

CHAPITRE 4

DATATION DU REMPLISSAGE DU KARST EFFECTUÉE SUR DENTS DE MAMMIFÈRES FOSSILES PAR LES MÉTHODES RPE/U-TH COMBINÉES

Jean-Jacques BAHAIN, Giulia GRUPPIONI, Christophe FALGUÈRES & Jean-Michel DOLO

Comme cela a été évoqué précédemment, l'ensemble karstique de Ranville conserve un remplissage constitué notamment d'alluvions anciennes, en position secondaire, qui comportent la faune et quelques artefacts lithiques, et de lœss.

L'assemblage faunique de Ranville comprend, par ordre de représentation en restes *Cervus elaphus*, *Palaeoloxodon antiquus*, *Bos primigenius*, *Equus hydruntinus*, *Equus* sp., *Dicerorhinus mercki*, *Canis lupus* et *Vulpes vulpes*. Cette association, d'âge Pléistocène moyen, indique un paysage de type prairie/parc boisé sous un climat tempéré de phase interglaciaire ou interstadiaire (Auguste *et al.* 2005).

Afin de préciser l'attribution chronologique de ces restes paléontologiques et des pièces archéologiques qui leur sont associées, une série de datations par combinaison des méthodes de l'uranium - thorium et de la résonance paramagnétique électronique (U-Th/RPE) a été entreprise sur plusieurs dents d'herbivores recueillies lors de la fouille du site. Cette méthode de datation, d'application récente, permet, outre l'obtention d'âges, d'appréhender l'histoire des incorporations post-mortem dans les tissus dentaires et osseux.

La datation par combinaison des méthodes RPE et U-Th

Les méthodes utilisant les déséquilibres dans la famille de l'uranium sont couramment utilisées en géologie du Quaternaire et en paléoclimatologie (*cf.* Ivanovich & Harmon 1992), principalement pour dater des carbonates. Parmi elles, la méthode uranium-thorium utilisant la spectrométrie alpha est applicable jusqu'à environ 300.000 ans. Son principe est simple : au moment de la formation ou de l'enfouissement de l'échantillon, ce dernier ne contient ni uranium, ni thorium. Dans le cas des restes paléontologiques, la décomposition de la matière organique lors de la première phase de la fossilisation, en créant un milieu réducteur, entraîne une incorporation d'uranium dans les différents tissus dentaires et osseux. Par la suite, cet uranium se désintègre naturellement par émission alpha pour donner naissance au thorium 230, qui va croître selon une loi physique bien établie avec une période de 75.200 ans.

La datation par RPE (Grün 1989; Ikeya 1993; Rink 1997) est pour sa part fondée sur l'accumulation au cours du temps d'électrons piégés sous l'effet de la radioactivité naturelle dans des défauts du système cristallin des minéraux. Le nombre total d'électrons piégés est alors proportionnel à la dose totale de radiations reçue par l'échantillon au cours du temps. L'âge T d'un échantillon peut être calculé à partir de la formule suivante :

$$D = \int_0^T da_{(t)} \cdot dt \quad (1)$$

où D est la dose totale de radiation reçue par l'échantillon au cours de son histoire ou paléodose, exprimée en gray (Gy), et $da_{(t)}$ est la dose naturelle de radiations reçue par l'échantillon au cours d'une année ou dose annuelle (en $\mu\text{Gy}/\text{an}$). Cette dernière varie au cours du temps en fonction de l'évolution de la teneur en radioéléments de l'échantillon.

Le calcul de l'âge RPE d'un échantillon se décompose donc en deux parties : d'une part la détermination de la paléodose, d'autre part celle de la dose annuelle. Cette dernière, qui peut se décomposer selon le type de rayonnements ionisants reçus par l'échantillon (doses alpha, bêta, gamma ou cosmique) ou selon la provenance de ces rayonnements (doses interne ou externe), a, dans ce travail, été calculée à partir des teneurs en radionucléides de l'échantillon et de son environnement immédiat et de la position géographique du gisement étudié, en utilisant la formule suivante :

$$da = k\alpha + d\beta + d\gamma + d_{\text{cosmique}} = d_{\text{externe}} + d_{\text{interne}} \quad (2)$$

où k est un paramètre correcteur, appelé efficacité α , lié à la production plus faible d'électrons paramagnétiques par les rayons α , en raison de leur forte densité d'ionisation, que par les rayons β ou γ de même énergie. Ce facteur k, toujours inférieur à 1, varie d'un matériau à l'autre.

La paléodose a, pour sa part, été déterminée par la méthode "de l'addition". Différentes aliquotes d'un même échantillon sont "vieillies" artificiellement par irradiation; à chaque dose d'irra-

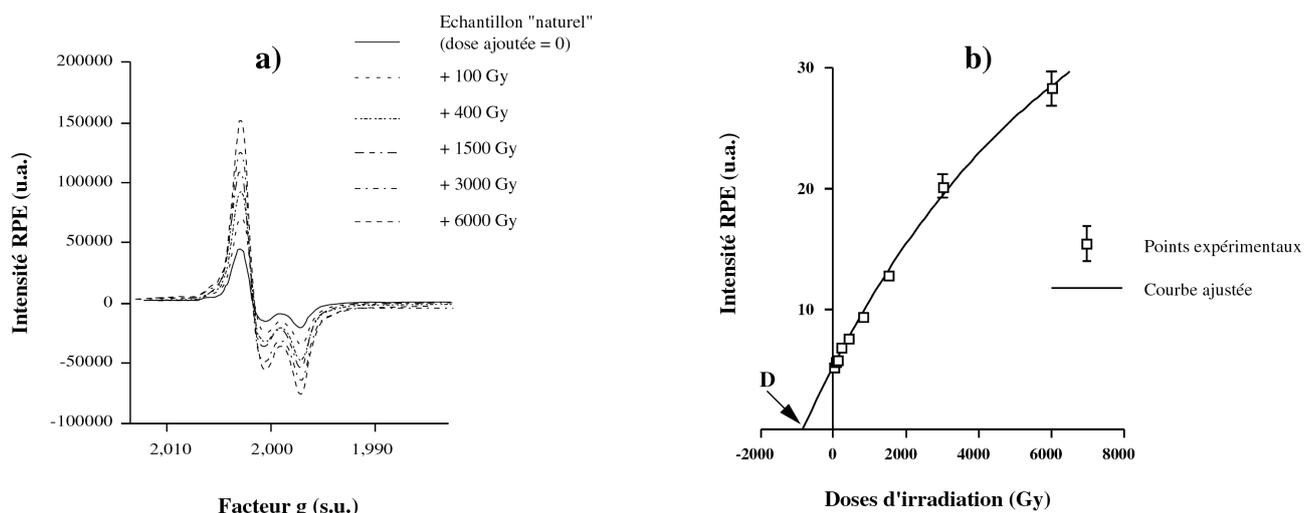


Figure 39 - Augmentation de l'intensité du signal RPE d'un échantillon d'émail dentaire fossile en fonction de doses d'irradiations croissantes (a) et obtention de la paléodose D par extrapolation exponentielle à partir des points expérimentaux (b).
Figure 39 - Growth of the intensity of the ESR signal of an enamel sample from a tooth in relation to increasing irradiation doses (a) and determination of palaeodose D using exponential fitting from experimental data (b).

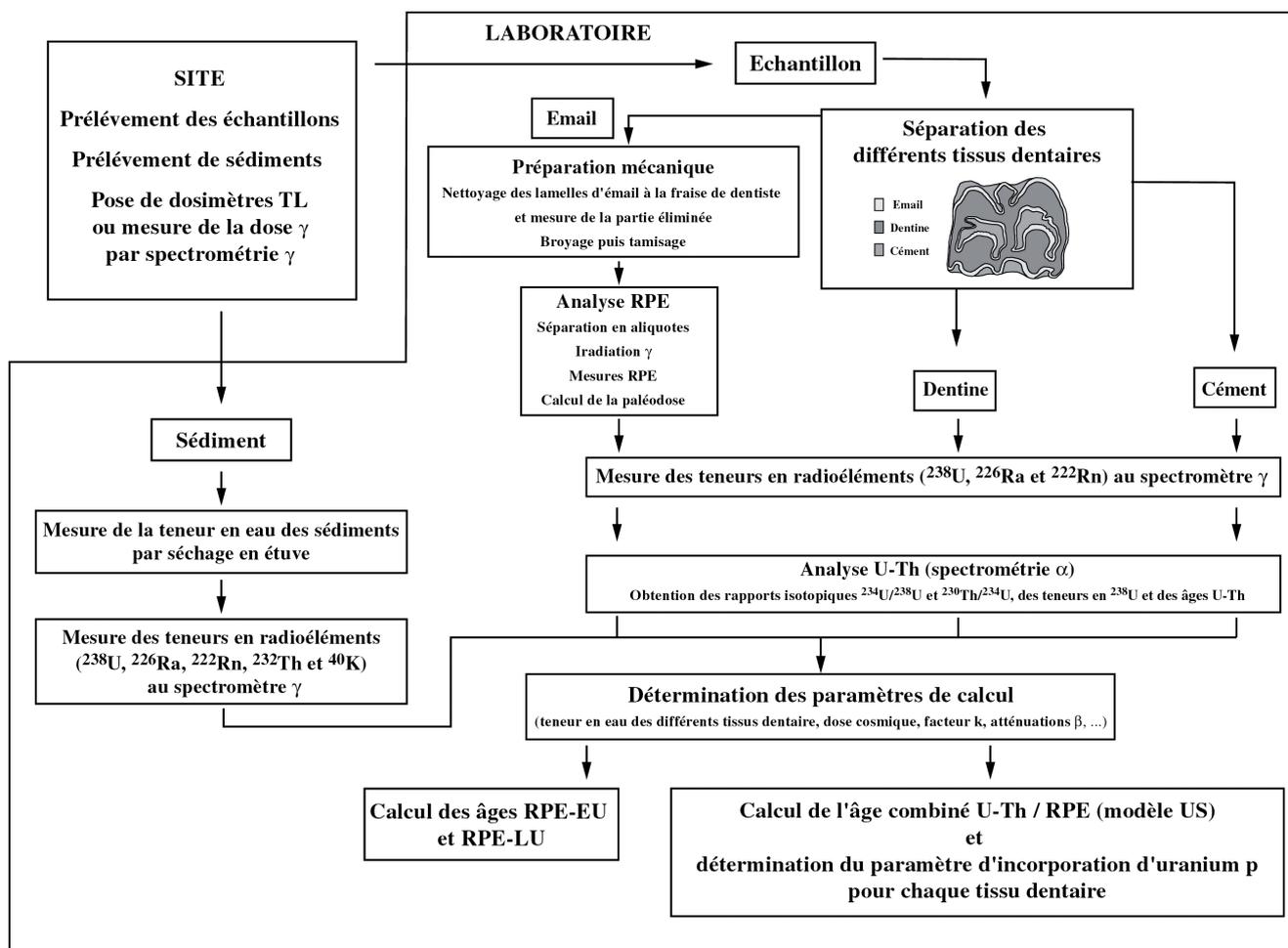


Figure 40 - Protocole expérimental et analytique suivi lors de la datation par RPE/U-Th d'une dent fossile.
Figure 40 - Experimental and analytical procedure used for ESR/U-series dating of fossil tooth.

diation appliquée correspond une valeur particulière de l'intensité RPE du signal utilisé pour la datation et l'extrapolation de la courbe ainsi obtenue à une intensité nulle donne la valeur de la paléodose de l'échantillon considéré (fig. 39).

La datation par U-Th et RPE d'émail dentaire et d'os se heurte à un problème majeur : l'incorporation de l'uranium dans les différents tissus dentaires et osseux au cours de la fossilisation. Les concentrations en uranium, très faibles dans les

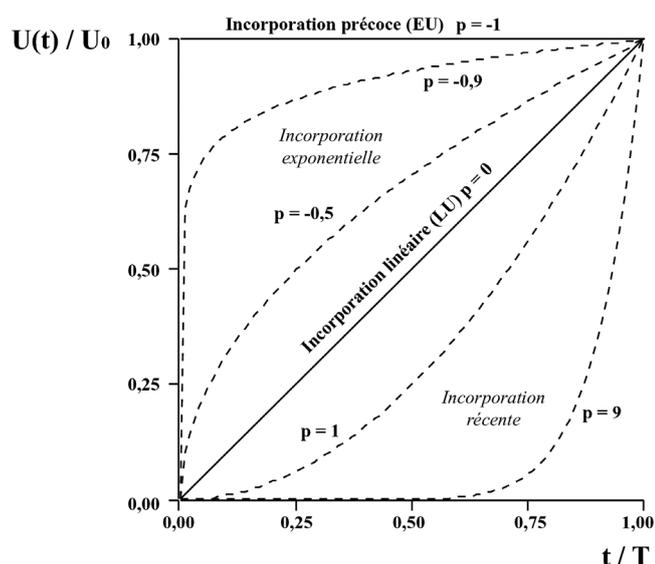


Figure 41 - Courbes d'incorporation de l'uranium en fonction du temps dans un tissu dentaire obtenues pour quelques valeurs du paramètre p (Grün *et al.* 1988).
 Figure 41 - Parametric curves for uranium uptake in relation to time in a dental tissue obtained for some p -values (Grün *et al.* 1988).

échantillons très récents n'ayant pas subi de processus de fossilisation (quelques ppb, Yokoyama *et al.* 1981), peuvent atteindre plusieurs centaines de ppm dans les échantillons fossiles (Rae & Ivanovich 1986; Williams & Marlow 1987). Ce phénomène dépend de la nature du site et de l'ancienneté de l'échantillon. Il rend particulièrement délicate la détermination des âges RPE, fortement liée à la teneur en uranium, et il est nécessaire d'utiliser des modèles mathématiques afin de décrire l'évolution de celle-ci au cours du temps.

Plusieurs modèles ont ainsi été proposés dans la littérature, mais il s'agit généralement de modèles "fixistes", tenant compte d'un comportement identique des différents tissus dentaires vis à vis de l'incorporation d'uranium. Les principaux modèles fixistes sont le modèle d'incorporation précoce (*early uptake (EU) model*) (Bischoff & Rosenbauer 1981), pour lequel on suppose que l'uranium est incorporé dans l'échantillon dans un court laps de temps après l'enfouissement de celui-ci, et le modèle d'incorporation linéaire d'uranium (*linear uptake (LU) model*) (Ikeya 1982) qui tient compte d'une entrée régulière et continue d'uranium dans l'échantillon. Dans ces deux modèles, l'incorporation est identique pour les différents tissus d'une même dent, ce qui est généralement en contradiction avec les données U-Th.

Un modèle combinant données U-Th et RPE (*Uranium-series (US) model*) (Grün *et al.* 1988) a donc été proposé. Dans ce dernier, un paramètre d'incorporation d'uranium p calculé à partir des caractéristiques radiométriques de l'échantillon est déterminé pour chacun des tissus dentaires. L'âge calculé est alors compatible avec les données obtenues par les deux méthodes U-Th et RPE et on parle de datation RPE/U-Th combinée (voir Bahain *et al.* 2002). L'application de ce modèle, qui est celui que nous avons utilisé dans cette étude, implique toutefois un protocole expérimental complexe et long (fig. 40).

Dans ce modèle, la teneur en uranium à l'instant t d'un tissu dentaire donné s'écrit :

$$U_{(t)} = U_0 (t/T)^{p+1} \quad (3)$$

où U_0 est la concentration actuelle en uranium, T l'âge de l'échantillon et $U_{(t)}$ la concentration en uranium à l'instant t . On peut remarquer que les modèles EU et LU correspondent à deux cas particuliers de cette fonction, pour des valeurs de p égales respectivement à -1 et à 0 (fig. 41).

Le domaine de définition de la fonction $U_{(t)}$ a été limité par Grün *et al.* (1988) aux valeurs de p supérieures ou égales à -1 , c'est à dire que ce modèle ne peut être appliqué que si l'âge ESR-(EU) de l'échantillon étudié est supérieur à l'âge U-Th-(EU). Lorsque le modèle US peut être appliqué, l'âge calculé respecte l'ensemble des données analytiques obtenues à partir des deux méthodes, en particulier pour l'U-Th les rapports isotopiques $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ et, pour la RPE, la paléodose. Si ce n'est pas le cas, et bien que la possibilité d'une diminution de la teneur en uranium (perte partielle) au cours de l'histoire géologique de l'échantillon (on parle alors de lessivage) ait déjà été signalée pour des ossements (Williams & Marlow 1987), l'introduction dans l'équation (3) de deux inconnues supplémentaires, la teneur maximale en uranium U_{max} incorporée par l'échantillon et le temps T_{max} où elle a été atteinte, interdit toute modélisation. Dans certains cas spécifiques, certains auteurs ont proposé de calculer un âge en bloquant le facteur p à -1 pour les tissus dont les caractéristiques isotopiques ne respectent pas les critères d'applicabilité du modèle US (Falguères *et al.* 1997), permettant alors de calculer pour les autres tissus des facteurs p plus réalistes.

Application aux échantillons de Ranville

Les échantillons provenant du site de Ranville analysés dans cette étude, au nombre de six, correspondent à des dents d'équidés et de bovidés (tab. 1). Ils ont été préparés puis analysés selon le protocole expérimental décrit dans Bahain *et al.* (2002).

Au laboratoire, les trois tissus dentaires sont tout d'abord séparés mécaniquement. Les activités des différents radionucléides présents dans la dentine et le ciment (essentiellement ^{238}U , ^{226}Ra et ^{222}Rn) sont mesurées par spectrométrie gamma, puis ces tissus analysés par spectrométrie alpha (tab. 2), ce qui permet d'obtenir les rapports $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ indispensables au calcul des facteurs d'incorporation pour chaque tissu. Cette double analyse permet également d'estimer, en croisant les données α et γ , les éventuelles fuites de radium et radon, éléments très mobiles dont les descendants sont d'importants émetteurs α , β et γ (Bahain *et al.* 1992, 1993) (tab. 3). Les activités des différents radionucléides du sédiment et de la paroi calcaire ont également été mesurées par spectrométrie γ (tab. 4), de façon à calculer leur contribution aux doses β et γ reçues par les échantillons.

Les lamelles d'émail sont pour leur part nettoyées au moyen d'une fraise de dentiste afin d'éliminer toute contamination par de la dentine, du ciment ou du sédiment. Ce nettoyage, effectué sur une épaisseur minimale de 50 μm , permet d'éliminer la contribution des rayons α "externes" à l'émail, mais cette préparation nécessite de mesurer l'épaisseur de la lamelle d'émail avant, au cours et après la manipulation, afin de corriger les doses β tant internes, c'est-à-dire liées aux radioéléments présents

Numéro échantillon fouille	Numéro échantillon laboratoire	Nature	Remarques
Dent 9	Cal 2002-01	M1 ou M2 sup <i>Equus hydruntinus</i>	même individu que 295
Dent 210	Cal 2002-02	M2 inf <i>Bos primigenius</i>	
Dent 224	Cal 2002-03	M1 ou M2 sup <i>Equus hydruntinus</i>	
Dent 234	Cal 2002-04	M3 inf <i>Bos primigenius</i>	
Dent 272	Cal 2002-05	P3 sup <i>Equus hydruntinus</i>	
Dent 295	Cal 2002-06	M1 ou M2 sup <i>Equus hydruntinus</i>	même individu que 9

Tableau 1 - Echantillons paléontologiques du site pléistocène moyen de Ranville (Calvados) analysés dans ce travail (détermination spécifique : P. Auguste).

Table 1 - Palaeontological samples of the Middle Pleistocene site of Ranville (Calvados) analysed in this work.

Echantillon	Tissu	U (ppm)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$	$^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$	Age (ka)
Dent 9	cément	10.93	1.540 ± 0.099	> 100	1.021 ± 0.091	281 + 239 / -74
	dentine	48.2	1.471 ± 0.017	> 100	0.889 ± 0.027	192 + 16 / -14
	émail	1.63	$1,523 \pm 0.076$	> 100	$0,465 \pm 0.041$	65 ± 8
Dent 210	cément	18.48	1.270 ± 0.035	> 100	1.011 ± 0.059	319 + 235 / -73
	dentine	25.05	1.521 ± 0.026	> 100	1.316 ± 0.041	> 350
	émail	2.03	1.443 ± 0.031	> 100	0.836 ± 0.025	168 + 13 / -11
Dent 224	cément	12.09	1.502 ± 0.042	> 100	1.294 ± 0.055	ind
	dentine	51.01	1.526 ± 0.028	> 100	1.184 ± 0.066	ind
	émail	1.96	$1,480 \pm 0,066$	> 100	$0,872 \pm 0,044$	184 + 27 / - 22
Dent 234	dentine	37.25	1.546 ± 0.024	> 100	0.939 ± 0.032	216 + 23 / -19
	émail	2.25	$1,281 \pm 0,038$	> 100	$0,729 \pm 0,032$	132 + 12 / -11
Dent 272	cément	22.55	$1,147 \pm 0,020$	> 100	$1,048 \pm 0,035$	> 370
	dentine	49.68	$1,339 \pm 0,030$	> 100	$1,367 \pm 0,064$	ind
	émail	1.19	1.550 ± 0.048	> 100	0.781 ± 0.028	144 + 11 / -10
Dent 295	cément	16.53	$1,293 \pm 0,025$	> 100	$1,005 \pm 0,032$	304 + 66 / -42
	dentine	49.98	1.510 ± 0.020	> 100	0.947 ± 0.025	224 + 19 / -17
	émail	1.13	1.472 ± 0.039	> 100	0.872 ± 0.030	183 + 18 / -15

Tableau 2 - Données obtenues par uranium-thorium (spectrométrie alpha) sur les différents tissus dentaires des échantillons provenant du site pléistocène moyen de Ranville (Calvados) analysés dans ce travail.

Table 2 - U-series analytical data (alpha spectrometry) obtained on the different dental tissues of the samples carried out from the Middle Pleistocene site of Ranville (Calvados).

Echantillon	Tissu	$^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$	$^{222}\text{Rn}/^{230}\text{Th}$	Épaisseur initiale de l'émail (µm)	Épaisseur d'émail	
					enlevée côté dentine (µm)	enlevée côté cément (µm)
Dent 9	cément	0,437	0,259	1059	191	113
	émail	1	1			
	dentine	0,909	0,521			
Dent 210	cément	0,584	0,317	1406	209	216
	émail	0,81	0,809			
	dentine	0,408	0,215			
Dent 224	cément	0,508	0,185	1041	97	63
	émail	0,997	0,63			
	dentine	0,614	0,297			
Dent 234	dentine	0,698	0,375	875	28	81
	émail	1	1			
Dent 272	cément	0,45	0,287	838	47	34
	émail	1	0,724			
	dentine	0,483	0,258			
Dent 295	cément	0,223	0,159	1022	66	69
	émail	0,554	0,697			
	dentine	0,962	0,541			

Tableau 3 - Données obtenues par croisement des résultats d'analyses par spectrométrie gamma et spectrométrie alpha et mesure de l'impact de la préparation pré-analyse sur l'épaisseur de l'émail pour les échantillons du site pléistocène moyen de Ranville (Calvados) analysés dans ce travail.

Table 3 - Data obtained by cross-checking of the analytical results of gamma and alpha spectrometries and measurement of the preparation impact on the enamel thickness for the samples carried out from the Middle Pleistocene site of Ranville (Calvados).

Nom des échantillons	U-238 (dpm/g)	Ra-226 (dpm/g)	Rn-222 (dpm/g)	Th-232 (dpm/g)	K (%)	Eau (%)
Séd 1 dent 9	1,625 ± 0,052	1,135 ± 0,106	1,029 ± 0,018	2,492 ± 0,017	1,303 ± 0,012	9,29
Séd 2 dent 210	1,531 ± 0,054	1,401 ± 0,107	1,076 ± 0,019	2,687 ± 0,017	1,300 ± 0,012	10,93
Séd 3 dent 224	1,417 ± 0,040	1,233 ± 0,083	1,061 ± 0,014	2,379 ± 0,013	1,191 ± 0,009	10,87
Séd 4 dent 234	1,825 ± 0,071	1,572 ± 0,137	1,336 ± 0,024	2,854 ± 0,023	1,496 ± 0,016	11,94
Séd 5 dent 272	1,578 ± 0,079	1,467 ± 0,155	1,111 ± 0,027	2,973 ± 0,027	1,406 ± 0,018	13,57
Calcaire	0,307 ± 0,028	0,222 ± 0,068	0,338 ± 0,009	0,132 ± 0,011	0,084 ± 0,004	5
Séd 6 dent 295	1,679 ± 0,049	1,224 ± 0,097	1,340 ± 0,017	2,640 ± 0,016	1,338 ± 0,011	7,7

Tableau 4 - Activités en radio-éléments des sédiments et du calcaire du site pléistocène moyen de Ranville (Calvados) analysés dans ce travail.
 Table 4 - Activities of the sediments and limestone carried out from the Middle Pleistocene site of Ranville (Calvados).

Echantillon	Tissu	Paléodose (Gy)	Paramètre d'incorporation	Da interne* (µGy/an)	Da externe (µGy/an)	Da moyenne (µGy/an)	Age RPE/U-Th (ka)
	cément		-1				
Dent 9	émail	373,1 ± 34,5	0,88	183 ± 38	1449 ± 107	1632 114	229 ± 30
	dentine		-0,91				
	cément		-1				
Dent 210	émail	414,0 ± 17,0	-0,85	764 ± 136	1145 ± 66	1906 ± 151	217 ± 18
	dentine		-1				
	cément		-1				
Dent 224	émail	441,2 ± 14,5	-0,91	634 ± 121	1393 ± 111	2026 ± 164	218 ± 18
	dentine		-1				
	dentine	467,3 ± 21,7	-1				
Dent 234	émail		-0,68	497 ± 93	1751 ± 151	2251 ± 178	208 ± 19
	cément		-1				
Dent 272	émail	326,2 ± 14,0	-0,72	394 ± 79	1124 ± 102	1518 ± 129	215 ± 20
	dentine		-1				
	cément		-1				
Dent 295	émail	573,9 ± 32,2	-0,71	416 ± 94	1505 ± 114	1930 ± 148	297 ± 28
	dentine		-0,87				

* un facteur k (efficacité alpha) de 0,13±0,02 a été utilisé en accord avec Grün & Schwarz (2000).

Tableau 5 - Données RPE, paramètres d'incorporation de l'uranium et âges RPE/U-Th obtenus pour les échantillons provenant du site pléistocène moyen de Ranville (Calvados) analysés dans ce travail.

Table 5 - ESR data, uranium uptake p-parameters and ESR/U-series dates obtained for the samples carried out from the Middle Pleistocene site of Ranville (Calvados).

dans l'émail, qu'externes, issues des radioéléments de la dentine, du cément et/ou du sédiment, en utilisant une méthode de Monte Carlo (Brennan *et al.* 1997) (tab. 3).

L'émail est ensuite broyé mécaniquement, puis tamisé. La fraction 100-200 µm récupérée lors de ce tamisage est séparée en dix aliquotes. Neuf de celles-ci ont été irradiées au Laboratoire National Henri Becquerel du CEA (CEN Saclay) à l'aide d'une source gamma au ⁶⁰Co (IBL460) à des doses de 63, 125, 200, 400, 630, 800, 1000, 1250, et 1500 Gy. Les intensités RPE des dix aliquotes ont ensuite été mesurées avec un spectromètre Brucker EMX, puis l'émail a été analysé successivement en spectrométrie γ et en spectrométrie α (tab. 3). Enfin les âges RPE/U-Th, les différentes contributions à la dose annuelle et les paramètres d'incorporation de l'uranium pour chaque tissu dentaire ont été calculés (tab. 5).

La dose annuelle externe a alors été calculée à partir de la mesure de l'activité en radionucléides des sédiments qui étaient directement associés aux dents (tab. 4), sans qu'une dosimétrie de terrain, difficile à mettre en œuvre lors de fouilles de sauve-

tage, ait pu être réalisée. Cependant, les données obtenues sont raisonnablement homogènes pour les différents échantillons analysés pour permettre leur utilisation afin de calculer des âges. Pour l'échantillon n° 272, découvert à proximité de la paroi calcaire, il a été nécessaire de tenir compte de la plus faible activité de cette dernière dans le calcul d'âge ESR/U-Th combiné.

Les âges RPE-U-Th, les différentes contributions à la dose annuelle et les facteurs d'incorporation p obtenus pour les échantillons de Ranville sont présentés tableau 5.

Cinq des dents analysées donnent des âges compris entre 208 et 229 ka, la dernière (échantillon Cal 2002-06) présentant un âge s'écartant sensiblement de ces valeurs (297±28 ka), sans qu'aucune donnée analytique, hormis peut-être une paléodose sensiblement plus élevée que celles des autres échantillons, ne permette d'expliquer l'âge important obtenu pour celle-ci. Si on considère que l'âge obtenu pour cette dent est valable, ceci indiquerait que ce niveau pourrait contenir des pièces plus anciennes et qu'au moins deux niveaux paléontologiques étaient présents avant la mise en place de l'ensemble dans le karst. Toutefois, cette dent

provient du même individu que la dent Cal 2002-01 (tab. 1) qui, elle, donne un âge compatible avec ceux obtenus pour les autres dents analysées. L'âge trop important obtenu pour l'échantillon Cal 2002-06 est donc sans doute lié à une mauvaise estimation de la dose annuelle qu'elle a reçue. Il est notamment possible que la dose γ externe calculée à partir de l'activité en radioéléments des sédiments situés à proximité de son lieu de découverte ne reflète pas pour cet échantillon la dose qu'il a réellement reçue.

Quoiqu'il en soit, les âges moyens obtenus (moyenne quadratique pondérée) pour le niveau paléontologique de Ranville sont respectivement de 223 ± 9 ka si on tient compte des données obtenues pour les six dents et de 216 ± 9 ka si on ne tient compte que des âges des cinq premières, ce qui permet de dater l'assemblage paléontologique de la première moitié du stade isotopique 7 et la mise en place du dépôt au sein du karst de ce même stade isotopique. Cet âge est tout à fait compatible avec les données paléontologiques et paléoenvironnementales qui placent l'assemblage au sein d'un stade interglaciaire ou interstadiaire du Pléistocène moyen final.

Conclusion

L'analyse combinée par uranium-thorium (U-Th) et résonance paramagnétique électronique (RPE) de six dents d'herbivores recueillies lors de la fouille du site paléolithique de Ranville (Calvados) a permis de dater la mise en place du gisement d'environ 205 à 235 ka. Les résultats obtenus permettent donc de dater les restes paléontologiques et les pièces archéologiques qui leur sont associées de la première moitié du stade isotopique 7, en accord avec les données biostratigraphiques et paléoenvironnementales disponibles.

Remerciements

Le spectromètre RPE du Département de Préhistoire du Muséum national d'Histoire naturelle, utilisé dans cette étude, a été acquis dans le cadre d'un programme Sésame, grâce à l'aide de la région Ile-de-France, que nous remercions vivement. Les âges ESR/U-Th ont été calculés avec le programme "Data-IPH" de Rainer Grün que nous remercions chaleureusement.