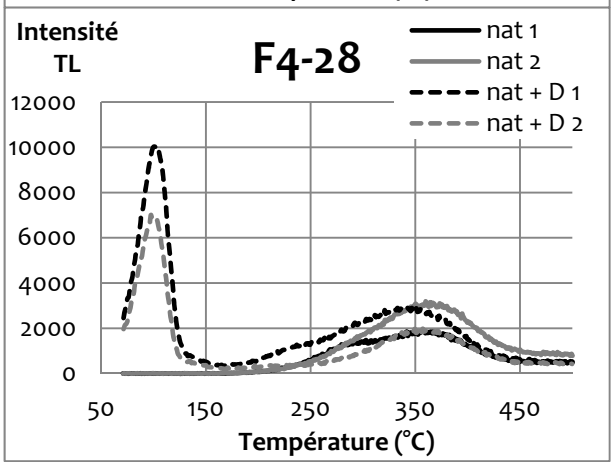




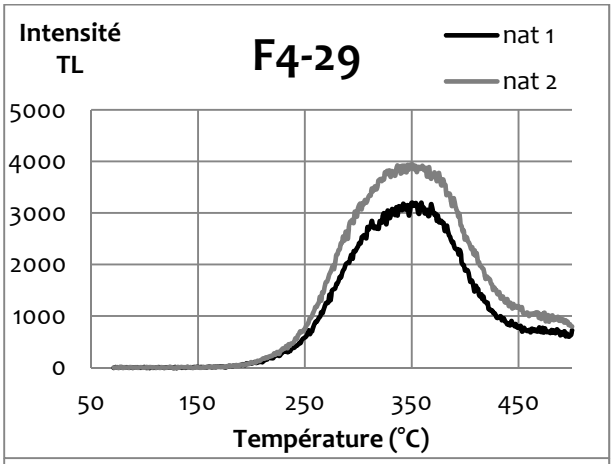


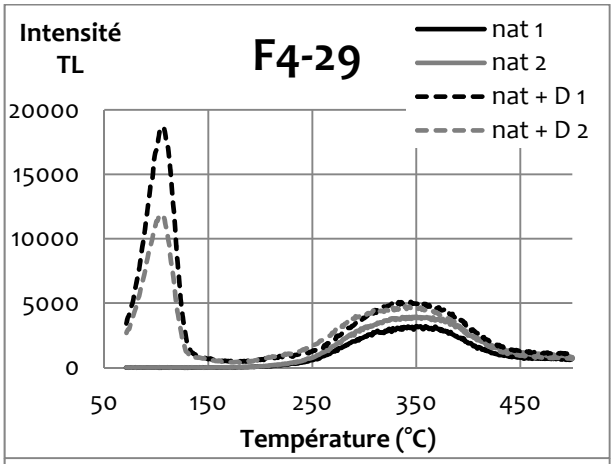


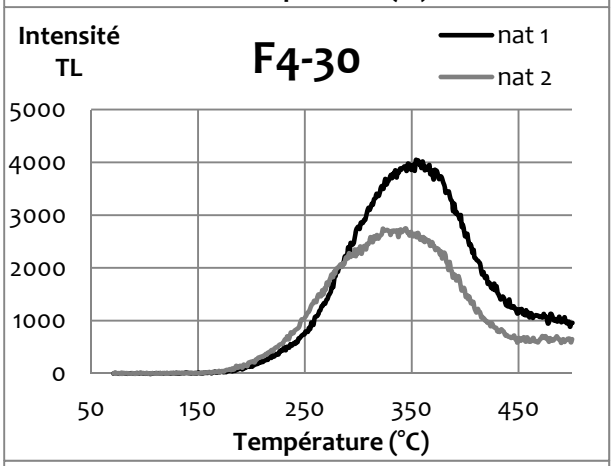


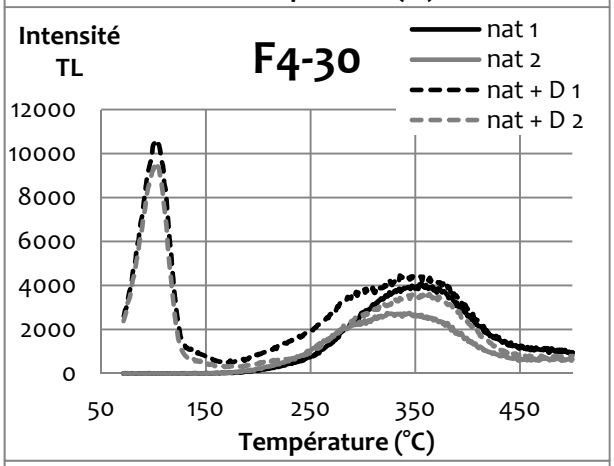


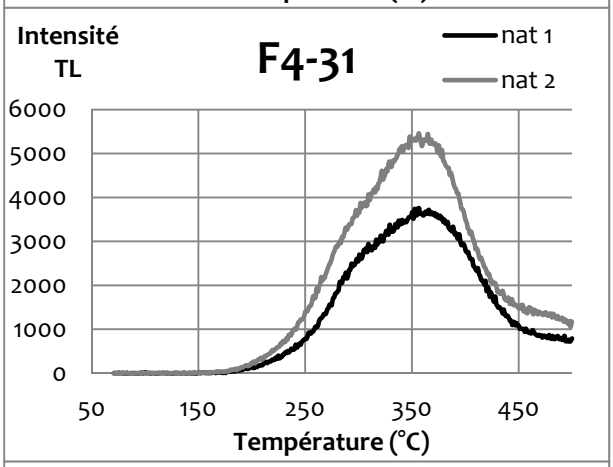
Annexe 1 : Foyer F4 - fraction 200-500 µm du quartz

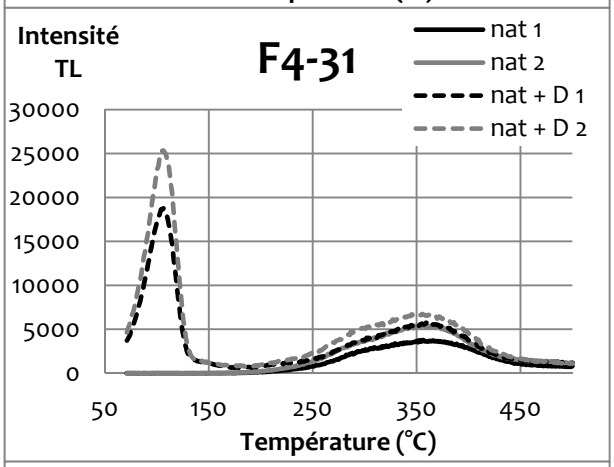


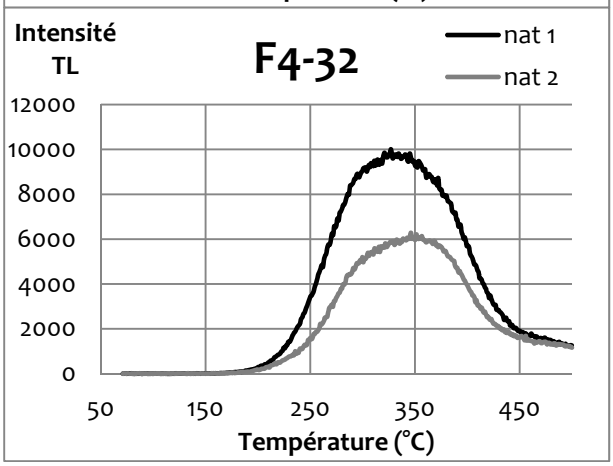


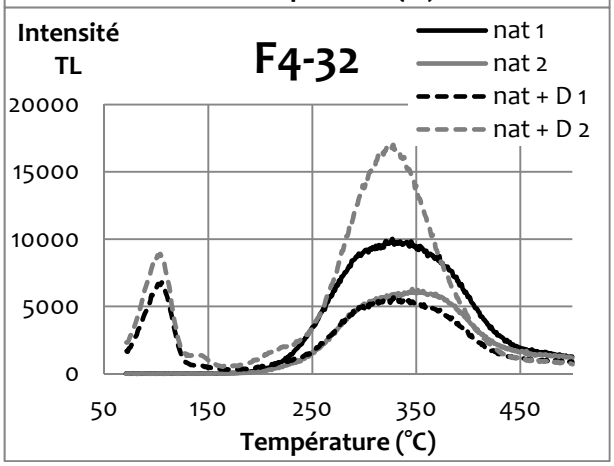




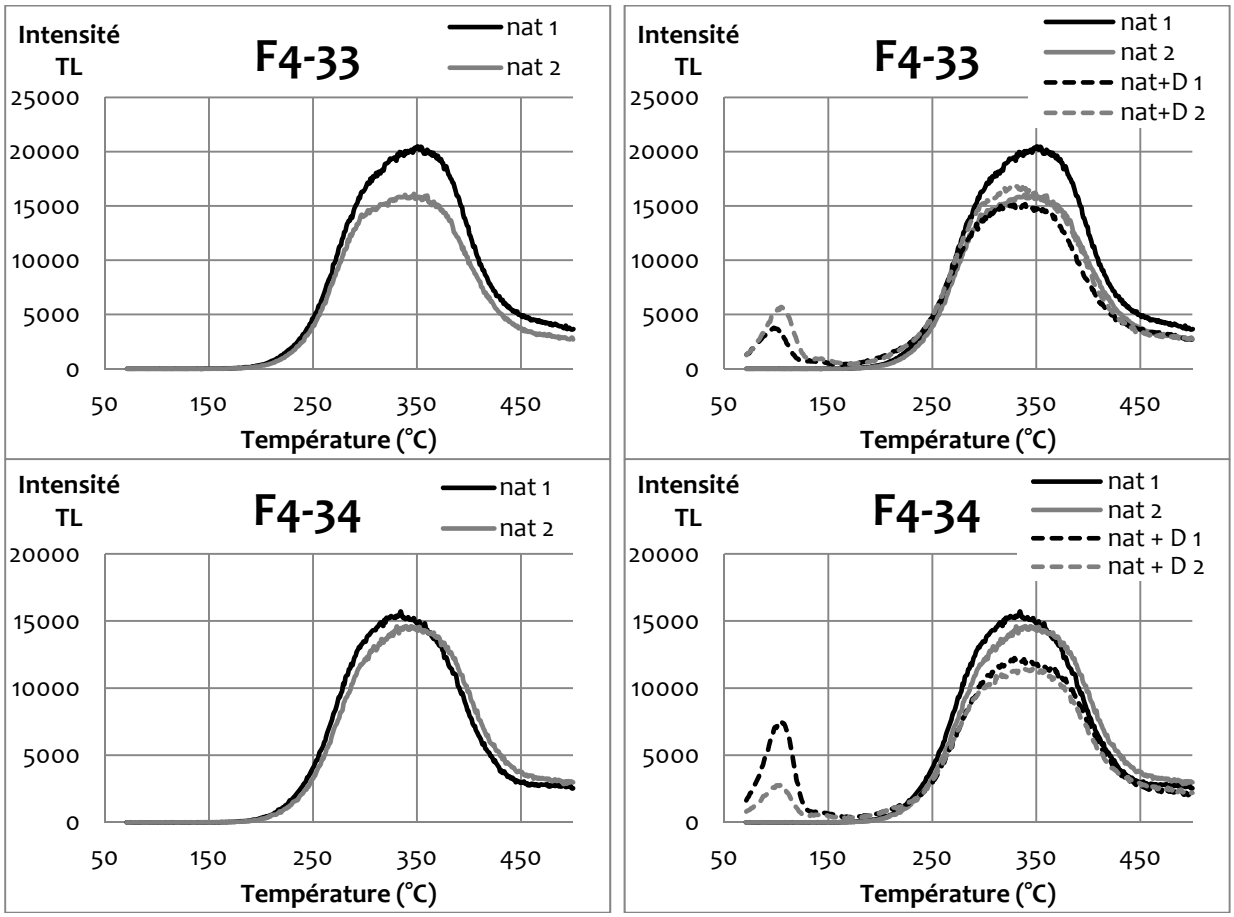




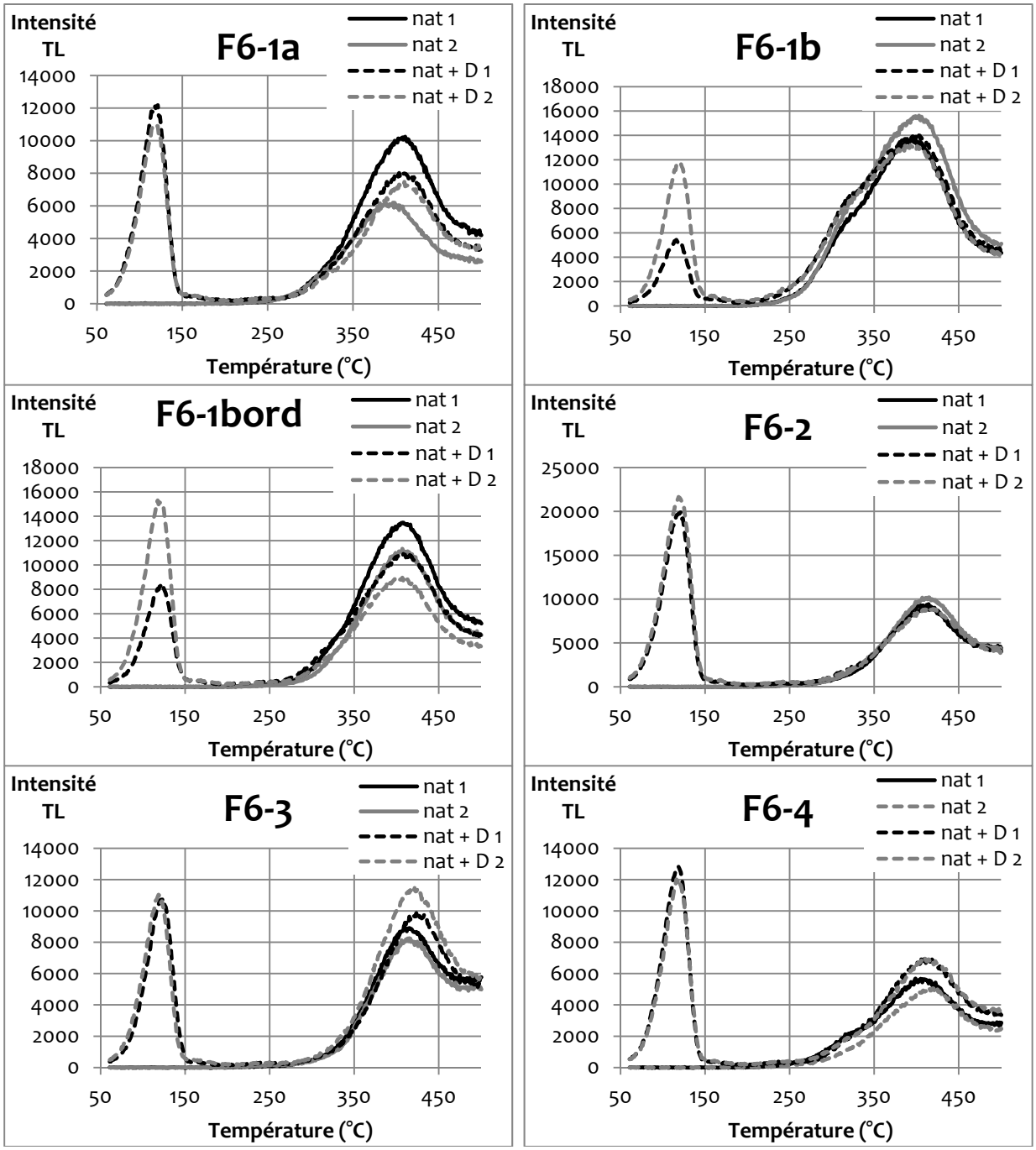




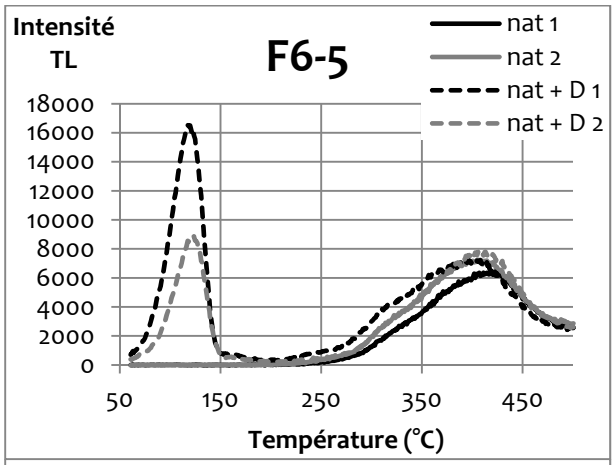
Annexe 1 : Foyer F4 - fraction 200-500 µm du quartz

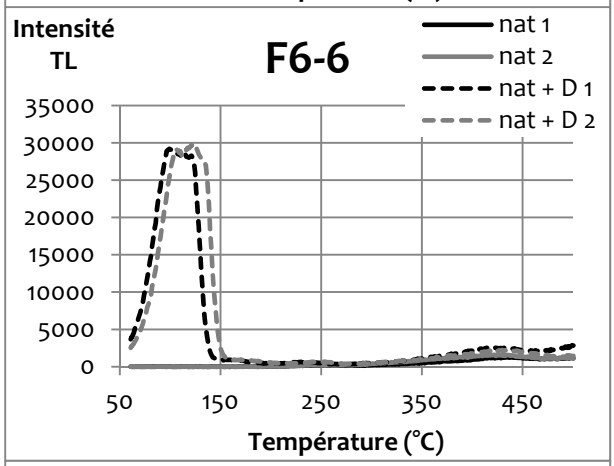


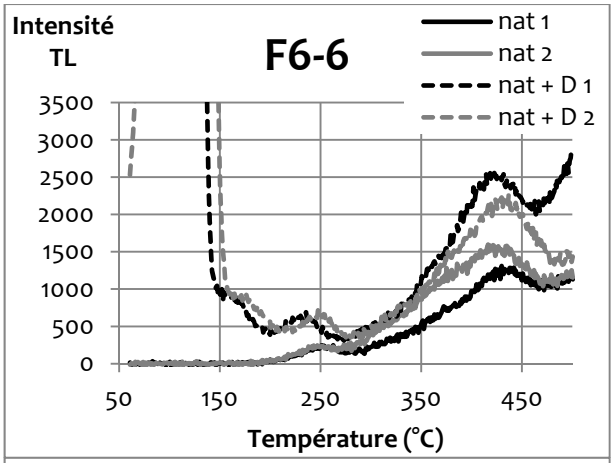
Annexe 2 : Foyer F6 - signaux TL naturel et naturel+dose mesurés sur la fraction 200-500 µm du quartz

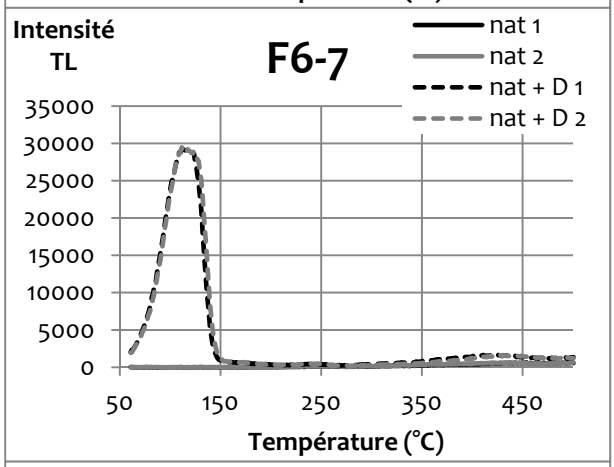


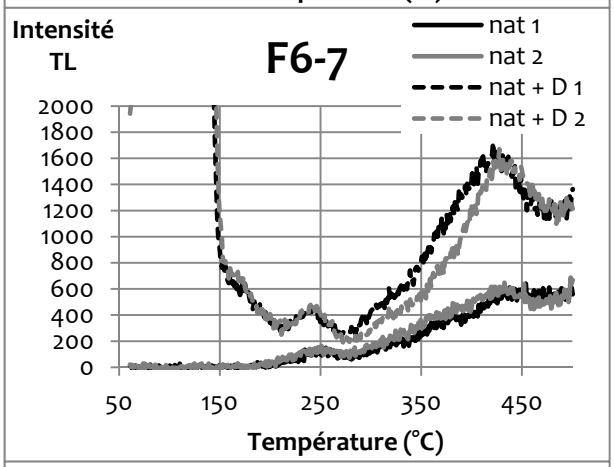
Annexe 2 : Foyer F6 - fraction 200 - 500 µm du quartz

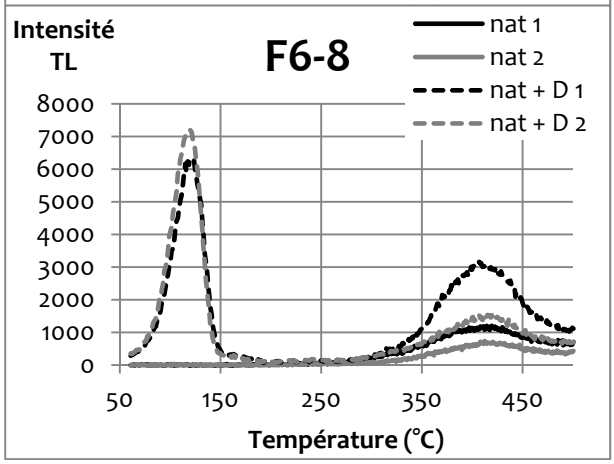


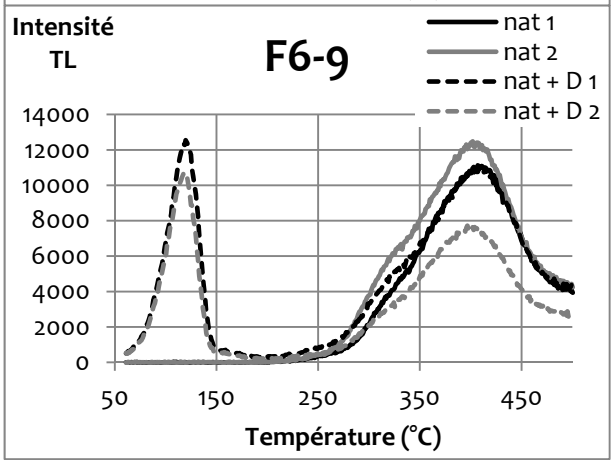




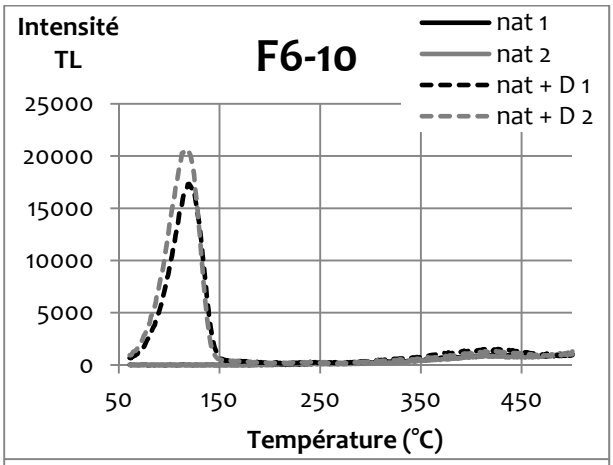


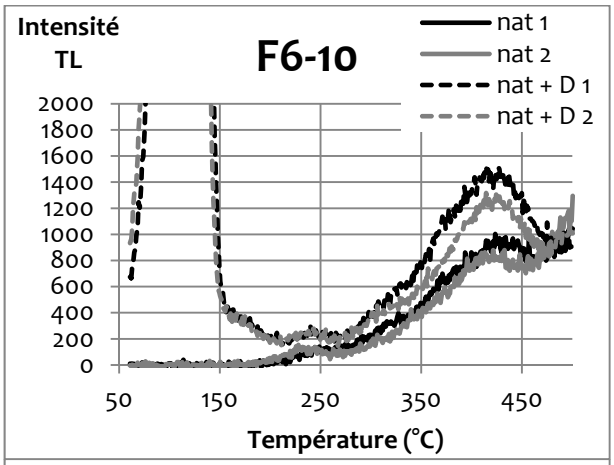


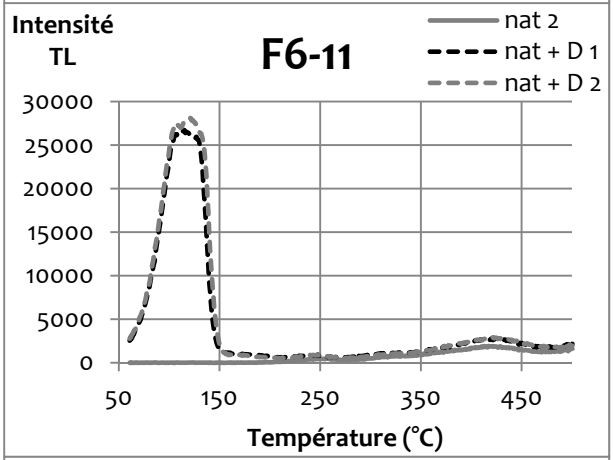


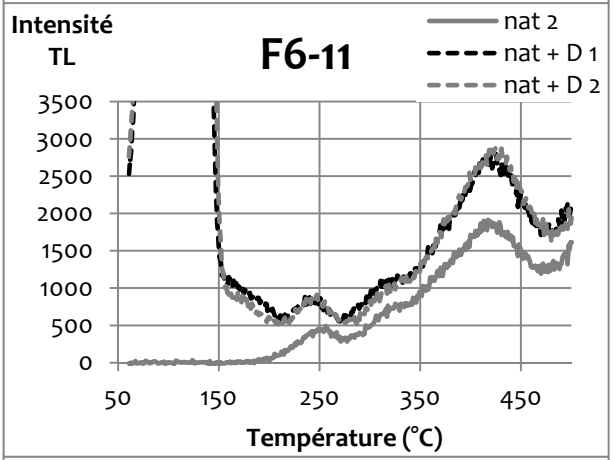


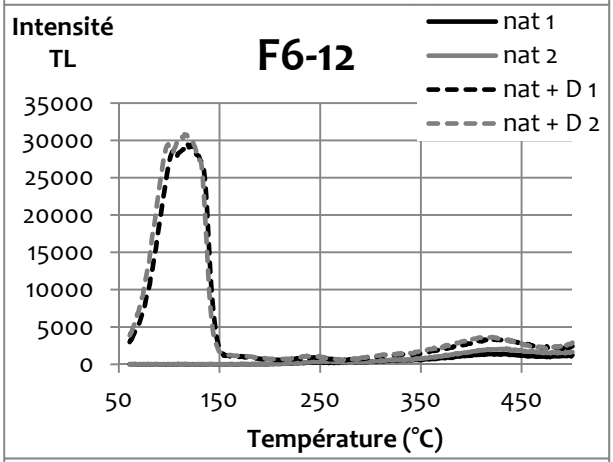
Annexe 2 : Foyer F6 - fraction 200 - 500 µm du quartz

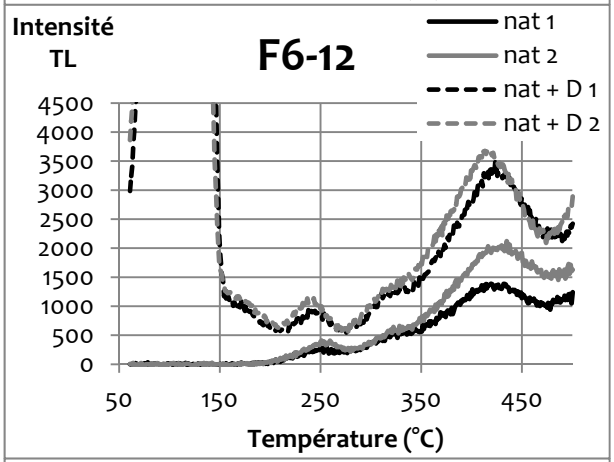


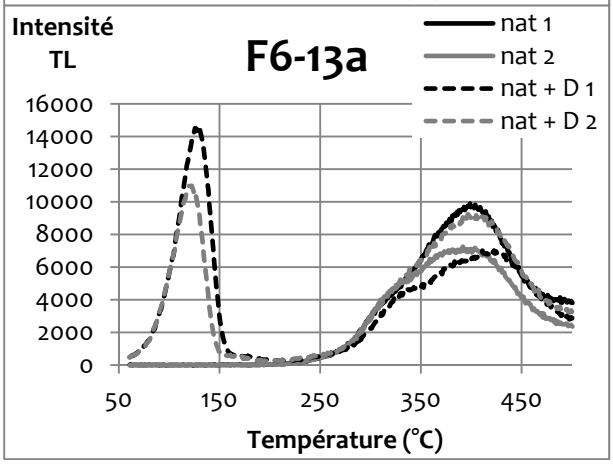


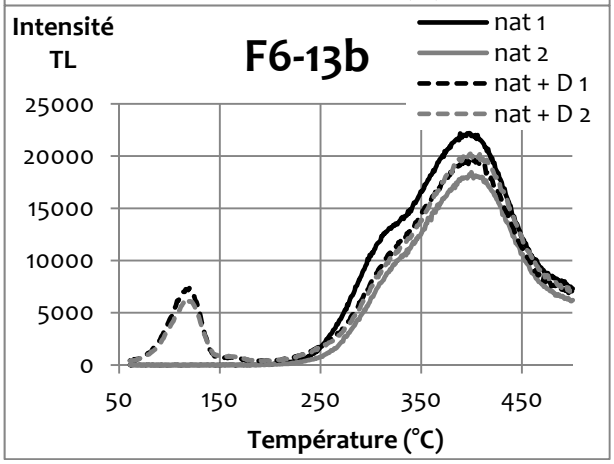


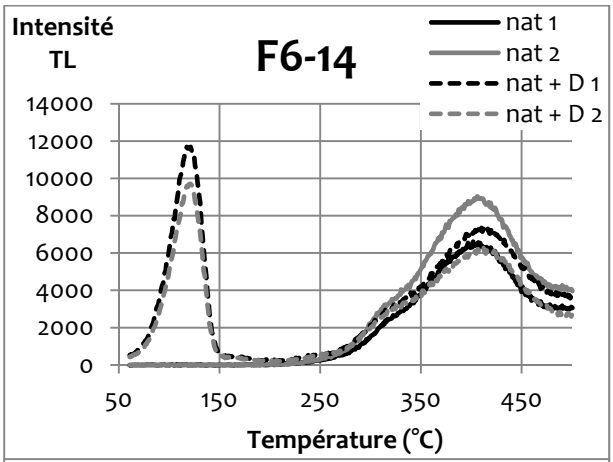


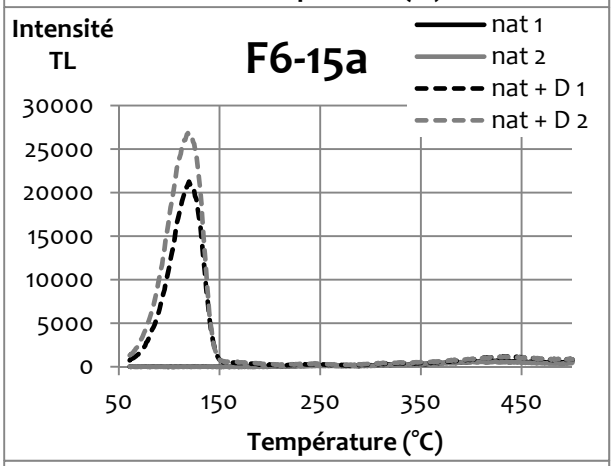


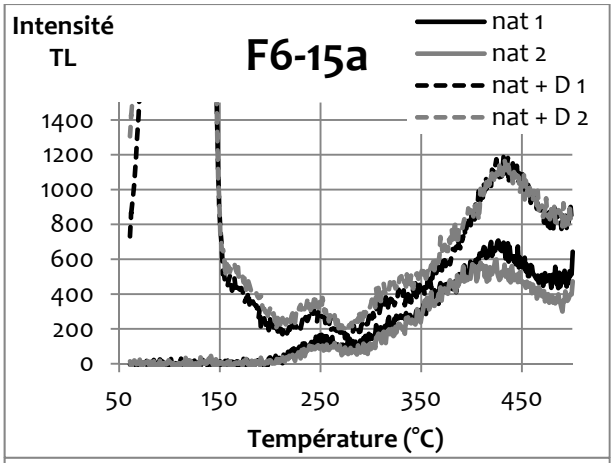


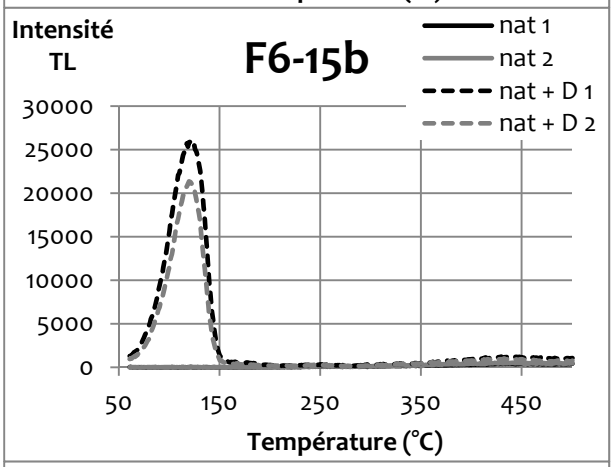


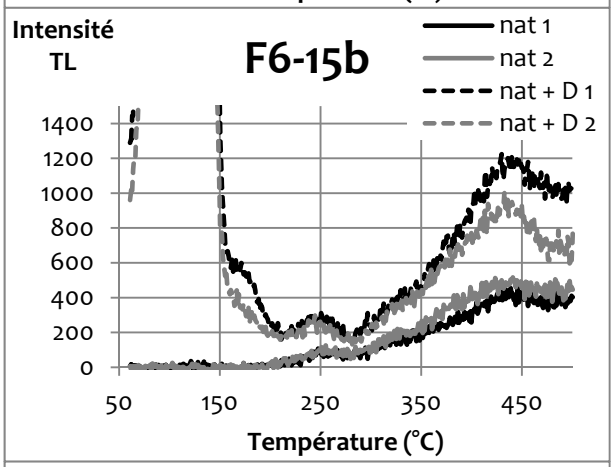


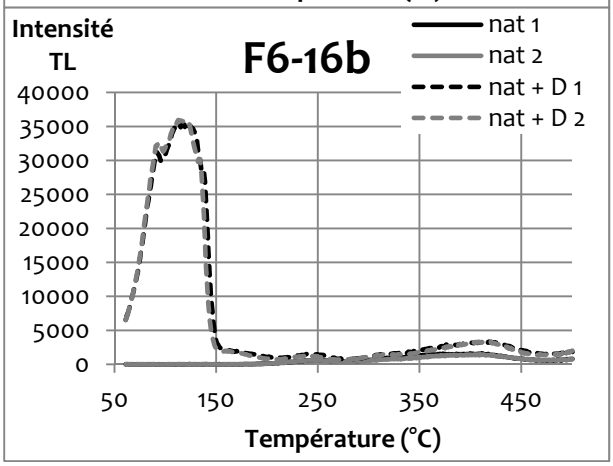

Intensité TL
F6-14
nat 1
nat 2
nat + D 1
nat + D 2
14000
12000
10000
8000
6000
4000
2000
0
50
150
250
350
450
Température (°C)

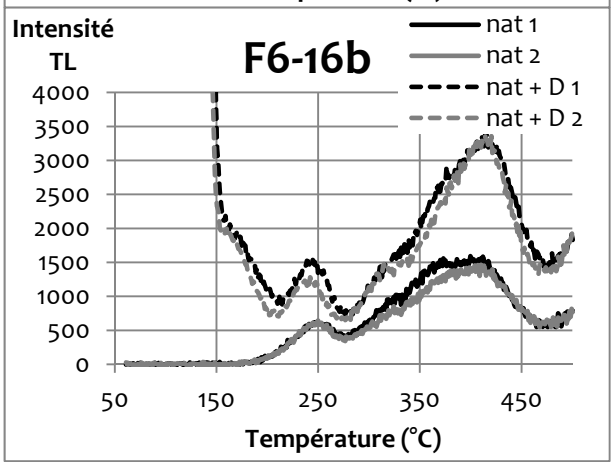

Intensité TL
F6-15a
nat 1
nat 2
nat + D 1
nat + D 2
30000
25000
20000
15000
10000
5000
0
50
150
250
350
450
Température (°C)


Intensité TL
F6-15a
nat 1
nat 2
nat + D 1
nat + D 2
1400
1200
1000
800
600
400
200
0
50
150
250
350
450
Température (°C)

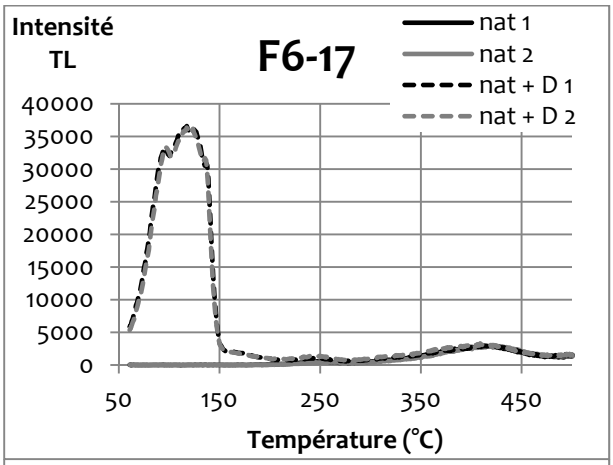

Intensité TL
F6-15b
nat 1
nat 2
nat + D 1
nat + D 2
30000
25000
20000
15000
10000
5000
0
50
150
250
350
450
Température (°C)

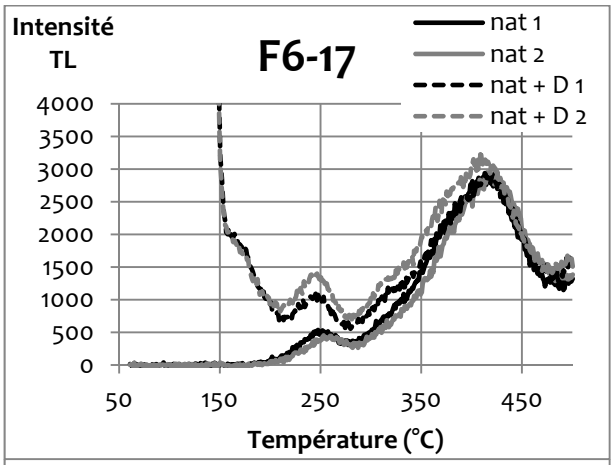

Intensité TL
F6-15b
nat 1
nat 2
nat + D 1
nat + D 2
1400
1200
1000
800
600
400
200
0
50
150
250
350
450
Température (°C)

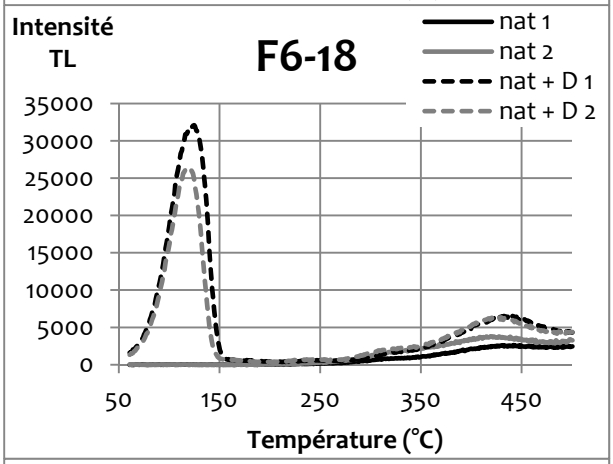

Intensité TL
F6-16b
nat 1
nat 2
nat + D 1
nat + D 2
40000
35000
30000
25000
20000
15000
10000
5000
0
50
150
250
350
450
Température (°C)

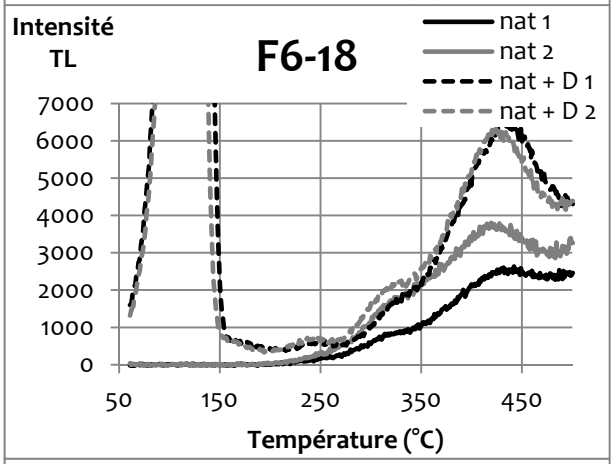

Intensité TL
F6-16b
nat 1
nat 2
nat + D 1
nat + D 2
4000
3500
3000
2500
2000
1500
1000
500
0
50
150
250
350
450
Température (°C)

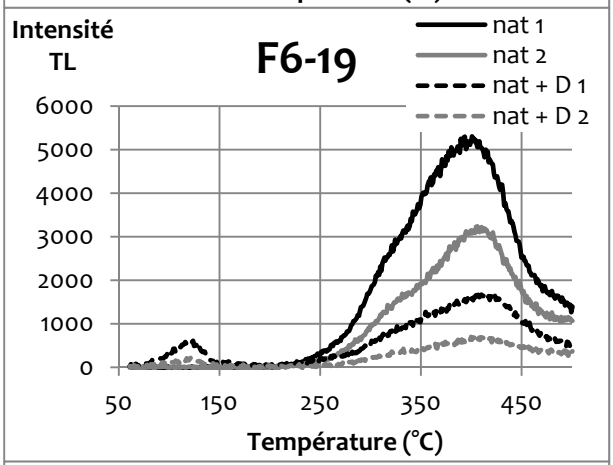
Annexe 2 : Foyer F6 - fraction 200 - 500 µm du quartz

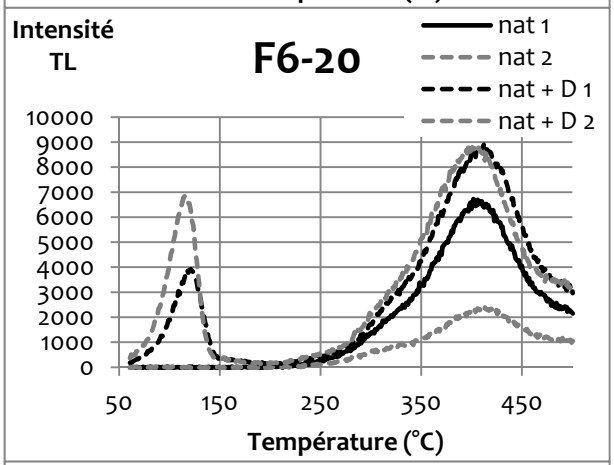


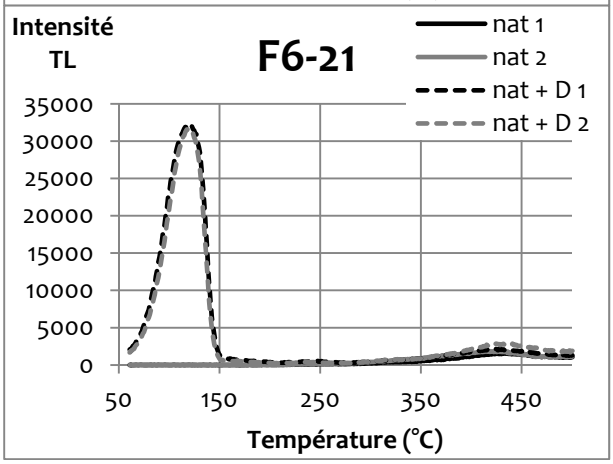


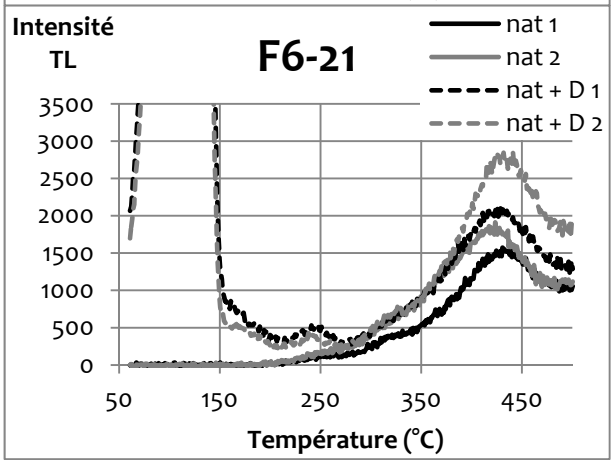




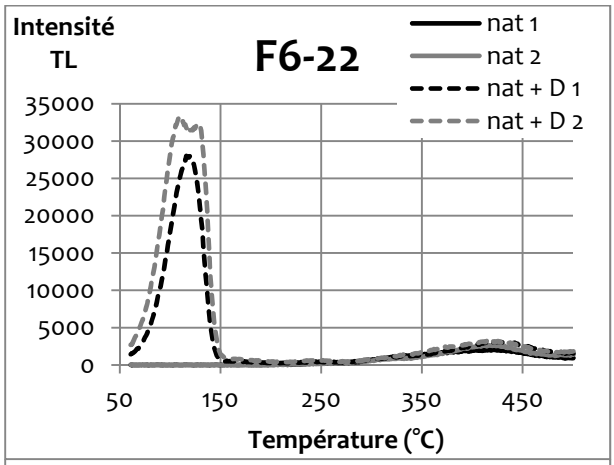


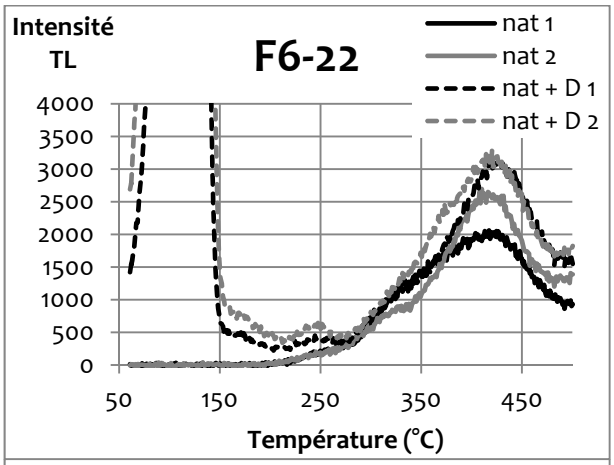


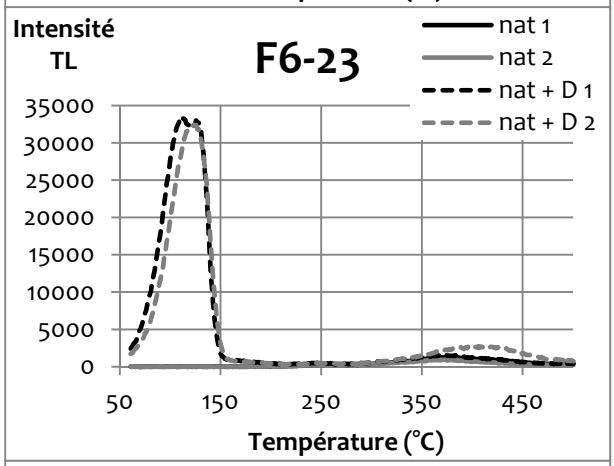


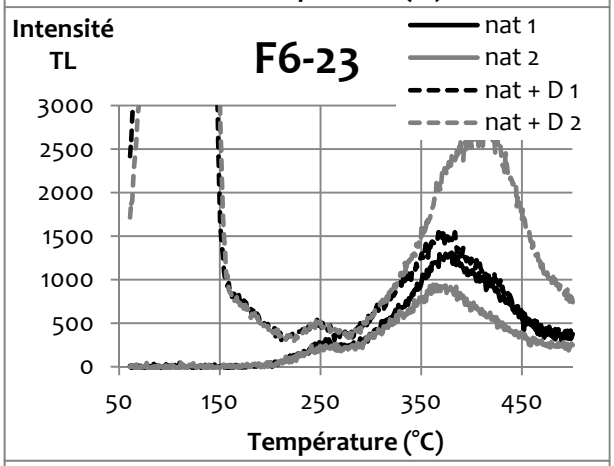


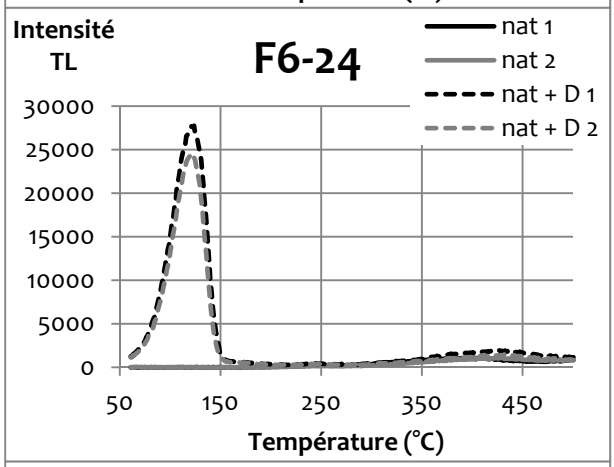
Annexe 2 : Foyer F6 - fraction 200 - 500 µm du quartz

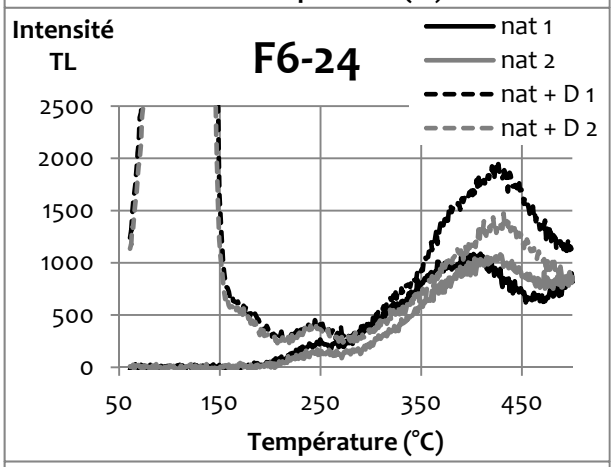


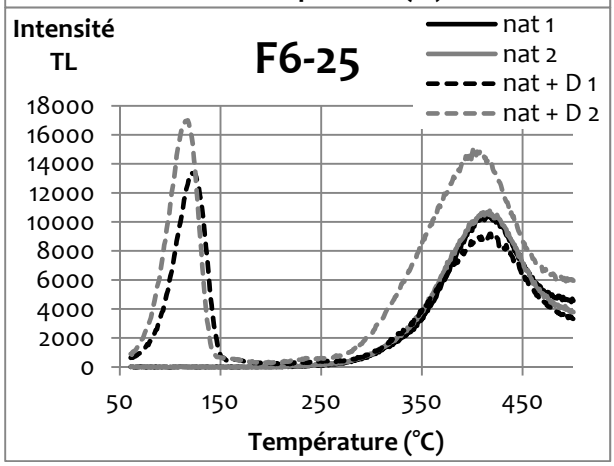


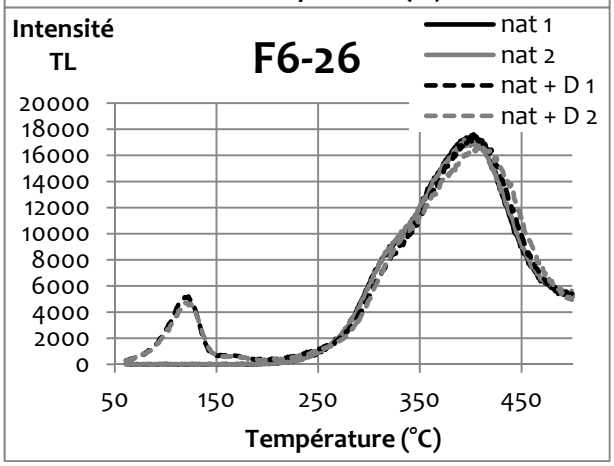




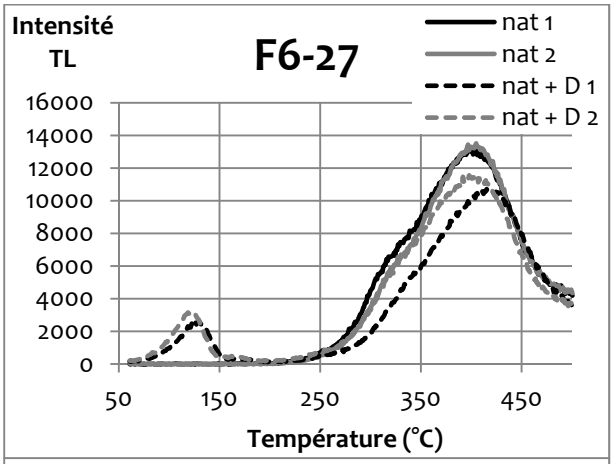


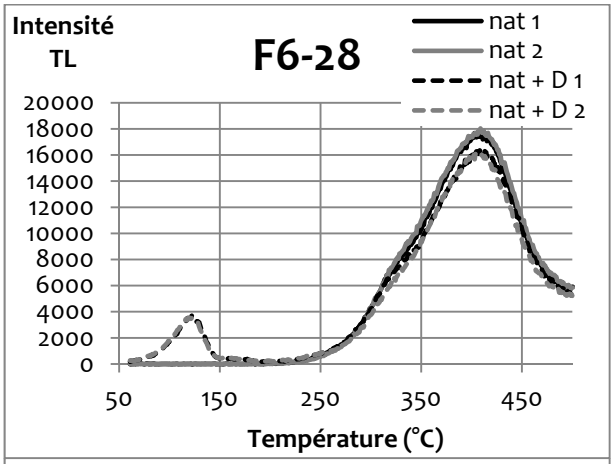


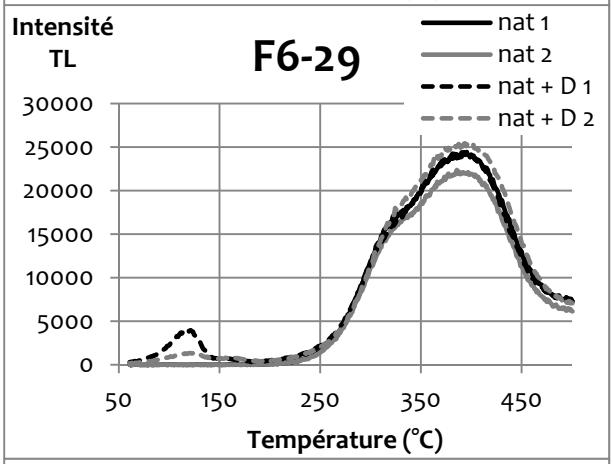


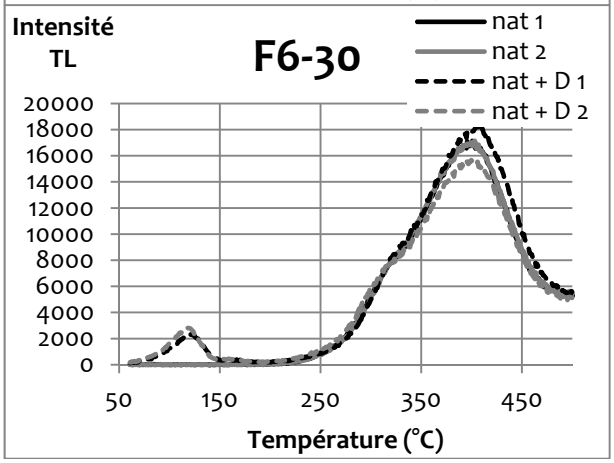


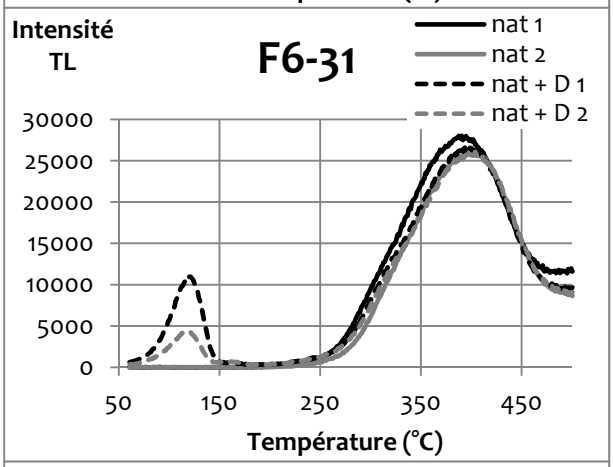
Annexe 2 : Foyer F6 - fraction 200 - 500 µm du quartz

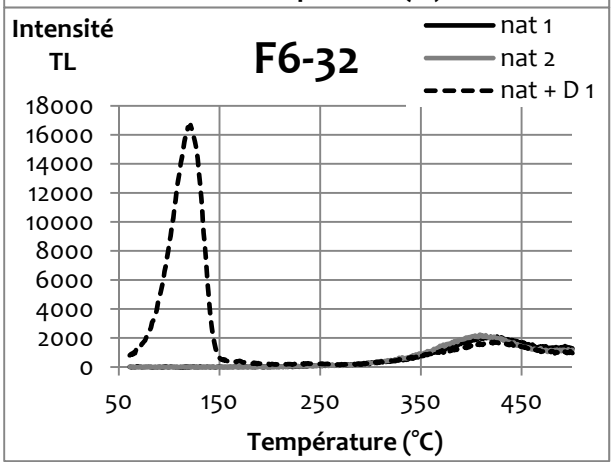


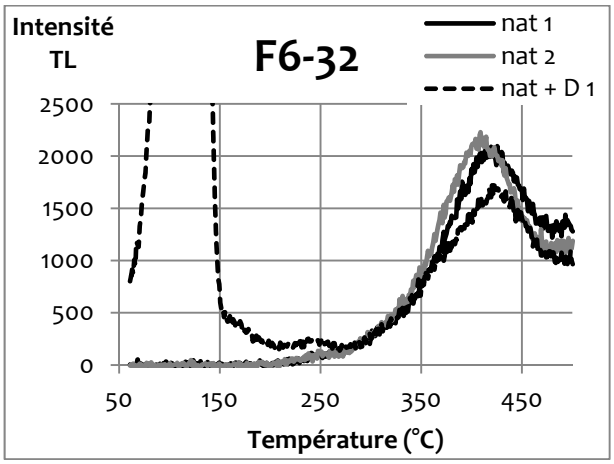




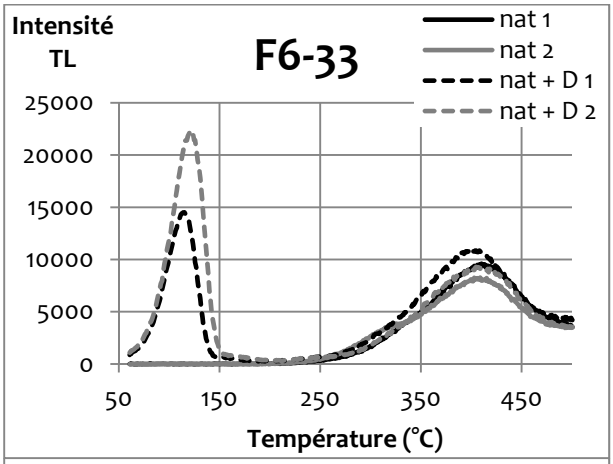


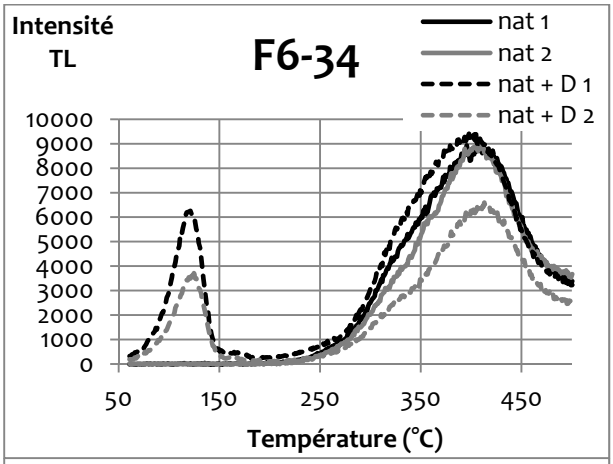


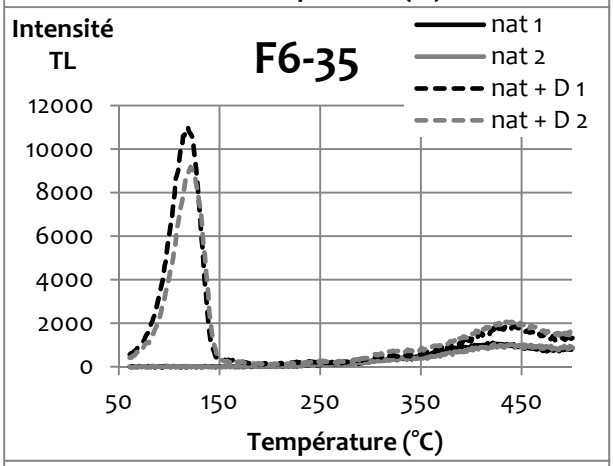


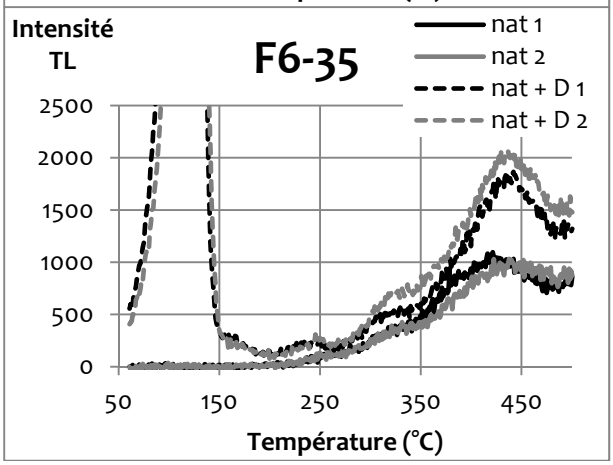


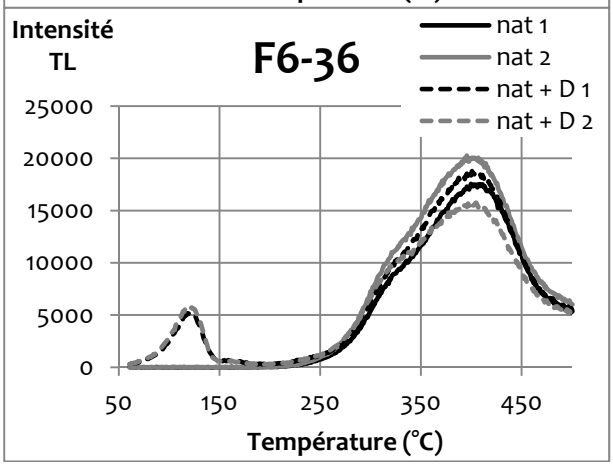
Annexe 2 : Foyer F6 - fraction 200 - 500 µm du quartz



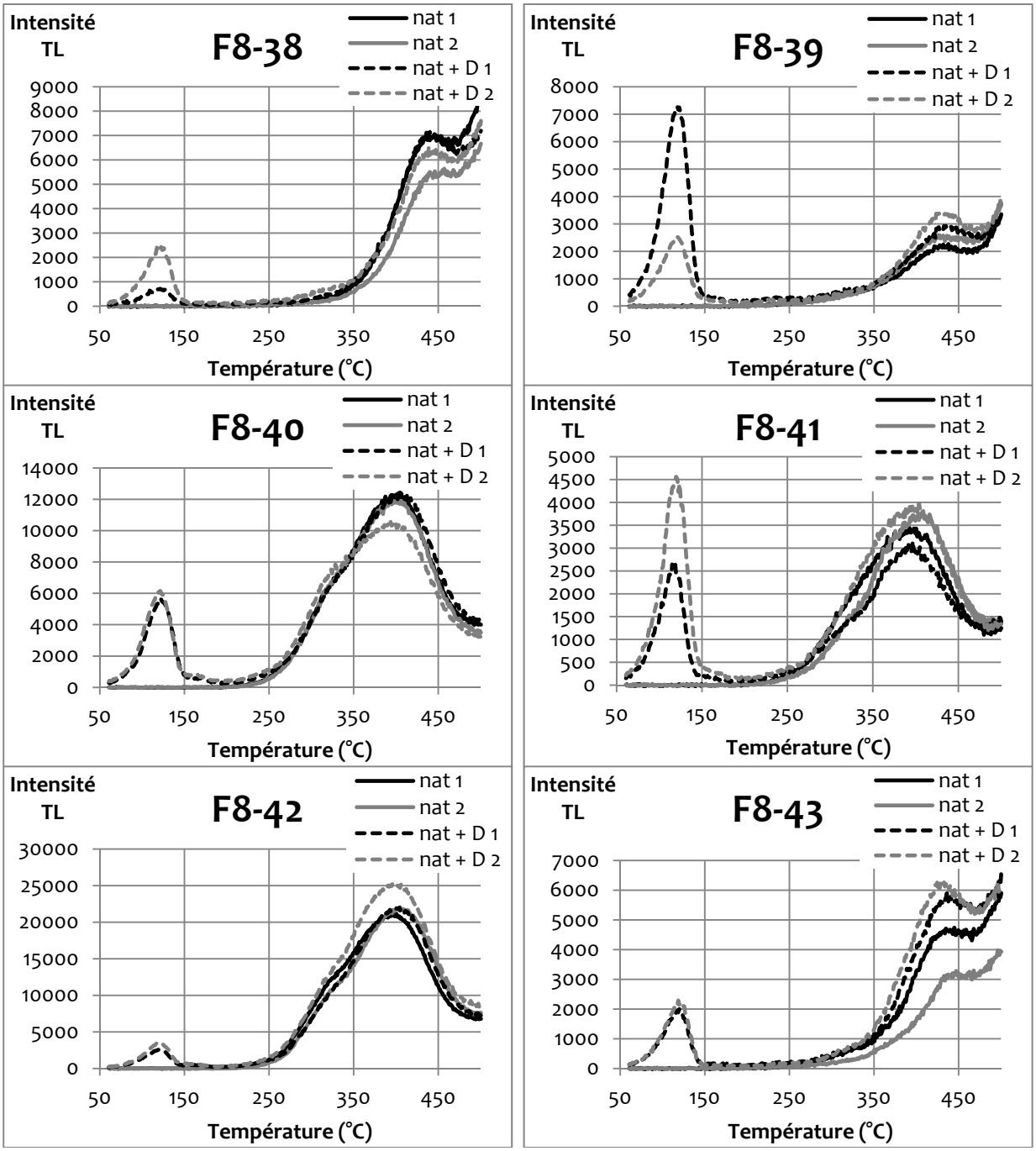




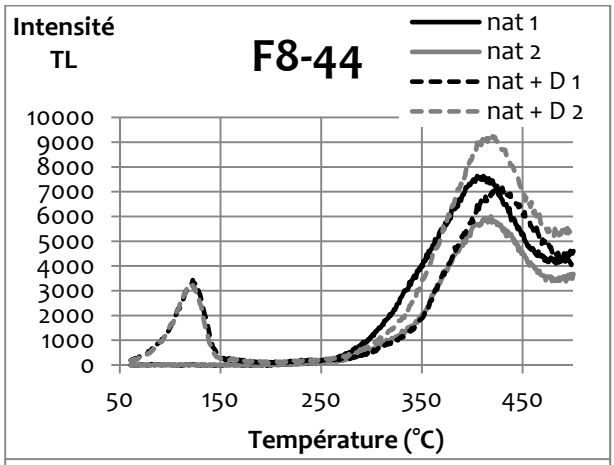


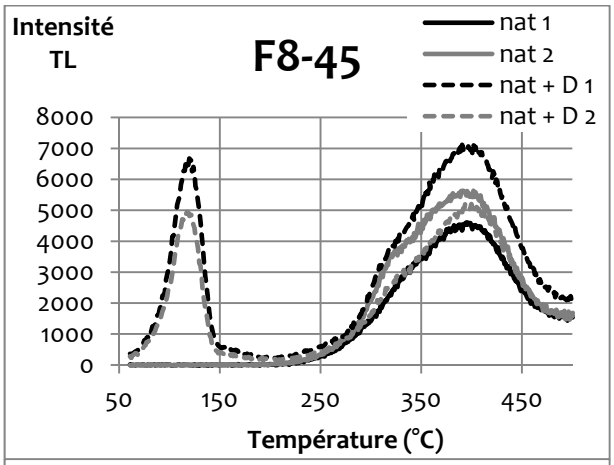


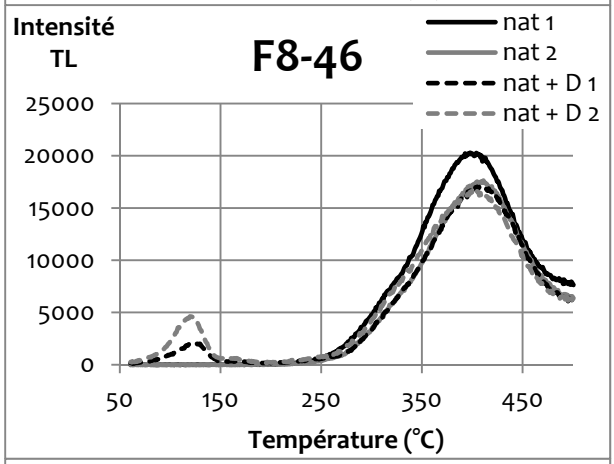
Annexe 3 : Foyer F8 - Signaux TL naturel et naturel+dose mesurés sur la fraction 200-500 µm du quartz

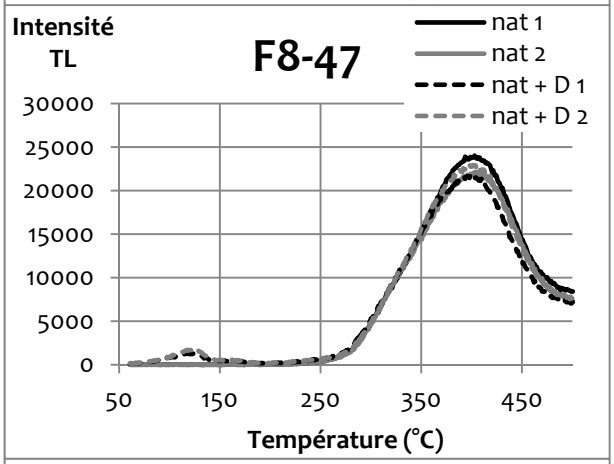


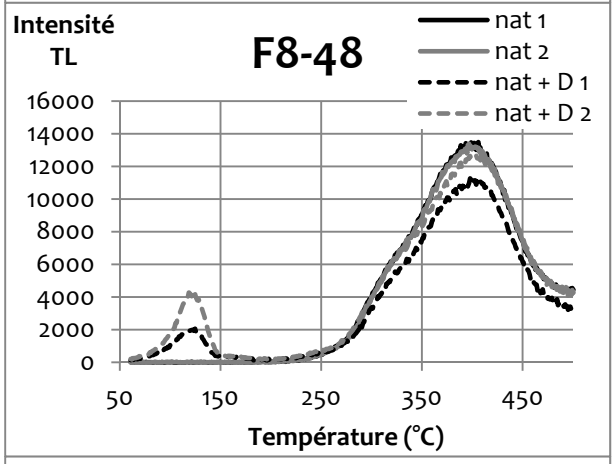
Annexe 3 : Foyer F8 - fraction 200 - 500 µm du quartz

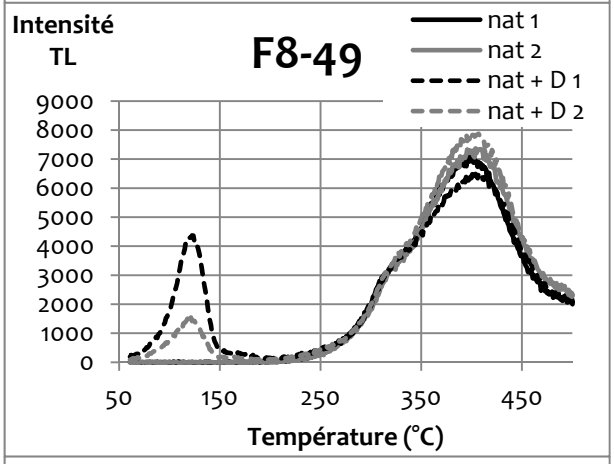


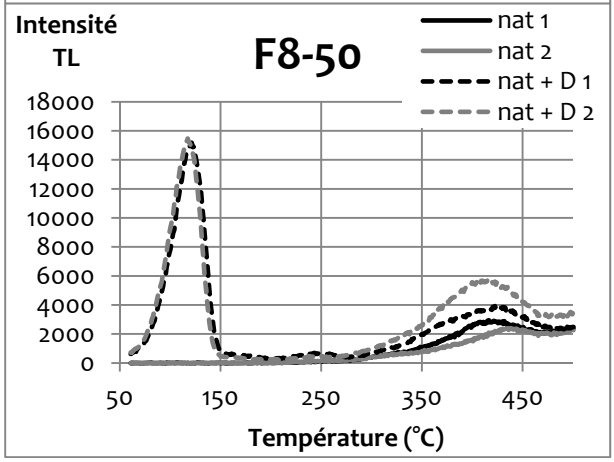


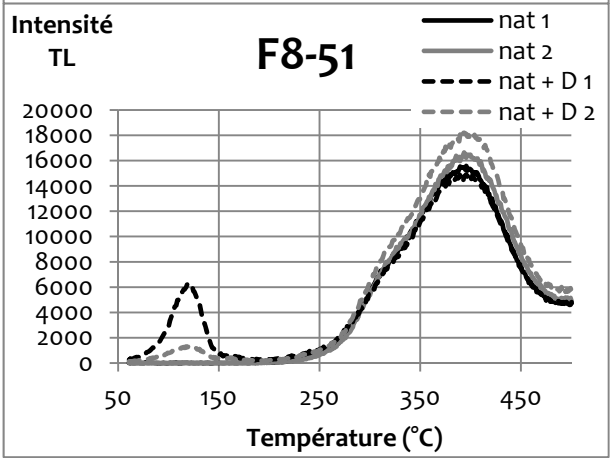




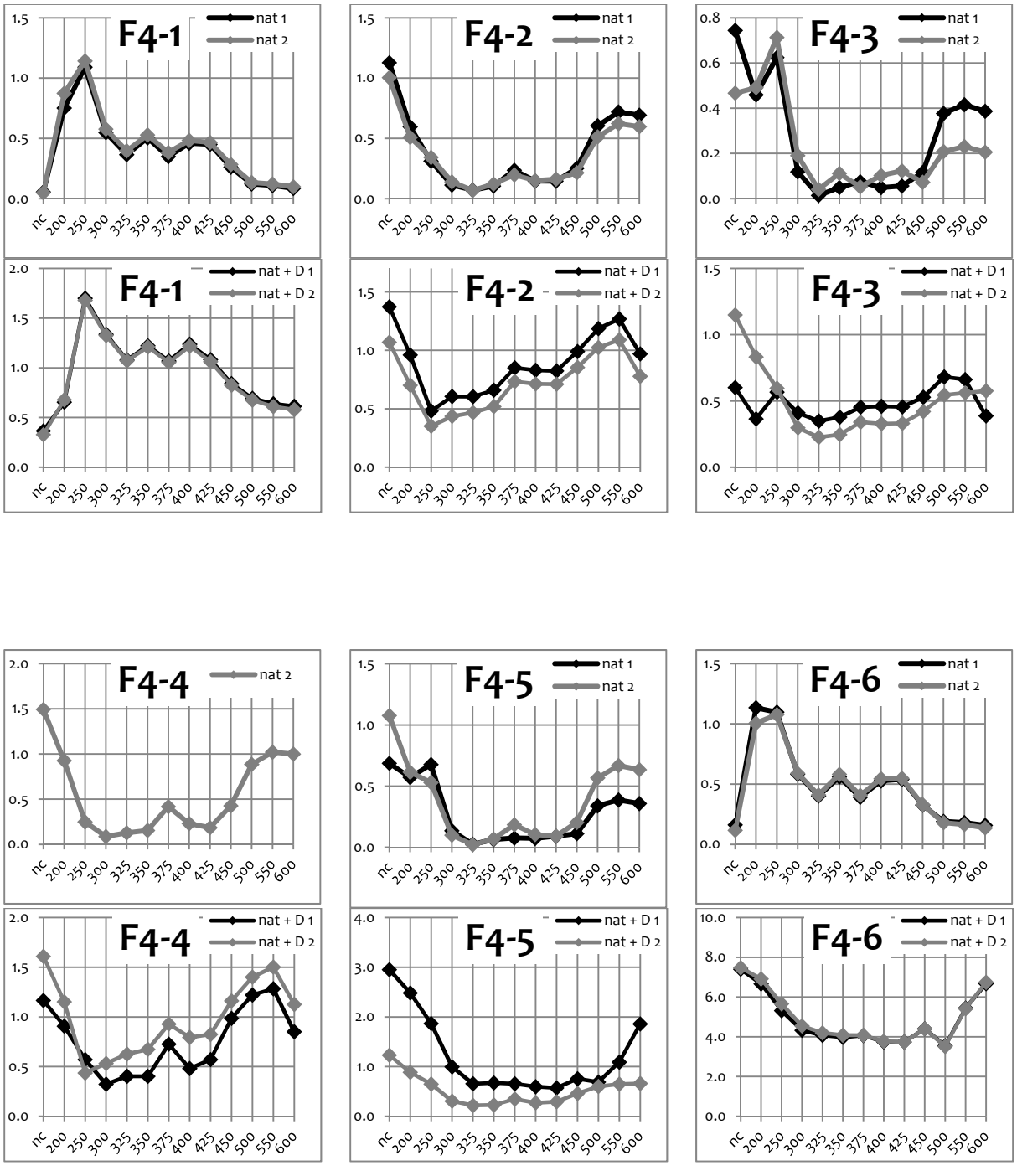




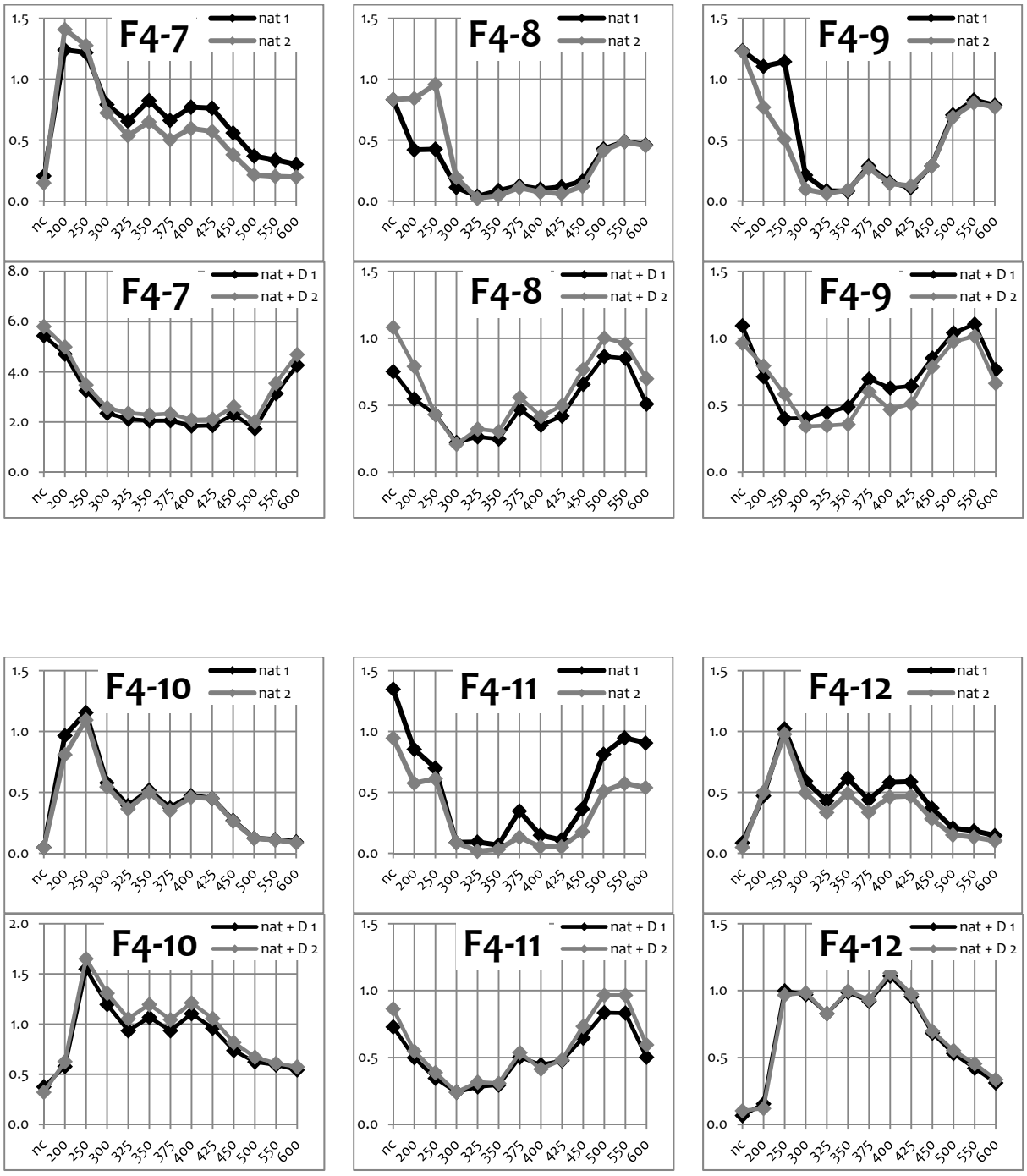




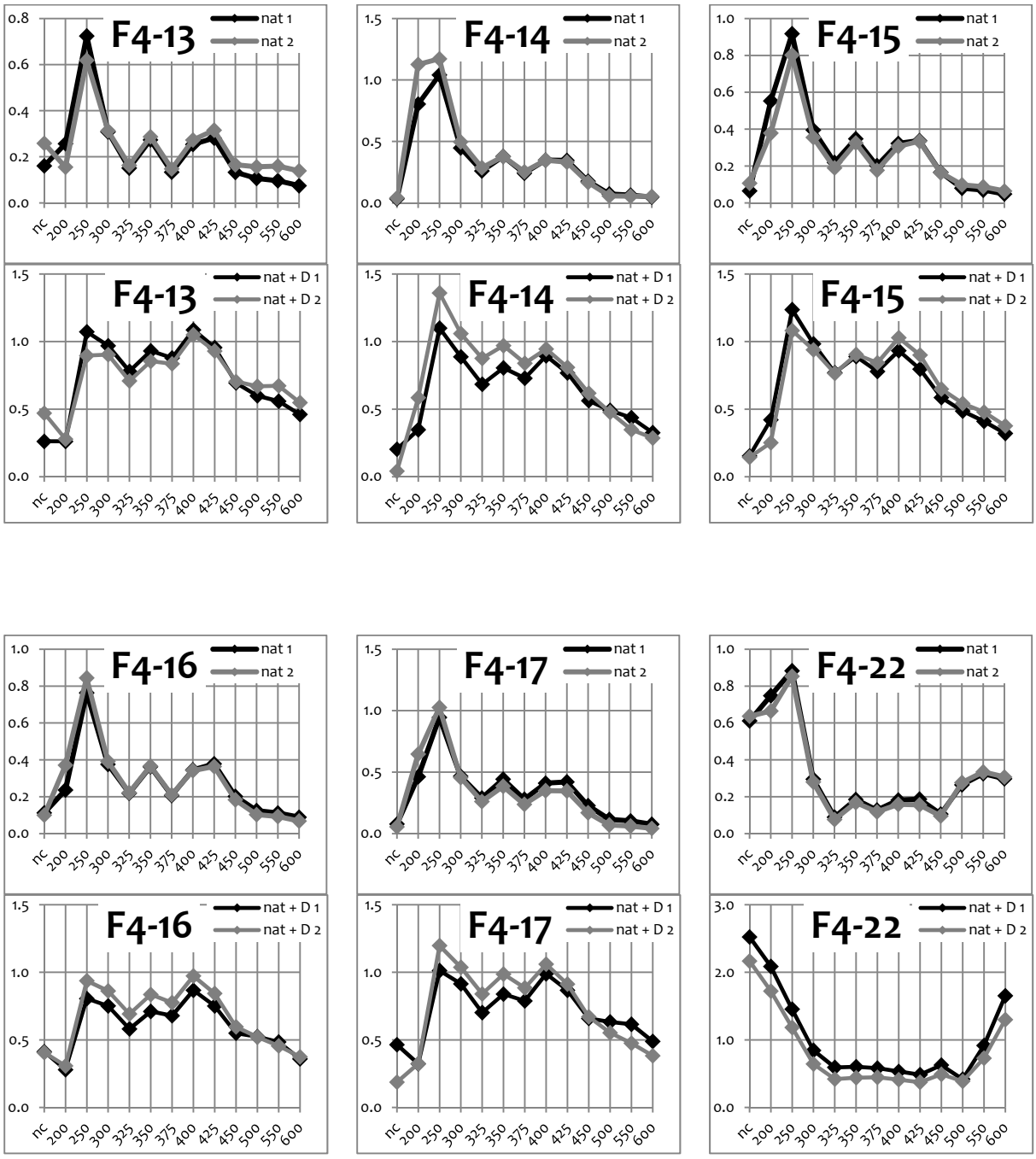
Annexe 4 : Foyer F4 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



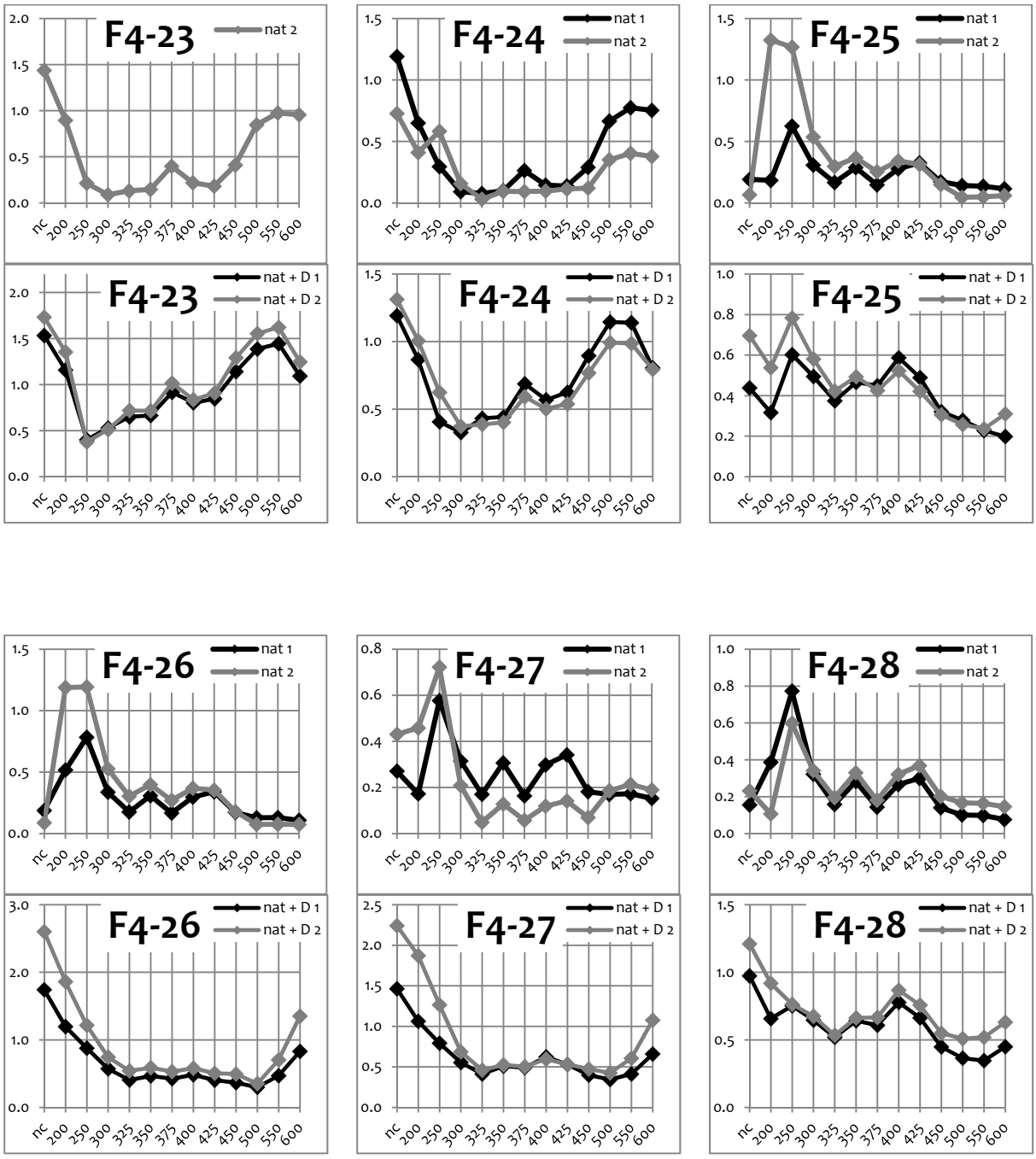
Annexe 4 : Foyer F4 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



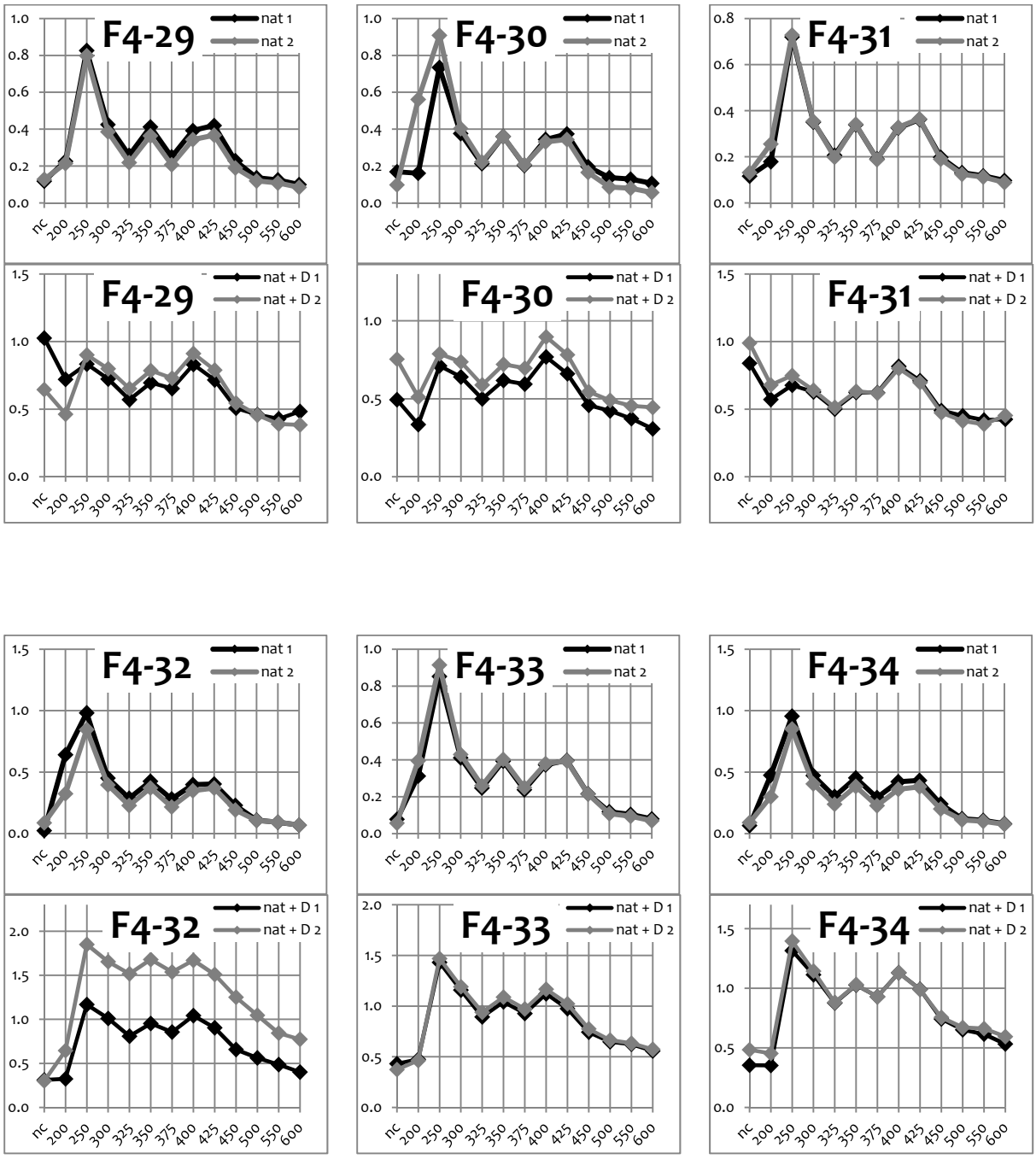
Annexe 4 : Foyer F4 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



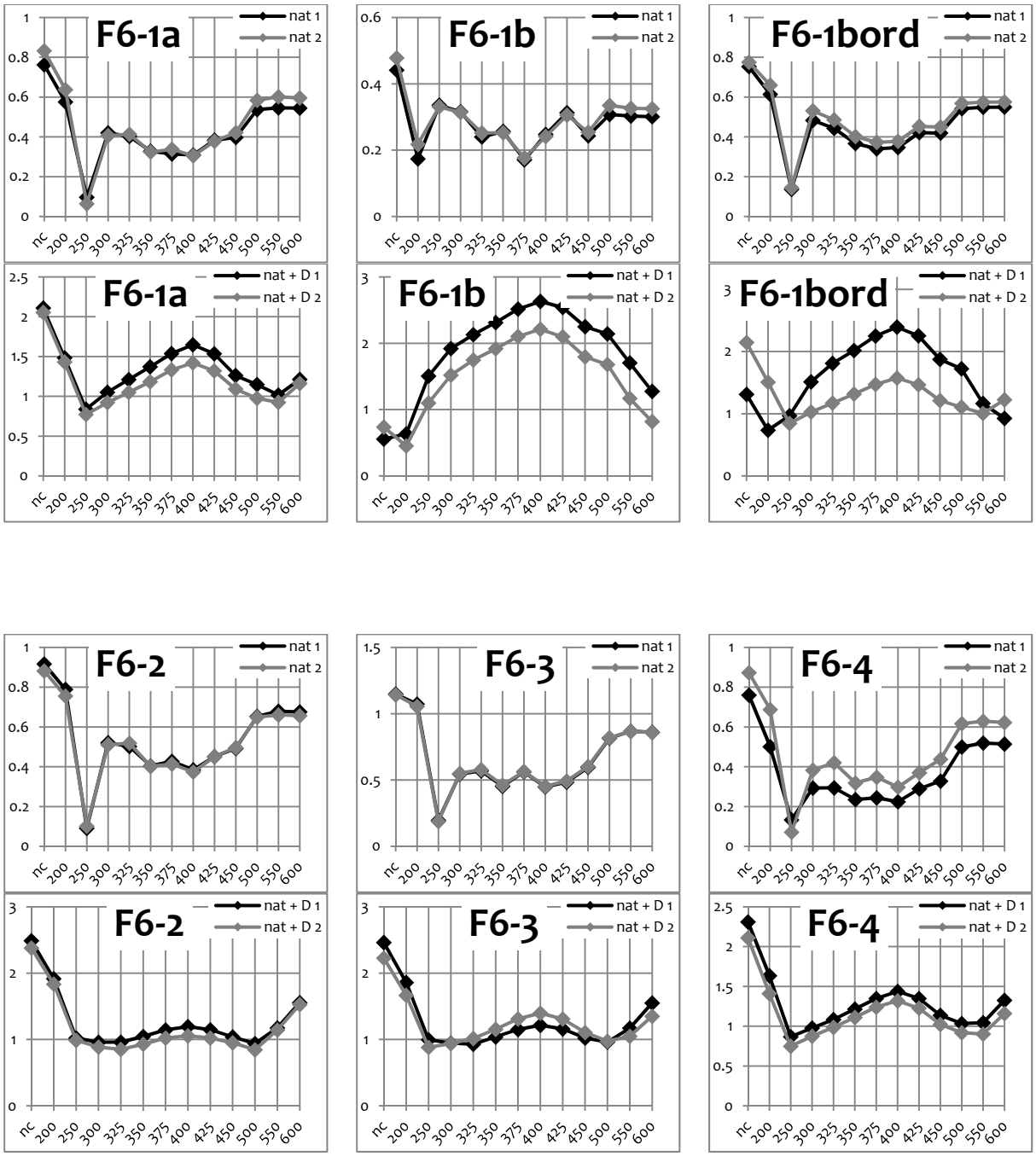
Annexe 4 : Foyer F4 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



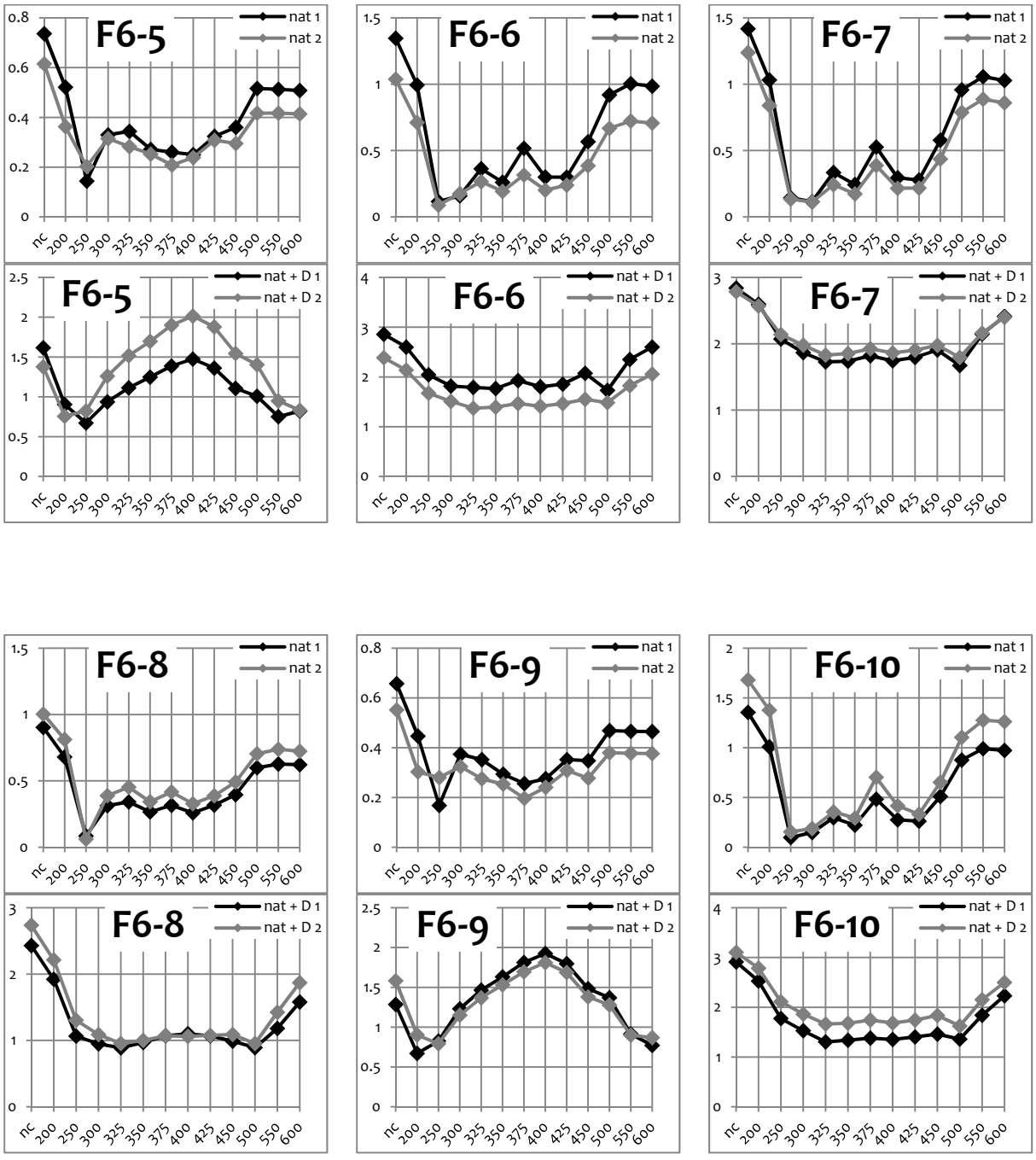
Annexe 4 : Foyer F4 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



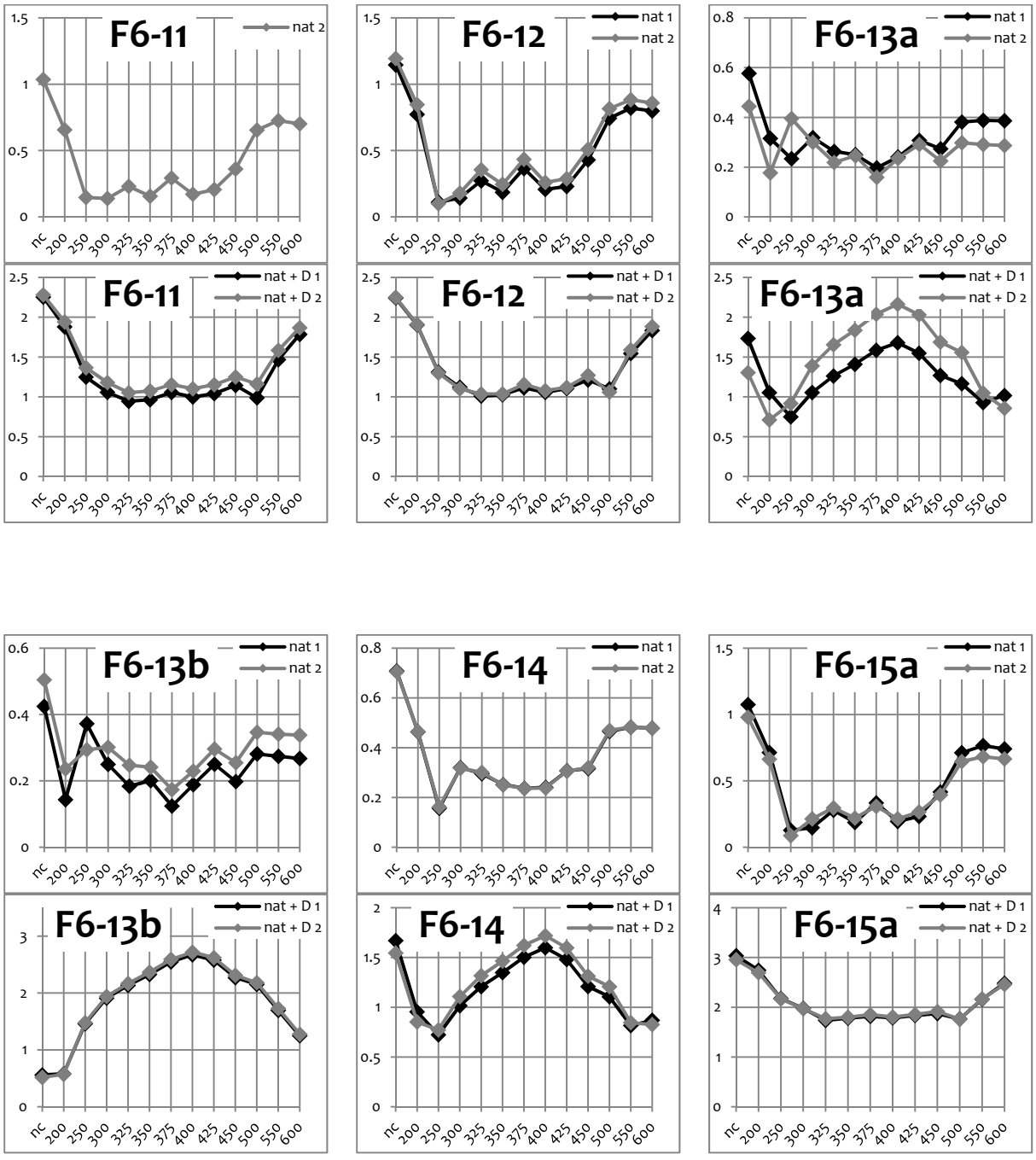
Annexe 5 : Foyer F6 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



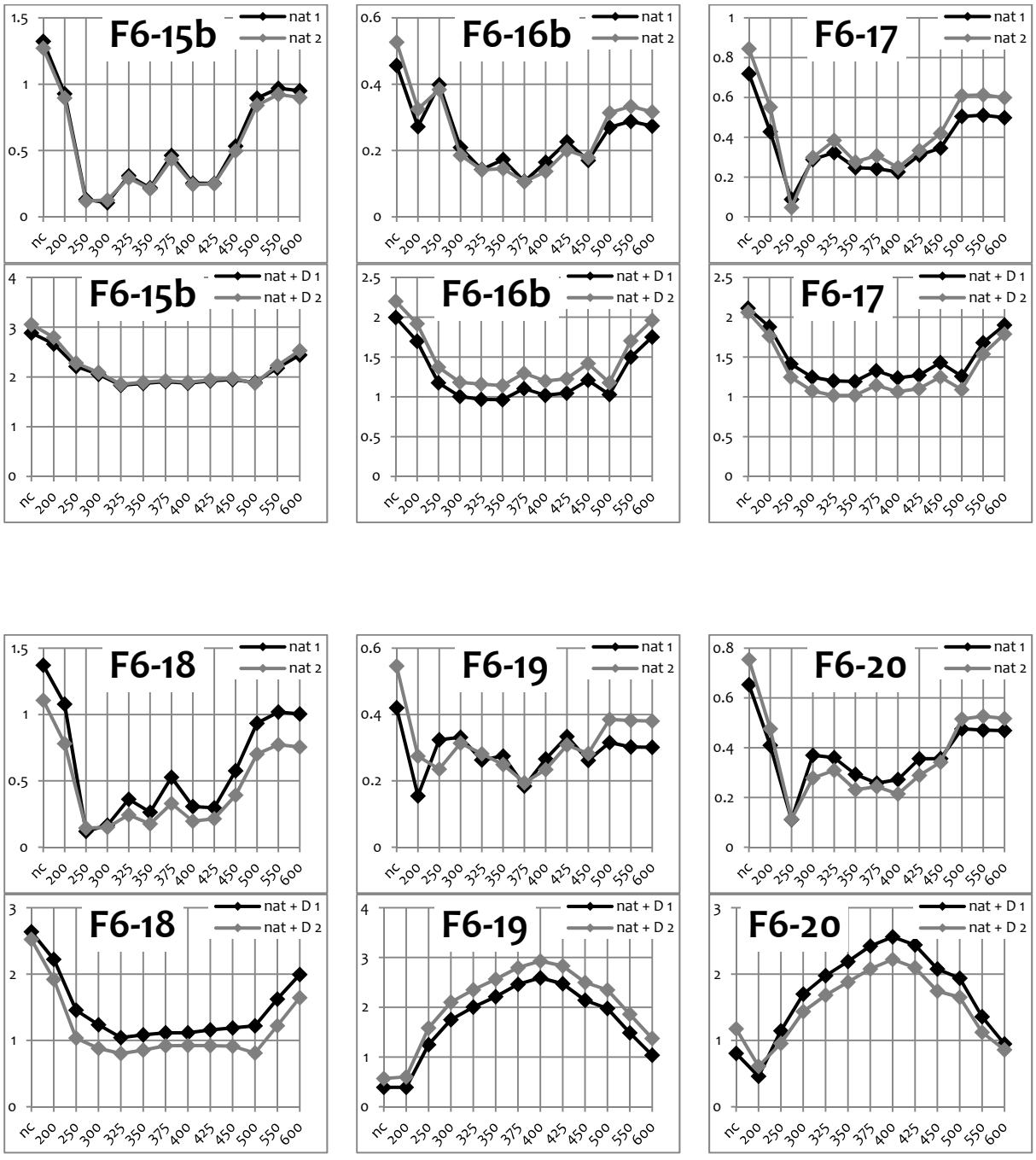
Annexe 5 : Foyer F6 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



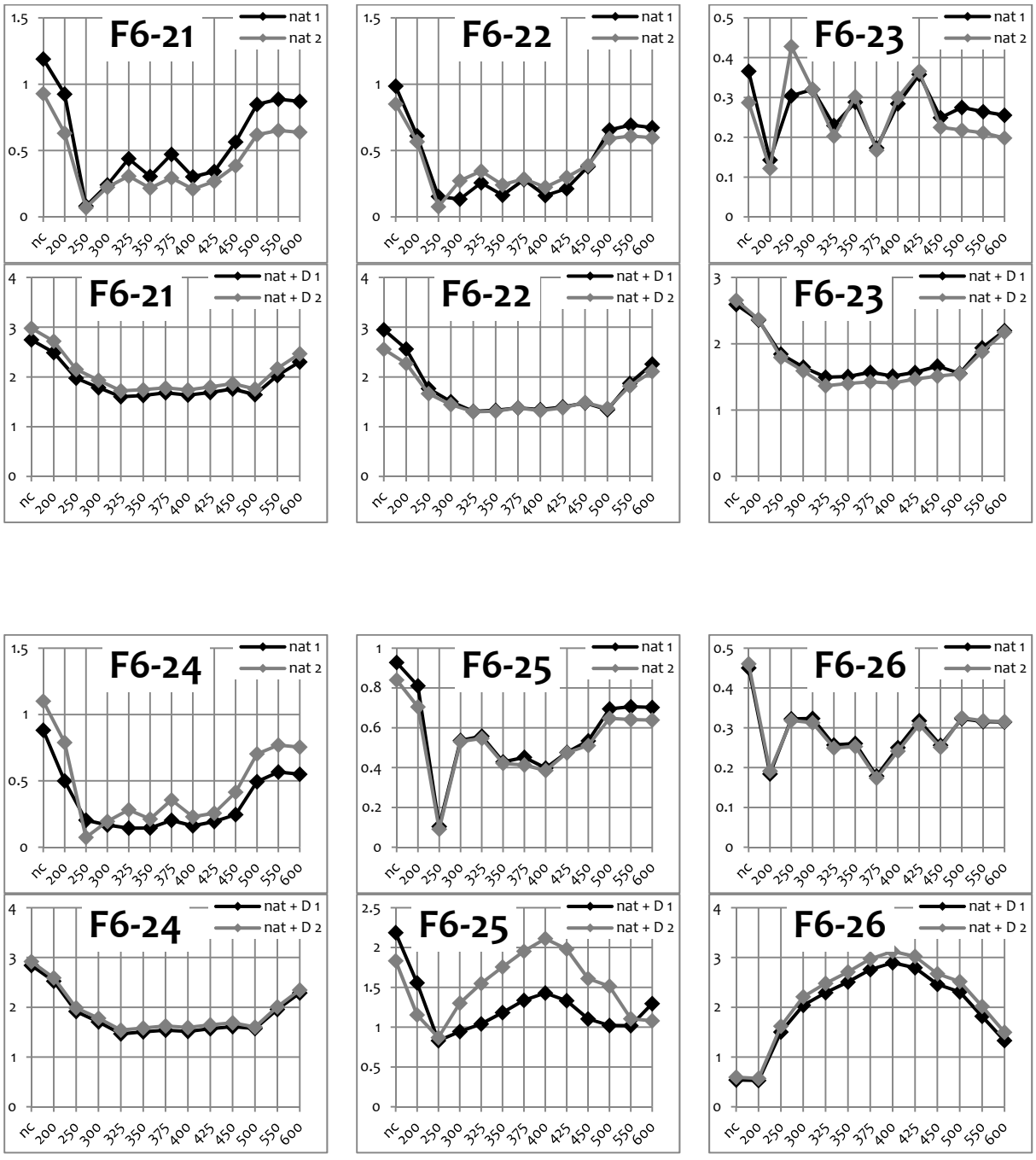
Annexe 5 : Foyer F6 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



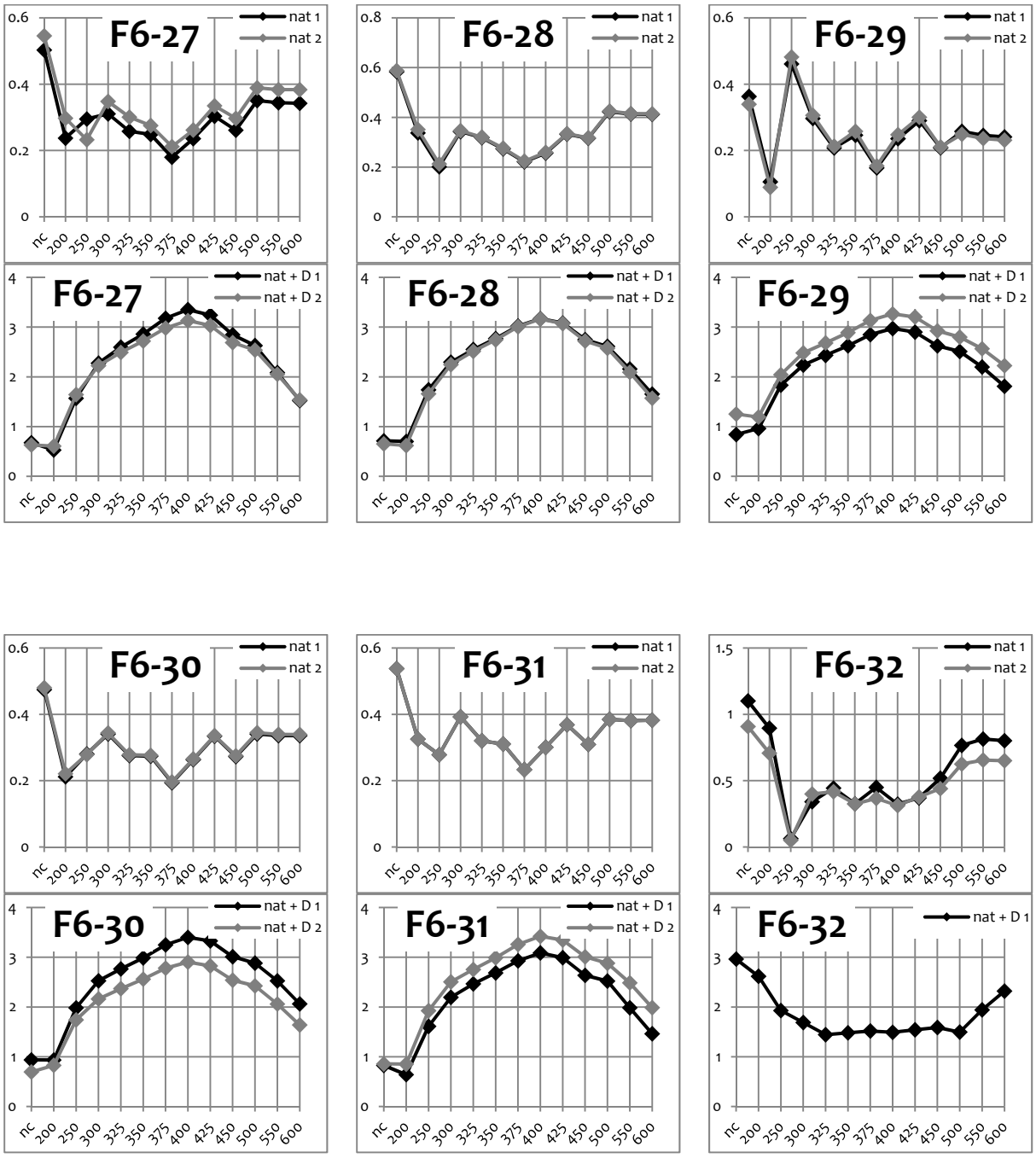
Annexe 5 : Foyer F6 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



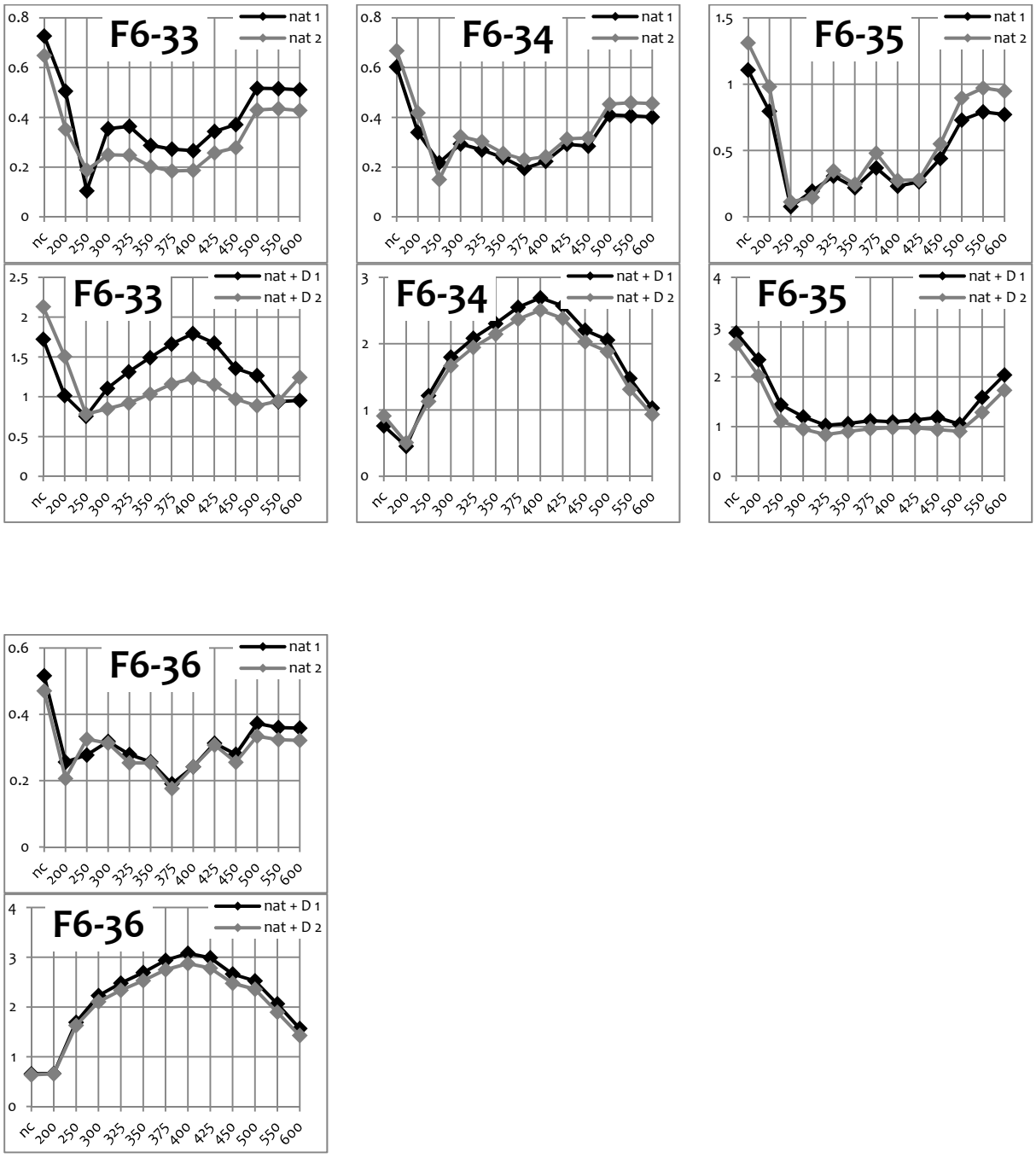
Annexe 5 : Foyer F6 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



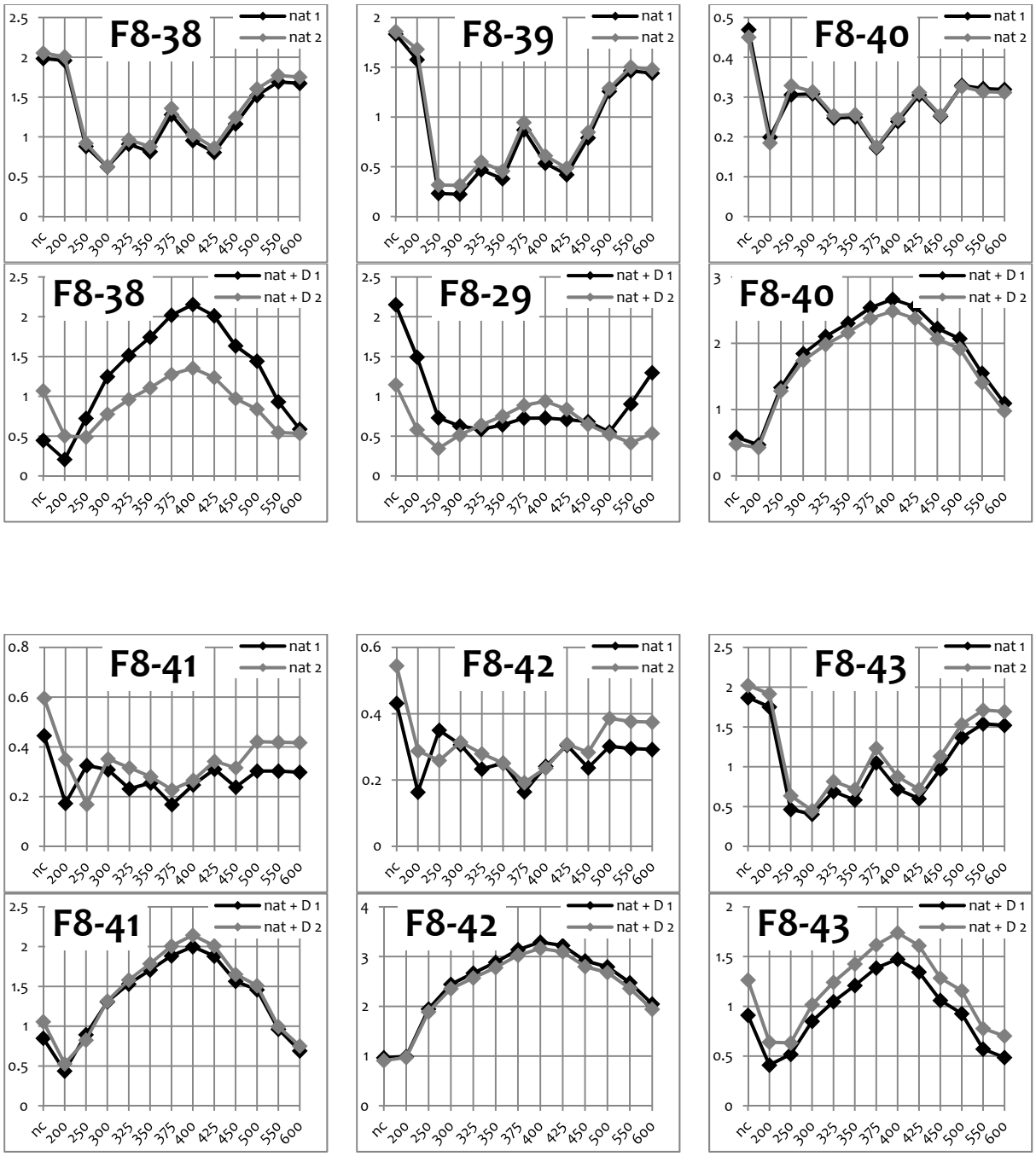
Annexe 5 : Foyer F6 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



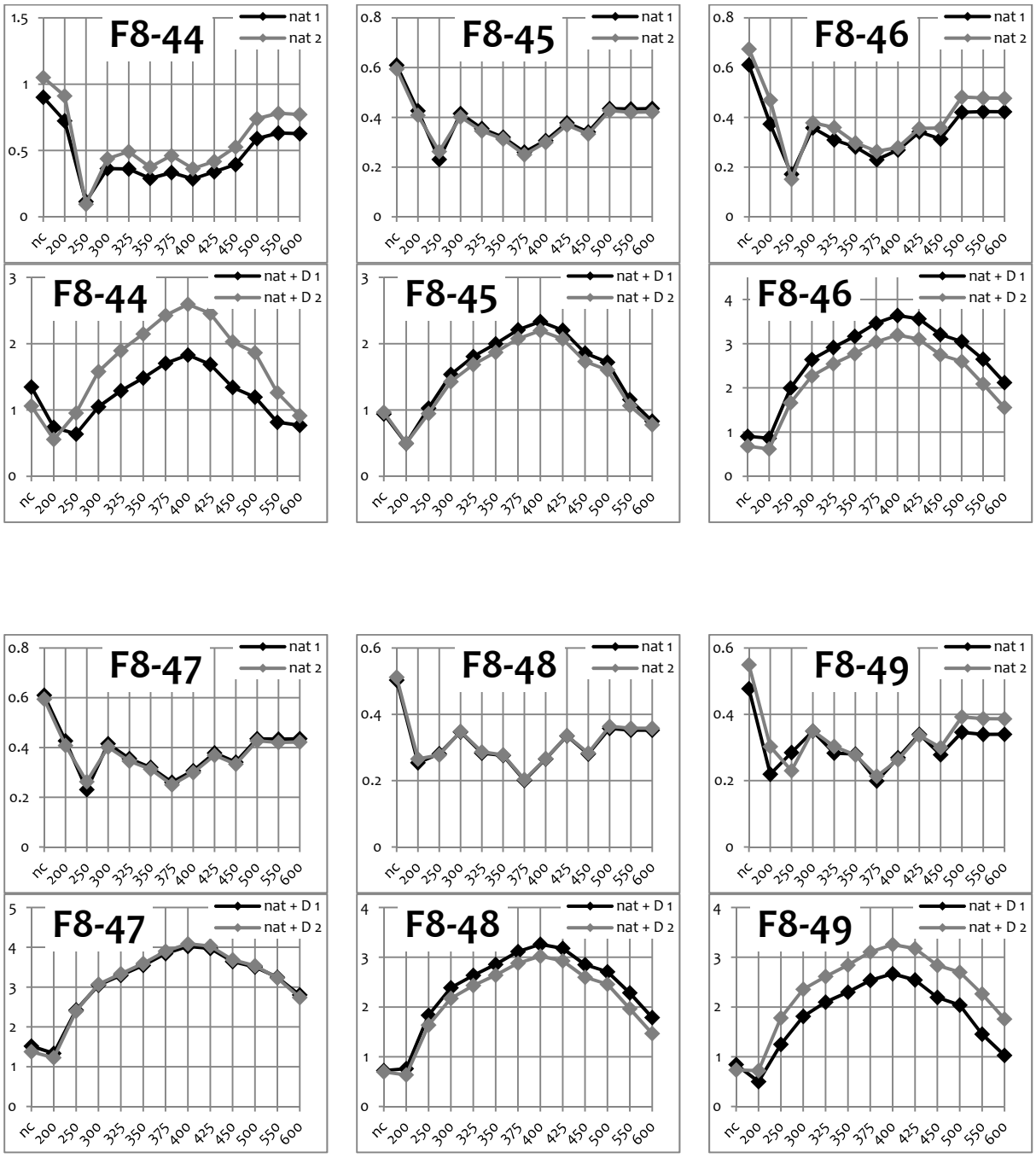
Annexe 5 : Foyer F6 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



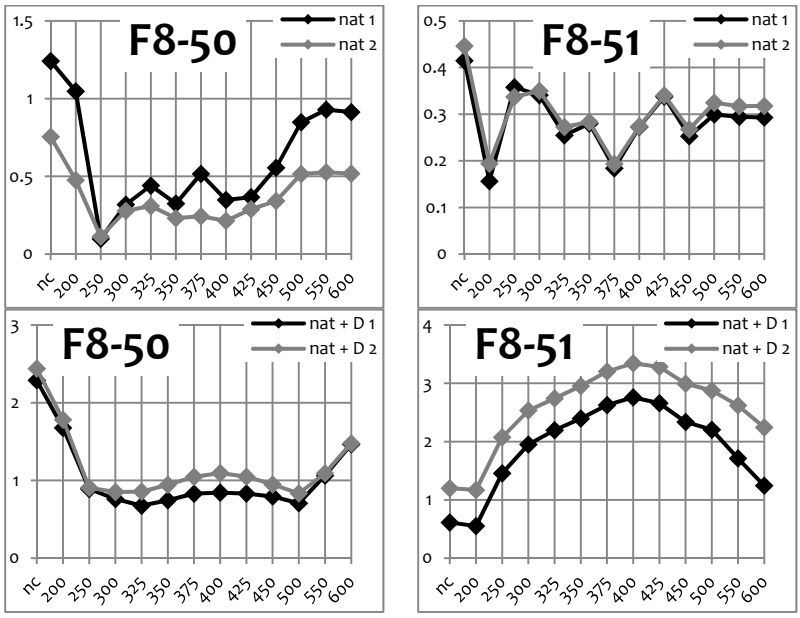
Annexe 6 : Foyer F8 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)



Annexe 6 : Foyer F8 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)

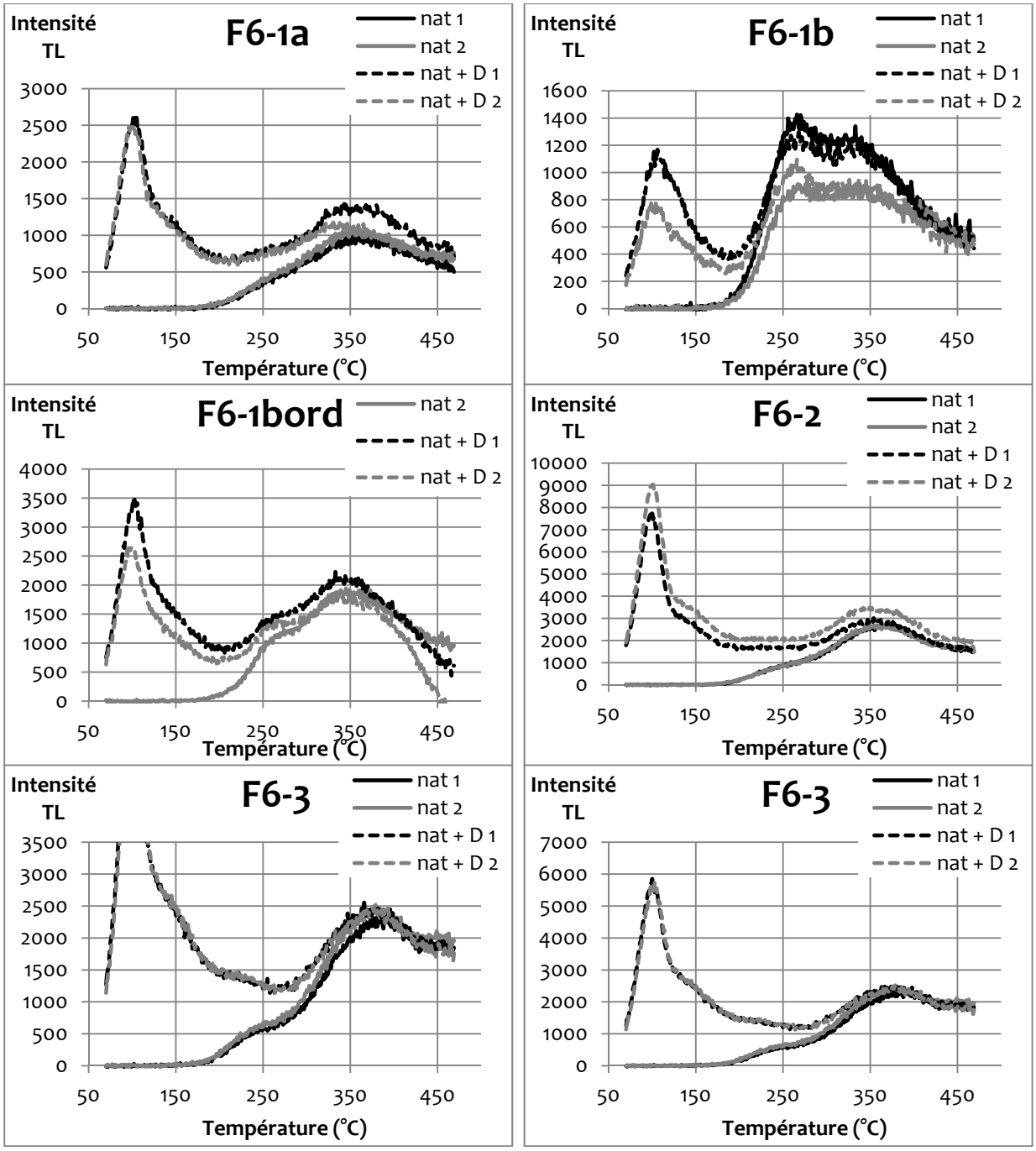


Annexe 6 : Foyer F8 - courbes de variance relative (fraction 200-500 µm du quartz)

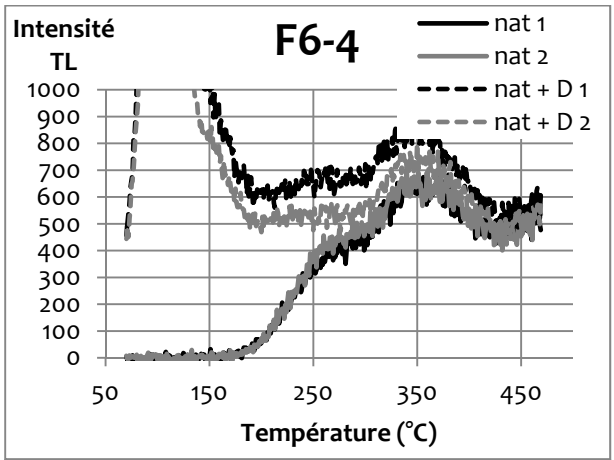


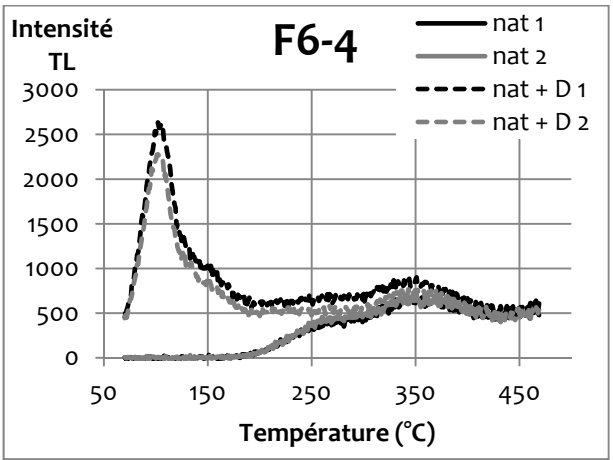
Annexe 7 : Foyer F6 - Signaux TL naturel et naturel+dose mesurés sur la fraction fine polyminérale (3-12 µm)

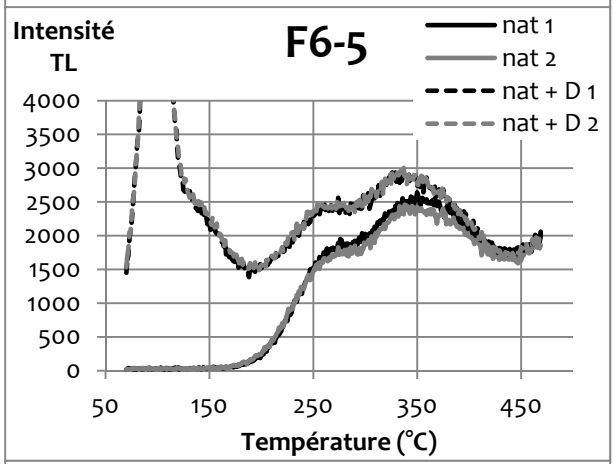
Intensité TL en coups / °C

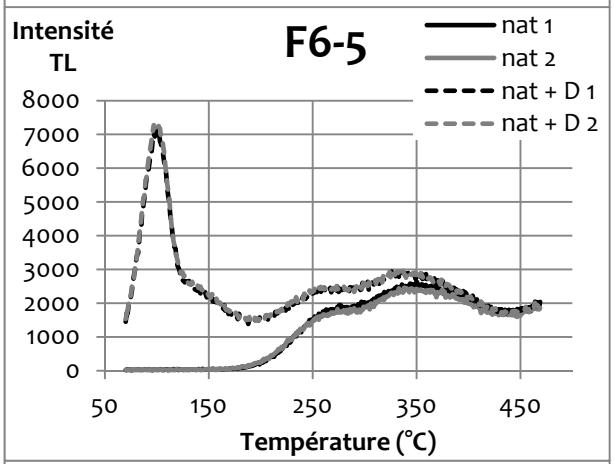


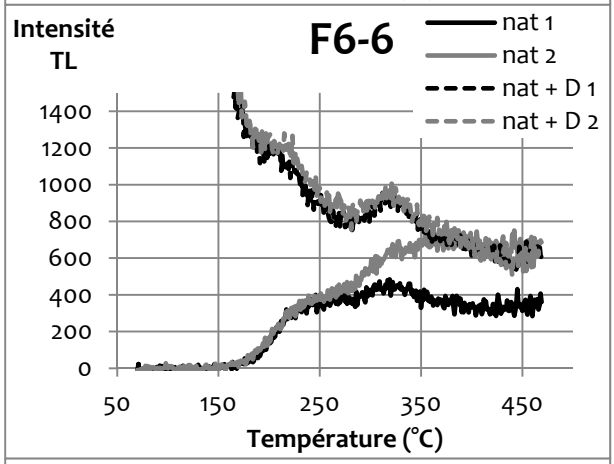
Annexe 7 : Foyer F6 - Fraction fine polyminérale (3-12 µm)

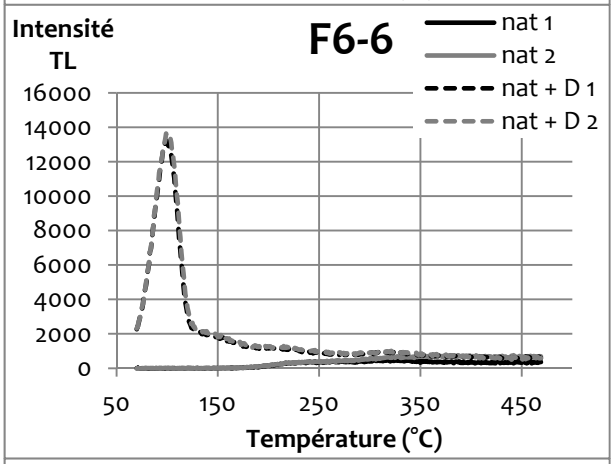


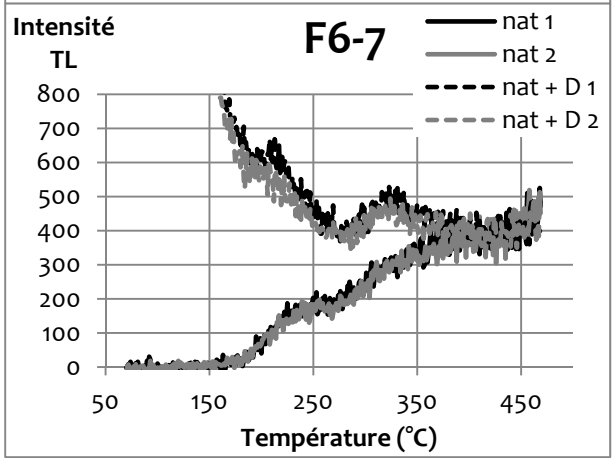


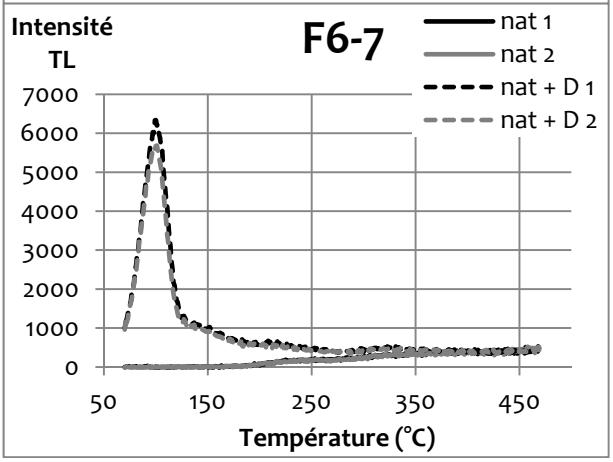




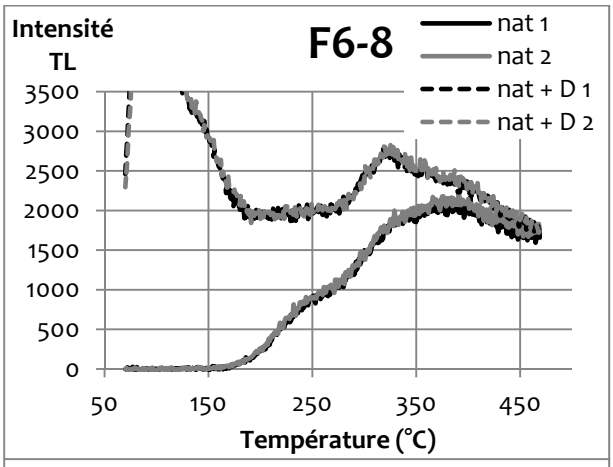


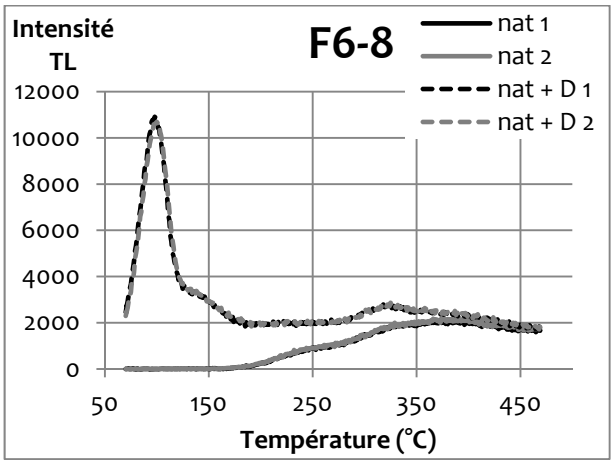


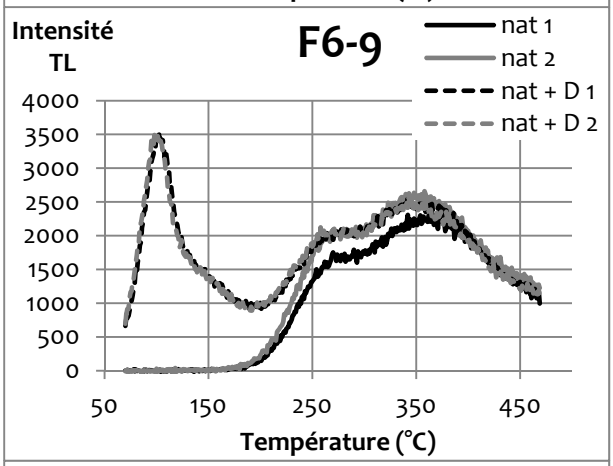


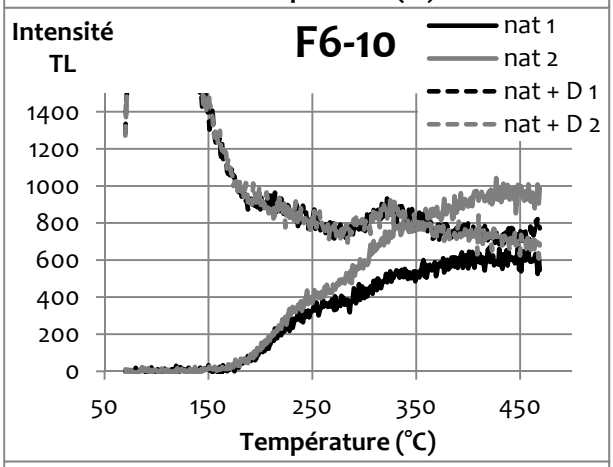


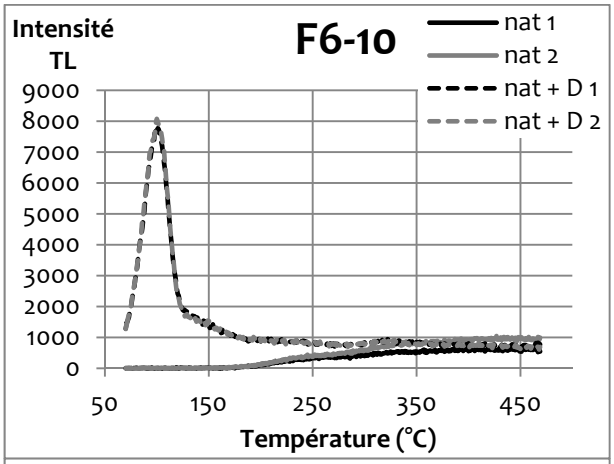
Annexe 7 : Foyer F6 - Fraction fine polyminérale (3-12 µm)

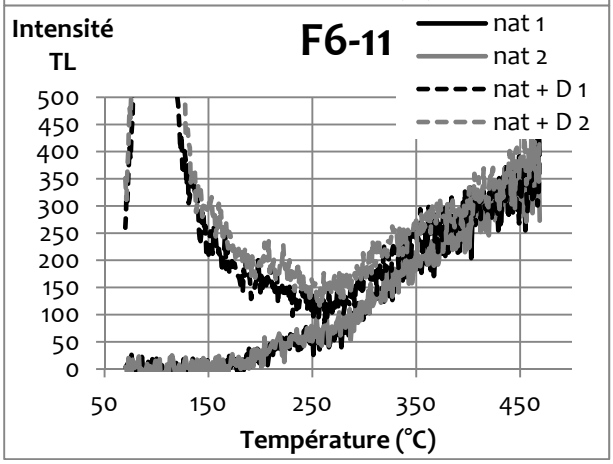


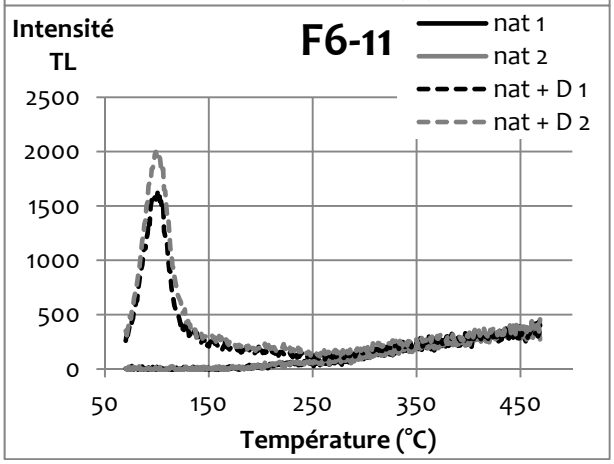




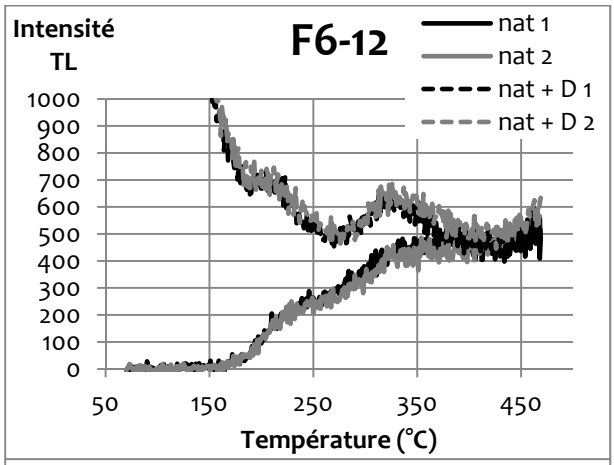


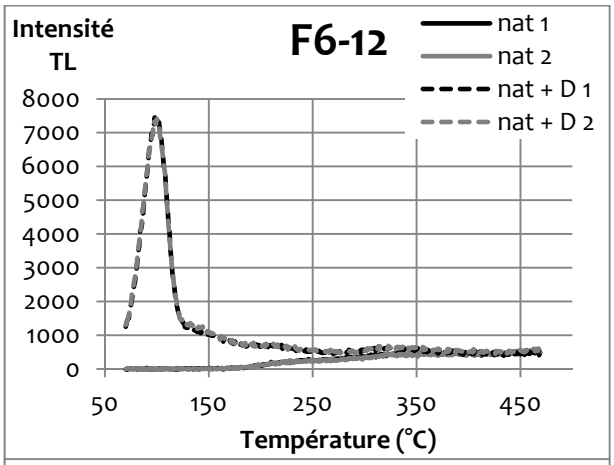


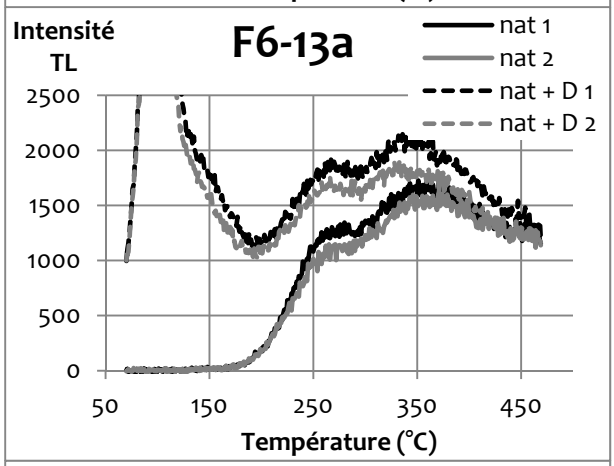


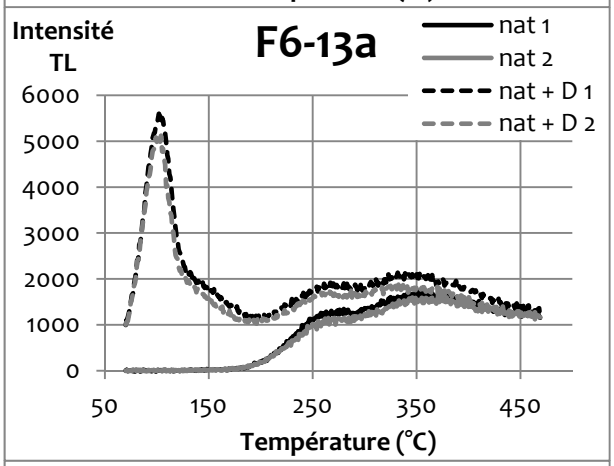


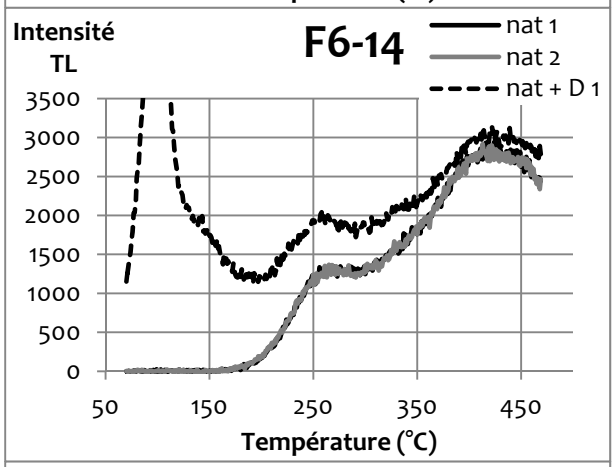
Annexe 7 : Foyer F6 - Fraction fine polyminérale (3-12 µm)

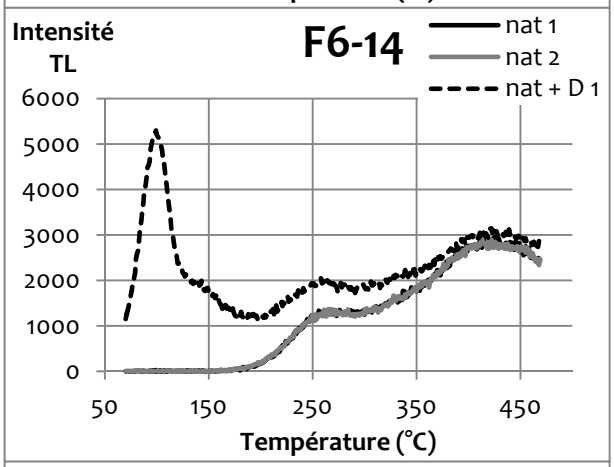


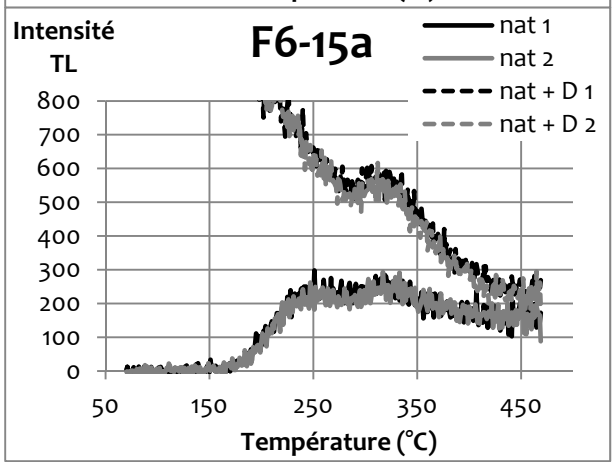


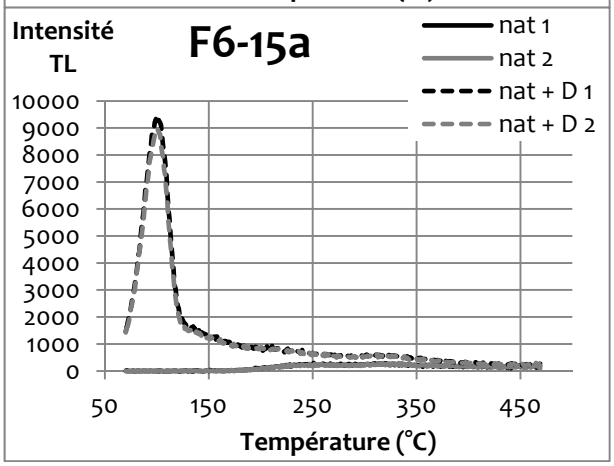




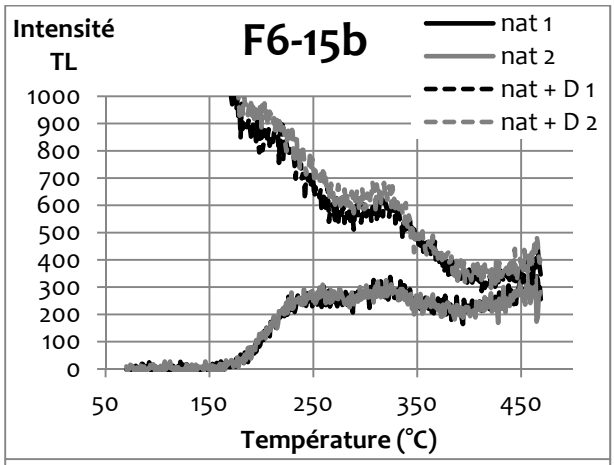


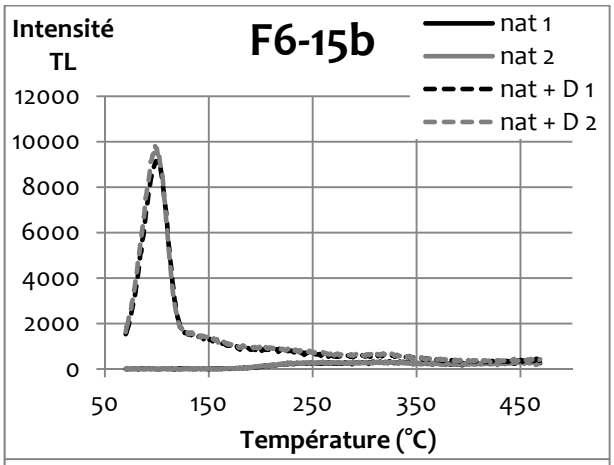


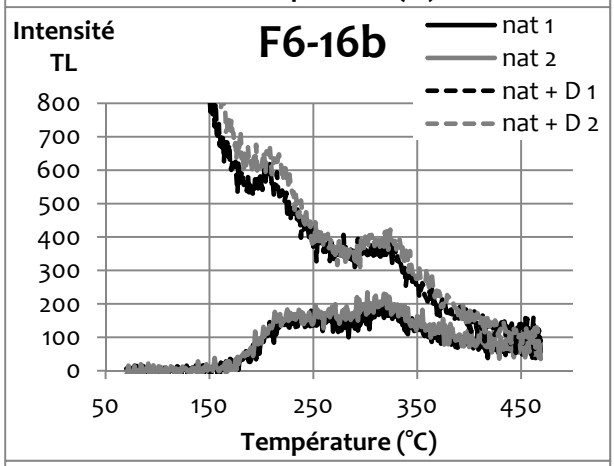


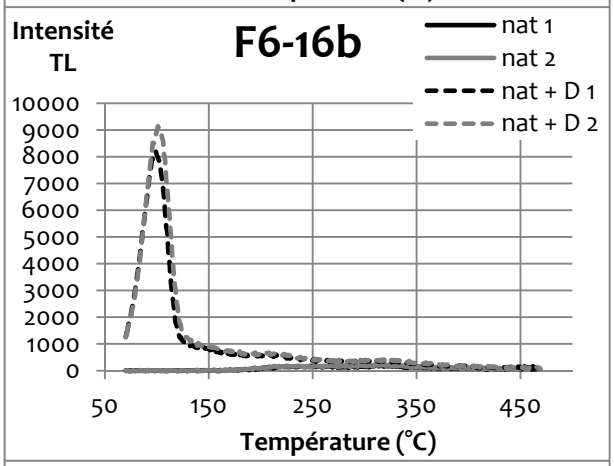


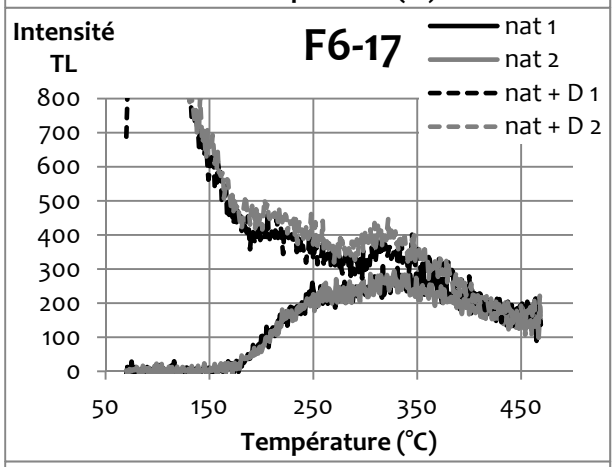
Annexe 7 : Foyer F6 - Fraction fine polyminérale (3-12 µm)

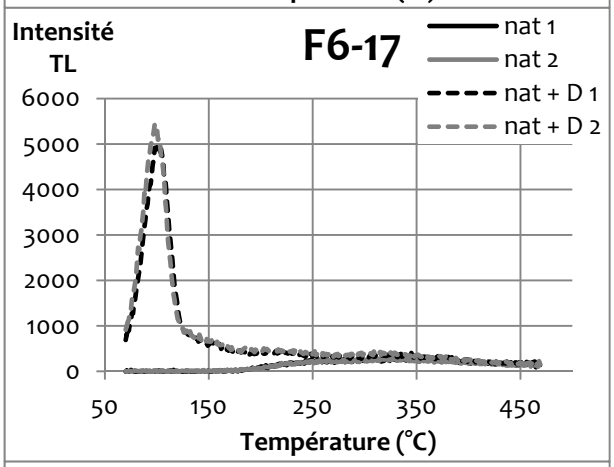


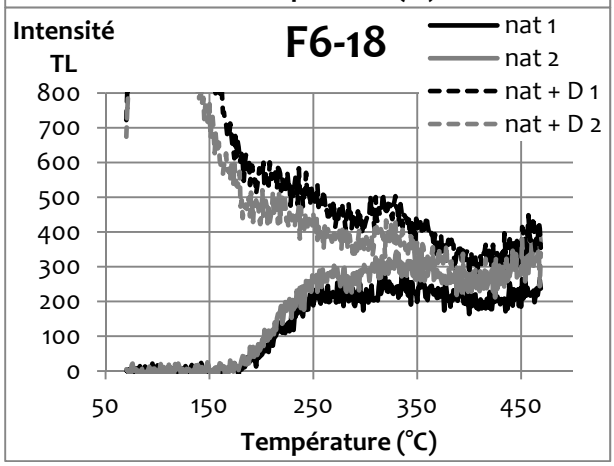


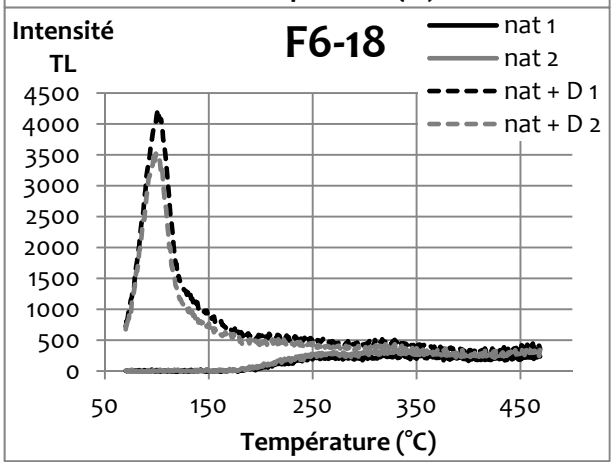




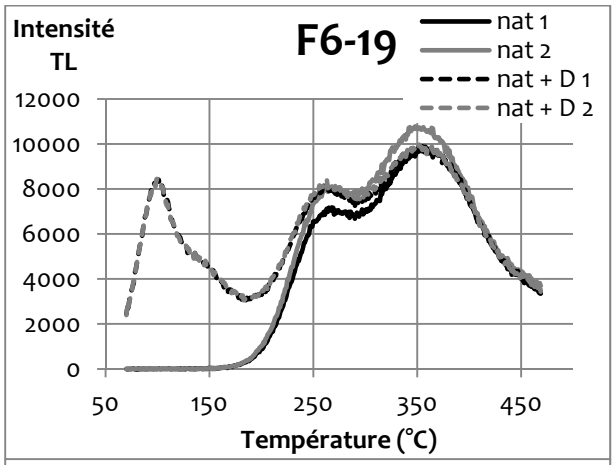


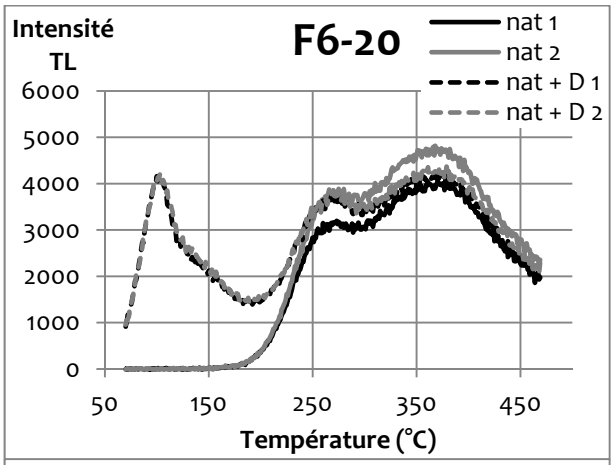


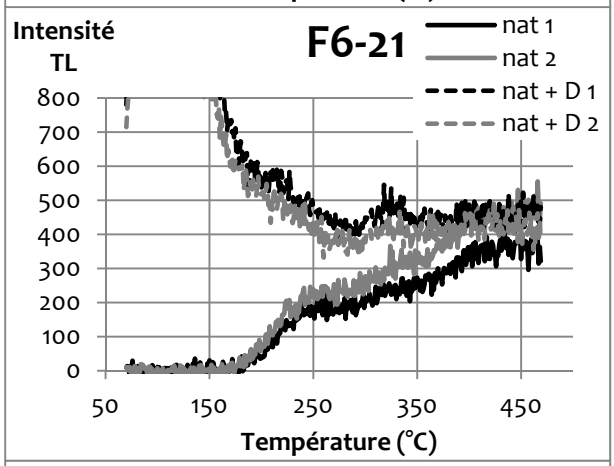


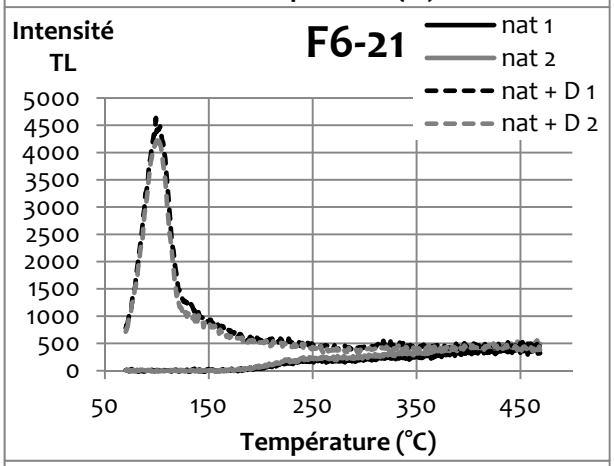


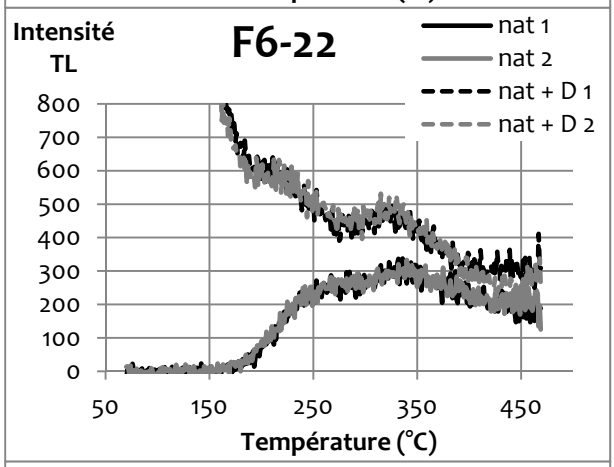
Annexe 7 : Foyer F6 - Fraction fine polyminérale (3-12 µm)

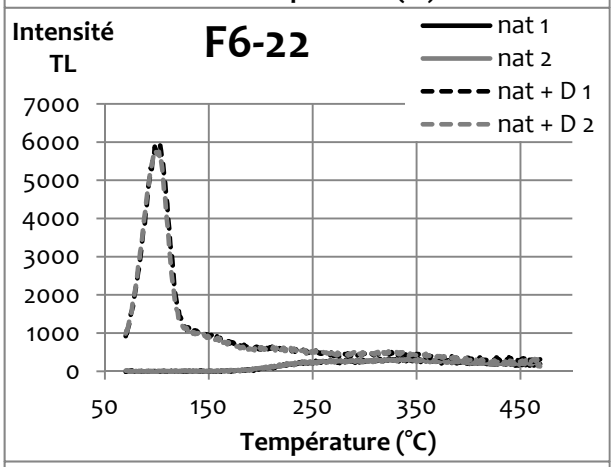


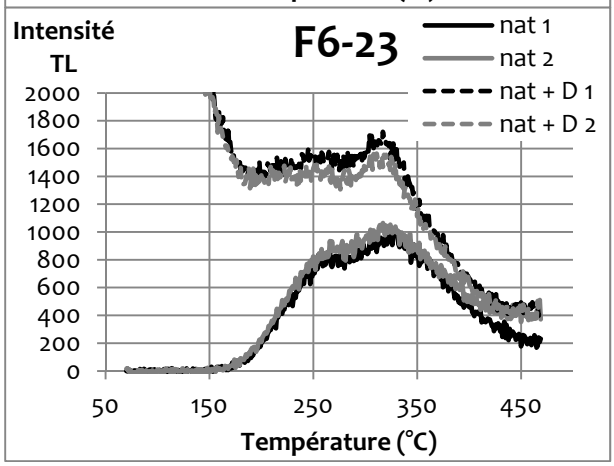


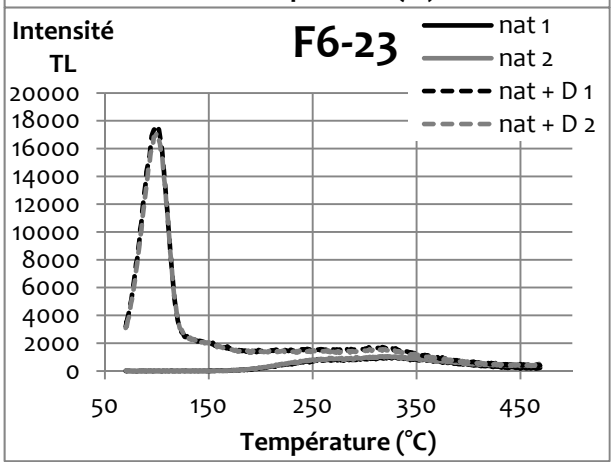




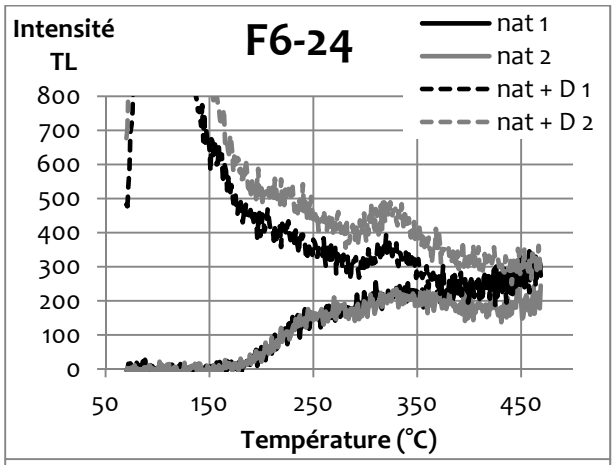


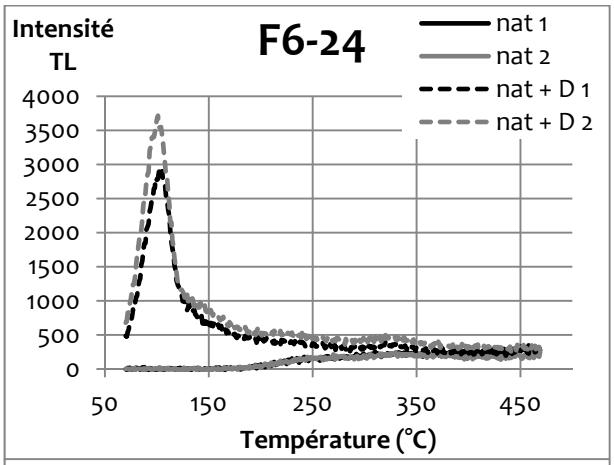


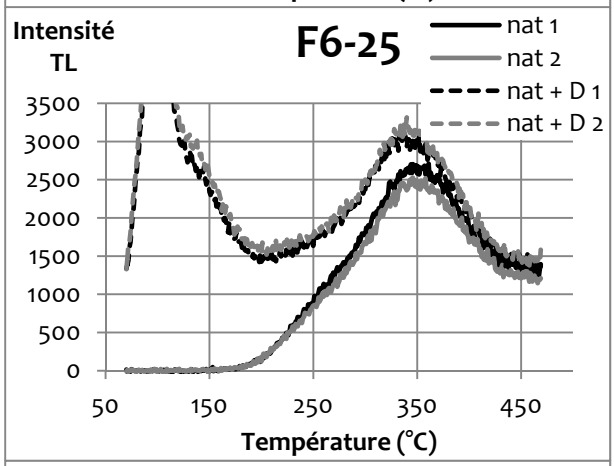


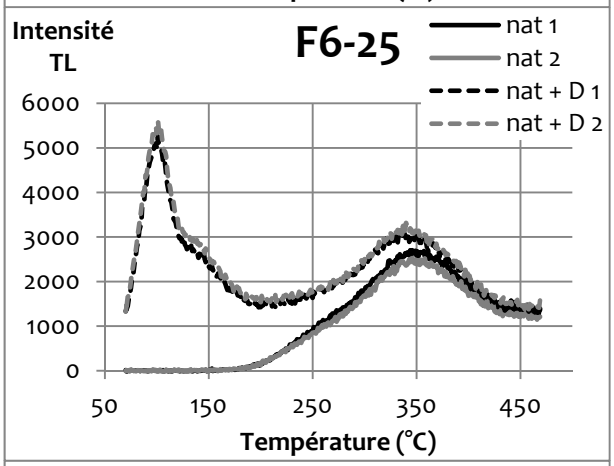


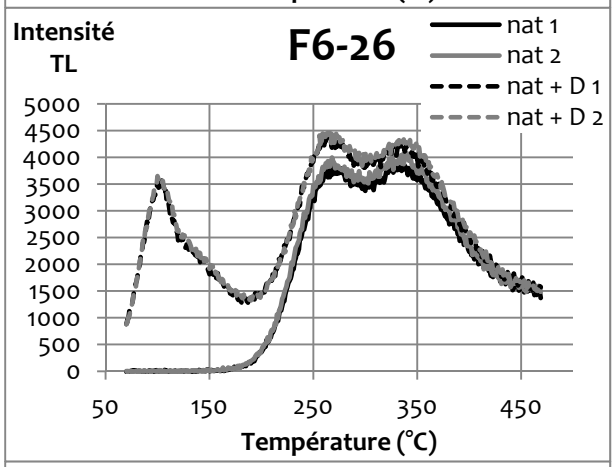
Annexe 7 : Foyer F6 - Fraction fine polyminérale (3-12 µm)

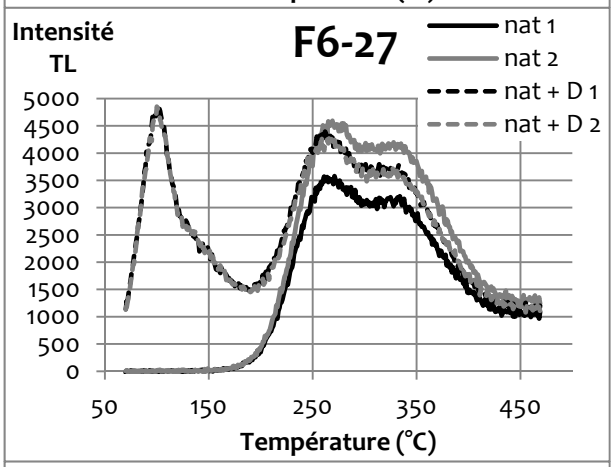


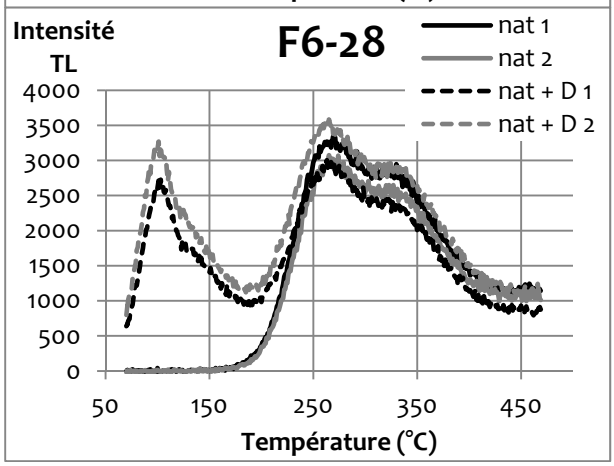


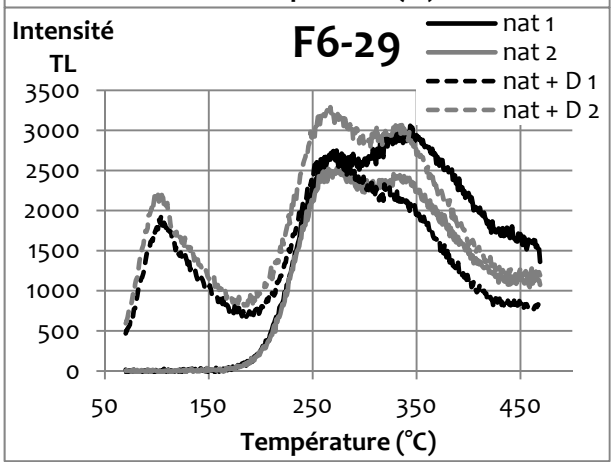




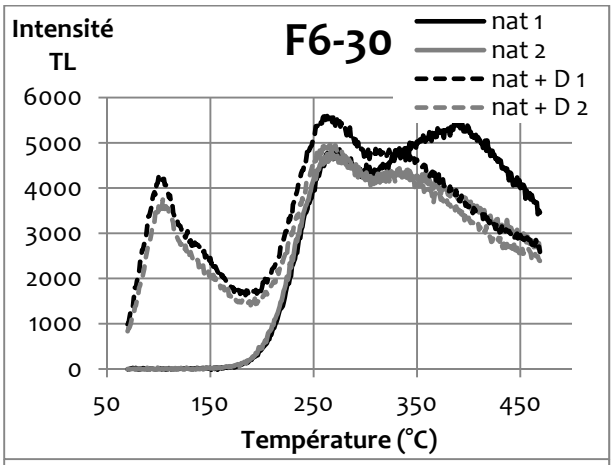


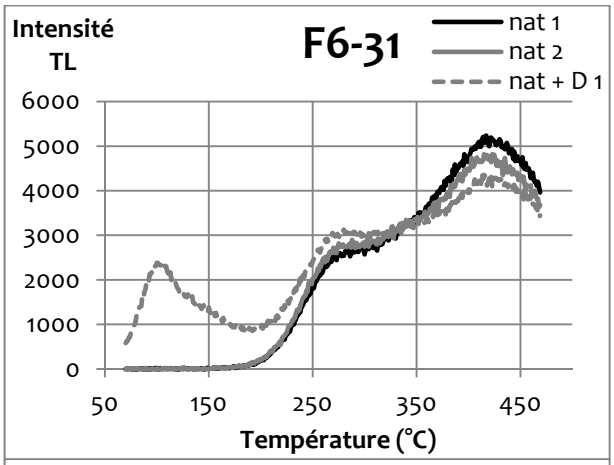


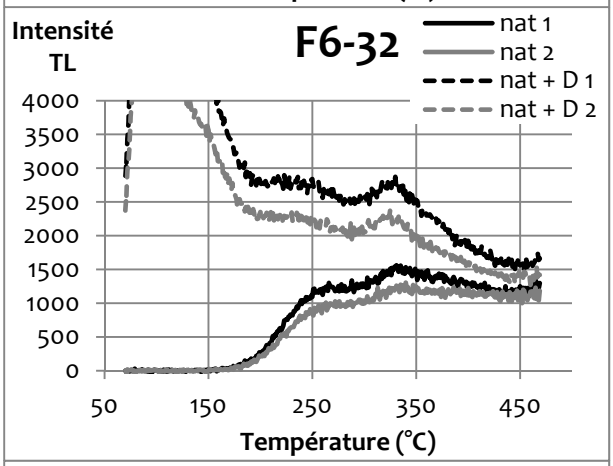


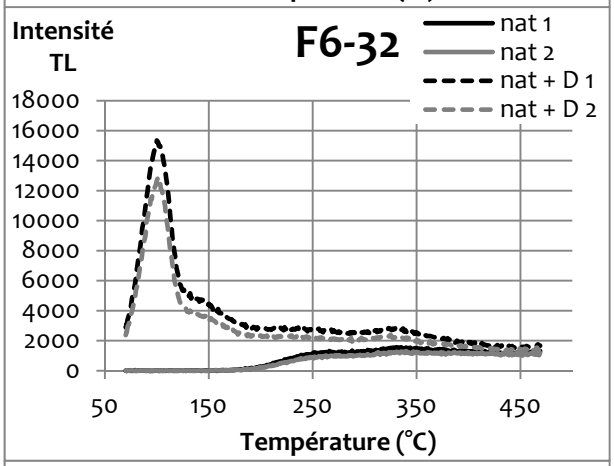


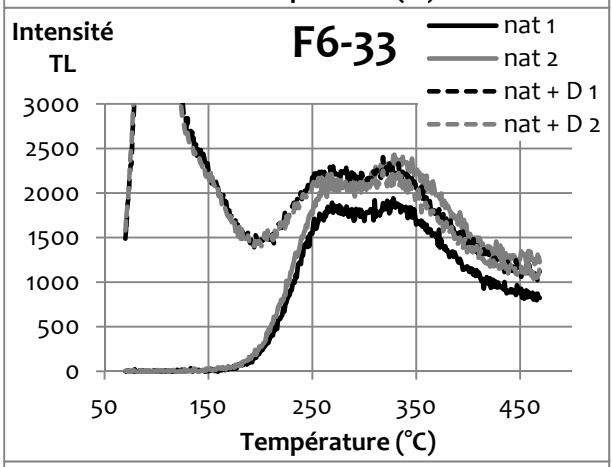
Annexe 7 : Foyer F6 - Fraction fine polyminérale (3-12 µm)

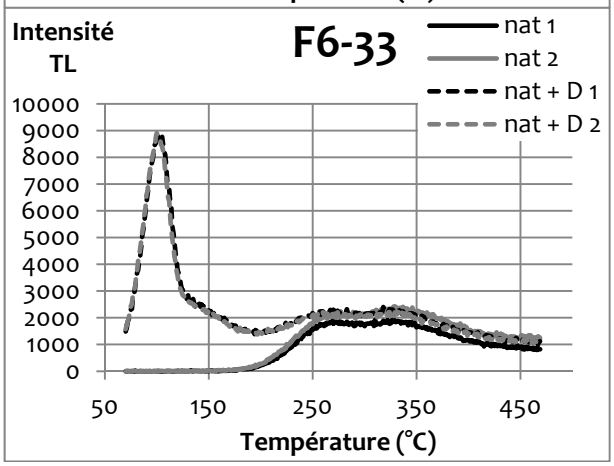


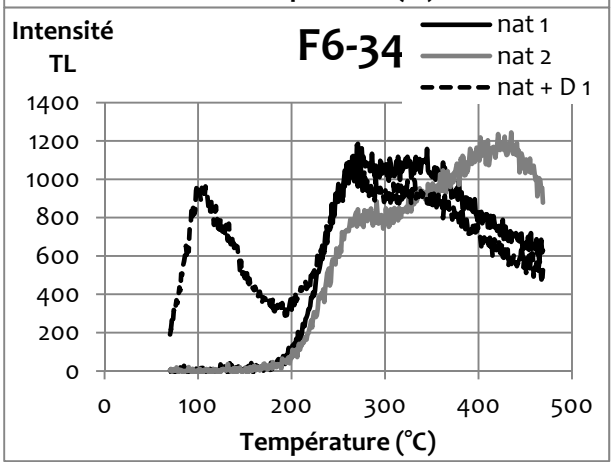




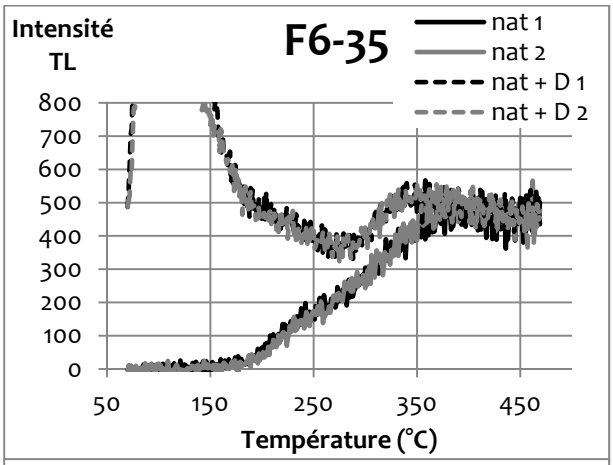


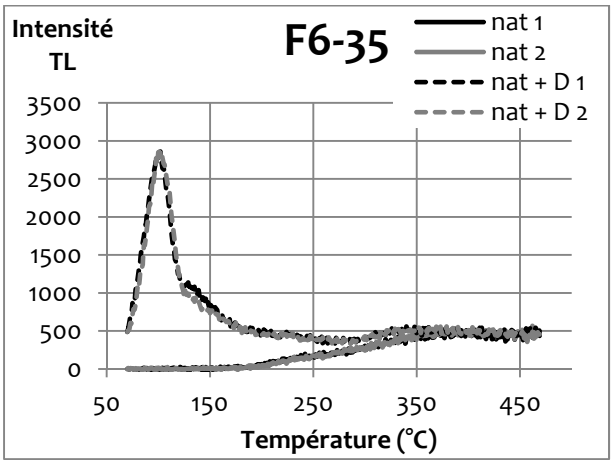


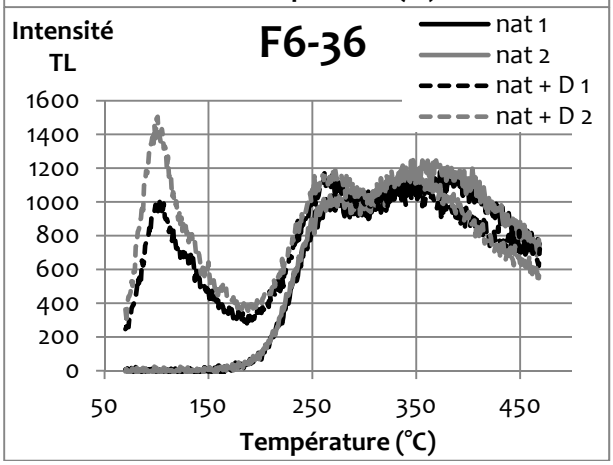




Annexe 7 : Foyer F6 - Fraction fine polyminérale (3-12 µm)

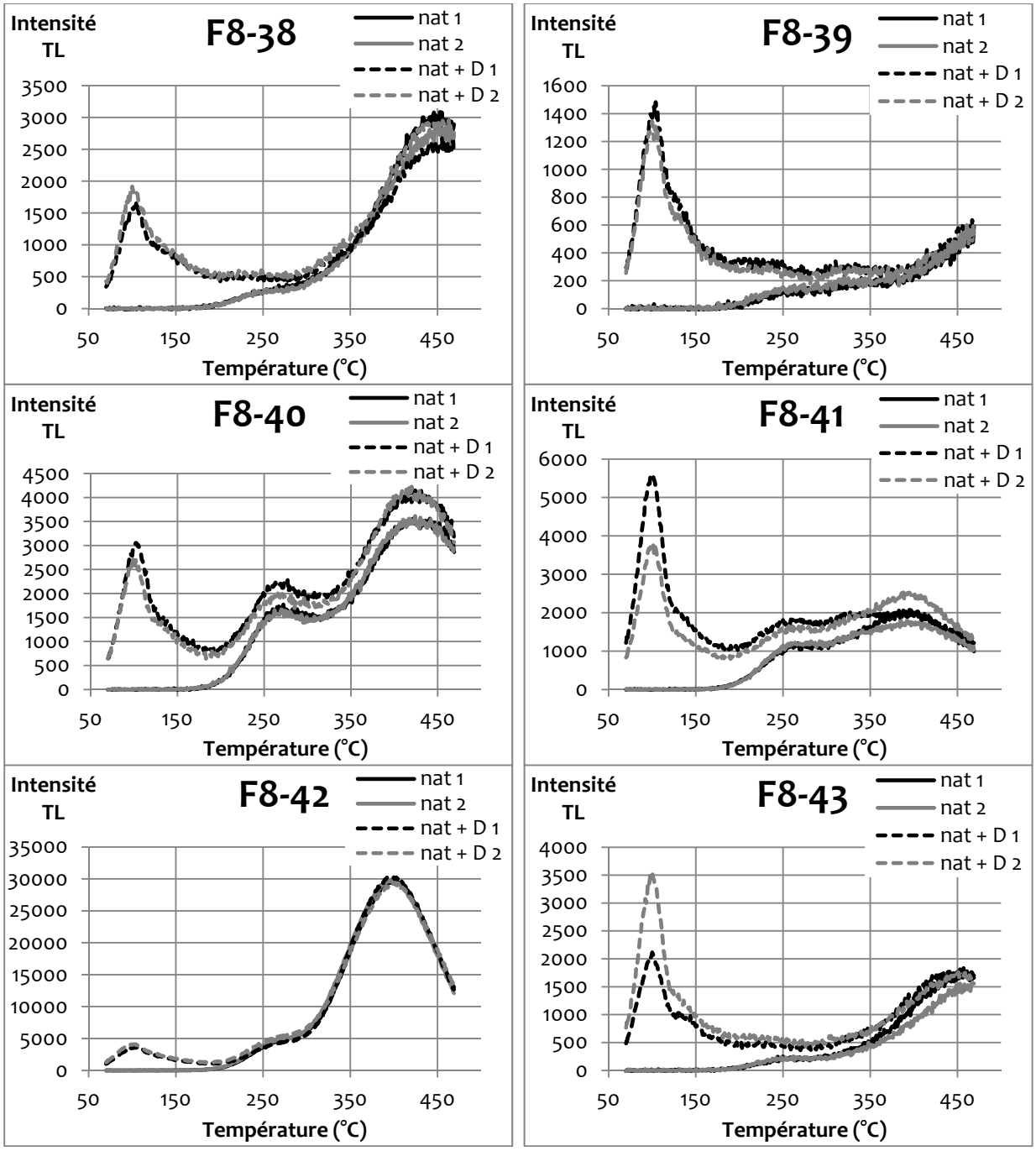




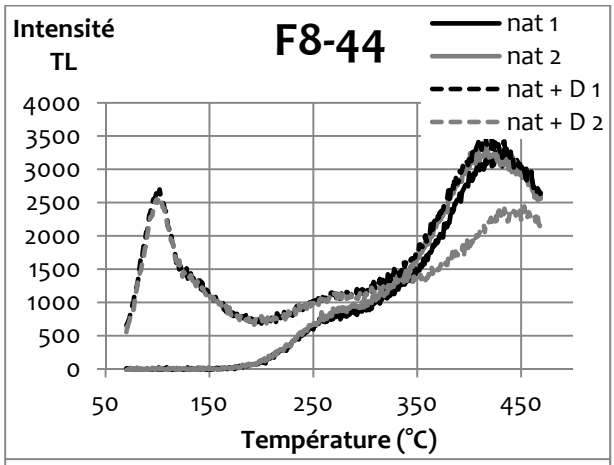


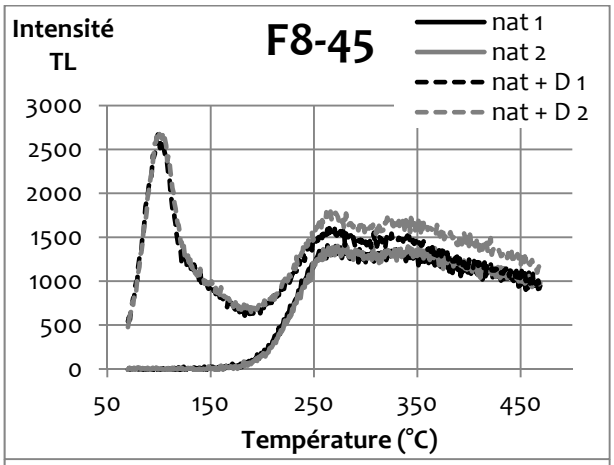
Annexe 8 : Foyer F8 - Signaux TL naturel et naturel+dose mesurés sur la fraction fine polyminérale (3 - 12 µm)

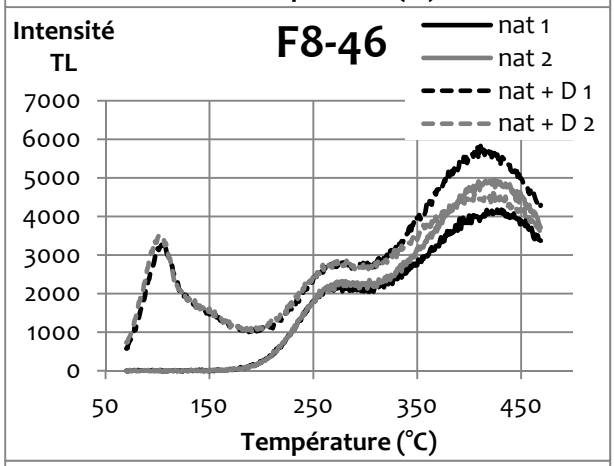
Intensité TL en coups / °C

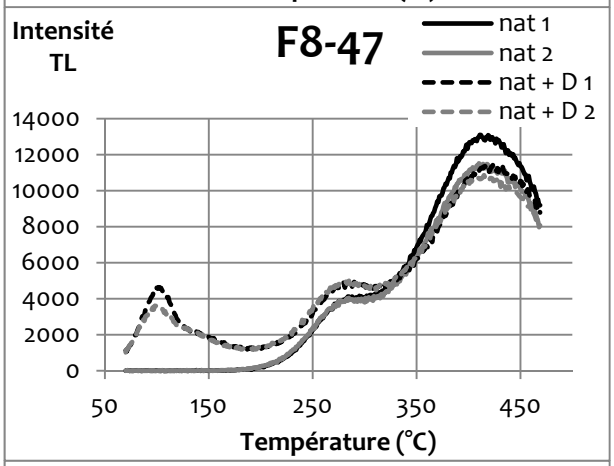


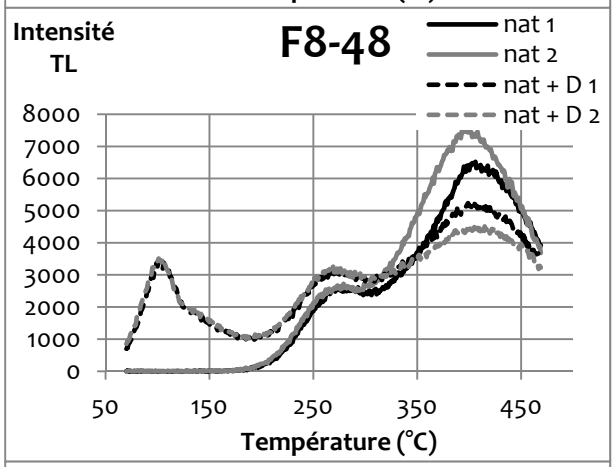
Annexe 8 : Foyer F8 - Fraction fine polyminérale (3-12 µm)

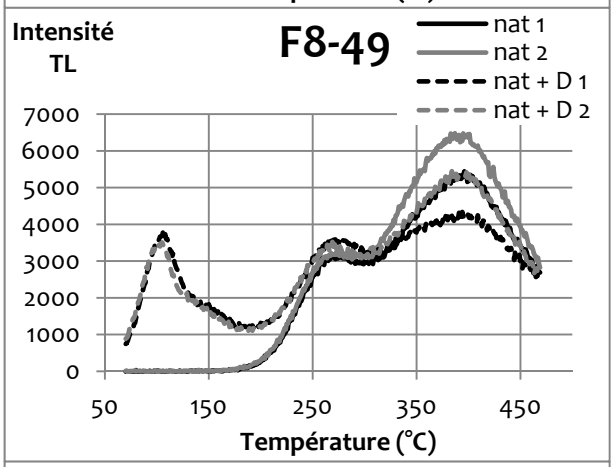


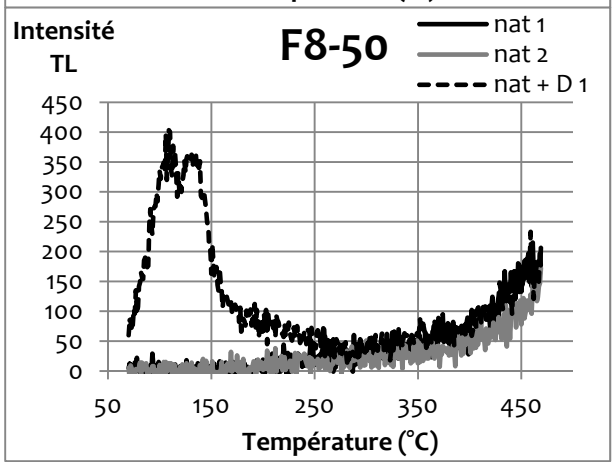


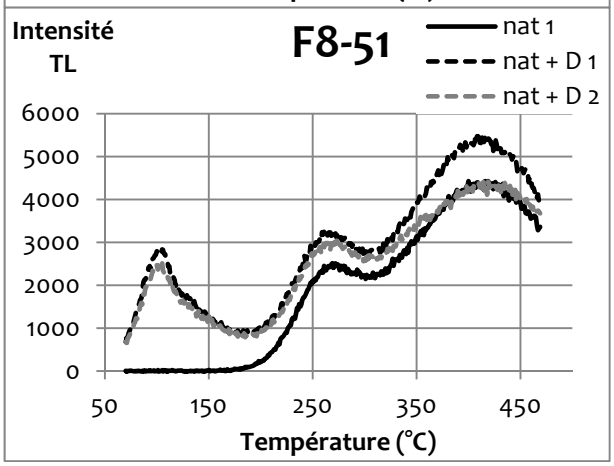




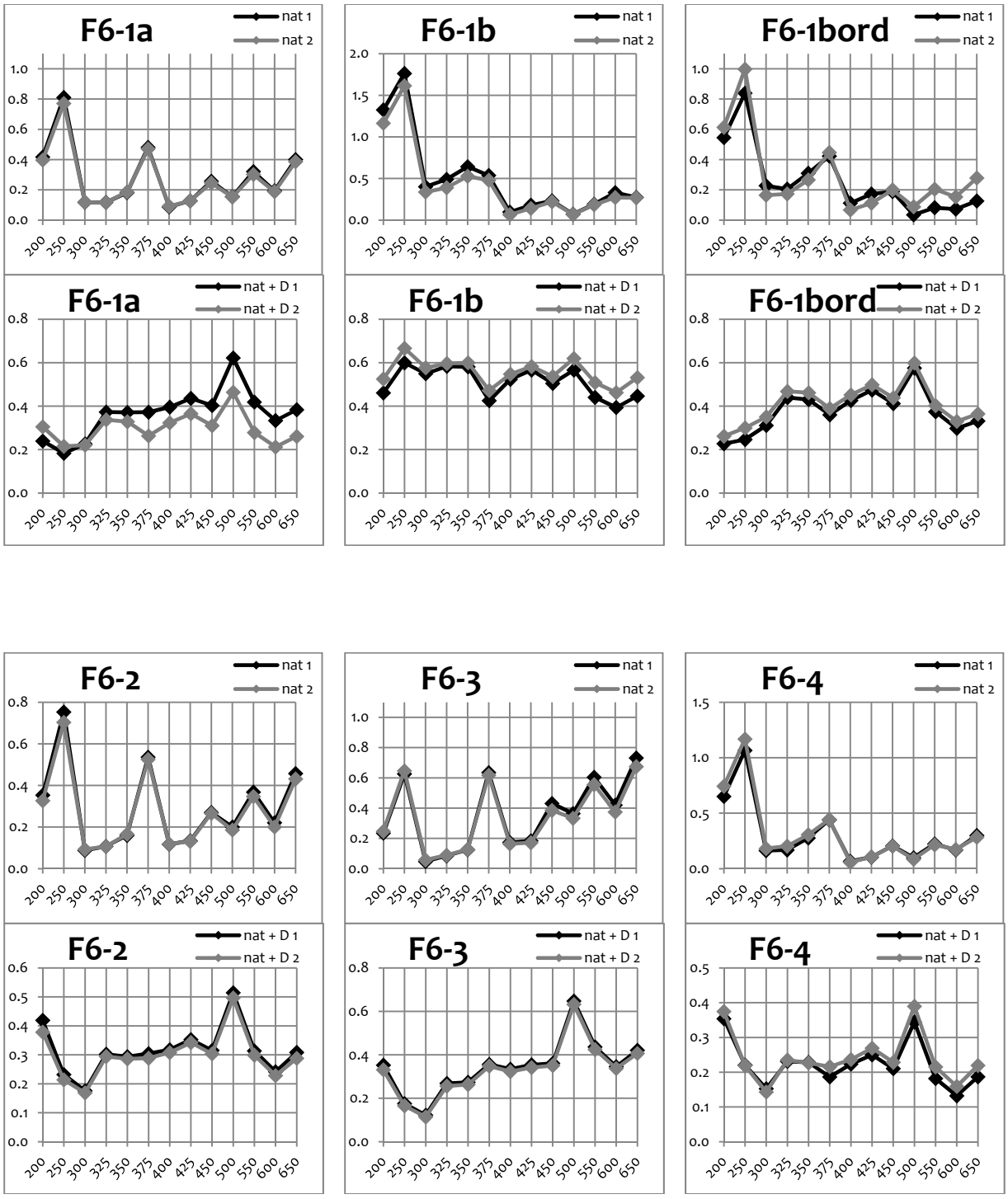




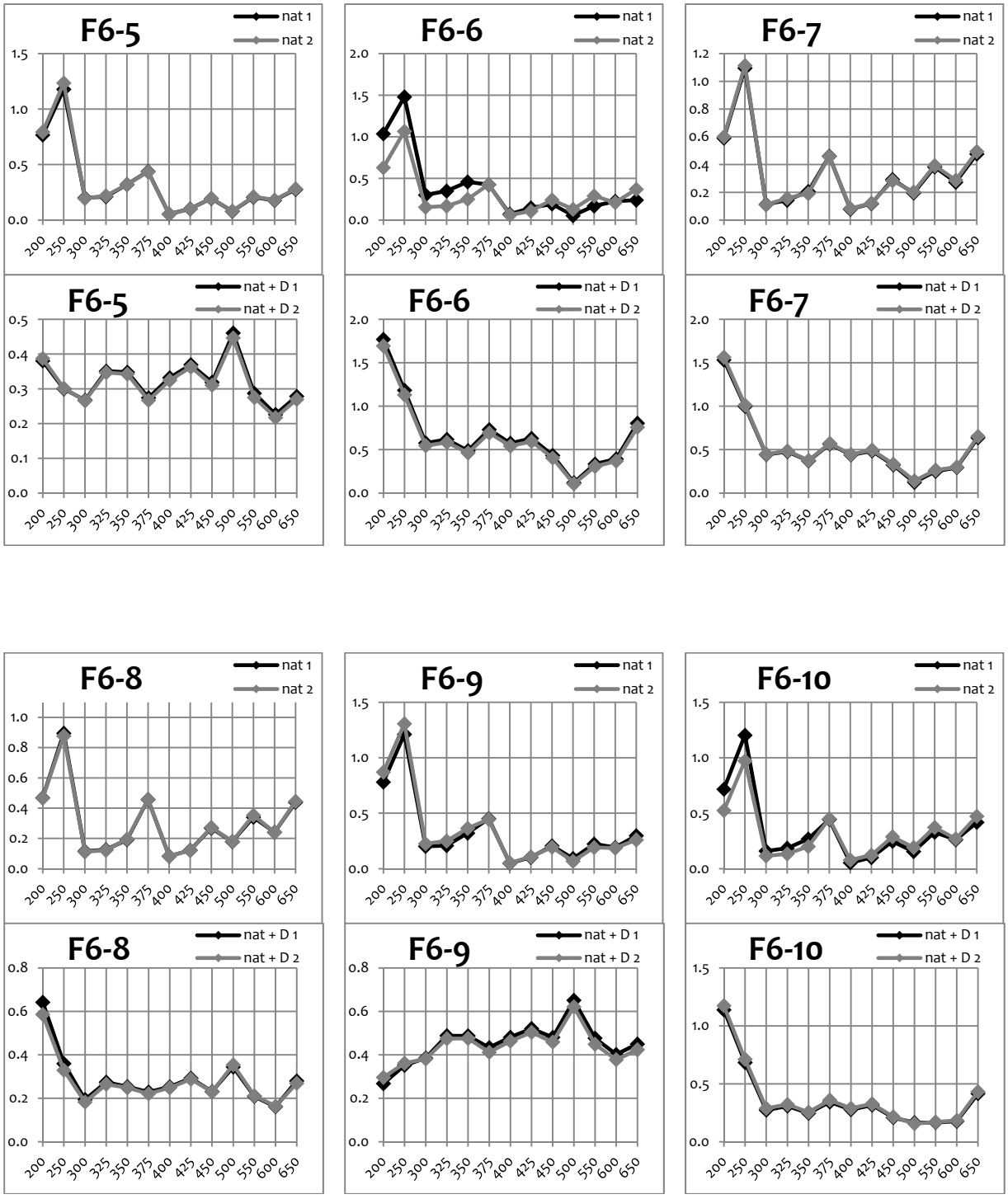




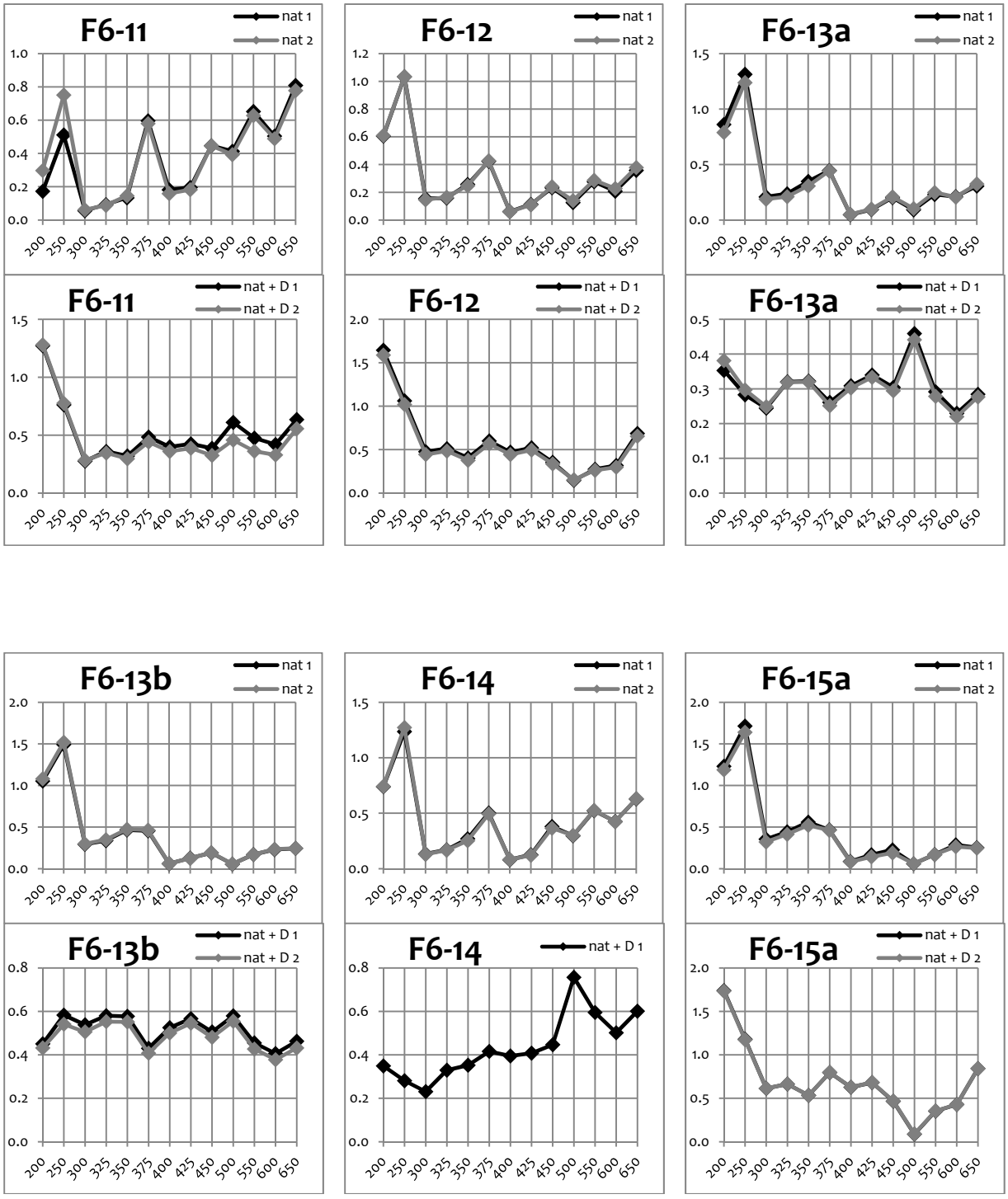
Annexe 9 : Foyer F6 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale)



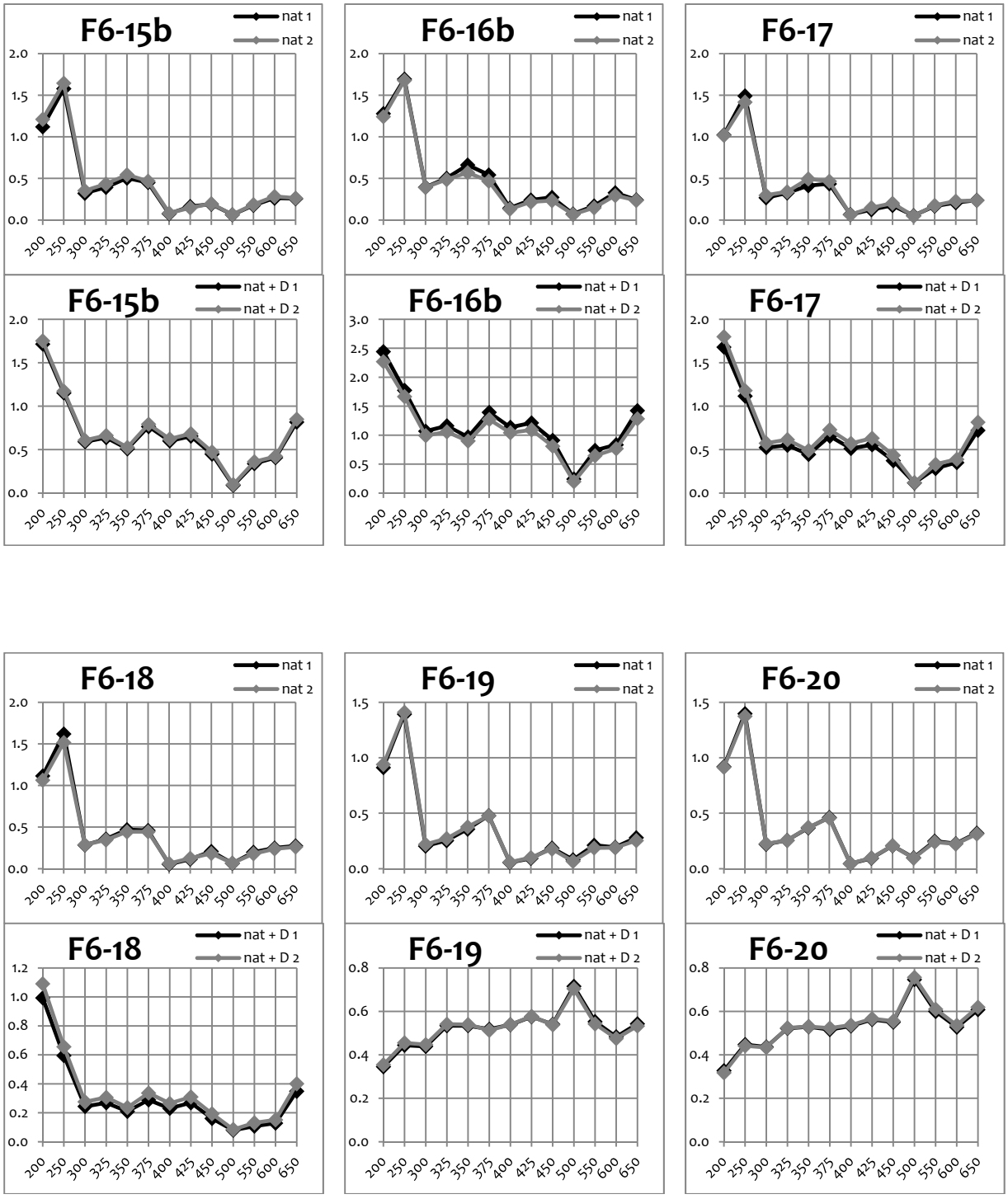
Annexe 9 : Foyer F6 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale)



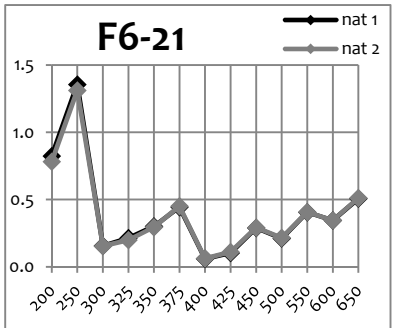
Annexe 9 : Foyer F6 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale)

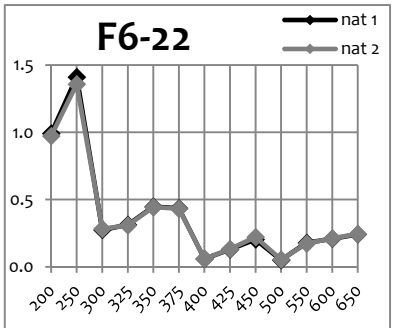


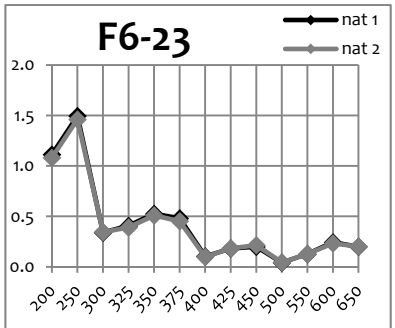
Annexe 9 : Foyer F6 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale)

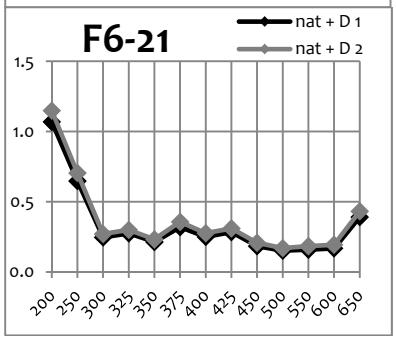


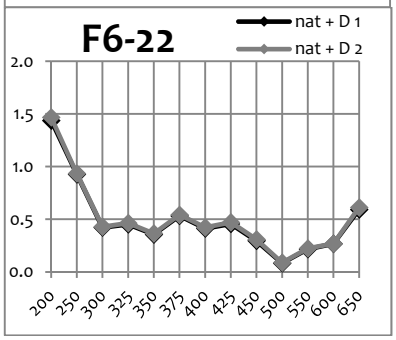
Annexe 9 : Foyer F6 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale)

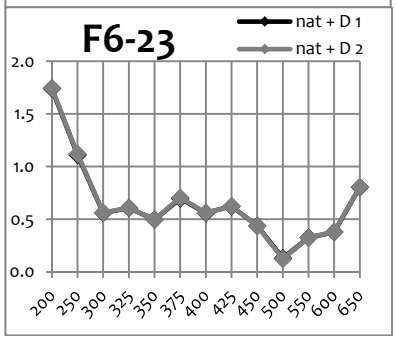


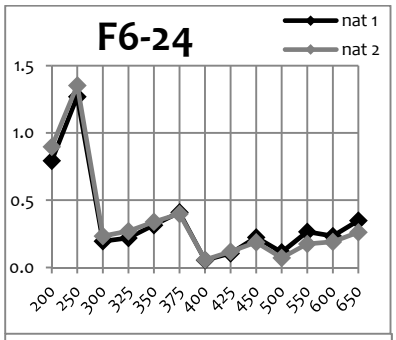


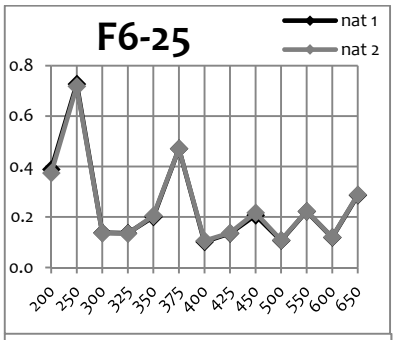


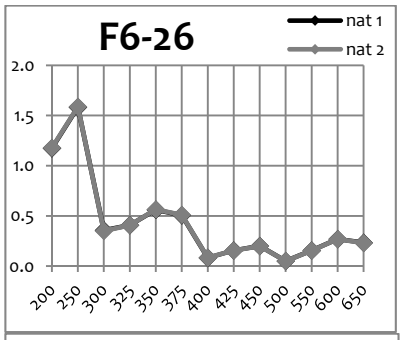


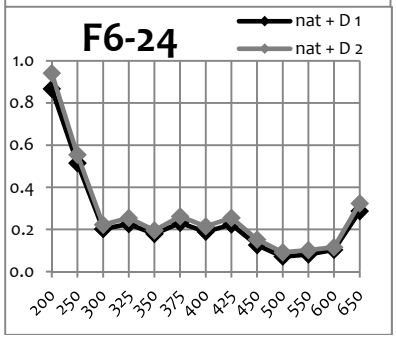


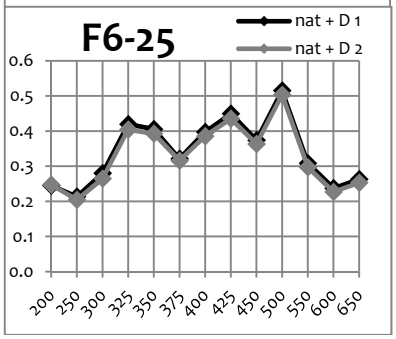


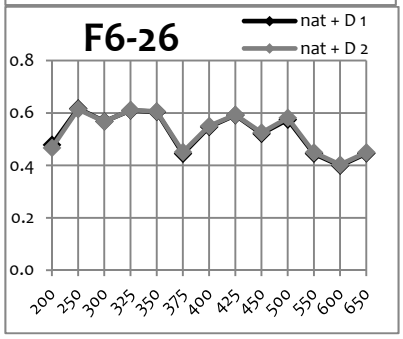




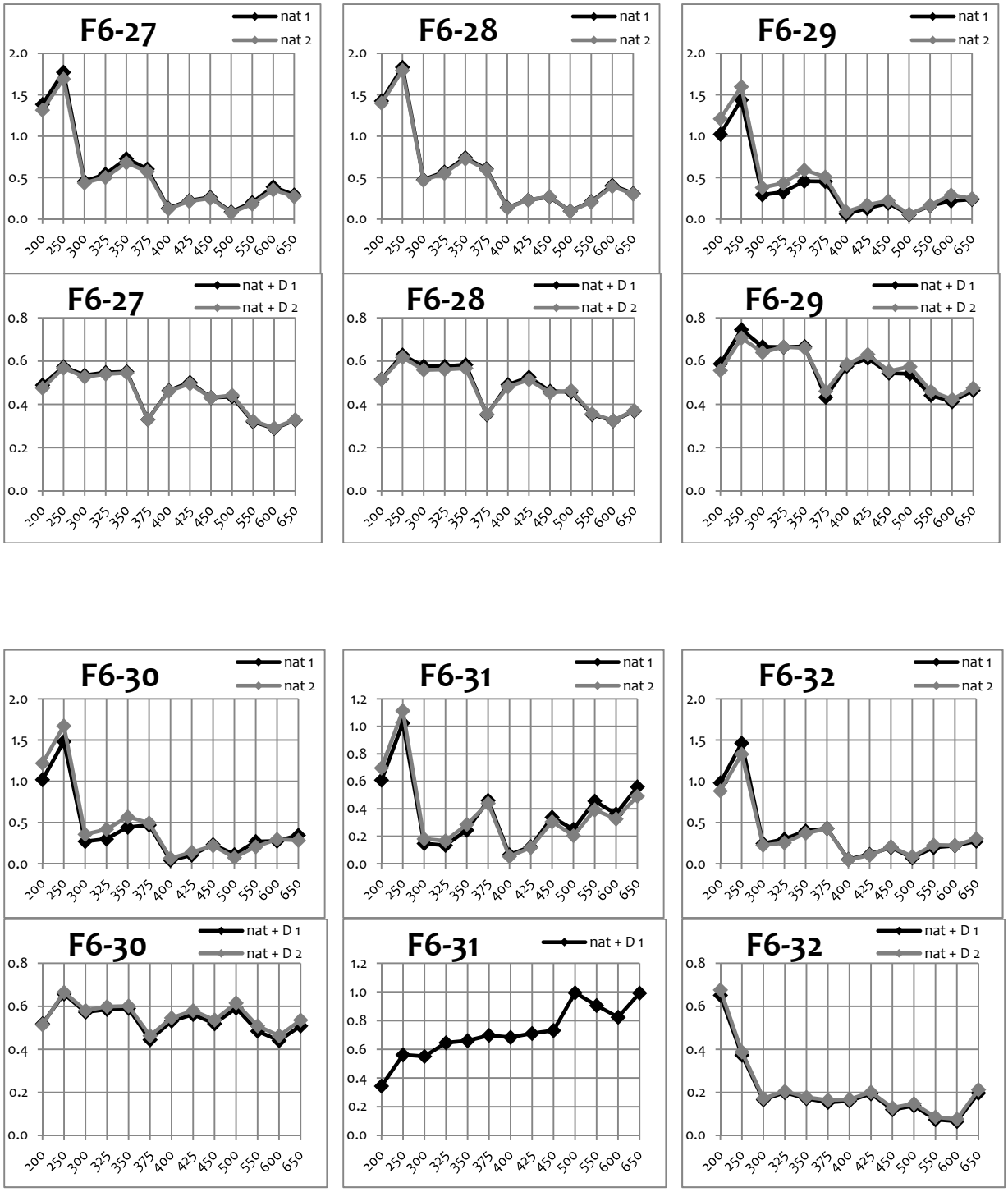




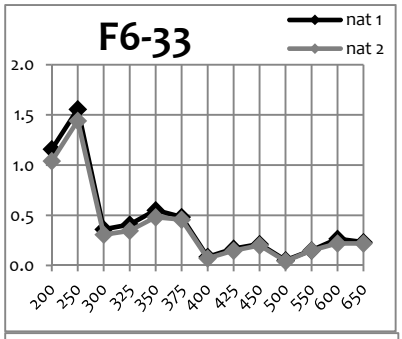


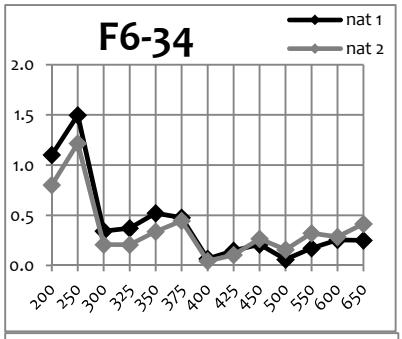


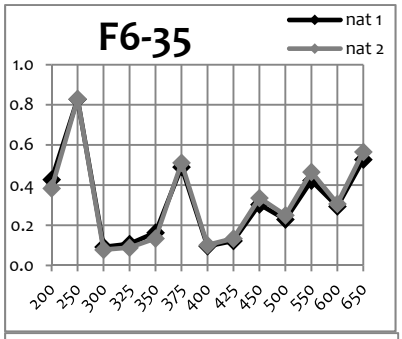
Annexe 9 : Foyer F6 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale)

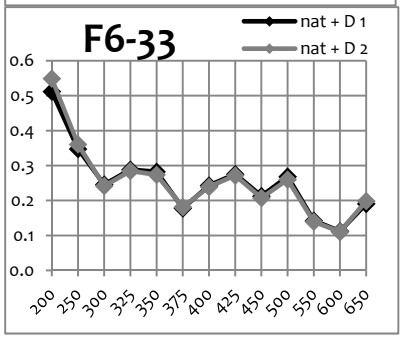


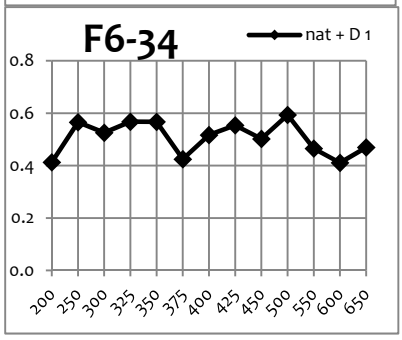
Annexe 9 : Foyer F6 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale)

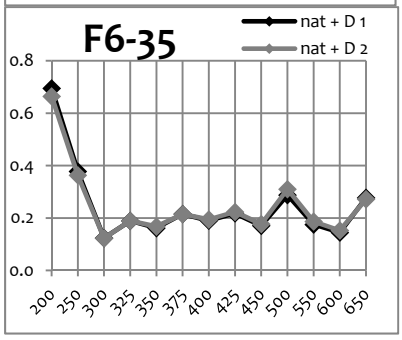


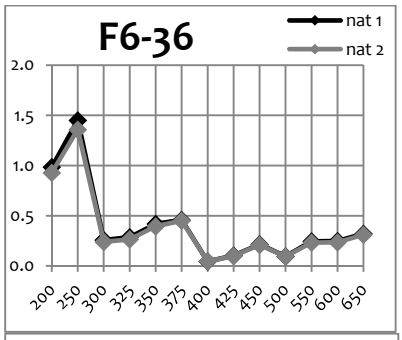


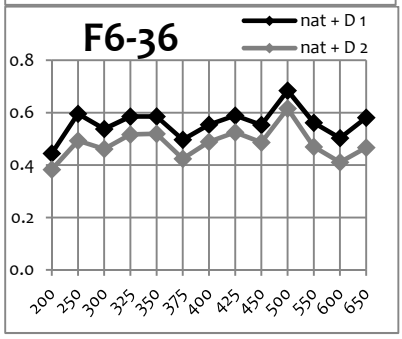




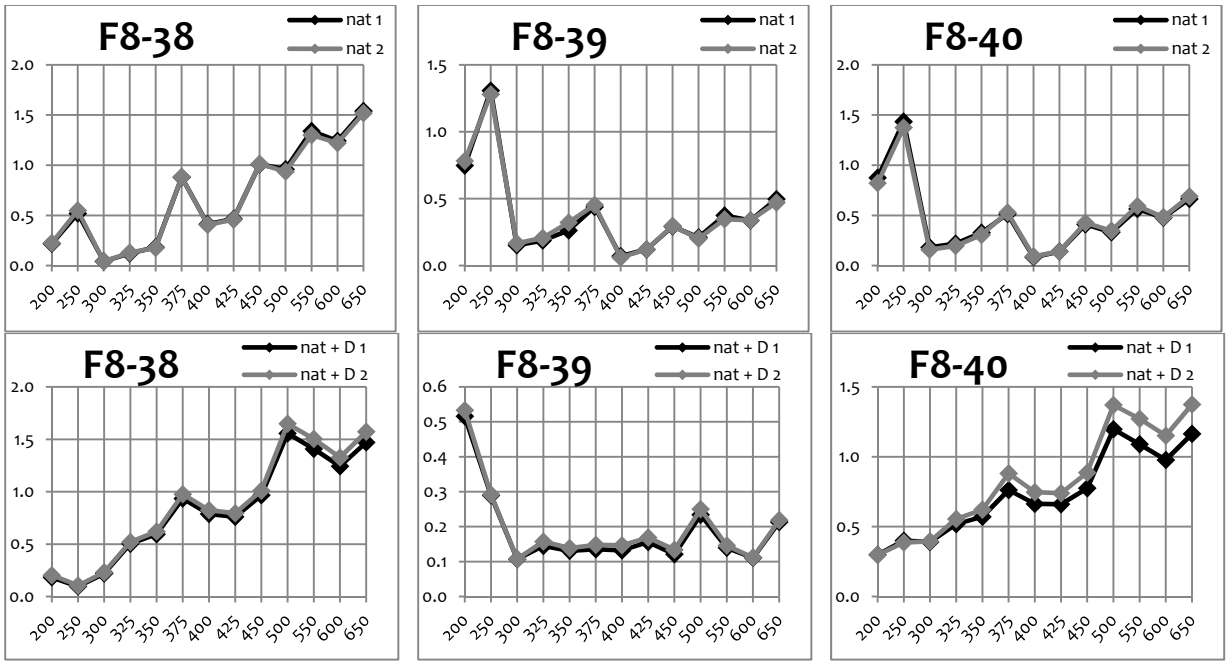


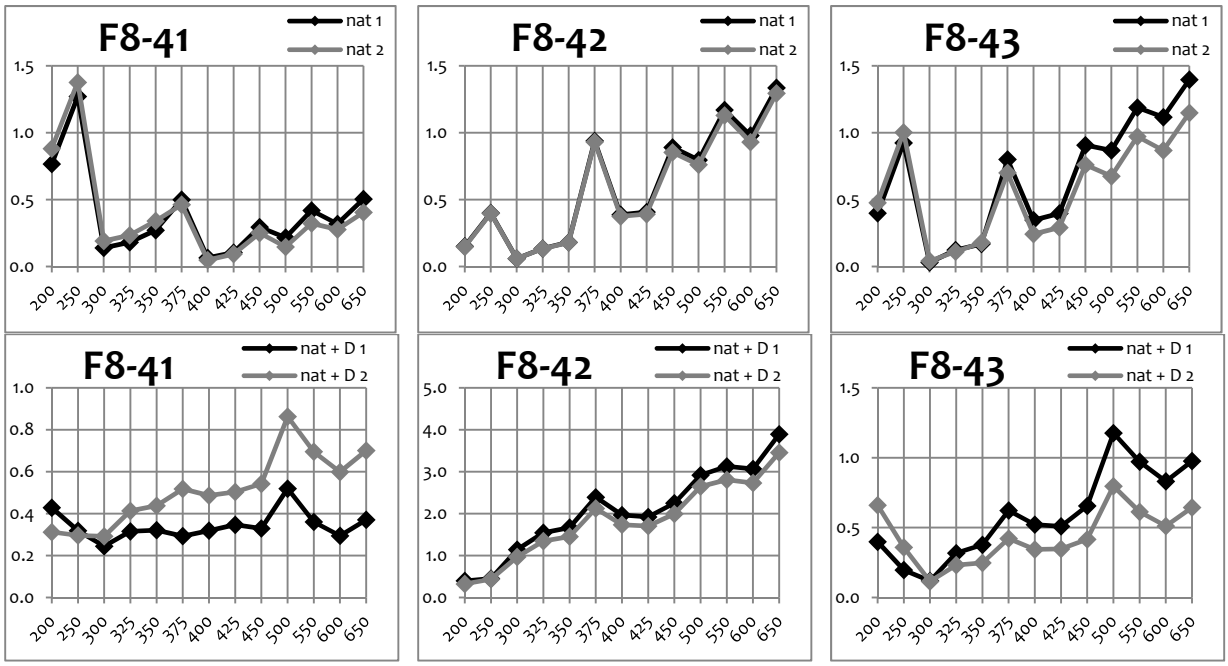




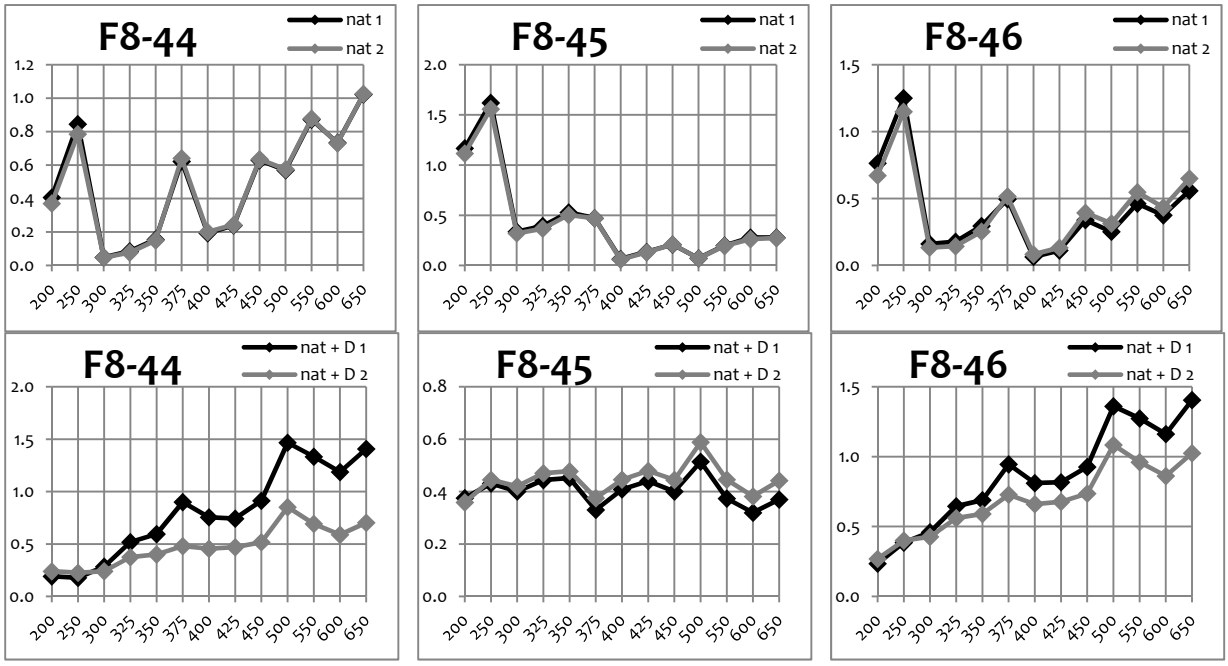


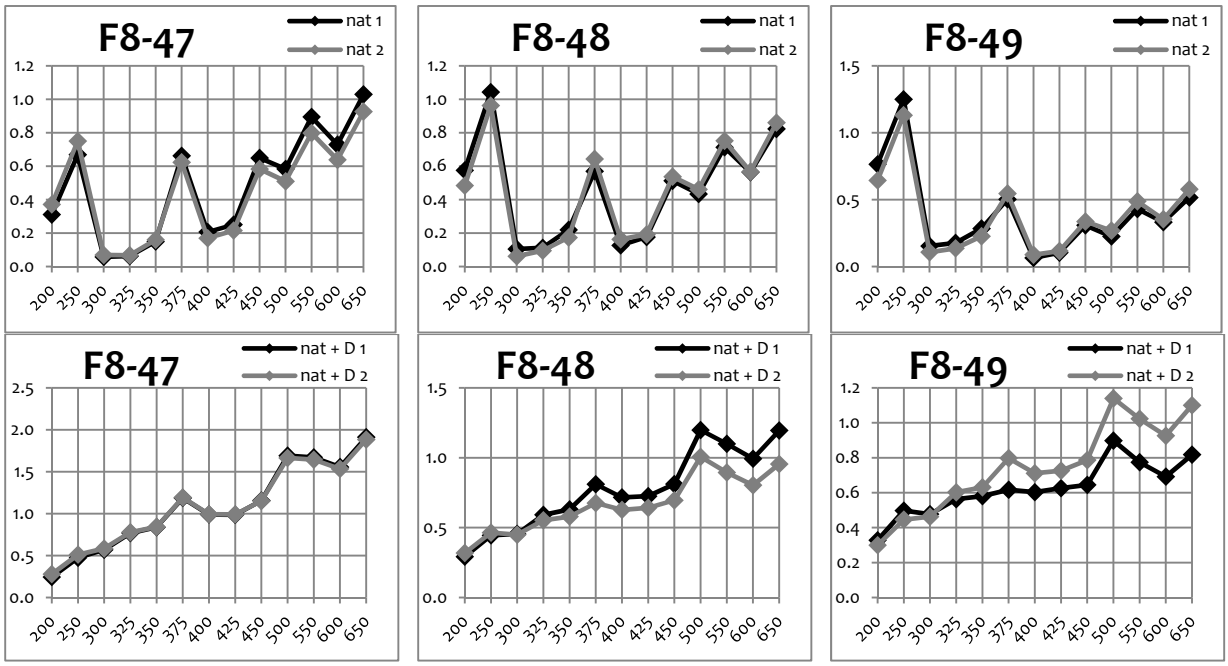
Annexe 10 : Foyer F8 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale)



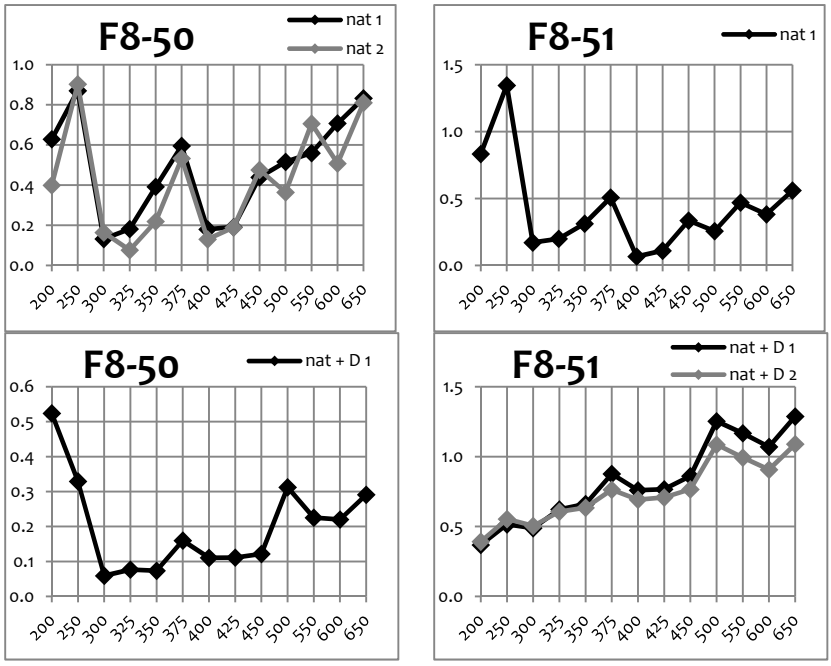


Annexe 10 : Foyer F8 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale)





Annexe 10 : Foyer F8 - courbes de la variance relative (fraction 3-12 µm polyminérale)



Annexe 11 : Etude de la variabilité des sédiments argileux de la grotte des Fraux : rapport d'analyses

Ce rapport est le résultat d'un travail mené en collaboration avec Nadia Cantin (IRAMAT-CRP2A) que je remercie pour son aide.

I. Objectif

Des différences d'intensité de signaux TL entre le sédiment argileux constituant la sole du foyer F4 et le référentiel argileux utilisé (sédiment argileux de la grotte) ont été observées. Elles pourraient s'expliquer par une différence de concentration des minéraux luminescents dans la sole et la référence thermique. Pour évaluer ces variabilités, plusieurs échantillons de sédiments argileux ont été prélevés dans la grotte (à proximité des foyers et en différents points de la grotte) ainsi qu'à l'extérieur, dans les formations superficielles.

II. Echantillonnage

Lors d'une mission à la grotte des Fraux en mars 2011, onze sédiments argileux ont été prélevés dans la grotte (localisation Figure 199 ; aspects des carottes Figure 200) :

- deux dans le secteur 13, à proximité des foyers ;
- un dans le secteur 28 ;
- un dans le secteur 17, correspondant à un « petit » bouchon d'argile, obstruant une galerie ;
- deux dans le secteur 20, correspondant à un « mur » d'argile avec une passée sableuse (un prélèvement dans le niveau argileux, un dans le niveau plus sableux) ;
- cinq prélèvements dans une stratigraphie argileuse montrant différents faciès argileux (surtout une variabilité de couleur).

A l'extérieur, deux sédiments argileux ont été recueillis à proximité de la grotte :

- un provenant d'une carrière exploitée pour une tuilerie, correspondant à la formation de colluvions, issues de formations fluviatiles ;
- une argile bleue, provenant d'un niveau jurassique.

Un bref descriptif des prélèvements et leurs valeurs de susceptibilité magnétique mesurées sur le terrain sont présentés ci-dessous (Tableau 39).

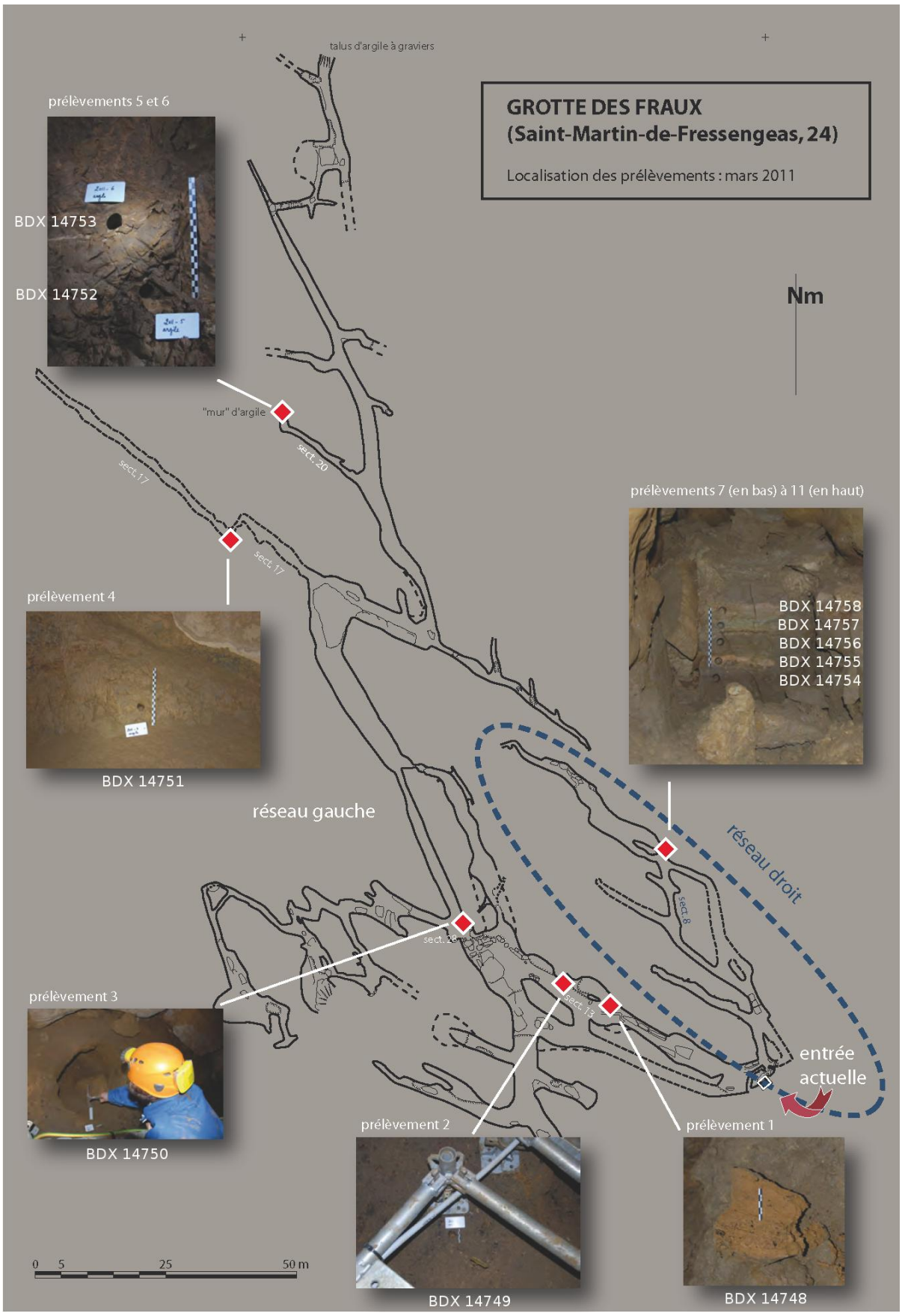


Figure 199 : Localisation des prélèvements des sédiments argileux sur le plan de la grotte des Fraux.

	BDX	Secteur	Descriptif	Susceptibilité magnétique de terrain (10^{-3} SI)
2011-1	14748	13	bloc détaché d'un ensemble argileux issu de colluvion de remplissage argile ocre, beaucoup de charbons	0.30
2011-2	14749	13	à proximité du point topo 116 et de la fosse d'extraction d'argile avec le gros tesson de céramique au pied du pied de la passerelle beaucoup de charbon	0.20
2011-3	14750	28	dans l'effondrement circulaire à droite de la passerelle	0.65 0.74
2011-4	14751	17	dans le petit bouchon d'argile au fond du secteur près du point topo 13	0.55 0.56
2011-5	14752	20	mur d'argile avec différents niveaux d'argile niveau argileux inférieur	0.36 0.30
2011-6	14753	20	mur d'argile avec différents niveaux d'argile niveau argileux plus sableux supérieur	0.17
2011-7	14754	8	coupe avec différents niveaux d'argile niveau marron foncé (chocolat noir), homogène sur la profondeur	0.16
2011-8	14755	8	coupe avec différents niveaux d'argile niveau rose, homogène sur la profondeur	0.26
2011-9	14756	8	coupe avec différents niveaux d'argile niveau marron (café), homogène sur la profondeur	0.30
2011-10	14757	8	coupe avec différents niveaux d'argile niveau vert, carotte marbrée verte (en majorité), rose et marron	0.10
2011-11	14758	8	coupe avec différents niveaux d'argile niveau rose, carotte marron clair et vert mélangés	0.30
	14759	extérieur	argile bleue jurassique	
	14760	extérieur	argile provenant de la tuilerie	

Tableau 39 : Référencement, description et susceptibilité magnétique de terrain des sédiments argileux prélevés.

Figure 200 : Carottes des sédiments argileux prélevés dans la grotte des Fraux (BDX 14748 à BDX 14758) et à proximité (BDX 14759 et BDX 14760).

III. Méthodologie

Plusieurs propriétés ont été mesurées pour évaluer la variabilité des sédiments argileux : la granulométrie, des analyses élémentaire par MEB-EDS et de la composition minéralogique par diffraction des rayons X, une étude de la morphologie des grains de quartz (exoscopie par observation au MEB), les teneurs en radioéléments par spectrométrie gamma et la TL.

III.1. **Préparation des échantillons**

Après séchage, chaque échantillon a été séparé en quatre pour obtenir :

- un fragment réduit en poudre pour la spectrométrie gamma.
- un fragment tamisé à 40 µm (pour se rapprocher de la fraction étudiée en TL) et dont les deux fractions résultantes ont été conservées : la fraction inférieure à 40 µm a subi un protocole de décantation pour l'analyse de la phase argileuse ; la fraction la plus fine (restée en suspension = surnageant) a été récupérée par centrifugation. Un des prélèvements (BDX 14750) a échappé à ce protocole et a été tamisé seulement à 500 µm. Les BDX 14759 et BDX 14760 (sédiments argileux extérieurs à la grotte) ont subi sur ce fragment une attaque à l'H_2O_2.
- un fragment pour l'analyse granulométrique.
- un fragment témoin.

III.2. **Granulométrie**

Les analyses granulométriques (Figure 201) ont été réalisées par granulométrie laser au laboratoire EPOC (Université de Bordeaux). Les résultats (Tableau 40) ont été exprimés en 3 classes représentatives (argile, silt, sable).

La plupart des échantillons prélevés sont constitués d'une forte proportion en argile variant de 24 à 57 % environ. L'échantillon contenant la plus forte proportion de sable est BDX 14750 (avec 17 % de sable).

III.3. **Analyse élémentaire au MEB-EDS**

Les analyses élémentaires ont été réalisées sur la fraction inférieure à 40 µm, par MEB-EDS, sur poudre compactée (à l'exception de BDX 14750, pour lequel l'analyse a été effectuée sur la fraction inférieure à 500 µm).

Deux séries de mesure ont été conduites :

- sur poudres « brutes »
- sur poudres calcinées (calcination à 950°C pendant 1 heure en four électrique). La calcination a permis de quantifier la perte au feu de chacun des prélèvements (Tableau 41). La Figure 202 confirme que la perte au feu dépend de la fraction d'argile contenue dans le sédiment.

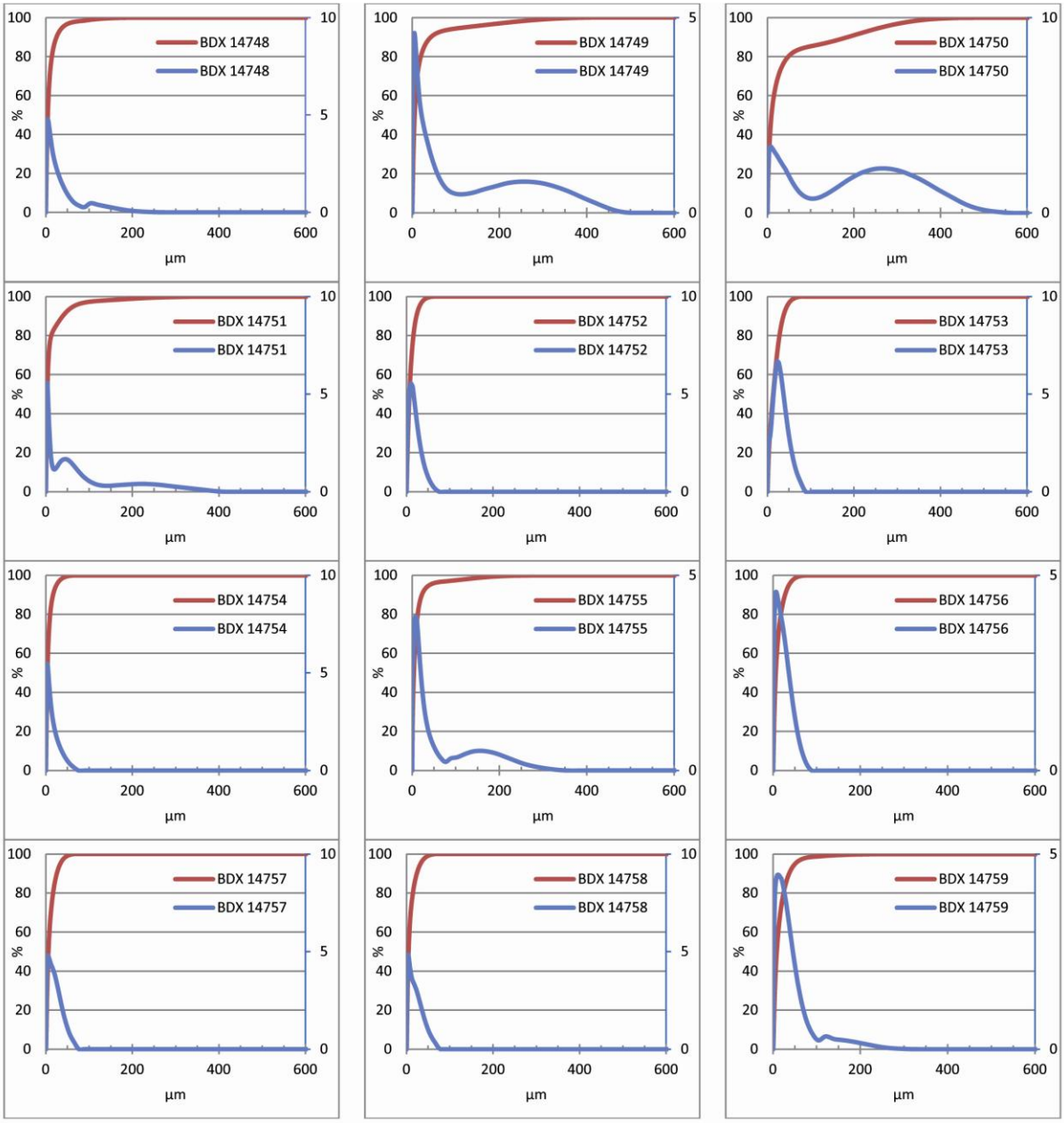


Figure 201 : Courbes granulométriques réelles (en %, en bleu et sur l'axe de droite) et cumulées (en %, en rouge et sur l'axe de gauche, des prélèvements argileux.

Nom de l'échantillon	% argile	% silt	% sable
BDX 14748	47	51	2
BDX 14749	41	52	7
BDX 14750	32	51	**17**
BDX 14751	57	39	5
BDX 14752	35	65	0
BDX 14753	24	75	1
BDX 14754	54	46	0
BDX 14755	52	44	3
BDX 14756	39	61	0
BDX 14757	39	61	0
BDX 14758	46	54	0
BDX 14759	31	67	3
BDX 14760	29	69	2

Tableau 40 : Résultats des analyses granulométriques. Les classes granulométriques sont prises au plus proche de la classification granulométrique de Wentworth :
argile < 4.19 µm
silt : 4.19 - 65.51 µm
sable > 65.51 µm.

n°ech	perte au feu %
BDX14748	10.3
BDX14749	10.1
BDX14750	8.2
BDX14751	12.2
BDX14752	10.0
BDX14753	9.1
BDX14754	14.9
BDX14755	13.9
BDX14756	10.9
BDX14757	9.6
BDX14758	11.2
BDX14759	7.3
BDX14760	7.6

Tableau 41 : perte au feu des sédiments argileux.

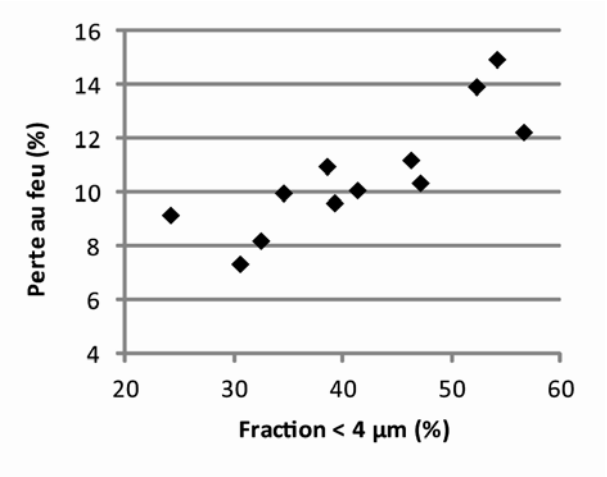


Figure 202 : Confrontation des pourcentages de perte au feu et de la fraction inférieure à 4 µm.

Des écarts sont constatés entre les deux séries de mesure quantitative (brutes / calcinées) menées (Figure 203), mais les ordres de grandeur restent similaires.

A la différence des sédiments prélevés à l'extérieur, les sédiments argileux de la grotte sont riches en manganèse (plusieurs échantillons ont entre 2 et 5 % de MnO) et très riches en fer (14 à 47 % environ). Dans la majorité des échantillons, l'augmentation de susceptibilité magnétique (mesurée sur les carottes en laboratoire) est corrélée à une teneur plus élevée en fer (Figure 204). Cependant, BDX 14754 présente une teneur en fer très élevée et une susceptibilité magnétique moyenne : une part majoritaire des oxydes de fers de cet échantillon est donc sous une forme peu magnétique (hématite, goethite, lépidocrocite). A l'inverse, BDX 14750 a une susceptibilité magnétique élevée et une teneur en fer moyenne : il est probable qu'une partie des oxydes de fer soient sous forme de magnétite/maghémite.

Des différences importantes de composition entre les différents prélèvements sont à noter (Figure 203). Cependant les 3 premiers prélèvements (BDX 14748, BDX 14749, BDX 14750), réalisés dans les secteurs 13 et 28, montrent des compositions proches. BDX 14749 et BDX 14750 ont la particularité de montrer des taux élevés en phosphore. Ce dernier, corrélé au calcium, pourrait s'expliquer par la présence d'ossements ou de la décomposition de matière organique.

BDX 14751 du secteur 17, se distingue des trois prélèvements décrits précédemment par une teneur en manganèse plus élevée et un rapport Si/Al plus faible.

Dans le secteur 20, peu de différences entre les entre les 2 prélèvements ont été constatées. Le plus argileux (BDX 14752) montre une phase inférieure à 40 µm proche en composition de BDX 14753, à l'exception du manganèse.

Le remplissage argileux du secteur 8 (réseau droit) montre une variabilité de composition dans la stratigraphie. A la base, la fraction argilo-limoneuse de BDX 14754 comporte une teneur importante en fer (47 % environ) et en manganèse (près de 5 %). Vers le haut de la séquence, les teneurs en fer semblent diminuer. Par ailleurs, les teneurs en potassium de BDX 14757 sont élevées (6 % en K_2O).

Sédiments argileux crus

échantillon	Na2O	MgO	Al2O3	SiO2	P2O5	S	K2O	CaO	TiO2	MnO	Fe2O3	Total
BDX14748	0.1	1.6	18.5	53.9	0.8	0.0	3.1	0.7	0.9	0.5	20.0	100.0
BDX14749	0.2	1.6	18.3	54.9	1.4	0.0	3.0	1.4	1.0	0.5	17.7	100.0
BDX14750	plus de poudre											
BDX14751	0.1	1.8	20.1	49.5	0.7	0.0	2.9	0.4	1.0	1.7	21.8	100.0
BDX14752	0.1	1.3	15.9	55.7	0.3	0.0	2.6	0.4	1.0	**2.9**	19.9	100.0
BDX14753	0.1	1.3	18.4	57.3	0.4	0.0	2.8	0.3	1.1	1.1	17.3	100.0
BDX14754	0.1	1.8	**12.4**	**35.3**	0.7	0.0	2.2	0.7	0.6	**4.7**	**41.5**	100.0
BDX14755	0.1	1.9	24.0	47.2	0.6	0.0	2.6	0.6	1.0	1.4	20.7	100.0
BDX14756	0.1	1.5	15.7	48.5	0.4	0.0	2.3	0.6	0.8	**2.8**	**27.3**	100.0
BDX14757	0.1	2.3	18.0	57.2	0.3	0.0	**5.8**	0.5	1.0	1.1	13.7	100.0
BDX14758	0.2	1.7	22.7	55.2	0.5	0.0	3.1	0.4	1.0	0.7	14.6	100.0
BDX14759	0.2	1.6	21.1	65.8	0.5	0.0	**5.2**	0.9	1.2	0.0	3.6	100.0
BDX14760	0.2	1.1	21.6	66.5	0.3	0.0	4.4	0.3	1.2	0.0	4.4	100.0

Sédiments argileux calcinés

échantillon	Na2O	MgO	Al2O3	SiO2	P2O5	S	K2O	CaO	TiO2	MnO	Fe2O3	Total
BDX14748	0.2	1.5	17.4	53.0	0.7	0.0	3.2	0.7	1.0	0.5	21.8	100.0
BDX14749	0.2	1.5	17.2	54.9	1.2	0.0	3.2	1.4	1.0	0.5	19.0	100.0
BDX14750	0.2	1.4	15.1	56.5	1.9	0.0	3.1	2.3	1.0	0.5	18.2	100.0
BDX14751	0.2	1.7	18.6	47.8	0.5	0.0	2.9	0.4	1.1	1.9	24.9	100.0
BDX14752	0.2	1.2	15.0	56.5	0.3	0.0	2.6	0.4	1.0	**2.6**	20.3	100.0
BDX14753	0.1	1.2	17.9	58.6	0.4	0.0	2.8	0.3	1.0	1.0	16.7	100.0
BDX14754	0.1	1.5	**10.1**	**32.1**	0.4	0.0	2.1	0.7	0.7	**5.1**	**47.3**	100.0
BDX14755	0.1	1.8	23.7	45.7	0.4	0.0	2.7	0.6	1.1	1.3	22.5	100.0
BDX14756	0.2	1.4	14.7	49.7	0.4	0.0	2.3	0.5	0.8	**2.7**	**27.3**	100.0
BDX14757	0.2	2.1	17.2	56.8	0.3	0.0	**6.1**	0.5	1.1	1.2	14.6	100.0
BDX14758	0.1	1.6	21.4	54.2	0.4	0.0	3.3	0.4	1.2	0.7	16.7	100.0
BDX14759	0.2	1.6	21.5	64.8	0.5	0.0	**5.3**	0.9	1.2	0.0	3.9	100.0
BDX14760	0.2	1.1	21.7	66.1	0.3	0.0	4.4	0.3	1.3	0.0	4.7	100.0

Figure 203 : Résultats des analyses élémentaires par MEB-EDS sur la fraction inférieure à 40 µm.

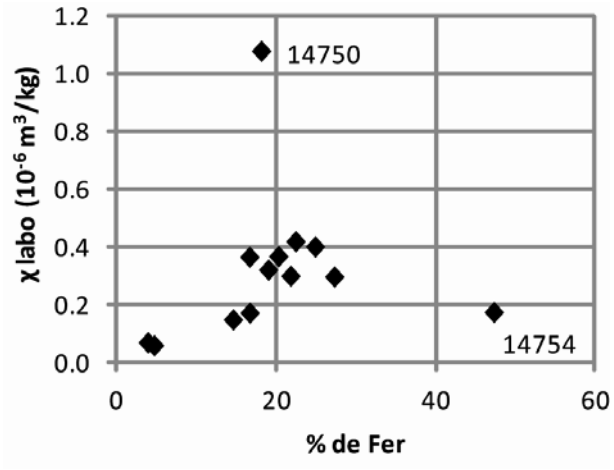


Figure 204 : Susceptibilité magnétique mesurée en laboratoire en fonction du pourcentage de fer (exprimé en % de Fe_2O_3 par MEB-EDS).

III.4. **Composition minérale par diffraction des rayons X (DRX)**

III.4.1. Méthode

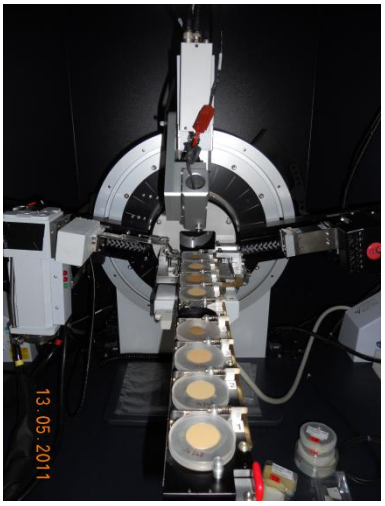


Figure 205 : Dispositif de diffraction de rayons X (configuration Bragg-Brentano) - analyse sur poudre.

Deux fractions ont été analysées par DRX :

- supérieure à 40 µm (analyse sur poudre) ;
- inférieure à 40 µm :
  - déposée (analyse sur poudre et lame orientée).
  - en suspension (analyse du surnageant sur lame orientée).

Pour différencier certaines argiles, les lames ont fait l'objet de traitements (éthylène-glycol, chauffages à 110°C, 350°C et 550°C) et ont été analysées successivement.

III.4.2. Résultats

Les diffractogrammes obtenus pour chaque prélèvement sur la fraction inférieure à 40 µm sur poudre et sur le surnageant sont présentés ci-après.

Chaque page concerne un prélèvement pour lequel le diffractogramme du haut représente l'analyse sur lame orienté du surnageant (S). L'échantillon a subi plusieurs traitements qui modifient le diffractogramme et aident à l'interprétation des phases présentes : éthylène-glycol en vert, un chauffage à 350°C en rouge et un chauffage à 550°C en bleu. Pour une meilleure lisibilité, on a ajouté un facteur en ordonnée aux diffractogrammes qui correspondent aux traitements.

De plus, le Tableau 42 présente une synthèse des résultats des analyses par DRX. Les minéraux argileux sont identifiés entre autre grâce à l'analyse sur lame du surnageant, tandis que les minéraux non argileux ont été identifiés par l'analyse sur poudre.

- ***Les sédiments argileux intérieurs à la grotte :***

  - Fraction < 40 µm

Dans les minéraux argileux, la kaolinite est le minéral dominant. Les argiles à 14 Å (smectite, vermiculite) sont moins abondantes à l'exception de BDX 14755 où la vermiculite a été décelée en plus grande proportion. Au sein des minéraux non argileux, le quartz et les feldspaths potassiques sont dominants. Les feldspaths calcosodiques sont moins abondants et pas toujours présents.

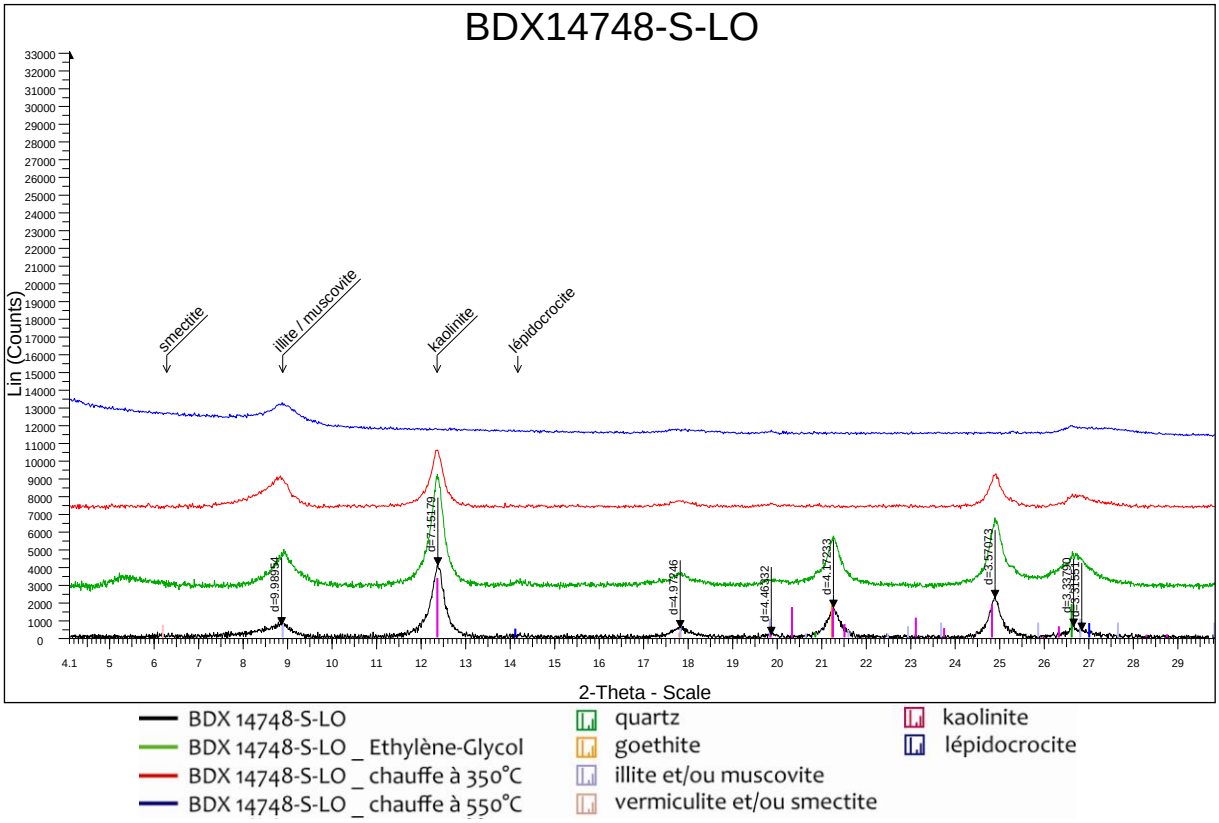
Les oxydes de fer sont le plus souvent détectés sous forme de goethite et lépidocrocite. Cette dernière n'a pas été identifiée dans tous les échantillons (BDX 14750-52-54). Des oxydes de titane, sous forme d'anatase le plus souvent et de rutile parfois ont été identifiés. Ils ont par ailleurs été repérés lors de l'observation au MEB.

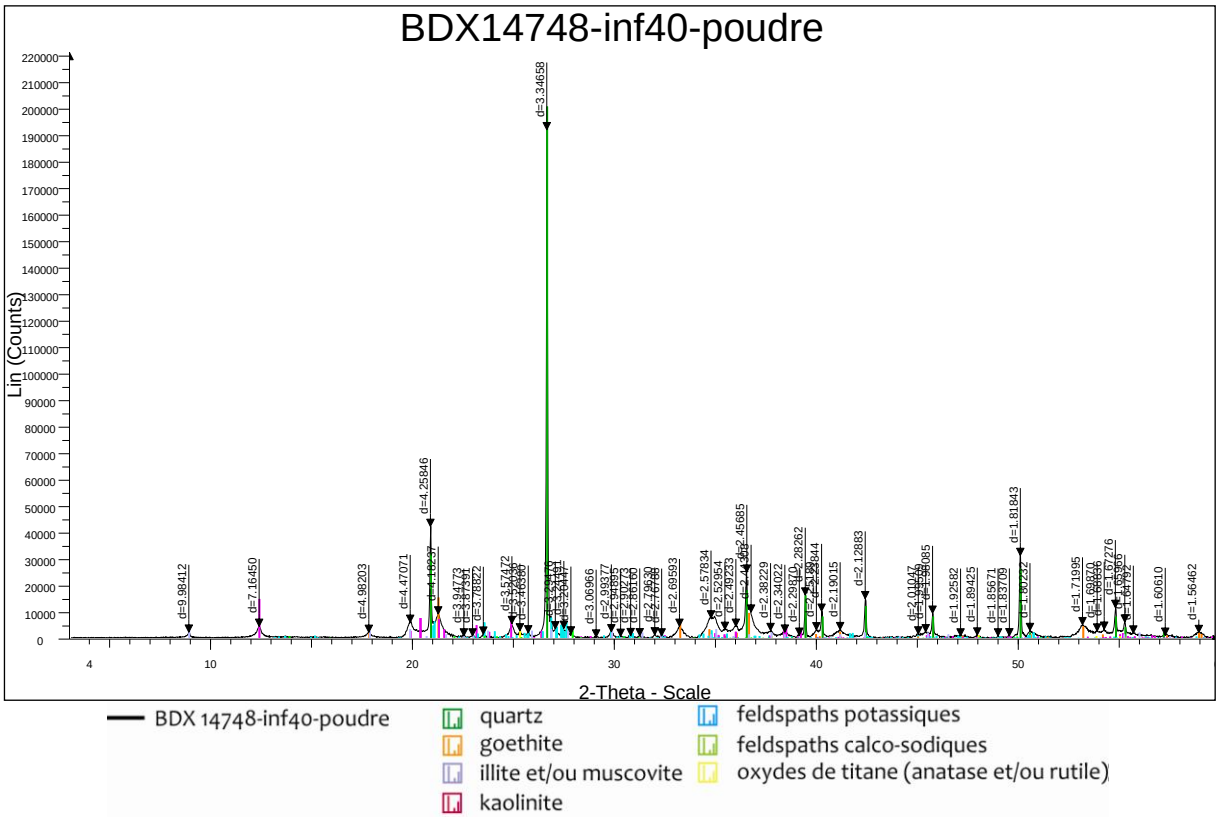
- Fraction > 40 µm

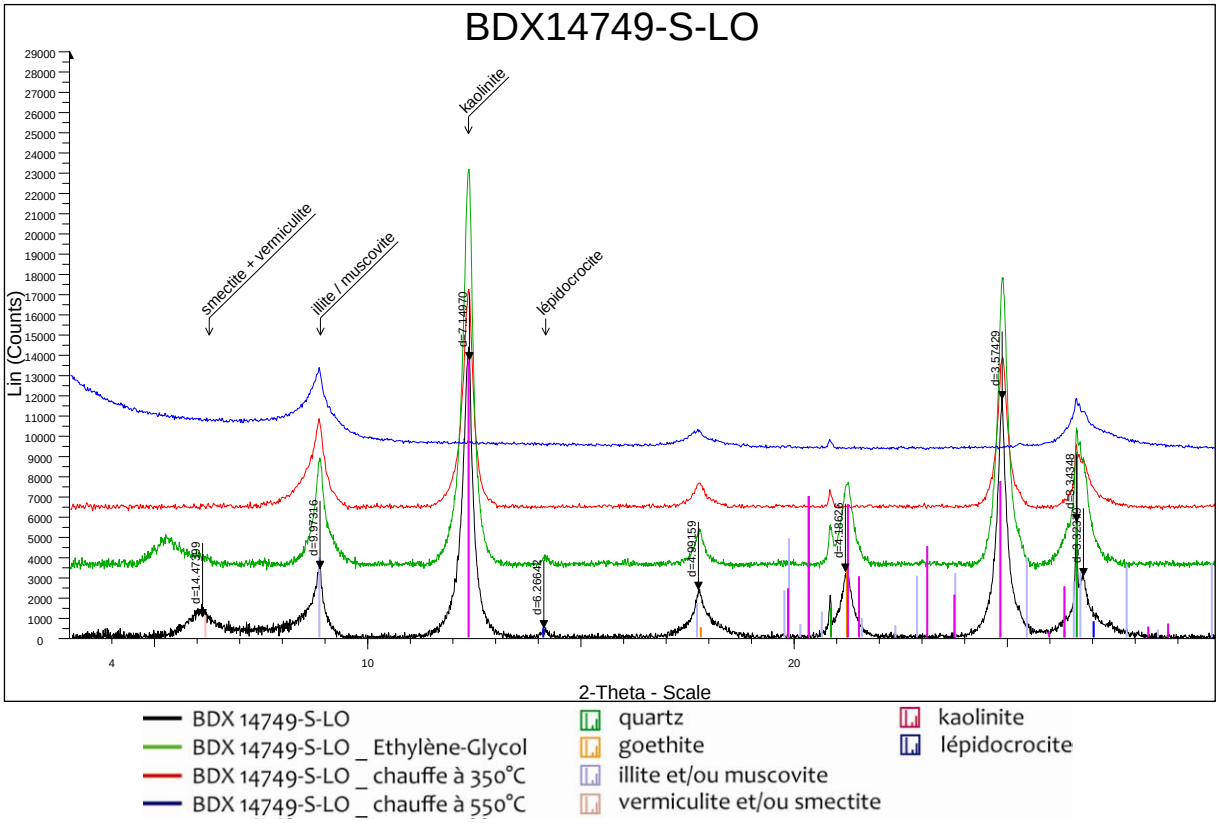
Les argiles ont été détectées dans cette fraction (particules argileuses agglomérées sur les grains). Quelques nuances sont observées par rapport à la minéralogie de la fraction inférieure à 40 µm avec en particulier la lépidocrocite qui n'est pas détectée dans cette fraction (sauf dans BDX 14758).

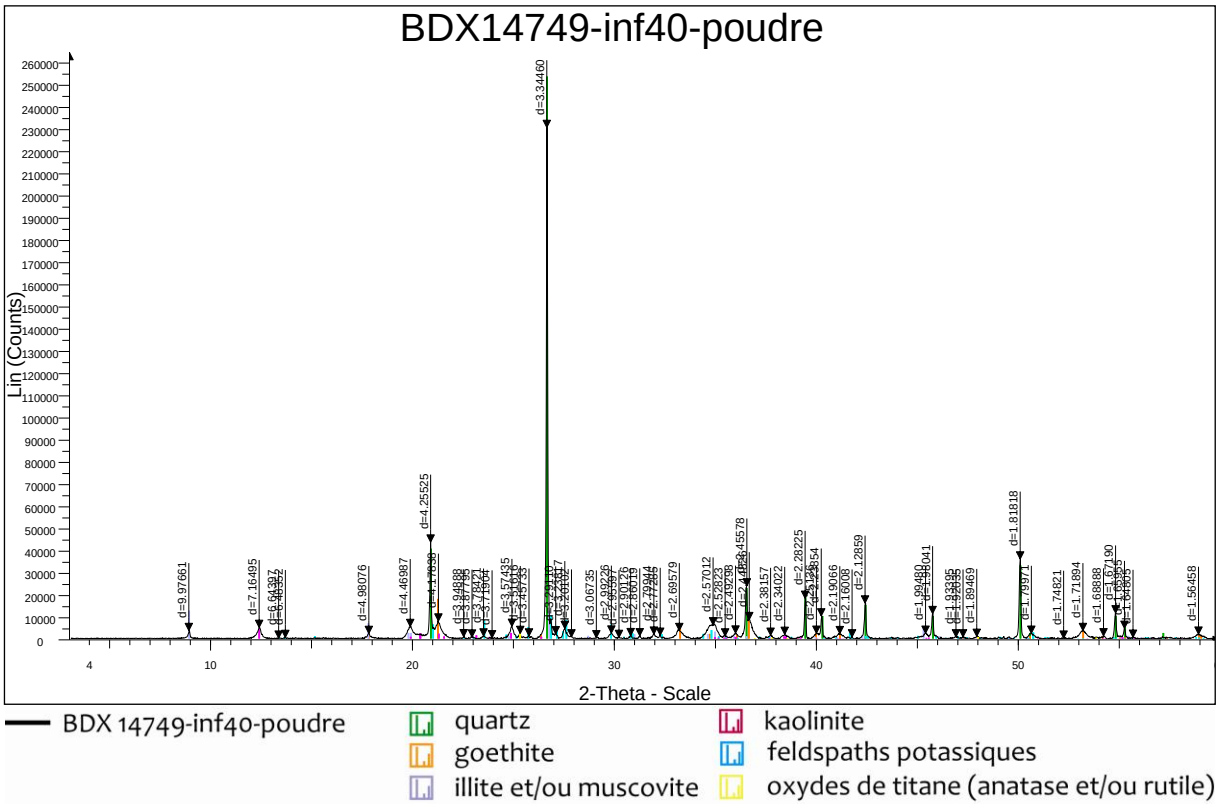
- ***Les sédiments argileux extérieurs à la grotte :***

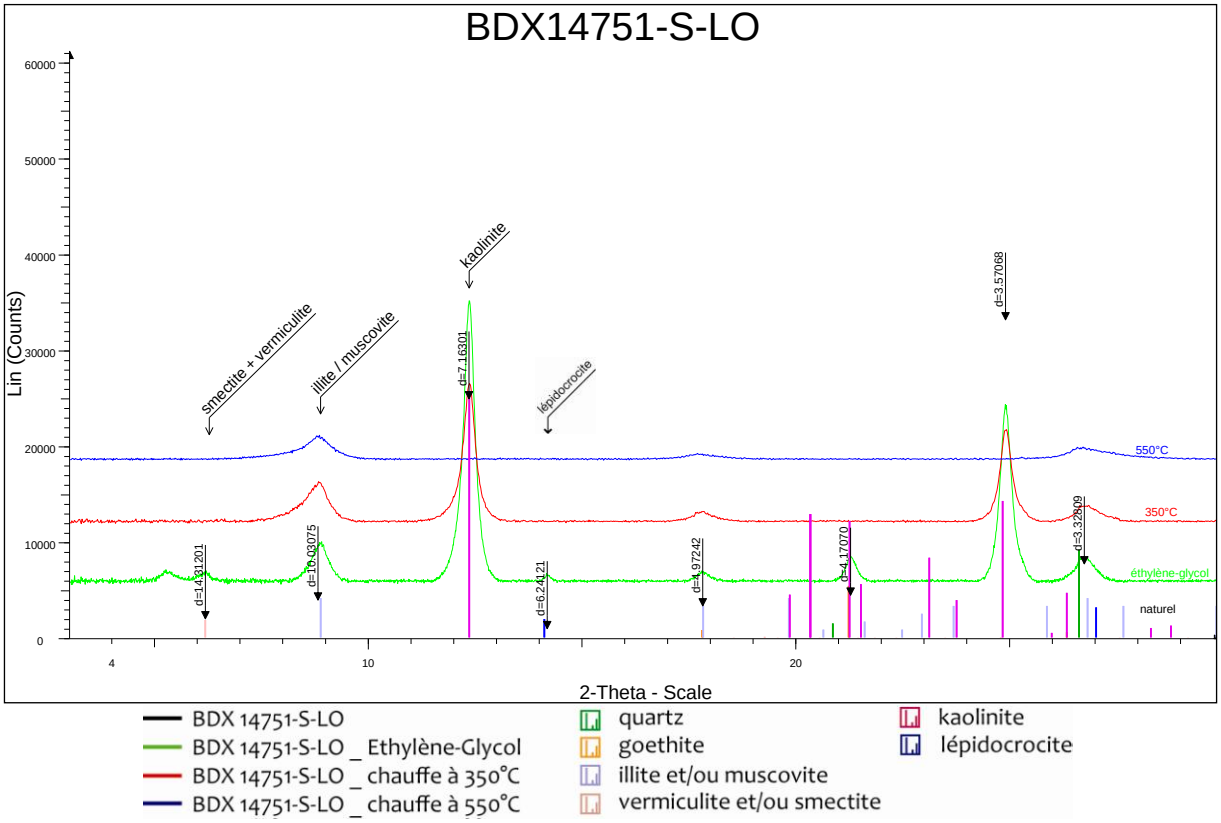
Les argiles qui composent les sédiments extérieurs sont principalement de la kaolinite, illite et un peu de smectite. Dans l'échantillon BDX 14759, de l'hématite a été identifiée dans la fraction supérieure à 40 µm. En revanche ni goethite, ni lépidocrocite, ni magnétite n'ont été détectées. BDX 14760 contient de la goethite, surtout détectée dans la fraction supérieure à 40 µm. Ces résultats vont dans le sens de ceux obtenus par l'analyse élémentaire puisque peu de fer avait été détecté.

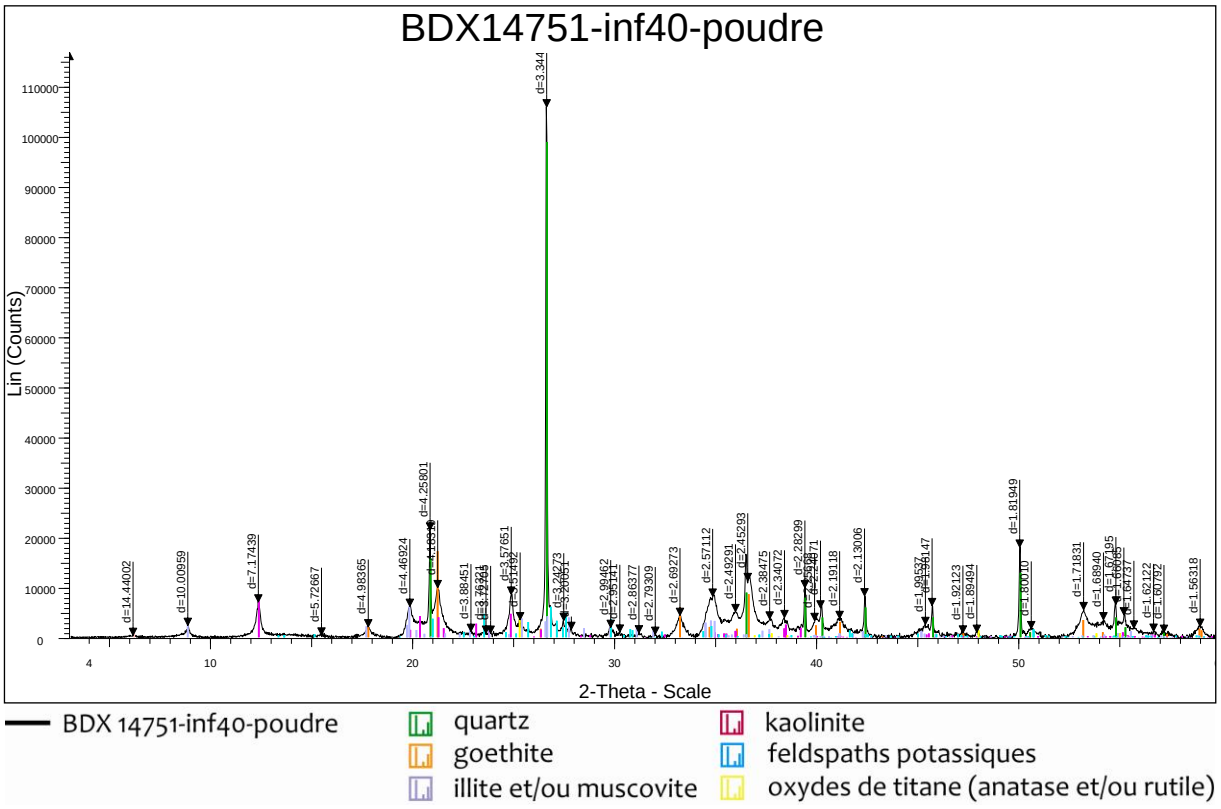

BDX14748-S-LO
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
smectite
illite / muscovite
kaolinite
lépidocrocite
BDX 14748-S-LO
BDX 14748-S-LO _ Ethylène-Glycol
BDX 14748-S-LO _ chauffe à 350°C
BDX 14748-S-LO _ chauffe à 550°C
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite
lépidocrocite

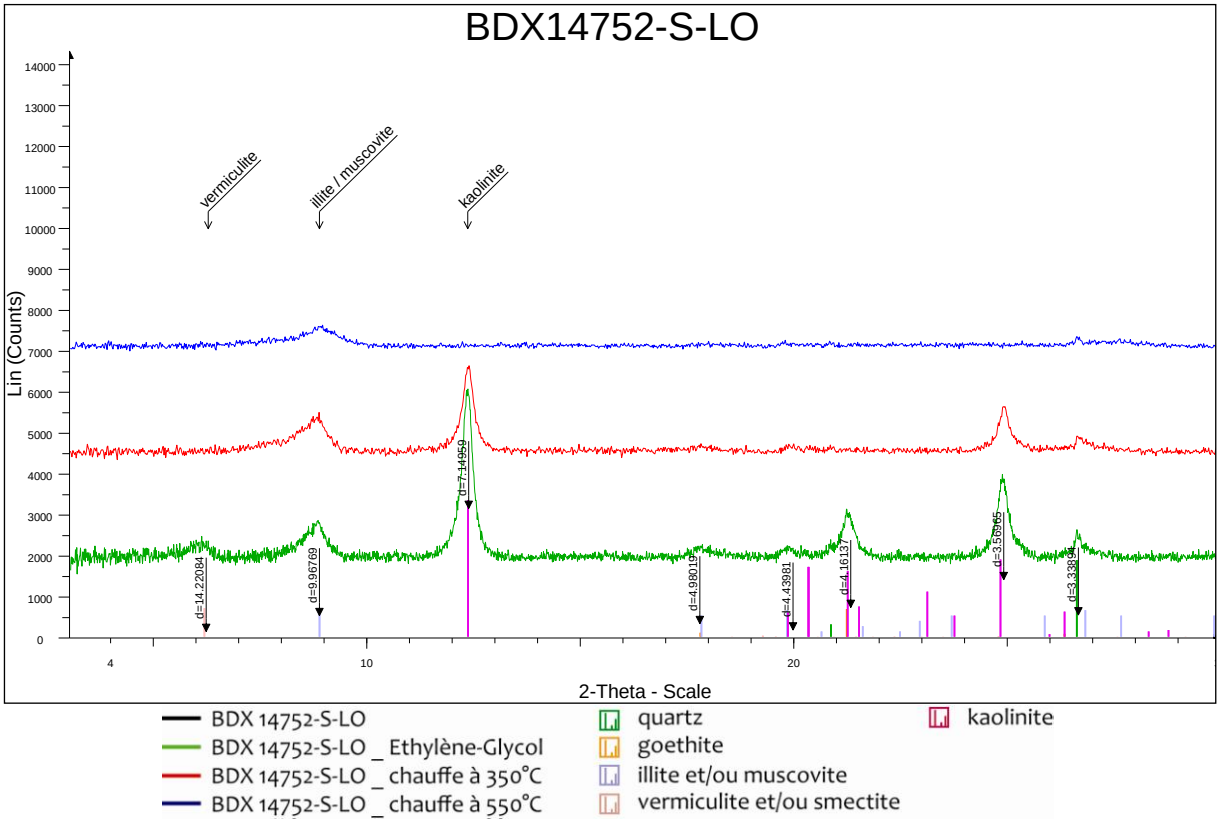

BDX14748-inf40-poudre
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
BDX 14748-inf40-poudre
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
kaolinite
feldspaths potassiques
feldspaths calco-sodiques
oxydes de titane (anatase et/ou rutile)

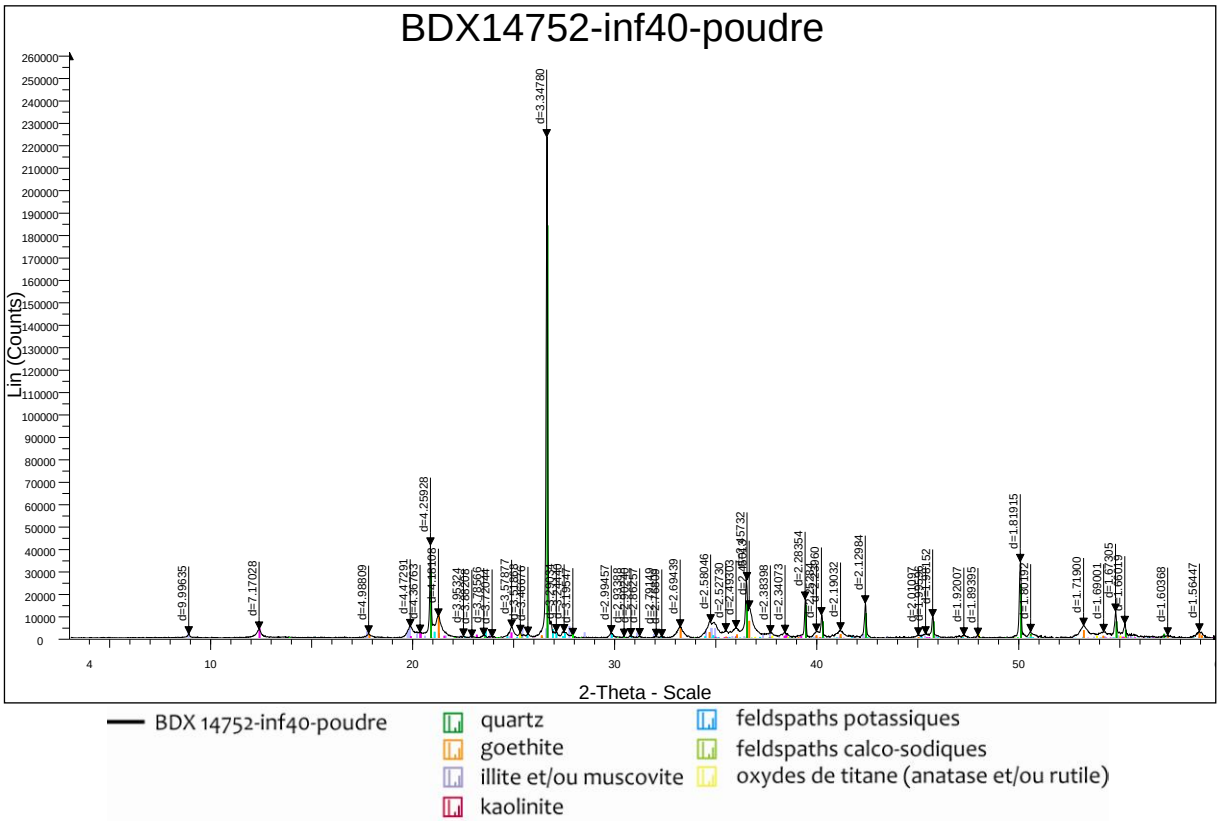

BDX14749-S-LO
kaolinite
smectite + vermiculite
illite / muscovite
lépidocrocite
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
BDX 14749-S-LO
BDX 14749-S-LO _ Ethylène-Glycol
BDX 14749-S-LO _ chauffe à 350°C
BDX 14749-S-LO _ chauffe à 550°C
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite
lépidocrocite

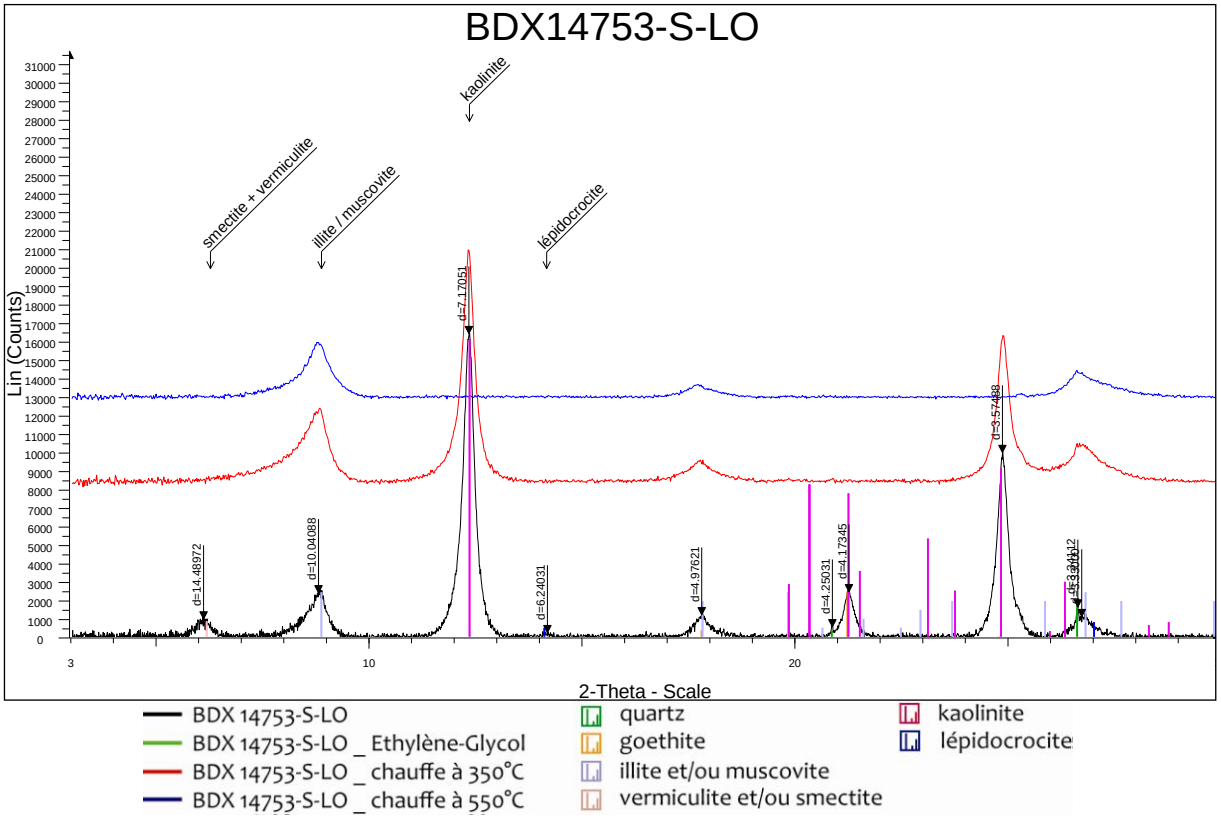

BDX14749-inf40-poudre
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
BDX 14749-inf40-poudre
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
kaolinite
feldspaths potassiques
oxydes de titane (anatase et/ou rutile)

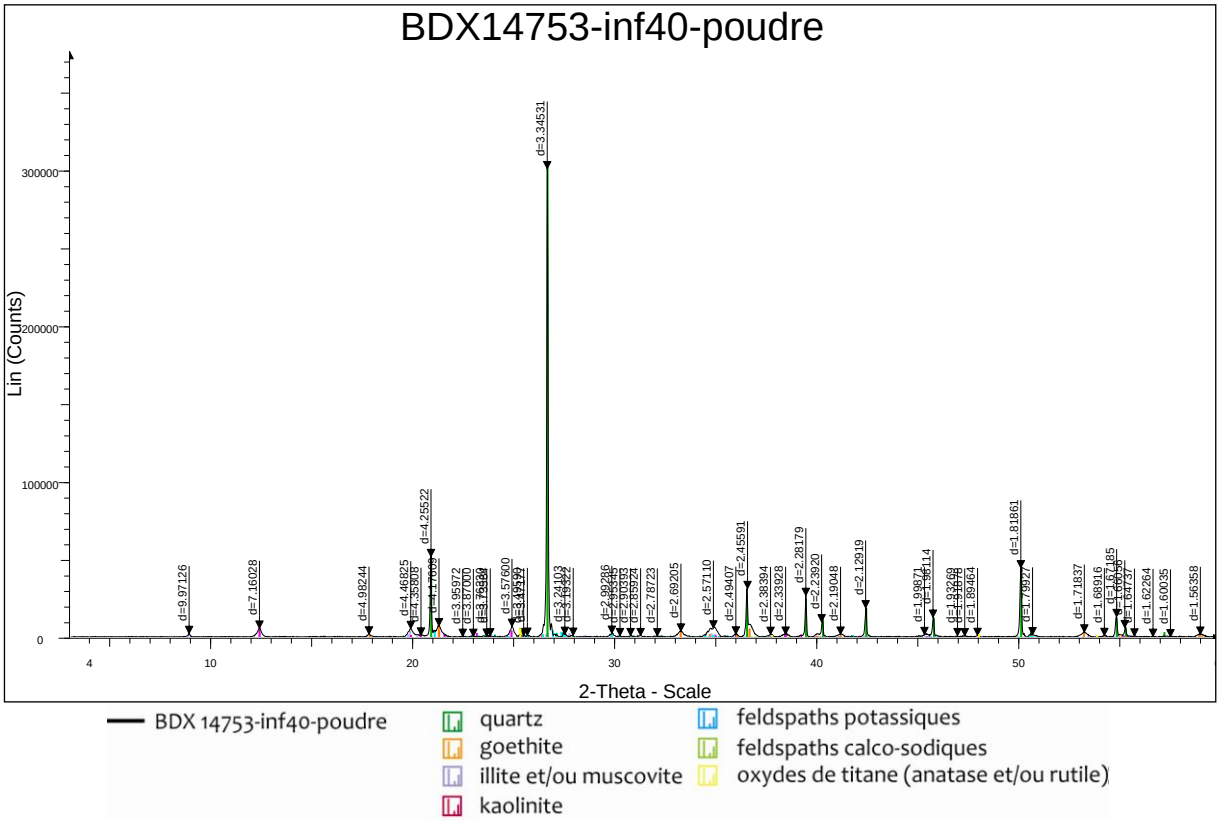

BDX14751-S-LO
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
smectite + vermiculite
illite / muscovite
kaolinite
lépidocrocite
d=7.16301
d=3.57068
d=14.31201
d=10.03075
d=6.24121
d=4.97242
d=4.17070
d=3.32809
550°C
350°C
éthylène-glycol
naturel
BDX 14751-S-LO
BDX 14751-S-LO _ Ethylène-Glycol
BDX 14751-S-LO _ chauffe à 350°C
BDX 14751-S-LO _ chauffe à 550°C
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite
lépidocrocite

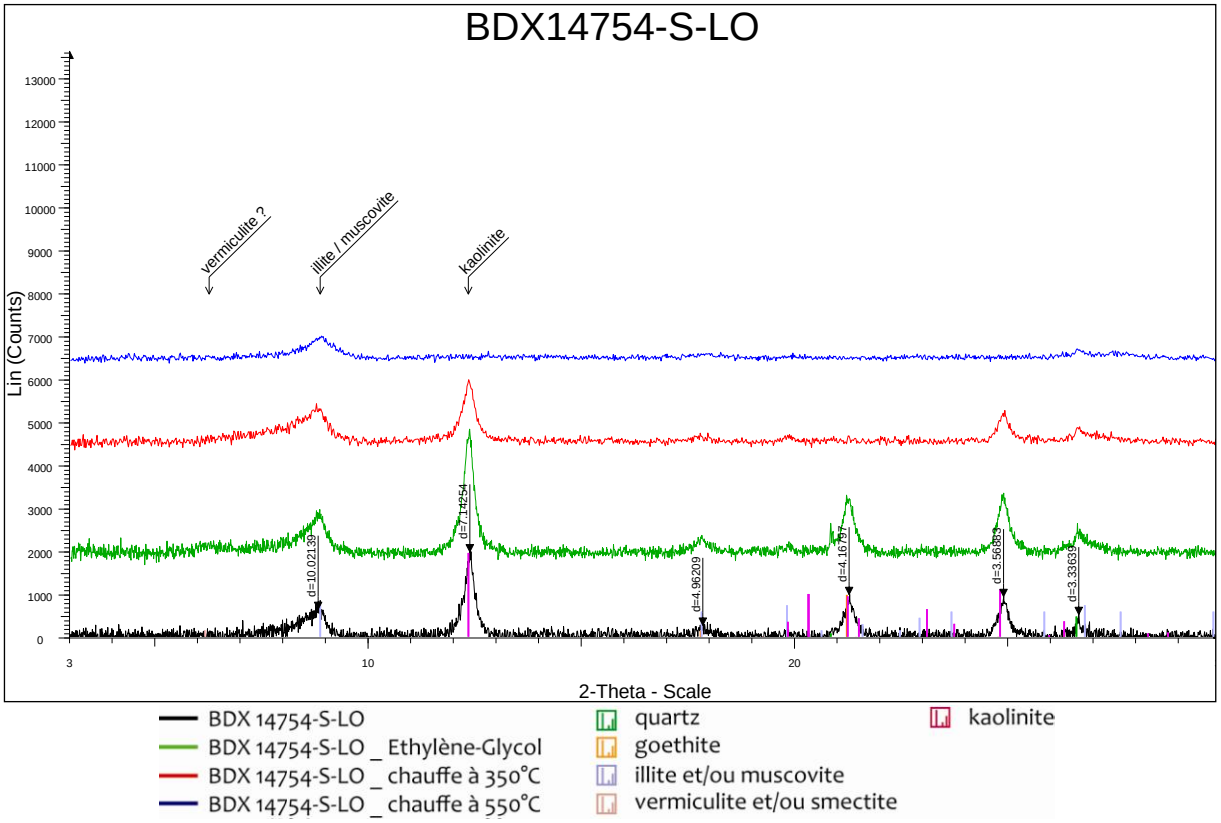

BDX14751-inf40-poudre
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
d=3.344
d=14.44002
d=10.00959
d=7.17439
d=5.72667
d=4.98365
d=4.46924
d=4.25801
d=3.88451
d=3.57651
d=3.24273
d=2.99462
d=2.86377
d=2.79309
d=2.69273
d=2.57112
d=2.49291
d=2.45293
d=2.38475
d=2.34072
d=2.28299
d=2.19118
d=2.13006
d=1.90537
d=1.92123
d=1.89494
d=1.81949
d=1.80010
d=1.77831
d=1.68940
d=1.67195
d=1.62122
d=1.60792
d=1.56318
BDX 14751-inf40-poudre
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
kaolinite
feldspaths potassiques
oxydes de titane (anatase et/ou rutile)

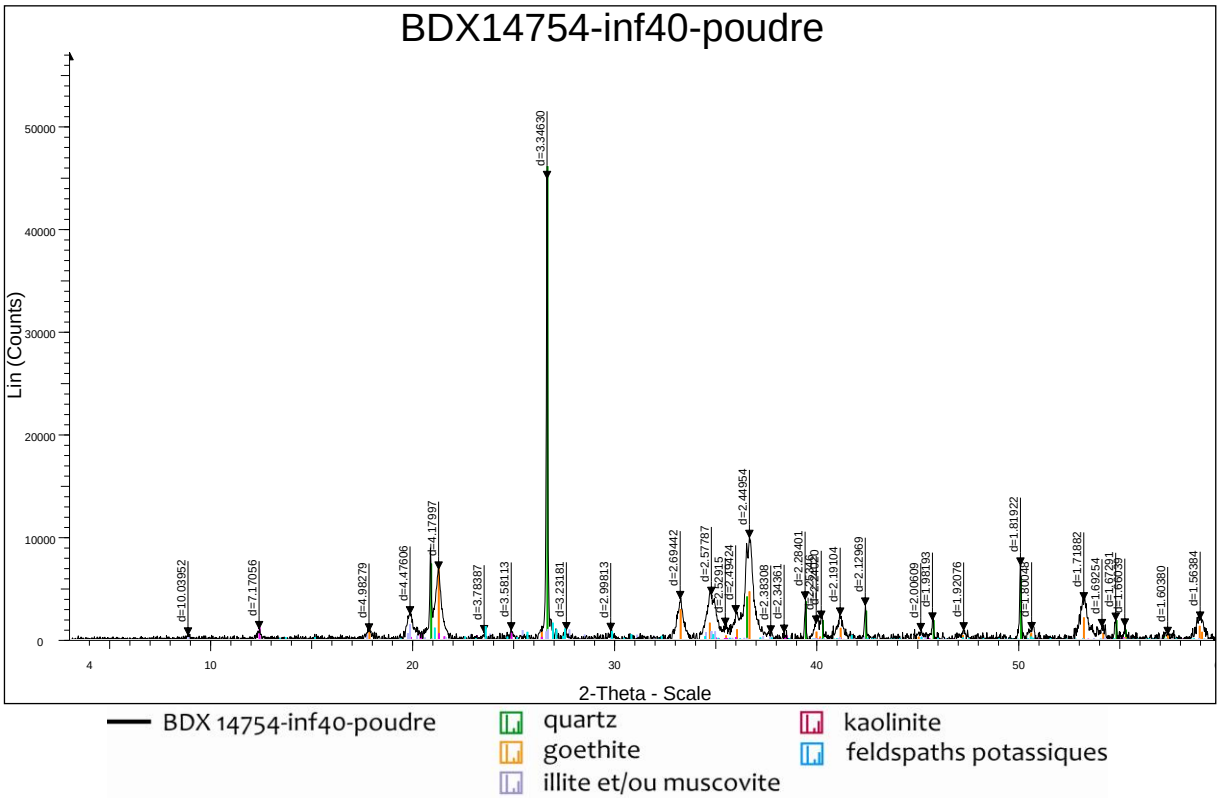

BDX14752-S-LO
vermiculite
illite / muscovite
kaolinite
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
BDX 14752-S-LO
BDX 14752-S-LO _ Ethylène-Glycol
BDX 14752-S-LO _ chauffe à 350°C
BDX 14752-S-LO _ chauffe à 550°C
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite

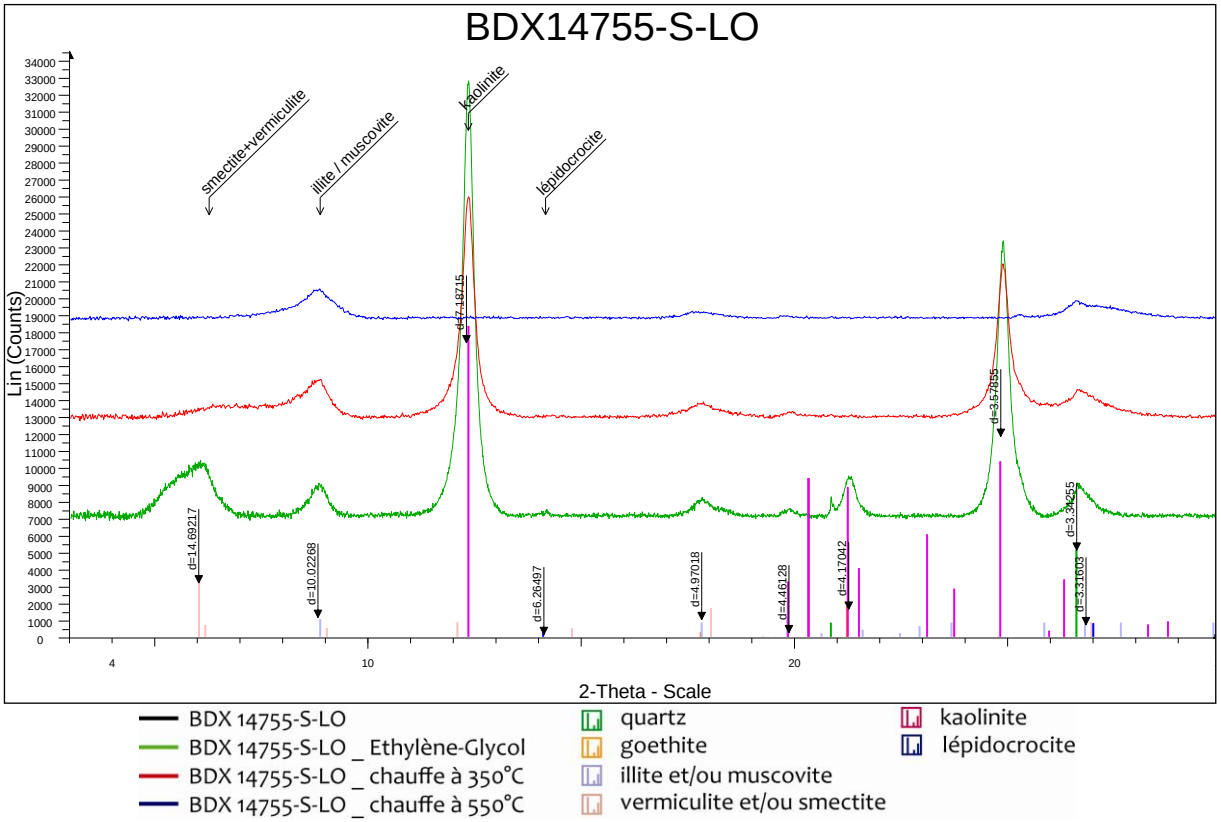

BDX14752-inf40-poudre
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
BDX 14752-inf40-poudre
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
kaolinite
feldspaths potassiques
feldspaths calco-sodiques
oxydes de titane (anatase et/ou rutile)

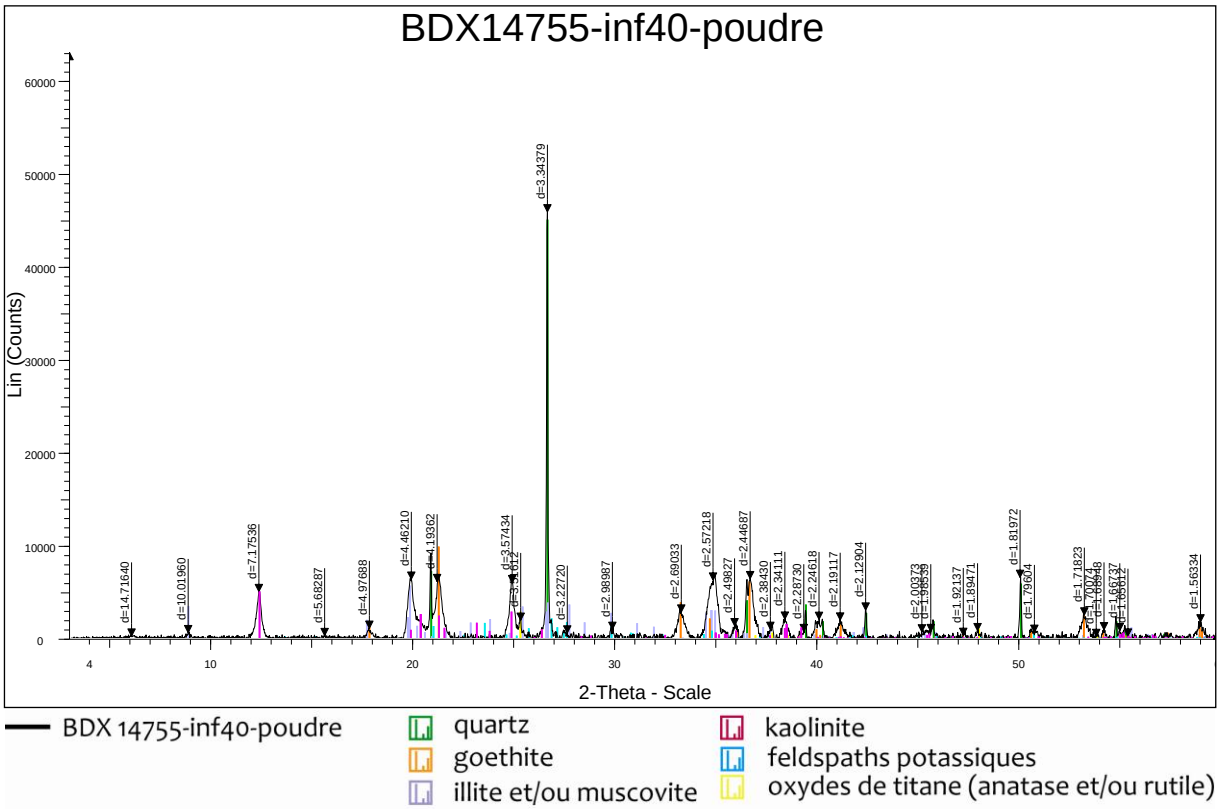

BDX14753-S-LO
kaolinite
smectite + vermiculite
illite / muscovite
lépidocrocite
Lin (Counts)
d=7.17051
d=14.48972
d=10.04088
d=6.24031
d=4.97621
d=4.25031
d=4.17345
d=3.57488
2-Theta - Scale
BDX 14753-S-LO
BDX 14753-S-LO _ Ethylène-Glycol
BDX 14753-S-LO _ chauffe à 350°C
BDX 14753-S-LO _ chauffe à 550°C
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite
lépidocrocite

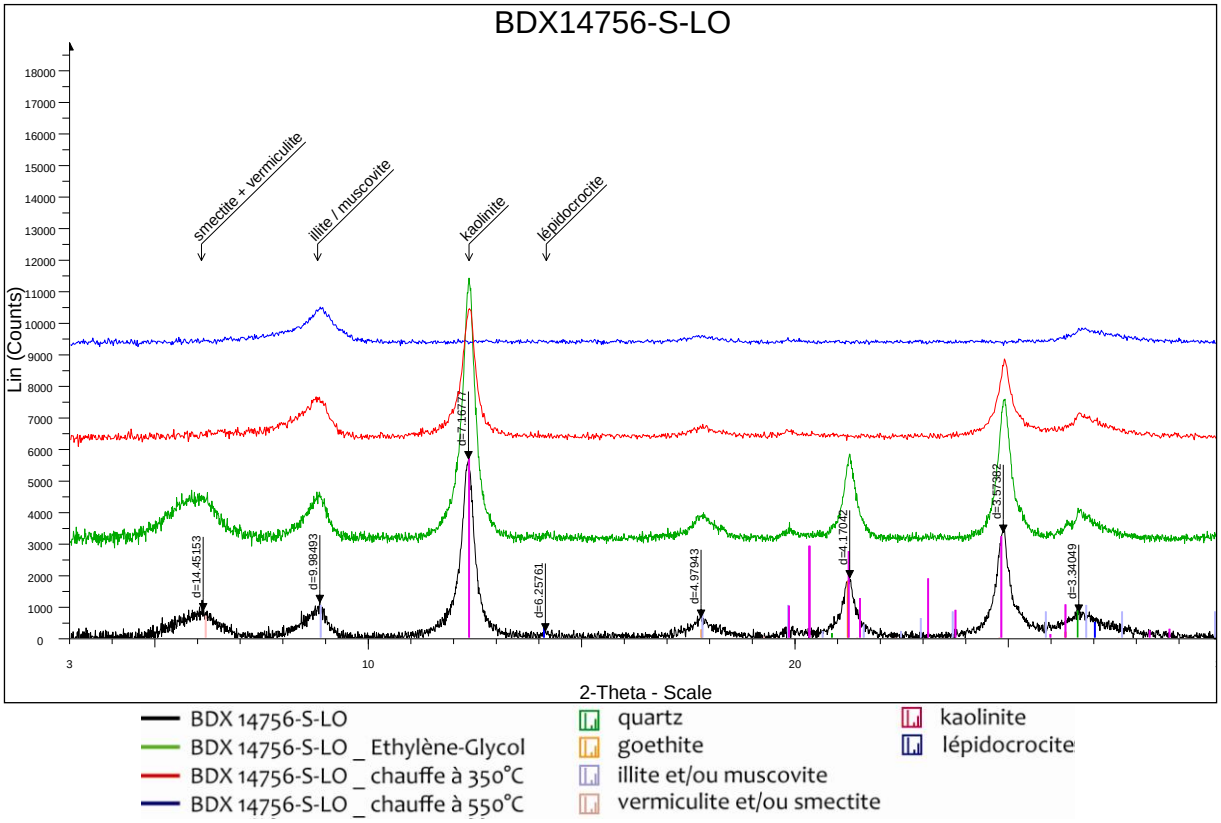

BDX14753-inf40-poudre
Lin (Counts)
d=3.34531
d=4.25522
d=9.97126
d=7.16028
d=4.98244
d=4.46825
d=3.95972
d=3.57600
d=2.78723
d=2.69205
d=2.57110
d=2.49407
d=2.45591
d=2.38394
d=2.33928
d=2.28179
d=2.23920
d=2.19048
d=2.12919
d=1.81861
d=1.71837
d=1.68916
d=1.62264
d=1.60035
d=1.56358
2-Theta - Scale
BDX 14753-inf40-poudre
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
kaolinite
feldspaths potassiques
feldspaths calco-sodiques
oxydes de titane (anatase et/ou rutile)

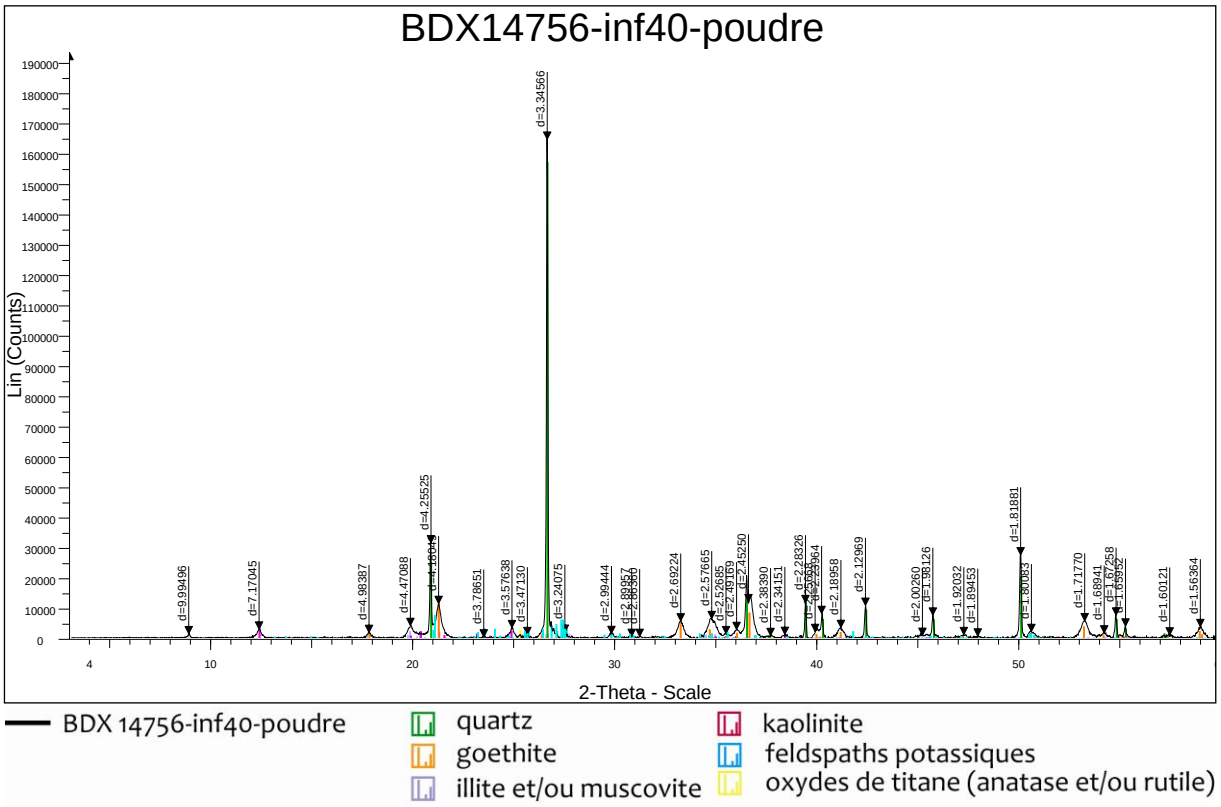

BDX14754-S-LO
vermiculite ?
illite / muscovite
kaolinite
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
d=10.02139
d=7.14254
d=4.96209
d=4.16757
d=3.56853
d=3.33633
BDX 14754-S-LO
BDX 14754-S-LO _ Ethylène-Glycol
BDX 14754-S-LO _ chauffe à 350°C
BDX 14754-S-LO _ chauffe à 550°C
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite

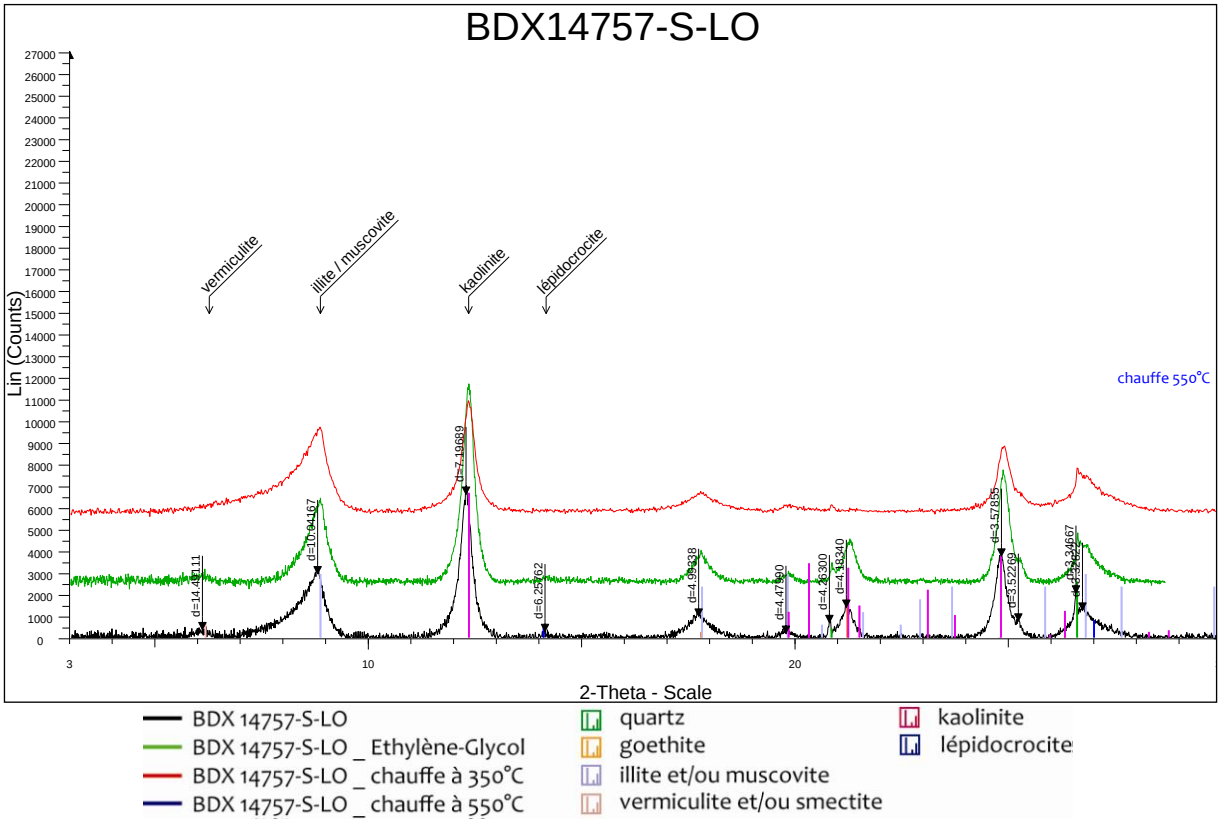

BDX14754-inf40-poudre
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
d=10.03952
d=7.17056
d=4.98279
d=4.47606
d=4.17997
d=3.78387
d=3.58113
d=3.34630
d=3.23181
d=2.99813
d=2.69442
d=2.57787
d=2.44954
d=2.19104
d=2.12969
d=2.00609
d=1.98193
d=1.92076
d=1.81922
d=1.71882
d=1.69254
d=1.67291
d=1.60380
d=1.56384
BDX 14754-inf40-poudre
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
kaolinite
feldspaths potassiques

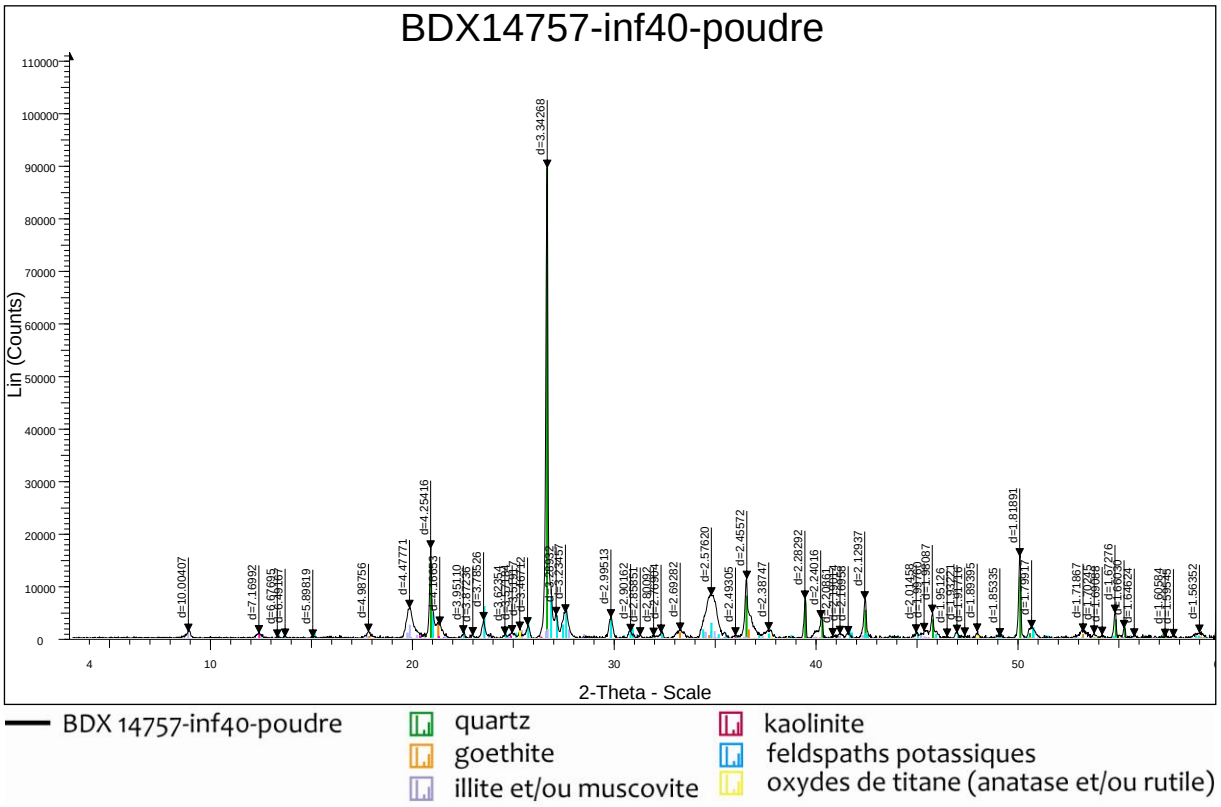

BDX14755-S-LO
smectite+vermiculite
illite / muscovite
kaolinite
lépidocrocite
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
d=14.69217
d=10.02268
d=7.18715
d=6.26497
d=4.97018
d=4.46128
d=4.17042
d=3.57855
d=3.34255
d=3.31603
BDX 14755-S-LO
BDX 14755-S-LO _ Ethylène-Glycol
BDX 14755-S-LO _ chauffe à 350°C
BDX 14755-S-LO _ chauffe à 550°C
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite
lépidocrocite

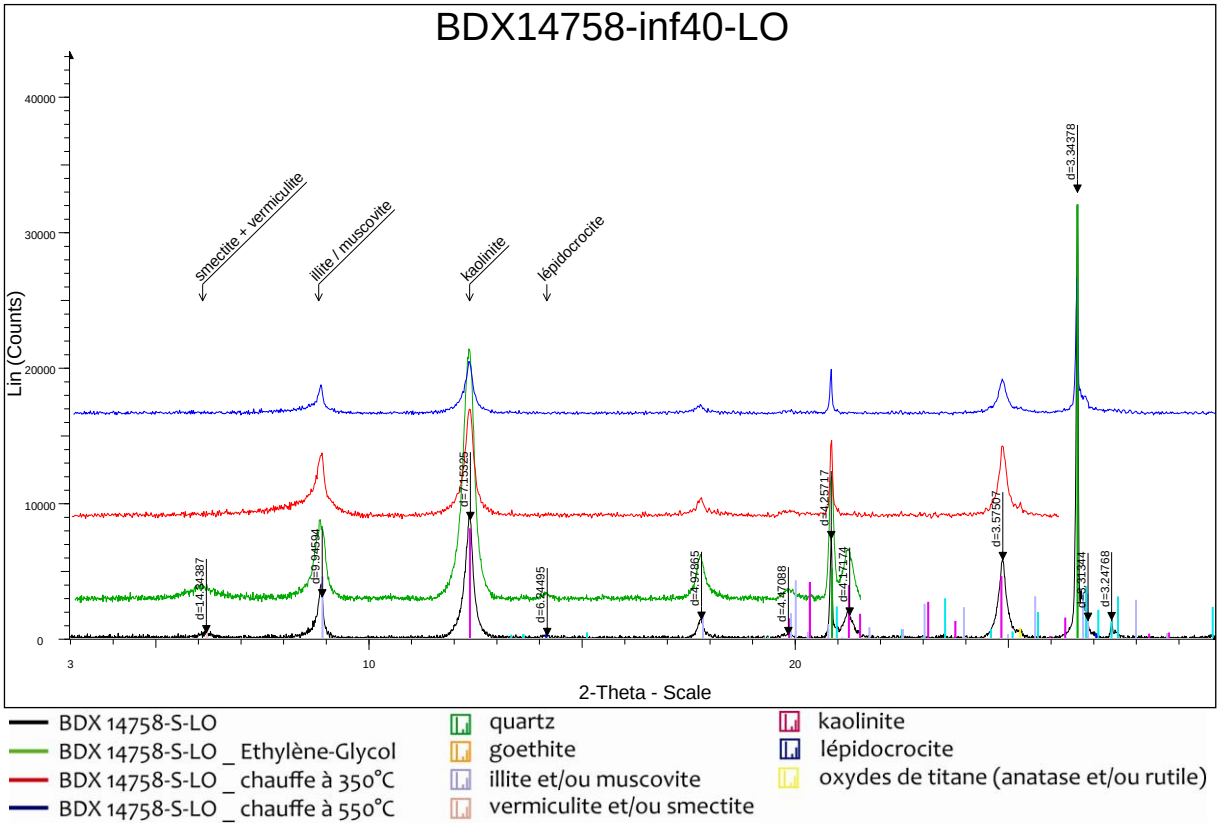

BDX14755-inf40-poudre
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
d=14.71640
d=10.01960
d=7.17536
d=5.68287
d=4.97688
d=4.46210
d=4.19362
d=3.57434
d=3.34379
d=3.22720
d=2.98987
d=2.69033
d=2.57218
d=2.49827
d=2.44687
d=2.38430
d=2.34111
d=2.28730
d=2.24618
d=2.19117
d=2.12904
d=2.00373
d=1.92137
d=1.89471
d=1.81972
d=1.79604
d=1.71823
d=1.56334
BDX 14755-inf40-poudre
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
kaolinite
feldspaths potassiques
oxydes de titane (anatase et/ou rutile)

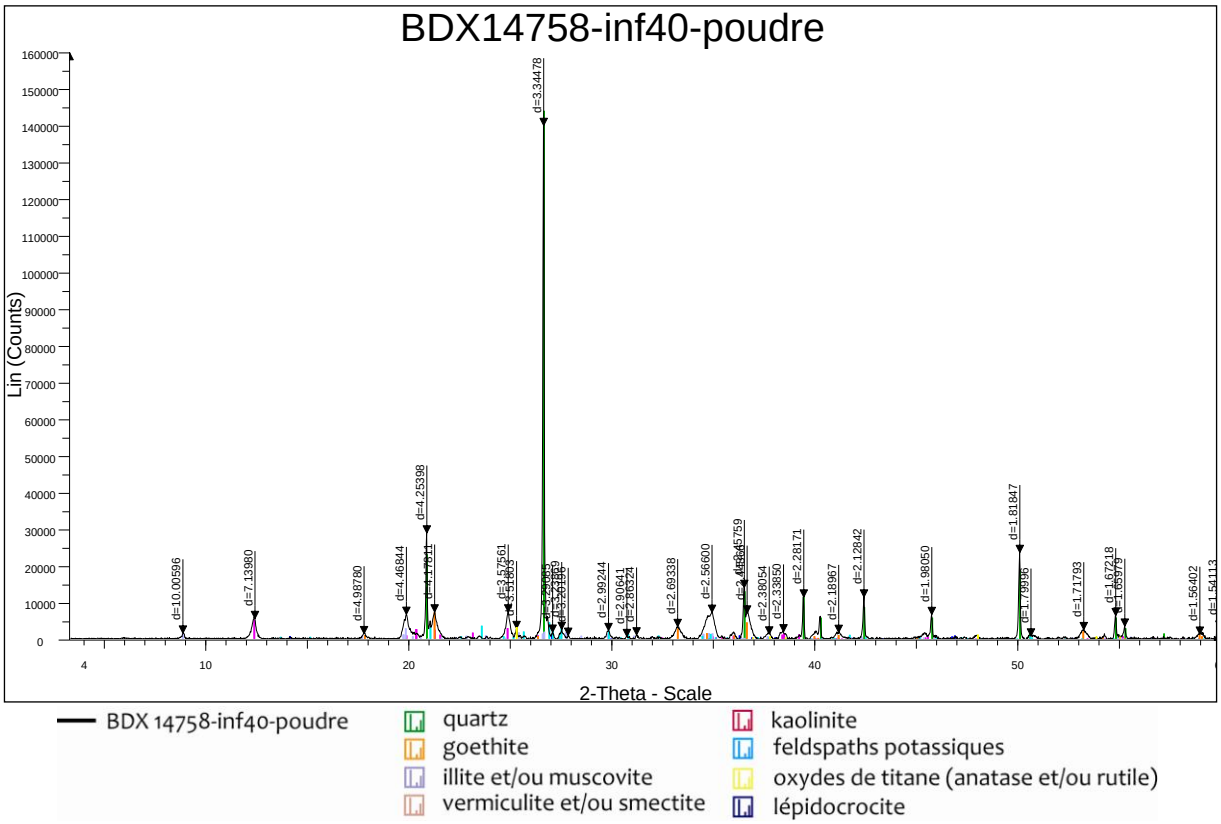

BDX14756-S-LO
smectite + vermiculite
illite / muscovite
kaolinite
lépidocrocite
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
d=14.45153
d=9.98493
d=7.16777
d=6.25761
d=4.97943
d=4.17042
d=3.57382
d=3.34049
BDX 14756-S-LO
BDX 14756-S-LO _ Ethylène-Glycol
BDX 14756-S-LO _ chauffe à 350°C
BDX 14756-S-LO _ chauffe à 550°C
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite
lépidocrocite


BDX14756-inf40-poudre
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
d=3.34566
d=4.25525
d=9.99496
d=7.17045
d=4.98387
d=4.47088
d=3.78651
d=3.57638
d=3.47130
d=3.24075
d=2.99444
d=2.69224
d=2.57665
d=2.52685
d=2.49169
d=2.45290
d=2.38390
d=2.34151
d=2.28326
d=2.18958
d=2.12969
d=2.00260
d=1.98126
d=1.92032
d=1.89453
d=1.81881
d=1.80083
d=1.71770
d=1.68941
d=1.67258
d=1.65952
d=1.60121
d=1.56364
BDX 14756-inf40-poudre
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
kaolinite
feldspaths potassiques
oxydes de titane (anatase et/ou rutile)


BDX14757-S-LO
vermiculite
illite / muscovite
kaolinite
lépidocrocite
chauffe 550°C
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
BDX 14757-S-LO
BDX 14757-S-LO _ Ethylène-Glycol
BDX 14757-S-LO _ chauffe à 350°C
BDX 14757-S-LO _ chauffe à 550°C
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite
lépidocrocite


BDX14757-inf40-poudre
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
BDX 14757-inf40-poudre
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
kaolinite
feldspaths potassiques
oxydes de titane (anatase et/ou rutile)


BDX14758-inf40-LO
smectite + vermiculite
illite / muscovite
kaolinite
lépidocrocite
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
BDX 14758-S-LO
BDX 14758-S-LO _ Ethylène-Glycol
BDX 14758-S-LO _ chauffe à 350°C
BDX 14758-S-LO _ chauffe à 550°C
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite
lépidocrocite
oxydes de titane (anatase et/ou rutile)


BDX14758-inf40-poudre
Lin (Counts)
2-Theta - Scale
BDX 14758-inf40-poudre
quartz
goethite
illite et/ou muscovite
vermiculite et/ou smectite
kaolinite
feldspaths potassiques
oxydes de titane (anatase et/ou rutile)
lépidocrocite

Fraction < 40 µm	Minéraux argileux						Minéraux non-argileux								
	smectite	vermiculite	chlorite	interstratifié	illite / muscovite	kaolinite	quartz	Feld K	Feld Ca/Na	goethite	hématite	magnétite / maghémite	lépidocrocite	anatase	rutile
BDX14748	+				++	+++									
BDX14749	+	+		+/-	++	+++									
BDX14750*					++	+++									
BDX14751	+	+			++	+++									
BDX14752		+			++	+++									
BDX14753		+			++	+++									
BDX14754		+/-			++	+++									
BDX14755	+ ?	++		ou à base de smectite	+	+++									
BDX14756	+	+			+	+++									
BDX14757		+			++	+++									
BDX14758		+			++	+++									
BDX14759	+		+	I/S (+/-)	+++	++									?
BDX14760	+				++	+++									

Fraction > 40 µm	Minéraux argileux						Minéraux non-argileux									
	smectite	vermiculite	chlorite	interstratifié	illite / muscovite	kaolinite	quartz	Feld K	Feld Ca/Na	goethite	hématite	magnétite / maghémite	lépidocrocite	anatase	rutile	autre
BDX14748																
BDX14749																
BDX14750*																
BDX14751																
BDX14752																
BDX14753																calcite ?
BDX14754																
BDX14755	?															
BDX14756	?															
BDX14757																
BDX14758	?															
BDX14759																
BDX14760															?	

Tableau 42 : Composition minérale des prélèvements obtenus par DRX.
Feld : feldspaths

* fraction > ou < 500 µm

Forte présence

Présence faible

Absence

(+/-), (+), (++), (+++) : Quantification relative

III.5. **Morphologie des grains : exoscopie**

L'exoscopie des grains de quartz consiste à observer la morphologie des grains pour identifier des stigmates permettant de déterminer l'origine des grains (éolienne, fluviatile…). Les travaux de ce domaine (Le Ribault, 1977 ; El Bellaoui, 1982 ; Swezey, 1998 ; Legigan, 2002 ; Niftah *et al.*, 2005) sont habituellement réalisés sur la fraction grossière (200-500 µm).

L'étude étant ici centrée sur la fraction inférieure à 40 µm, nous avons réalisé les observations sur cette fraction. En effet, une origine différente des grains au sein des sédiments argileux pourrait être une explication d'une variabilité du signal TL.

III.5.1. Préparation des échantillons

Après plusieurs essais pour essayer de séparer les grains de quartz de la fraction argileuse, la dispersion dans l'éthanol aux ultrasons avec récupération de la fraction autour de 40 µm (la fraction supérieure surnageante est jetée) et attaque à l'H_2O_2 sont les plus efficaces.

III.5.2. Observation à la loupe binoculaire

Cette première étape permet de séparer les échantillons en deux groupes : intérieur et extérieur. En effet, la proportion de grains de couleur rouge-orangé est bien moindre pour les deux prélèvements extérieurs (Figure 206, BDX 14760) que pour les autres (Figure 206, BDX 14753), ce qui s'explique probablement par la plus faible quantité d'oxydes de fer détectée précédemment.

On observe aussi bien des grains mats que des grains anguleux et brillants.

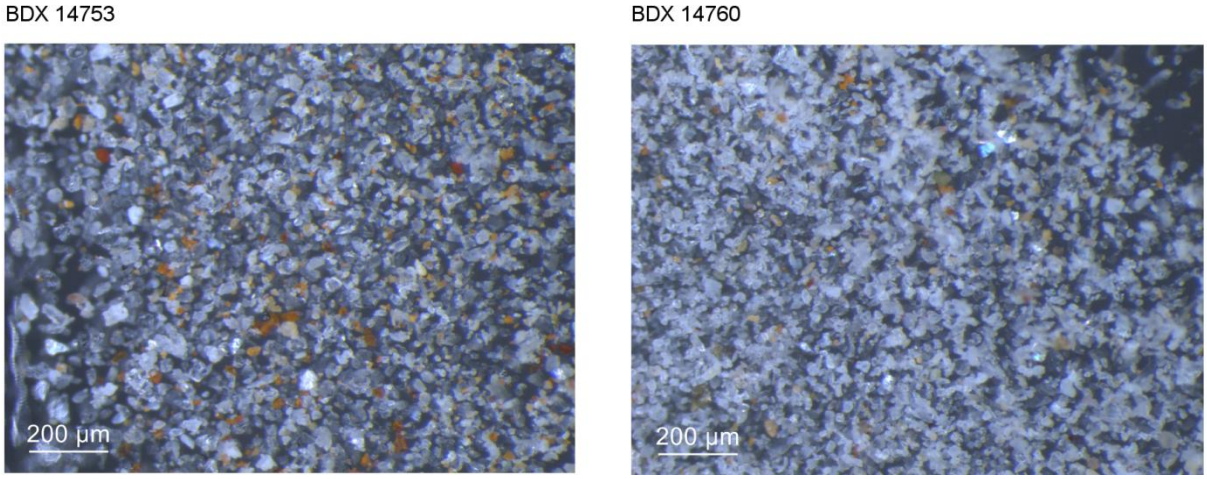


Figure 206 : Observation à la loupe binoculaire des grains de taille < 40 µm.

III.5.3. Observation au microscope électronique à balayage

Pour chaque échantillon, on dépose sur une pastille de carbone une petite quantité de grains. Pour chaque grain observé (Figure 207), une analyse qualitative a été effectuée pour connaître la nature du grain reportée dans le Tableau 43.

La nature des grains observés est variée : quartz, feldspath (majoritairement potassique), zircon, oxyde de titane, de fer… Notons aussi la présence de monazite, minéral riche en thorium (élément radioactif).

Plusieurs morphologies de grains ont été repérées pour le quartz. L'observation a conduit à leur classement en cinq catégories définies comme :

- Avec / sans dépôt : avec / sans agglomération à la surface d'un grain lisse.
- Bipyramidé
- « Corrodé » : dont la surface du grain semble attaquée comme sous l'effet d'une action chimique.
- Piqueté : dont la surface du grain est criblée de petits trous.

Quelques traces de chocs (observées sur peu de grains) ont été repérées (Figure 207) telle que des stries, des croissants et V de chocs. Il est difficile d'attribuer une origine à ces traces, cependant, d'après Legigan (2002), certaines pourraient s'apparenter à une origine éolienne.

Ainsi dans la phase fine (inférieure à 40 µm) il y a *a priori* au moins deux origines : une éolienne et une issue des grès du substrat. Ceci pourrait expliquer une part de la variabilité du signal TL.

III.6. **Teneur en radioélément**

La spectrométrie gamma permet de quantifier les radioéléments (K, U, Th) présents dans l'échantillon. Cette mesure est réalisée pour évaluer les variabilités de ces teneurs dans les sédiments de la grotte.

III.6.1. Préparation des échantillons

Le fragment est broyé de manière à avoir une poudre homogène. Cette dernière est ensuite compactée dans une boîte de 12 cm^3 puis scellée pour éviter que le radon (gaz, descendant radioactif de l'uranium) ne s'échappe.

III.6.2. Résultats

Les mesures sont présentées dans la Figure 208. Les sédiments argileux contiennent aux alentours de 2 % de potassium (K), sauf pour BDX 14757 et les deux prélèvements extérieurs qui sont plus riches en potassium. En revanche, les deux sédiments extérieurs contiennent moins d'uranium (< 5 ppm) que le reste des prélèvements (entre 10 et 20 ppm) et présentent des valeurs classiques d'environ 0,3 du rapport $^{238}U/Th$. Les teneurs en thorium sont assez homogènes autour de 15 ppm avec toutefois BDX 14754 qui présente une valeur plus faible (10 ppm). La présence de monazite (phosphate de terres rares et de thorium) repérée au MEB dans BDX 14751, BDX 14752 et BDX 14760 ne semble pas impliquer directement une teneur en thorium plus élevée du sédiment, ce qui implique que cet élément est porté majoritairement par les minéraux de la fraction fine.

Sur la Figure 209, sont représenté les points figuratifs des sédiments dans les diagrammes K-Th et $U(^{238}U)$-Th. K-Th montre une variabilité notable de la composition du sédiment, sans qu'aucune corrélation n'apparaisse entre ces éléments. On peut donc penser que le sédiment des Fraux est composé d'un cortège minéral complexe, dans le sens où n'apparaît aucune droite de corrélation qui aurait traduit un mélange binaire entre deux assemblages minéraux de composition radiochimique distincte.

	Quartz (Q)					Feldspath (F)			Zircon	Oxyde de Titane	Oxyde de titane et fer	Dépôt de Fe, cristaux	Sulfate de Baryum	Monazite	Feldspath calcosodique	Traces de choc
	sans dépôt	bipyramidé	corrodé	avec dépôt	piqueté	sans dépôt	"forme de cube"	corrodé								
14748	x	x	x				x	x	x	x	x					conchoïdale sur ilménite cupule sur Q
14749	xx	x	x	xx				xx	x	xx	x	x	x		x	V et croissants de choc, stries sur Q stries sur sulfate de baryum
14751		x	x	x			x	x				xx		x		
14752		x	x				x	x				x		x		
14753	xx		x	x	x	x		xx	x	x		xx				V de choc, cassures sur Q
14755				x			x	x				x				
14756	xx	x	x	x				xx		x		xx				cassures sur F et Q
14757		x		xx			x	x	x		x					
14758	x	x		x			x	x	xx			x				stries sur Q
14759			x	x				x	x	x		x				
14760	x	x		x		x		x	x			xx		x		Stries sur Q

Tableau 43 : Récapitulatif des grains observés aux MEB (Q = quartz et F = feldspath).

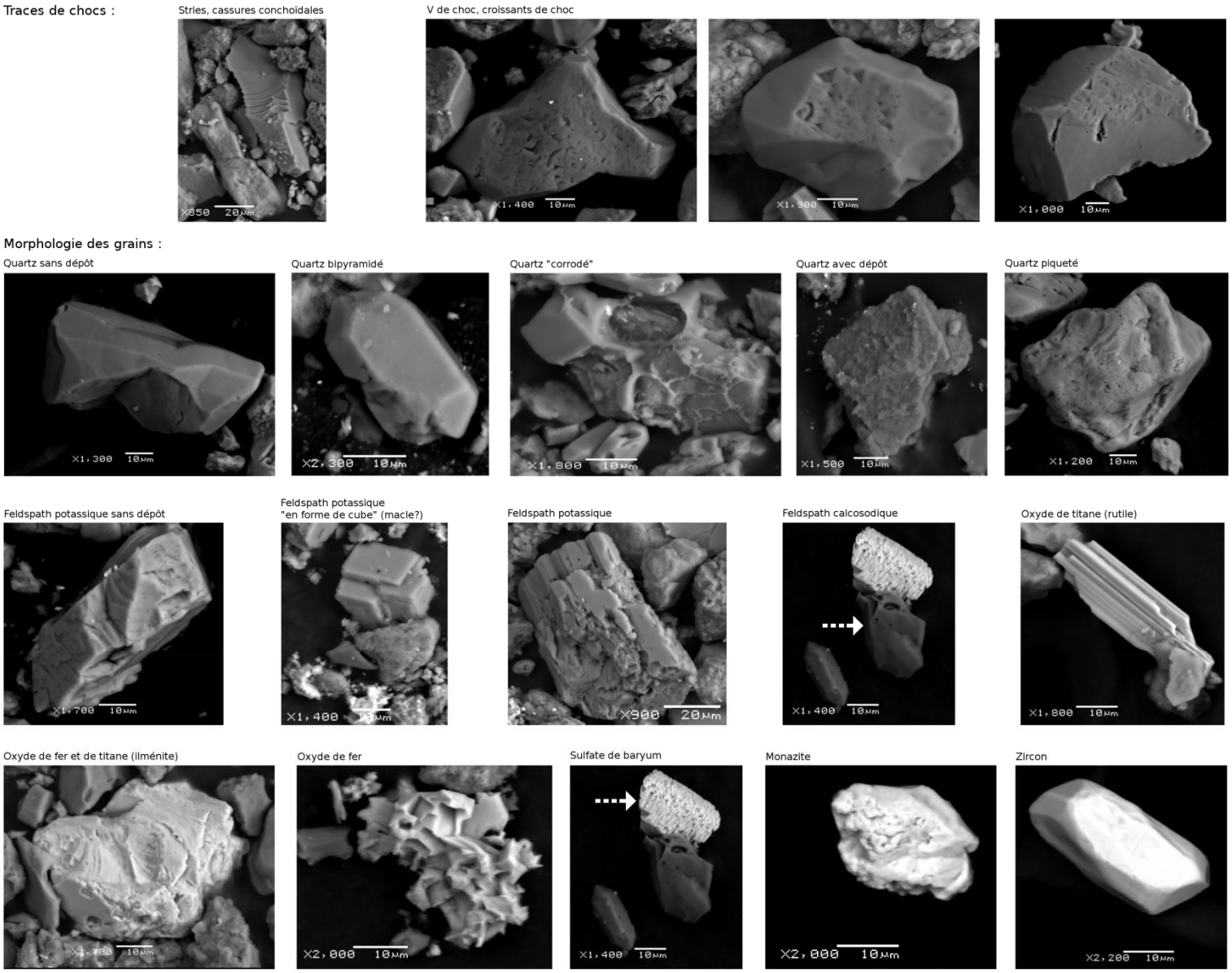
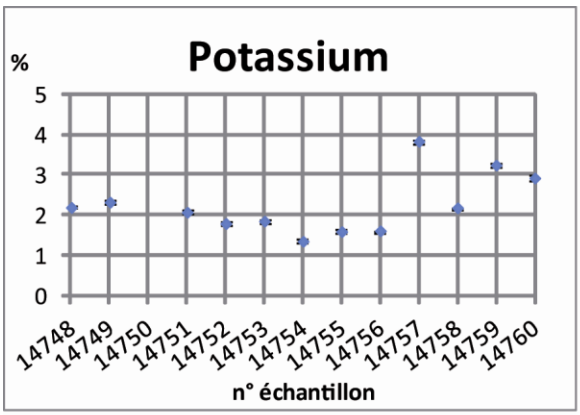
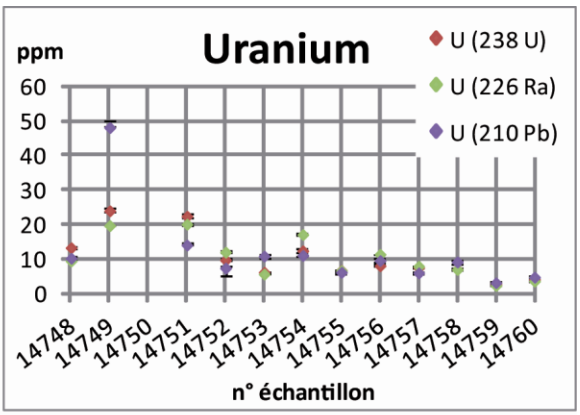
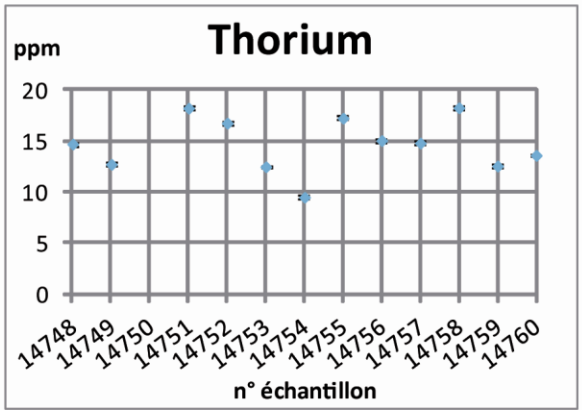


Figure 207 : Exemple de traces de choc et de morphologie de grains.







	K (%)	+/-	U(238U) ppm	+/-	U(226Ra) ppm	+/-	U(210Pb) ppm	+/-	Th ppm	+/-	U238/Th	+/-
BDX 14748	2.19	0.04	13.31	0.35	9.49	0.10	10.25	0.56	14.73	0.18	0.90	0.03
BDX 14749	2.32	0.05	24.01	0.54	19.71	0.18	48.11	2.03	12.74	0.19	1.88	0.05
BDX 14751	2.07	0.05	22.43	0.56	20.11	0.19	14.07	0.79	18.24	0.23	1.23	0.03
BDX 14752	1.79	0.04	9.75	0.35	12.04	0.12	7.39	0.50	16.77	0.20	0.58	0.02
BDX 14753	1.85	0.04	6.22	0.25	5.67	0.07	10.88	0.56	12.50	0.16	0.50	0.02
BDX 14754	1.35	0.05	12.41	0.38	17.12	0.17	11.07	0.69	9.51	0.18	1.30	0.05
BDX 14755	1.59	0.04	6.73	0.31	6.66	0.09	6.17	0.52	17.26	0.22	0.39	0.02
BDX 14756	2.61	0.04	8.08	0.34	11.41	0.13	9.58	0.62	15.07	0.21	0.54	0.02
BDX 14757	3.83	0.06	7.52	0.30	7.94	0.09	6.01	0.46	14.83	0.19	0.51	0.02
BDX 14758	2.18	0.05	7.00	0.33	6.98	0.10	9.17	0.59	18.28	0.24	0.38	0.02
BDX 14759	3.24	0.06	2.71	0.23	2.37	0.06	2.16	0.38	12.57	0.19	0.22	0.02
BDX 14760	2.92	0.05	4.09	0.23	3.62	0.06	4.75	0.38	13.62	0.18	0.30	0.02

Figure 208 : Teneurs en radioéléments au sein des prélèvements argileux.

Le diagramme U-Th renforce également cette idée, avec cependant le constat d'une plus forte variabilité de l'uranium que du thorium, signe possible d'un enrichissement conséquent en uranium (ou en minéraux riches en uranium) d'un sédiment présentant une variabilité assez importante en Thorium.

Le rapport U/Th (^{238}U/Th ou ^{226}Ra/Th) de presque tous les prélèvements effectués dans le réseau karstique est largement supérieur à 0,3. Il atteint des valeurs très élevées de près de 2 pour l'échantillon BDX 14749 (secteur 13). C'est finalement l'uranium en teneurs très élevées qui caractérise les sédiments fins des Fraux (à titre de comparaison, les échantillons BDX 14759 et BDX 14760 sont « normaux » du point de vue des teneurs en K, U et Th). L'origine de cette forte teneur est vraisemblablement à rechercher d'une part au niveau de la circulation de l'uranium issu

du lessivage du sol des parties sommitales du massif, et d'autre part de l'altération du grès, processus susceptible de libérer les ions d'uranium, connus pour leur solubilité en milieu oxydant.

Les fortes valeurs à la fois de l'uranium et du radium laissent penser que ce processus est ancien (plusieurs centaines de milliers d'années) et que le système a atteint un certain degré d'équilibre. Cependant ces processus pourraient être toujours actifs, ce que montrent les déséquilibres entre uranium et radium, mais plus visiblement entre radium et plomb-210, avec ce pic particulièrement important de l'activité de ^{210}Pb (piégé dans les sédiments via le radon-222) dans le sédiment BDX 14759, au niveau d'un des points bas du secteur concerné (Figure 208).

En représentant la teneur en thorium en fonction de celle en potassium ou uranium (^{238}U), aucun regroupement particulier des sédiments ne se dégage (Figure 209). Les sédiments des Fraux présentent donc une importante variabilité radiochimique.

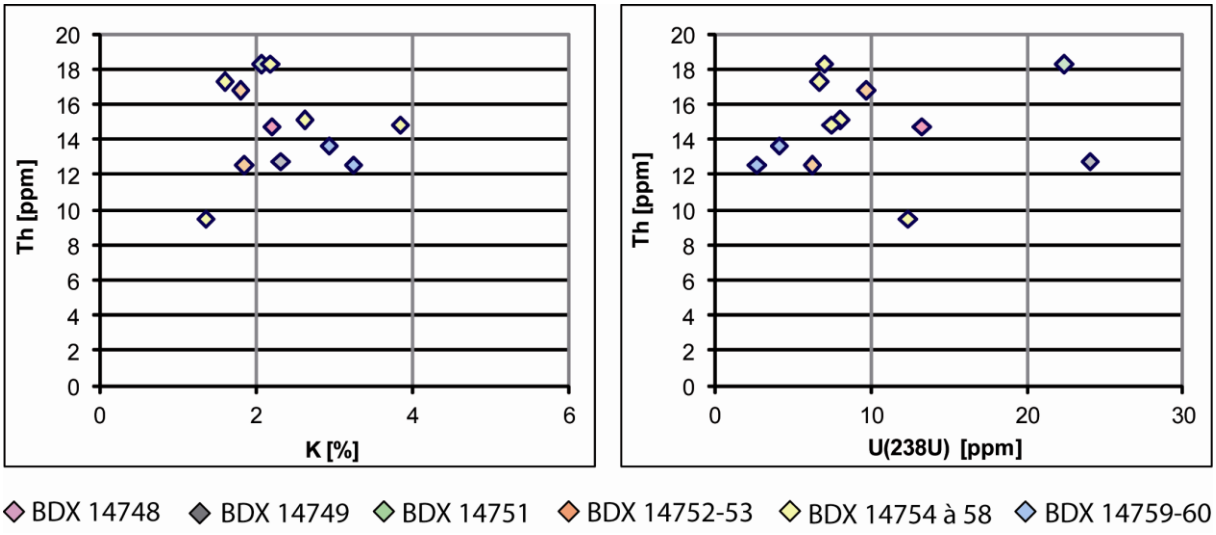


Figure 209 : Radiochimie des prélèvements argileux.

La Figure 210 montre une grande variabilité du rapport U(^{226}Ra)/U(^{238}U) (facteur 10). La plupart des prélèvements présentent un déséquilibre de la chaîne de l'uranium. BDX 14753-55-57-58-59-60 semblent à l'équilibre. BDX 14748-49-51 et 52-54-56 présentent des déséquilibres.

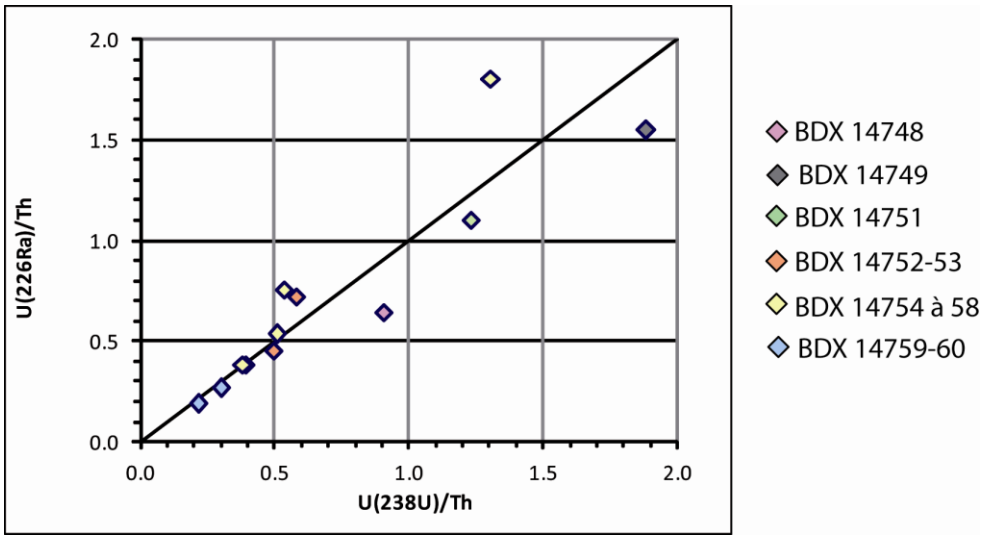


Figure 210 : Déséquilibre de la chaîne de l'uranium.

Au bilan, la composition radiochimique des sédiments des Fraux montre une forte hétérogénéité, témoin d'une variabilité minéralogique importante au sein de la grotte et de probables processus d'enrichissement en uranium des fractions fines. Par comparaison, les deux prélèvements extérieurs se distinguent fortement des sédiments argileux intérieurs à la grotte.

III.7. **Mesures de thermoluminescence**

La TL est la seule mesure qui a pu être effectuée sur les prélèvements de la sole. La comparaison de ces signaux avec le premier sédiment argileux pris comme référence thermique montre d'importantes différences d'intensité. Il s'agit d'étudier la variabilité des signaux TL de l'ensemble des prélèvements.

Les résultats de cette partie ayant été complétés et étant directement liés avec le corps du texte, ils ont été intégrés au texte de la thèse. De même, le bilan est repris dans le texte principal.

III.8. **Bilan**

La sole du foyer F4 a fait l'objet de 3 prélèvements pour l'analyse TL (paléotempératures). Ils ont été effectués en petite quantité en accord avec la politique de conservation de la grotte des Fraux. Les premiers résultats ont révélé des différences d'intensité TL significatives avec celle les sédiments choisis pour référence. Pour tenter d'expliquer ces variations, un échantillonnage de sédiments argileux prélevés dans divers secteurs du réseau souterrain a été étudié. En revanche, le sédiment argileux de la sole ne pouvant être à nouveau prélevé, il n'a pas pu être intégré à l'étude comparative.

L'ensemble de ce travail montre que :

- Les sédiments argileux extérieurs se différencient nettement en composition des sédiments de la grotte ;
- Tous les prélèvements internes à la grotte sont non sableux (sauf BDX 14750), très riches en fer et en manganèse (surtout BDX 14754) mais avec une certaine variabilité dans les teneurs, et présentent des teneurs exceptionnellement élevées en uranium ;
- Une diversité de la morphologie des grains et les traces de chocs observés tendrait à montrer des origines multiples de ces grains (éoliennes, fluviatiles…) ;
- Une certaine homogénéité a été observée dans la minéralogie des argiles, avec une dominante de kaolinite. Cependant les phases minérales non argileuses présentent des variabilités entre échantillons (feldspaths).

L'étude met en évidence une variabilité dans les sédiments argileux de la grotte. Il est difficile de repérer des tendances de dépôt par secteur, ou même au niveau de la grotte dans sa totalité.

Annexe 12

Brodard A., Guibert P., Lévêque F., Mathé V., Carozza L., Burens A. 2012. Thermal characterization of ancient hearths from the cave of Les Fraux (Dordogne, France) by thermoluminescence and magnetic susceptibility measurements. *Quaternary Geochronology* 10: 353-358.

Quaternary Geochronology 10 (2012) 353–358

Contents lists available at SciVerse ScienceDirect

Quaternary Geochronology

journal homepage: www.elsevier.com/locate/quageo

Research paper

Thermal characterization of ancient hearths from the cave of Les Fraux (Dordogne, France) by thermoluminescence and magnetic susceptibility measurements

Aurélie Brodard [a,*], Pierre Guibert [a], François Lévêque [b], Vivien Mathé [b], Laurent Carozza [c], Albane Burens [c]

[a] IRAMAT-CRP2A (Institut de recherche sur les Archéomatériaux-Centre de Recherche en Physique Appliquée à l'Archéologie) UMR 5060 CNRS, Université de Bordeaux 3, Maison de l'archéologie, Esplanade des Antilles, 33607 Pessac Cedex, France
[b] LIENSs (Littoral, Environnement et Sociétés) UMR 6250 CNRS, Université de La Rochelle, 2 rue Olympe de Gouges, 17000 La Rochelle, France
[c] GEODE (Géographie de l'environnement) UMR 5602 CNRS, Université de Toulouse le Mirail, Maison de la Recherche, 5 Allées A. Machado, 31058 Toulouse Cedex 9, France

ARTICLE INFO

Article history:
Received 17 October 2011
Received in revised form
6 April 2012
Accepted 12 April 2012
Available online 22 April 2012

Keywords:
Fired sediment
Thermoluminescence
Quartz
Temperature
Magnetic susceptibility

ABSTRACT

Numerous sorts of evidence of fires were observed in the cave of Les Fraux (Dordogne, France) and in particular the effects of fire on sediment were studied for a better understanding of their use centuries ago. Our present objective is the evaluation of the firing intensity by determining the past temperature (paleotemperature) attained by the topmost sediment of the archaeological fires. The principle of paleotemperature determination is based on the thermoluminescence (TL) properties of quartz and the magnetic susceptibility of the sediment. By comparing the TL signal of anciently heated quartz to the TL signal of thermal references made in the laboratory, we were able to obtain a maximal equivalent temperature attained for each sample extracted from ancient fires. The magnetic susceptibility (previously measured on the hearth surface) could thus be estimated as a function of temperature. The main result of this study is the temperature mapping of the hearth which can be used as meaningful information about the ancient firing intensity.

© 2012 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

At the cave of les Fraux, which was occupied at the end of the Bronze Age, numerous hearths were found. The question about the function of these hearths, their number, and their relation to the rock art are relevant, especially in an underground context. The study of these hearths could present new information concerning the heating intensity, the length of use of the fire structures and, consequently, their functions. In this particular case, the approach used in the study of hearths, and more precisely in the determination of the paleotemperature of the topmost sediment of the hearths, is the thermoluminescence of quartz.

Some studies have already shown an interest in the evolution of a thermoluminescence (TL) signal in relation to temperature. Valladas (1980, 1981) determined the maximal temperature attained in the past by heated sandstones, by estimating the saturation point of TL signals with the dose added (the temperature of TL curves at which natural and natural + doses overlap). This saturation point is situated at circa 100 °C beyond the expected heating temperature of sandstones. Many researchers also considered the sensitivity of the 110 °C TL peak to estimate the firing temperature on quartz (Sunta and David, 1982; Watson and Aitken, 1985; Koul et al., 1996) or on flint (Göksu et al., 1989). Another study illustrated the evolution of the geological signal with the temperature measuring TL on a sample from an instrumented experimental fire (Spencer and Sanderson, 1994). More recently, different researches were carried out on TL signal dependence with thermal treatment. They showed that the shape of TL curves and the sensitivity changed with the temperature attained by heated quartz (Roque et al., 2004a), by ferruginous sandstones (Lahaye et al., 2006) and by ceramics (Roque et al., 2004b; Vieillevigne et al., 2007). These studies led us to consider the TL signal as a whole, including its intensity and its shape, to determine past heating temperatures of heated sediment (paleotemperature).

The studied sediments came from the cave of Les Fraux, located in Dordogne in France. This cave, discovered in 1989, is a rare example of a Bronze Age site with both archaeological remains and rock art preserved (Carozza et al., 2009). The known karstic network is composed of around 1 km of narrow galleries and rooms. The preservation of this site is exceptional as the cave entrance collapsed right after its last occupation around 3300 years ago. The small rate of sedimentation left most of the archaeological remains like hearths visible. Indeed there is multiple evidence of fires such as reddened areas, ashes and charcoals. The important

* Corresponding author. Tel.: +33 6 11 09 35 71; fax: +33 5 57 12 45 50.
E-mail address: aurelie.brodard@gmail.com (A. Brodard).

1871-1014/$ – see front matter © 2012 Elsevier B.V. All rights reserved.
doi:10.1016/j.quageo.2012.04.013

number of hearths leads us to study fires as a way to better understand the occupation of the cave. Therefore we wish to classify fires according to the importance of their effect on the sediment and thus the firing intensity.

2. Material and methods

In this paper, one hearth from the cave of Les Fraux (Fig. 1) is used as an example to present the results of the methodology developed. It consists of a clayey hearth located in the middle of reddened sediments, altered sandstones and charcoals.

Our general methodology started *in situ* by building a map of the magnetic susceptibility of the hearth, by doing surface measurements in the selected fire area. This set of measurements allowed us to choose the sampling locations for laboratory studies more precisely. Unheated sediment was also sampled to create thermal references. The latter are sediment samples with the same geological origin as that of the archaeological fires and heated according to a well defined thermal protocol in the laboratory. Then, the TL signals of all samples were measured. The comparison between the TL signals of past heated samples and the reference ones allowed us to determine the paleotemperature of each archaeologically heated sample. Finally, by calibrating *in situ* magnetic susceptibility measurements with paleotemperatures determined by TL, we obtained a temperature map of the hearth area under study.

2.1. Magnetic susceptibility

For *in situ* magnetic susceptibility measurements a KT-9 kappameter (Exploranium) was used. The magnetic susceptibility depends mainly on the content of magnetic minerals and their nature (principally iron oxides). Heating implies mineralogical transformations among iron oxides (Cudennec and Lecerf, 2005; Dunlop and Özdemir, 2007) depending on the nature of pristine iron oxides and the heating conditions (temperature, rates, duration, atmosphere…). In general, the higher the attained temperatures, the stronger the magnetic susceptibility. Thus, these measurements give data about the location of the hearth and about its intensity as well (Le Borgne, 1955, 1960). In this particular case, the magnetic susceptibility was used as an indicator of the perimeter of the heated zones because the variations in magnetic susceptibility were very important (at least multiplied by 100).

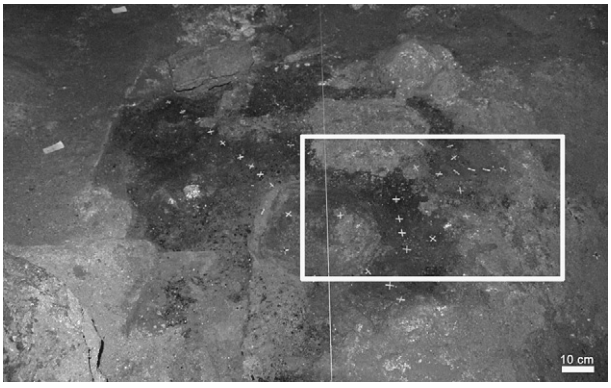


Fig. 1. Fireplace under study that is a part of a reddened area with numerous more or less altered sandstone blocks. The white rectangle represents the surface of the map of magnetic susceptibility. The white crosses show the sample locations for the TL measurements chosen along radial gradients of magnetic susceptibility. © Albane Burens, photograph published by courtesy of Edmond Goineaud, owner of the cave of Les Fraux.

2.2. Samples

The sampling locations were chosen along a radial gradient of magnetic susceptibility which was supposed to be the result of a temperature gradient. Small samples of sediments were extracted from the hearth (ca. 1 cm deep and 1 cm in diameter). An additional large sample of unheated sediment of the cave was also extracted from an unfired area of the cave with a view to making thermal references with quartz grains from the same geological origin.

In the laboratory, quartz grains were selected from the sediment by disaggregating and sieving at 80, 200, 500 μm. The fraction between 200 and 500 μm was the most abundant and thus was chosen for TL measurements. Subsequently, chemical treatments were applied: a HCl treatment (1M ≈ 3.1 w%) to dissolve any carbonates that can give rise to spurious signals while heating in a nitrogen atmosphere during TL measurements; followed by a HF (40 w%) etching for 1 h to wash the quartz grains from clay remains and dissolve feldspars; and subsequently a HCl treatment (3.1 w%) to remove potential fluorides.

2.3. Thermal references processing

A chamber furnace (Eurotherm 2416CG, Carbolite) was used to prepare the TL thermal references which would be compared to the hearth quartz samples. The unheated sediment (same geological origin than the sediment of hearth) sampled in the cave was heated according to a precisely designed heating cycle in air: (1) heating from room temperature to the maximal temperature programmed at a rate of 20 °C/min, then (2) staying for 1 h at this temperature (called also equivalent temperature) and subsequently (3) cooling until room temperature at a rate of 5 °C/min. Thus fourteen thermal references were made with different maximal temperatures that varied from 200 °C to 650 °C. We kept an unheated sample as a control. These thermal parameters were chosen to correspond to realistic heating rates and maximal temperature in a fire (Werts and Jarhen, 2007; our own experiments).

2.4. Thermoluminescence

TL measurements were carried out with the automatic equipment that was designed and built in the Bordeaux laboratory. The main organs of this apparatus are a 24 position multi-sample holder, a beta ^{90}Sr source, a heating chamber surmounted by optical filters (a set composed of two Schott BG12 filters and one Schott IR rejector; spectral window 350–475 nm), a PM tube (EMI 9813 QA) and associated electronics that record the luminescence signals as a function of temperature. The TL signals of the quartz grains extracted from sediments are recorded while heating from room temperature to 500 °C at 4 °C/s under a neutral atmosphere (nitrogen).

The TL measurements were detailed below:

Aliquot 1:
- Reading of the remaining natural TL: 'geological signal'
- Background
- Irradiation of 12 Gy (normalization dose)
- Reading of the normalization TL signal
- Background

These measurements were performed twice.

We recorded the TL signal that remained after the annealing treatment to make the reference material. As the sample used for making thermal references was never heated in the past, we called the remaining TL signal, 'geological signal'. We were then able to follow its decay as a function of the annealing temperature.

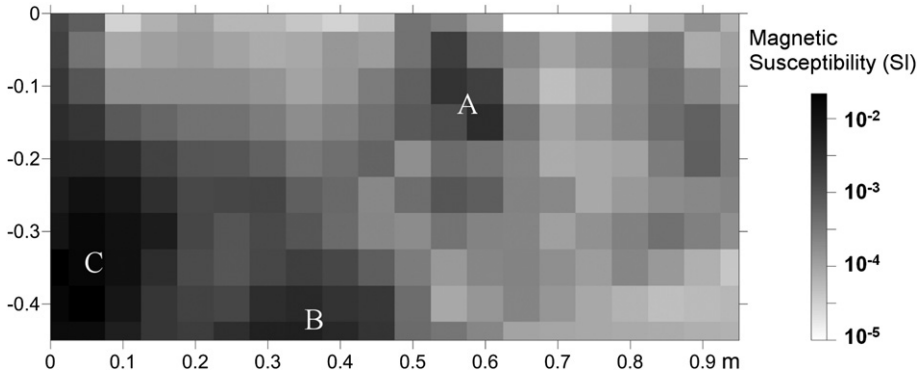


Fig. 2. Magnetic susceptibility mapping conducted in the area of the fireplace under study. Three places with strong magnetic susceptibility are visible (A, B, C).

Aliquot 2:

- Irradiation of 12 Gy following by a cut-heat at 230 °C
- Reading of the 'simulated natural' signal
- Background
- Irradiation of 12 Gy (normalization dose)
- Reading of the normalization TL signal
- Background

These measurements were also performed twice.

The TL signal named 'simulated natural' signal was recorded. To compare TL signals between references and hearth samples, it was necessary to simulate on the references the irradiation received by the archaeological samples during the time elapsed since the original fire. Therefore, a beta irradiation of 12 Gy followed by a cut-heat at 230 °C to erase low energy components of TL were performed on the reference quartz. The dose was chosen to be equivalent to the dose received since the archaeological fire (3300 years with a rate of 3.6 mGy/year, that was supposed to be a mean value for sedimentary sandy clayey material of that type in this area). The cut-heat temperature of 230 °C was determined following a trial/error procedure: the low temperature component (below 280 °C) of TL curves was compared between the thermal reference samples and the archaeological ones. Indeed, the quartz grains extracted from the hearth had a low temperature component of TL signal, around 250 °C. We observed that a cut-heat at 250 °C was too strong and erased all low temperature components (below 280 °C) of TL of thermal references. On the contrary, a cut-heat at 200 °C was too low and the remaining TL of the 230–280 °C region had too high intensity in comparison with archaeologically heated sediment. 230 °C appeared to be a reasonable compromise, even if some discrepancies were observed in the low temperature region of TL of archaeological samples.

All aliquots, either reference or archaeological ones, are made with the same quantity of quartz (mass and volume). No second glow normalization was necessary to compare intensities and glow curve shapes, although normalization experiments were performed systematically.

3. Results and discussion

3.1. Map of magnetic susceptibility

The map of magnetic susceptibility (Fig. 2) shows three zones of high values corresponding to the most concentrated magnetic phases, which probably are the most heated places. They correspond to the hearth (C), to one reddened area (A) and to a third zone (B) covered with charcoals. Based on these measurements, 34 samples of sediments were taken, that are represented by white crosses in Fig. 1. Quartz grains were extracted, as explained before, for TL measurements.

3.2. Thermoluminescence results

Firstly, the TL signals of thermal references are detailed. Fig. 3 illustrates the disappearance of the 'geological' TL signal as a function of the maximal temperature. The signal seems to progressively drop and move to high temperatures. The global TL intensity decreases drastically between the unheated reference and the

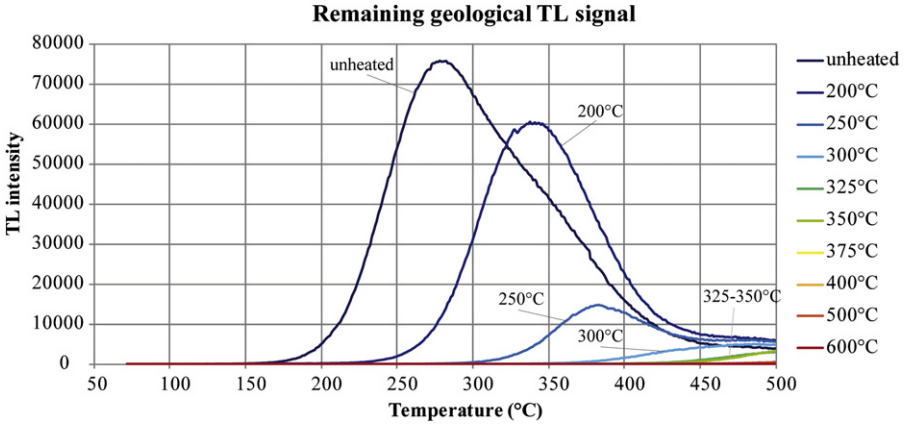


Fig. 3. Remaining 'geological' TL signal of the thermal references after annealing at various temperatures.

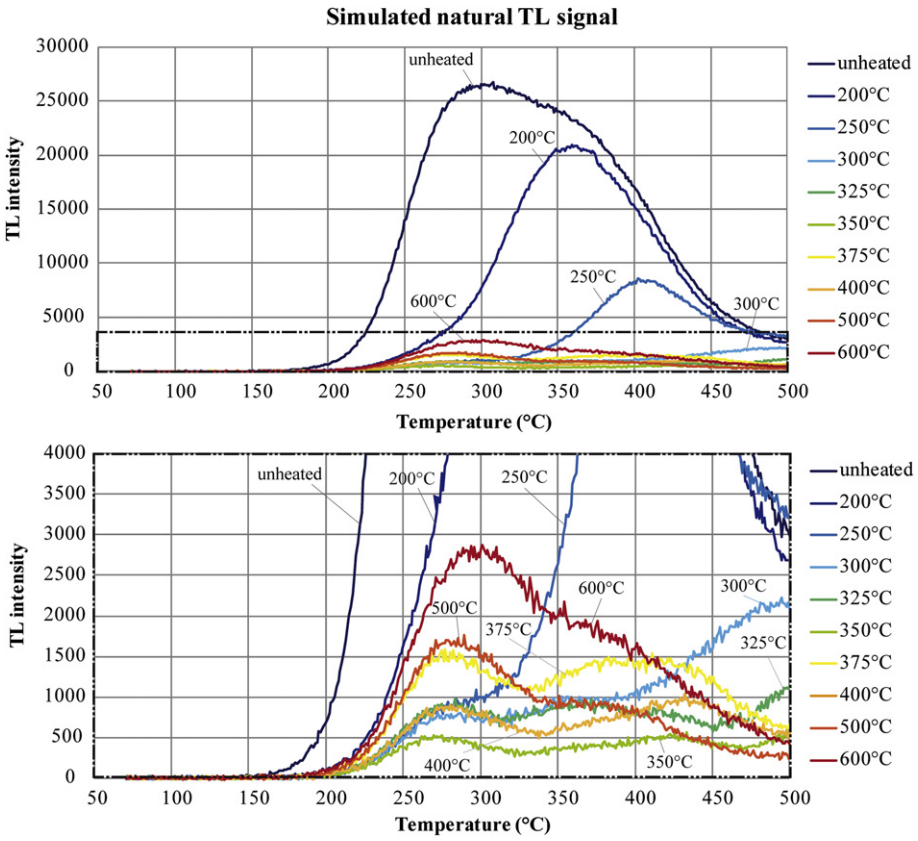


Fig. 4. 'Simulated natural' TL signal of the thermal references as a function of the previous annealing temperature.

250 °C ones. For references heated in the laboratory from 300 °C to 375 °C for 1 h, a residual signal remains in the high temperature region of the TL curves (>400 °C). After heating for 1 h at more than 375 °C, no geological TL signal remains anymore.

Fig. 4 illustrates the evolution of the 'simulated natural' TL signal. The unheated reference and those heated for 1 h at 200 °C and 250 °C are dominated by the geological signal (high intensity and saturation of TL). When the quartz was annealed below 375 °C,

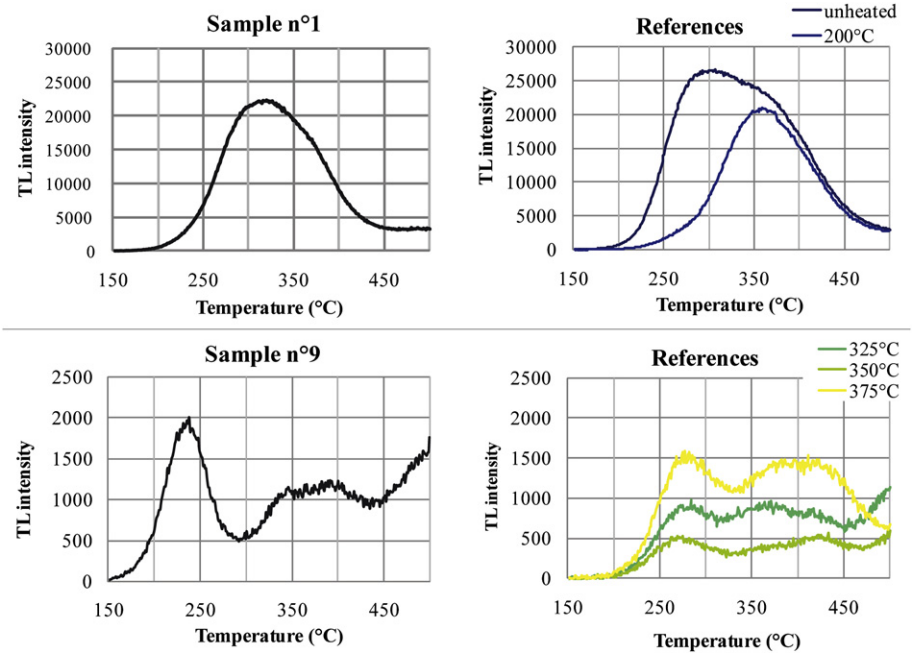


Fig. 5. Two examples of the comparison between the TL signals of a sample with those of thermal references. Sample #1 was just slightly heated. Sample #9 was heated about 350 °C.

Table 1
Sample numbers (#) and inventory code (BDX) with short description (s.: sandstone, s.r.: reddened sandstone, c.: charcoals, s.c.: sandstone with some charcoals) and calculated equivalent paleotemperature (*T*).

Samples numbers & description			*T*	Samples numbers & description			*T*
#	BDX		°C	#	BDX		°C
1	12619	s.	25	16	12634	c.	250
2	12620	s.r.	350	17	12635	c.	250
3	12621	s.r.	425	22	12639	s.r.	450
4	12622	s.r.	325	23	12640	s.r.	325
5	12623	s.r.	425	24	12641	s.r.	>300
6	12624	s.r.	550	25	12642	s.c.	?
7	12625	s.r.	600	26	12643	s.	600
8	12626	s.r.	425	27	12644	c.	450
9	12627	s.r.	350	28	12645	c.	>300
10	12628	s.	25	29	12646	c.	600
11	12629	s.r.	400	30	12647	c.	600
12	12630	s.	25	31	12648	c.	?
13	12631	c	600	32	12649	c.	250
14	12632	c.	25	33	12650	c.	200
15	12633	c.	25	34	12651	c.	200

a part of the geological signal remained in the high temperature regions of the TL curves but the general intensity dropped. For the thermal references which were heated at more than 375 °C, the intensity of two major components of the regenerated TL (at 280 °C and 360 °C) increased with the annealing temperature. We can also note the global enhancement of sensitivity for the 600 °C curve.

To estimate paleotemperature of hearth samples, the 'simulated natural' TL signal of reference samples and the natural signal of hearth samples were compared. The comparison was based on the shape and intensity of the respective TL curves. The 34 samples presented 34 different natural TL signals which, in general, matched the thermal references quite well. We may add that the paleotemperatures determined for hearth samples are to be considered as equivalent temperatures since they are dependent on the thermal protocol parameters used to process references.

Initially, a visual comparison was made and allowed a first attribution of paleotemperature. To exemplify the comparison, the samples #1 and #9 are compared to their best-fit references (Fig. 5): sample #1 presents a curve looking like an intermediary curve in intensity and shape between unheated and 200 °C references. We can conclude that this sample had just been slightly heated. The TL of sample #9, considering the temperature region between 300 °C and 480 °C, appears to be the closest to the reference heated at 350 °C.

In addition, a hierarchic classification (SFig. 1) of the TL curves of all samples was performed (STATISTICA: the dendrogram was constructed using Euclidean distances and Ward's method, Baxter, 2003). For that purpose the 150–470 °C region of TL curves (after background subtraction) of the reference samples and the hearth ones was cut into 32 integrals 10 °C wide, and every curve was then compared to each other. The classification confirmed our first visual determination of paleotemperature.

Finally an equivalent firing temperature was attributed to a large majority of samples (Table 1). Two samples remained indeterminate because their TL curves did not match with those of the thermal references (samples #25 and #31). Two others (samples #24 and #28) were poorly thermally characterized and we denoted them '>300 °C' due to the major discrepancies in TL curve shape between aliquots of the same material (one is attributed to 300 °C, the second to 600 °C, for instance). We can then conclude that these samples were heated above 300 °C. The spatial distribution of heated or unheated samples appeared to be consistent with the fact that the samples which were heated the most correspond to the hearth and the reddened areas.

3.3. Map of temperature

By comparing the temperature determined by TL and the magnetic susceptibility values of samples, it was possible to deduce a relationship between these two parameters (Brodard et al., submitted for publication). Based on this relationship, an equivalent temperature mapping of the area under study was obtained (Fig. 6).

First of all, we may notice that places which were heated the most (heated above 350 °C) emerge from a background due to the intrinsic variations of the mineralogy of the sediment. Secondly, we may observe that the magnetic susceptibility exhibits significant changes only for the material that was heated at more than 350 °C (equivalent temperature determined by TL). Nevertheless, the first enhancement of magnetic susceptibility is expected around 250–300 °C (Cudennec and Lecerf, 2005; Dekkers, 1990; our own experiments on the sediment of the cave of Les Fraux: Brodard et al., submitted for publication). To explain this discrepancy, one of the likely hypotheses is the differences in investigation volume and depths of both *in situ* magnetic measurements (around 2 cm deep, 5 cm in diameter) and sediment sampling for TL studies (less than 1 cm deep and 1 cm in diameter): magnetic measurements investigate a greater depth of sediment and, by averaging, a less heated material than the quartz sampled. Thus the temperature determined by TL is higher than the average temperature due to the depth gradient.

Nevertheless, it was possible to reconstruct a paleotemperature mapping of the hearths studied. The three zones of high magnetic susceptibility are now represented by zones of the most elevated temperatures. The B and C zones exhibit the most heated sediment

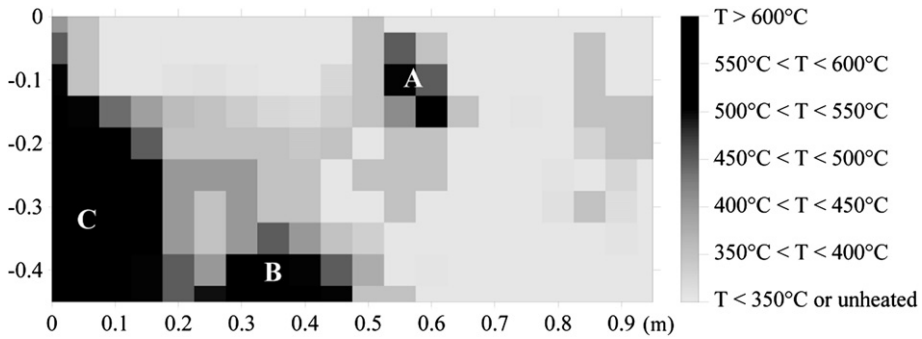


Fig. 6. Map of the equivalent temperature obtained after the calibration in temperature of the magnetic susceptibility values.

with paleotemperature equivalent to 600 °C. The temperature attained by the sediment of the reddened area (A) is lower, between 400 and 550 °C. Finally the heated places show up very clearly in contrast with the unheated or slightly heated sediment.

4. Conclusions

TL measurements of quartz allow determination of paleotemperature of anciently heated quartz. This is, naturally, to be considered as an equivalent temperature referencing to a particular thermal protocol. The combination of TL measurements with magnetic susceptibility makes the temperature mapping of important areas possible. As long as the sediment is the same (i.e. same geological origin of quartz, qualitative composition of the sediment), thermal references and calibration of magnetic susceptibility with temperature are usable. Only this methodology is transferable to another site but thermal references have to be recreated for each new material, each new site.

The integration of TL and magnetic susceptibility measurements on burnt sediments allowed the quantitative study of ancient hearths. The temperature attained by the topmost sediment is thus a first indication of the firing intensity. To better understand the heating marks let by ancient fires in the sediment, experimental fires have to be set up and monitored by series of thermocouples to record the temperatures attained at different locations and depths below the surface of the fire. This is the following step of this research, currently in progress.

In addition to the evaluation of the agreement in determining by TL the equivalent annealing temperature of quartz grains with a known thermal history, these fires also allow us to estimate the necessary quantity of wood for a chosen duration of heating. Finally, the combination of thermal characterization results with experimental fires will help to create a numerical model of fire adapted to our study. Its further integration in the three dimensional model of the cave of Les Fraux will allow a better characterization of the living environment in terms of light, heat, and certainly smoke, during the occupation at the Bronze Age.

Acknowledgments

The following institutions supported this work: CNRS INEE and INSHS, University of Bordeaux 3, Région Aquitaine. The authors are grateful to the anonymous reviewer for helpful remarks and suggestions which considerably improved the manuscript.

Editorial handling by: F. Preusser

Appendix A. Supplementary material

Supplementary material associated with this article can be found, in the online version, at doi:10.1016/j.quageo.2012.04.013.

References

Baxter, M., 2003. Statistics in Archaeology. Arnold, London.
Brodard, A., Guibert, P., Lévêque, F., Mathé, V., Carozza, L., Burens, A. Research on thermal characterization of hearths from the Bronze Age in the Cave of Les Fraux (St Martin de Fressengeas, Dordogne, France) by thermoluminescence and magnetic susceptibility, Archéosciences, submitted for publication.
Carozza, L., Burens, A., Billaud, Y., Ferullo, O., Bourrillon, R., Petrognani, S., Tosello, G., Goineaud, E., Goineaud, M., 2009. L'horizontal et le vertical – L'Âge du bronze de la grotte des Fraux (Saint-Martin-de-Fressengeas – Dordogne)De méditerranée et d'ailleurs. Mélanges offerts à Jean Guilaine. Archives d'Ecologie Préhistorique, 159–172. Toulouse.
Cudennec, Y., Lecerf, A., 2005. Topotactic transformations of goethite and lepidocrocite into hematite and maghemite. Solid State Sciences 7, 520–529.
Dekkers, M.J., 1990. Magnetic properties of natural goethite III. Magnetic behavior and properties of minerals originating from goethite dehydration during thermal demagnetization. Geophysical Journal International 103, 233–250.
Dunlop, D.J., Özdemir, Ö., 2007. Magnetizations in rocks and minerals. Treatise on Geophysics 5, 277–336.
Göksu, H.Y., Weiser, A., Regulla, D.F., 1989. 110°C TL peak records the ancient heat treatment of flint. Ancient TL 7 (1), 15–17.
Koul, D.K., Singhvi, A.K., Nambi, K.S.V., Bhat, C.L., Gupta, P.K., 1996. Feasibility of estimating firing temperature using the 110°C TL peak of quartz. Applied Radiation and Isotopes 47 (2), 191–194.
Lahaye, C., Godfrey-Smith, D.I., Guibert, P., Bechtel, F., 2006. Equivalent thermal history (HE) of ferruginous sandstones based on the thermal activation characteristics of quartz. Radiation Measurements 41, 995–1000.
Le Borgne, E., 1955. Susceptibilité magnétique anormale du sol superficiel. Annales de Géophysique 11, 399–419.
Le Borgne, E., 1960. Influence du feu sur les propriétés magnétiques du sol et sur celles du schiste et du granite. Annales de Géophysique 16, 159–196.
Roque, C., Guibert, P., Vartanian, E., Vieillevigne, E., Bechtel, F., 2004a. Changes in luminescence properties induced by thermal treatments; a case study at Sipan and Trujillo Moche sites (Peru). Radiation Measurements 38, 119–126.
Roque, C., Guibert, P., Duttine, M., Vartanian, E., Chapoulie, R., Bechtel, F., 2004b. Dependence of luminescence characteristics of irradiated quartz with the thermal treatment and consequences for TL dating. Geochronometria 23, 1–8.
Spencer, J.Q., Sanderson, D.C.W., 1994. Mapping thermal exposure by luminescence thermometry. Radiation Measurements 23, 465–468.
Sunta, C.M., David, M., 1982. Firing temperature of pottery from pre-dose sensitization of TL. PACT 6, 460–467.
Valladas, H., 1980. Investigation of thermoluminescence of burnt sandstones from prehistoric sites. Nuclear Instruments and Methods 175, 230–232.
Valladas, H., 1981. Thermoluminescence de grès de foyers préhistoriques: estimation de leur température de chauffe. Archaeometry 23, 221–229.
Vieillevigne, E., Guibert, P., Bechtel, F., 2007. Luminescence chronology of medieval citadel of Termez, Uzbekistan: dating of bricks masonries. Journal of Archaeological Science 34, 1402–1416.
Watson, I.A., Aitken, M.J., 1985. Firing temperature analysis using the 110°C TL peak of quartz. Nuclear Tracks 10 (4–6), 517–520.
Werts, S.P., Jarhen, A.H., 2007. Estimation of temperature beneath archaeological campfires using carbon stable isotope composition of soil organic matter. Journal of Archaeological Science 34, 850–857.