

Datation par les méthodes des familles de l'uranium et la résonance de spin électronique (ESR) du remplissage de la grotte des Ramandils à Port-la-Nouvelle (Aude, France)

YUJI YOKOYAMA (*), HUU-VAN NGUYEN (*), GUANJUN SHEN (*) (**), JEAN-PIERRE QUAEGBEUR (***)
et NZIENGUI KOUMBA (*) (****)

RÉSUMÉ

Un ossement, un coquillage et une stalagmite prélevés dans le remplissage de la grotte des Ramandils à Port-la-Nouvelle (Aude) ont été datés par différentes méthodes: la spectrométrie gamma non destructive, la spectrométrie alpha et la résonance de spin électronique (ESR).

(1) Pour l'ossement, un âge Th-230/U-234 de $188.000 \pm_{59.000}^{230.000}$ ans et un âge Pa-231/U-235 supérieur à 133.000 ans ont été obtenus.

(2) La stalagmite a un âge Th-230/U-234 de $192.000 \pm_{16.000}^{19.000}$ ans.

(3) L'âge du coquillage déterminé par la méthode de ESR dépend de la valeur k (le rapport d'efficacité alpha/bêta), et il est compris entre 128.000 ± 15.000 ans ($k = 0,3$) et 217.000 ± 22.000 ans ($k = 0,1$).

ABSTRACT

Samples of a bone, a shell and a stalagmite, are dated by different methods: the non destructive gamma-ray spectrometry, the alpha-ray spectrometry and the electron spin resonance (ESR). The following results are obtained:

(1) The bone has a Th-230/U-234 age of $188.000 \pm_{59.000}^{230.000}$ years and a Pa-231/U-235 age of more than 133.000 years.

(2) The stalagmite has a Th-230/U-234 age of $192.000 \pm_{16.000}^{19.000}$ years.

(3) The ESR age of the shell depends on the k-value (alpha/beta efficiency ratio) and it is between 128.000 ± 15.000 years ($k = 0.3$) and 217.000 ± 22.000 years ($k = 0,1$).

I. INTRODUCTION

La site des Ramandils est située à 3 Km. au sud de Port-la-Nouvelle (Aude) à mi-chemin entre l'étang de Sigean et celui de Lapalme (fig. 1). Un récent dégagement de la partie remaniée a montré que ce site est, en fait, une grotte creusée dans un calcaire Urgonien et remplie presque complètement par des sédiments.

La figure 2 montre schématiquement la stratigraphie du remplissage. L'industrie de cette grotte est un Moustérien typique, et peut être comparée à celle de l'Hortus (Lumley de, 1976). Le sol riche en faune et industrie se situe just au-dessus d'une plage marine à *Tapes diana*. Cette plage a été attribuée au dernier interglaciaire.

Nous avons daté par différentes méthodes un ossement, un coquillage et une stalagmite prélevés dans différents niveaux du remplissage de cette grotte.

(*) Centre des Faibles Radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91190 Gif-sur-Yvette, France.

(**) Division de Radioprotection, Station Antiépidémique de la Province de Guizhou, Chine.

(***) CEA-IRDI, DESICO, DPC, Centre d'Études Nucléaires de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, Cedex, France.

(****) Institut de Paléontologie Humaine, 1, Rue René Panhard, 75013 Paris, France.

II. EXPÉRIENCES ET RESULTATS

2.1 Ossement

Un ossement d'animal a été prélevé au niveau de la plage marine sans toutefois une certitude sur sa position stratigraphique. Cet échantillon a été daté par la spectrométrie gamma non destructive (fig. 3).

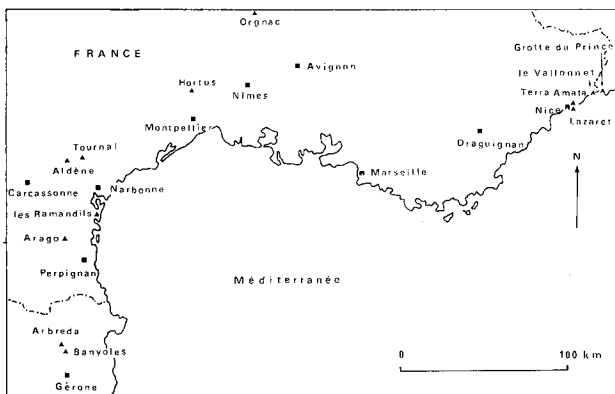


Fig. 1. - Situation géographique des sites préhistoriques dans le sud de la France et le nord-est de l'Espagne.

Les résultats obtenus ont montré que le rapport Th-230/U-234 est proche de l'unité et le rapport Pa-231/U-235 dépasse légèrement l'unité (tableau I). Ces résultats signifient que cet échantillon est très ancien. Un âge égal à $188.000 \pm_{59.000}^{230.000}$ ans est obtenu par la méthode Th-230/U-234, et un âge supérieur à 133.000 ans par la méthode Pa-231/U-235.

2.2 Stalagmite

Un échantillon de stalagmite a été prélevé près de la paroi nord de la grotte. Cette stalagmite est formée sur un bloc qui est situé au niveau à gros blocs (fig. 2). Toutefois, la position stratigraphique exacte de cet échantillon doit être vérifiée par une étude ultérieure.

Cet échantillon a une très faible teneur en uranium et, par conséquent, il a été daté par la spectrométrie alpha. Les résultats ont donné un âge de $192.000 \pm_{16.000}^{19.000}$ ans.

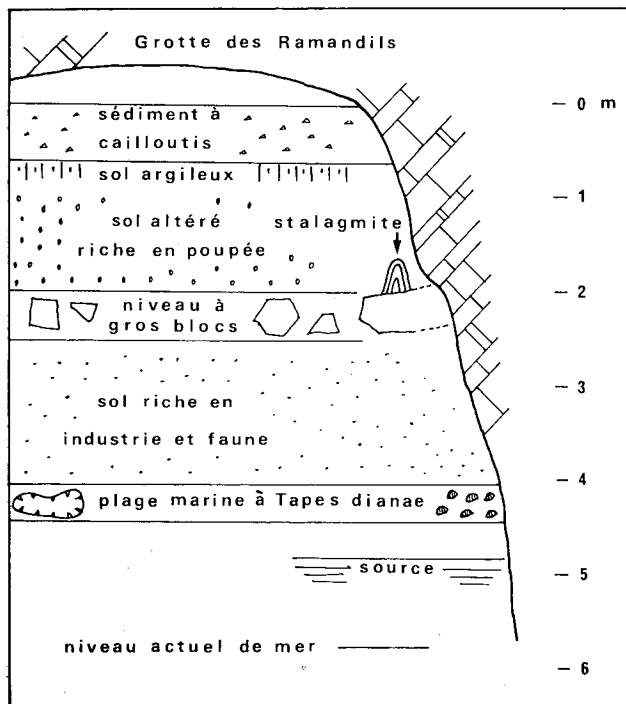


Fig. 2. - Coupe schématique et la position des échantillons de la grotte des Ramandils à Port-la-Nouvelle (Aude), France.

Échantillon	Ossement YR-01	Stalagmite YR-S1
Méthode	Spectrométrie γ	Spectrométrie α
Impureté insoluble (%)	n.d.	0,1
Activité (dpm/g.)		
U-238	$5,15 \pm 0,04$	0,0411
U-234	$5,68 \pm 0,77$	0,0473
Th-230	$4,76 \pm 0,22$	0,0405
Pa-231	$0,265 \pm 0,014$	n.d.
Th-232	$0,18 \pm 0,01$	0,0029
Rapport		
U-234/U-238	$1,10 \pm 0,15$	$1,152 \pm 0,026$
Th-230/U-234	$0,84 \pm 0,12$	$0,855 \pm 0,026$
Pa-231/U-235	$1,12 \pm 0,06$	n.d.
Th-230/Th-232	26,4	14,1
Age (ans)		
Th-230/U-234	$188.000 \pm_{59.000}^{230.000}$	$192.000 \pm_{16.000}^{19.000}$
Pa-231/U-235	> 133.000	n.d.

Tableau I. - Datation par la spectrométrie gamma non destructive et la spectrométrie alpha des échantillons prélevés dans la grotte des Ramandils à Port-la-Nouvelle, Aude, France.

2.3 Coquillage

Un échantillon de coquillage a été prélevé dans la plage fossile marine du remplissage de cette grotte. Cet échantillon a été daté par la méthode de la résonance de spin électronique (ESR).

Après avoir éliminé la partie extérieure d'une épaisseur d'environ 1 mm., l'échantillon a été pulvérisé pour la détermination de la paléodose par la méthode ESR. Le spectre ESR montre deux raies dues aux électrons piégés, h1 et h3 (fig. 4). La paléodose

Activité (dpm/g)	Sédiment		Coquillage YR-C1
	Sédiment à cailloutis 0,3 - 0,4 m.	Plage	
U-238	$1,44 \pm 0,05$	$0,49 \pm 0,03$	$0,89 \pm 0,39$
Ra-226	$1,62 \pm 0,09$	$0,74 \pm 0,07$	$1,20 \pm 0,77$
Rn-222	$1,18 \pm 0,02$	$0,58 \pm 0,01$	$1,24 \pm 0,12$
Pb-210	$1,40 \pm 0,06$	$0,57 \pm 0,07$	n.d.
Ra-228	$1,72 \pm 0,04$	$0,41 \pm 0,03$	n.d.
Th-228	$1,68 \pm 0,01$	$0,42 \pm 0,01$	< 0,07
K (%)	$1,37 \pm 0,02$	$0,56 \pm 0,01$	< 0,05

n.d. non déterminé.

Tableau II. - Détermination, par la spectrométrie gamma, des radioactivités des sédiments et du coquillage prélevés dans la grotte des Ramandils à Port-la-Nouvelle, Aude, France.

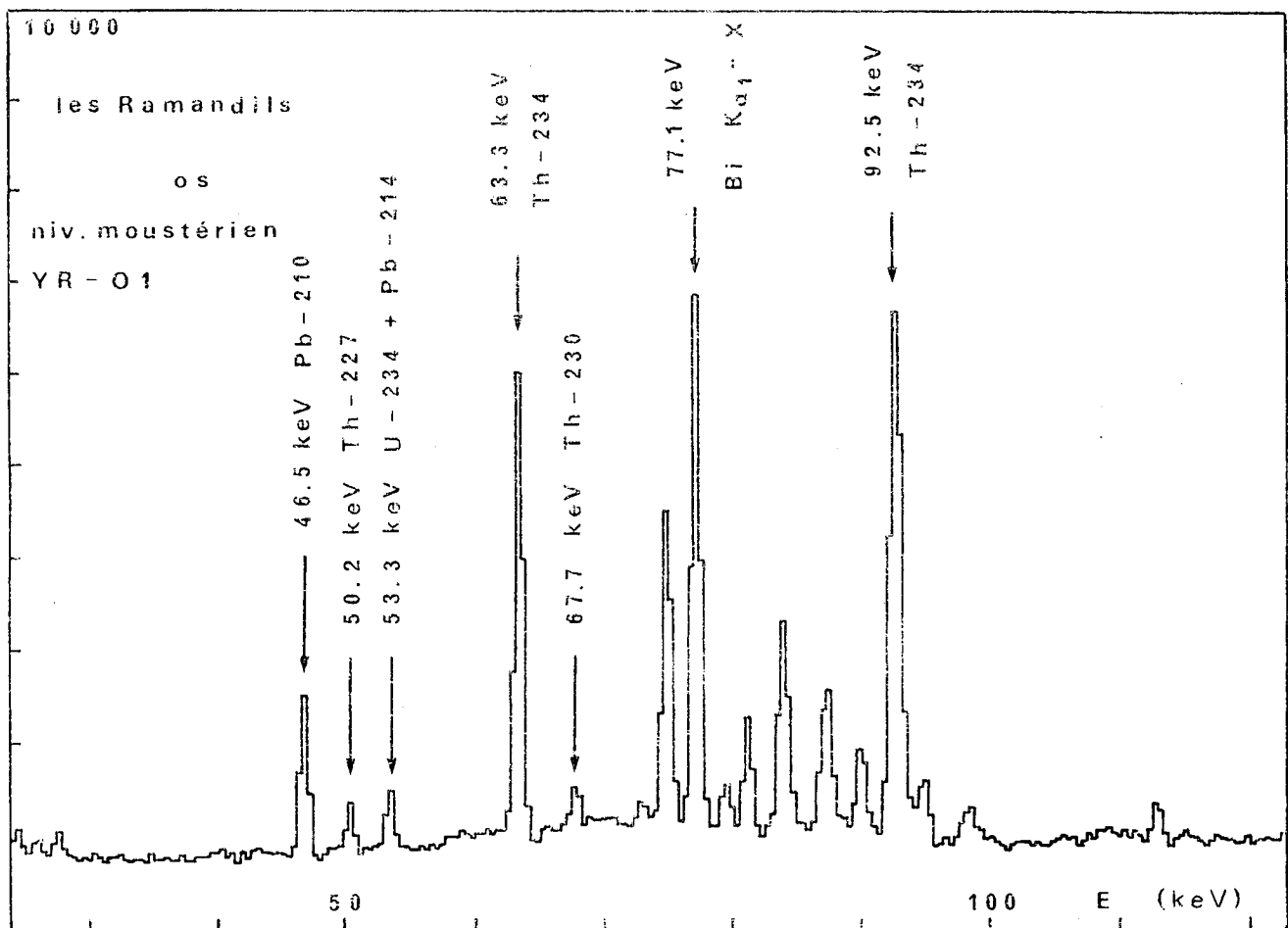


Fig. 3. - Spectre gamma d'un échantillon d'ossement prélevé dans la grotte des Ramandils à Port-la-Nouvelle (Aude), France (temps de comptage: 14.176 minutes).

Dans cette figure, les rayonnements gamma émis par Th-230, U-234, Th-234 (descendant de U-238) et Th-227 (descendant de Pa-231) sont visibles. Pour la détermination de l'activité de Pa-231, les rayonnements gamma à plus hautes énergies ont été aussi utilisés (Yokoyama et Nguyen, 1981).

a été déterminée par la méthode de l'addition (fig. 5). Nous avons obtenu une valeur de 27,4 krad (274 Gy) en utilisant la raie h3.

Les teneurs en uranium, thorium et potassium du coquillage et celles des sédiments ont été déterminées par la spectrométrie gamma (tableau II). La dose annuelle a été calculée à partir de ces teneurs. Dans ce calcul, le déséquilibre entre l'uranium et ses descendants dans le coquillage a été pris en compte.

La valeur k (rapport d'efficacité alpha/bêta) de la calcite est généralement comprise entre 0,1 et 0,3. Pour le coquillage, on adopte en général une valeur faible, qui est égale à 0,1 (Radtke et al., 1985). Nous avons calculé l'âge de l'échantillon pour différentes valeurs de k (tableau III):

(1) Si l'on adopte la valeur k égale à 0,1 (la valeur donc généralement admise pour le coquillage), on obtient un âge égal à 217.000 ± 22.000 ans.

(2) Si, au contraire, on adopte une valeur élevée de k, par exemple 0,3, cet échantillon peut avoir un âge égal à 128.000 ± 15.000 ans.

Dans cette étude préliminaire, la valeur k de cet

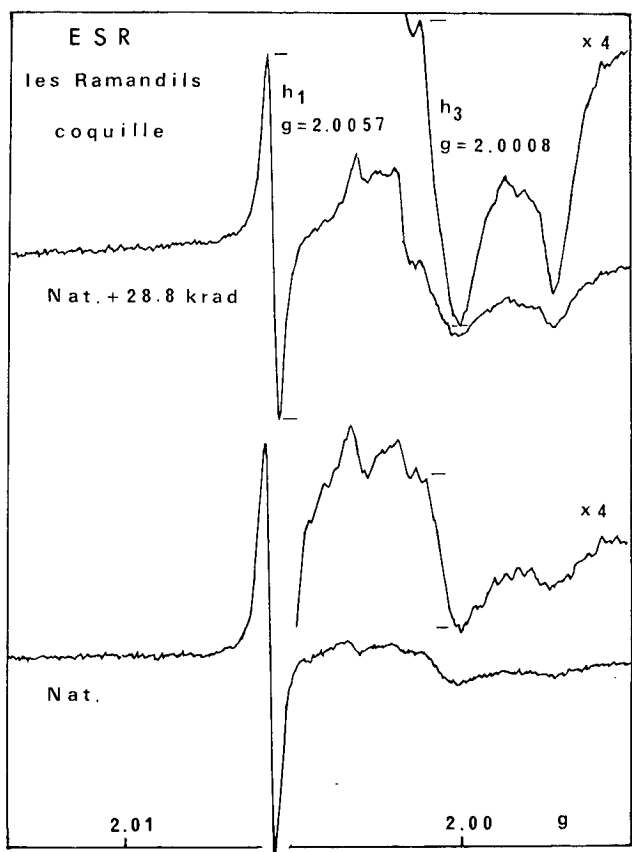


Fig. 4. - Spectres ESR du coquillage prélevé dans la plage fossile de la grotte des Ramandils à Port-la-Nouvelle (Aude), France.

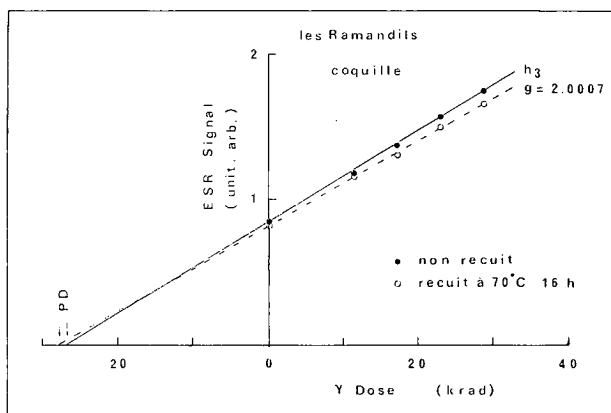


Fig. 5. - Détermination des paléodoses par la méthode de l'addition du coquillage prélevé dans la plage fossile de la grotte des Ramandils à Port-la-Nouvelle (Aude), France.

échantillon n'est pas encore expérimentalement déterminée. Néanmoins, on peut déjà conclure que l'âge de cet échantillon est compris entre 128.000 ± 15.000 ans et 217.000 ± 22.000 ans.

Par ailleurs, il y a une autre plage marine plus ancienne à huitre, non loin de la grotte et à une dizaine de mètres au-dessus de la plage Riss-Würm. Nous avons tenté une datation par l'ESR de cette huitre. Cependant, dans le spectre ESR de cet échantillon nous n'avons pas trouvé les signaux caractéristiques des électrons piégés pour la calcite.

III. DISCUSSIONS

Le tableau IV récapitule tous les résultats obtenus pour cette grotte. Tous les âges obtenus sont supérieurs ou approximativement égaux à 125.000 ans. Ces résultats indiqueraient une grande ancienneté du remplissage de cette grotte. La plage fossile marine peut appartenir au Riss-Würm comme l'estimation des géologues. Cependant, les âges absolus de la stalagmite et de l'ossement sont nettement plus anciens que l'estimation précédente.

Remerciement

Nous remercions H. de Lumley et P. Boutié pour leur discussion fructueuse. Nous leur sommes aussi reconnaissants de nous avoir aidé à prélever des échantillons.

BIBLIOGRAPHIE

GIACOBINI G., LUMLEY de M. A., YOKOYAMA Y. et NGUYEN H. V. (1984) - Neanderthal child and adult remains from a Mousterian deposit in Northern Italy (Caverna della Fate, Finale Ligure), *J. Human Evolution*, 13, pp. 687-707.
 LUMLEY de H. (1976) - Les civilisations du Paléolithique moyen en Languedoc méditerranéen, *La Préhistoire Française*, 1, (Lumley de H. ed.), CNRS, Paris, pp. 1.010-1.026.
 RADTKE U., MANGINI A. et GRUN A. (1985) - ESR dating of marine fossil shells, *Nucl. Tracks*, 10, pp. 879-884.
 YOKOYAMA Y. et NGUYEN H. V. (1980) - Direct and non-destructive dating of marine sediments, manganese nodules, and corals by high resolution gamma-ray spectrometry, *Isotope*

Échantillon	Paléodose (k rad)	Dose annuelle (mrad/an)			Age (ans)
		k	tot.		
			int.	ext.	
		β	γ		
YR-C1	$27,4 \pm 0,8$	0,1	59 18 49 126	217.000 ± 22.000	
		0,3	146 18 49 213	128.000 ± 13.000	

Tableau III. - Datation par la méthode de la résonance de spin électronique (ESR) d'un coquillage prélevé dans la plage fossile de la grotte des Ramandils à Port-la-Nouvelle.

Les âges ont été calculés par la méthode publiée précédemment (Yokoyama et al., 1982), en tenant compte des déséquilibres radioactifs des familles de l'uranium dans le coquillage. Par conséquent, les doses annuelles reportées dans ce tableau sont des doses moyennes dans le temps.

La valeur k (rapport des sensibilités α/β) de ce coquillage n'est pas encore expérimentalement déterminée, mais pour la calcite cette valeur est comprise entre 0,1 et 0,3, et en particulier pour le coquillage on adopte en général une valeur égale à 0,1 (Radtke et al., 1985). Dans ce tableau, sont montrés les âges qui correspondent aux deux valeurs extrêmes de k.

Échantillon	Méthode	Age (ans)
Stalagmite YR-S1	Th-230/U-234	$192.000^{+19.000}_{-16.000}$
	Pa-231/U-235	>133.000
Ossement YR-01	Th-230/U-234	$188.000^{+230.000}_{-59.000}$
	k=0,3	128.000 ± 15.000
Coquillage YR-C1	ESR	217.000 ± 22.000
	k=0,1	

Tableau IV. - Les âges obtenus pour trois différents échantillons prélevés dans divers niveaux de la grotte des Ramandils à Port-la-Nouvelle (Aude), France.

La position stratigraphique de la stalagmite n'est pas encore bien établie.