

UNIVERSITE MICHEL DE MONTAIGNE BORDEAUX 3

École Doctorale Montaigne Humanités (ED 480)

THESE DE DOCTORAT EN PHYSIQUE DES ARCHEOMATERIAUX

**Modélisation et simulations numériques des effets dosimétriques
dans les sédiments quaternaires : application aux méthodes de
datation par luminescence**

Guillaume Guérin

Thèse dirigée par Norbert Mercier

Soutenue le 19 octobre 2011

Jury :

Christophe Falguères, Directeur de Recherche CNRS, IPH (rapporteur)

Jacques Jaubert, Professeur, Université Bordeaux 1 (rapporteur)

Didier Miallier, Professeur, Université d'Auvergne, Clermont-Ferrand

Alain Turq, Conservateur, Musée National de Préhistoire, Les Eyzies-de-Tayac

Sébastien Incerti, Chargé de Recherche CNRS, CENBG

Norbert Mercier, Directeur de Recherche CNRS, IRAMAT-CRPAA (directeur de thèse)

Avant-propos

Ce manuscrit est l'aboutissement de trois années passées au Centre de Recherche en Physique Appliquée à l'Archéologie (CRPAA), à l'université Bordeaux 3, financées par une allocation de recherche ministérielle « spécifique normaliens ». Les travaux présentés ici ont également bénéficié du soutien financier de la Région Aquitaine. Après des études de physique principalement, mais aussi d'archéologie durant une année, cette thèse m'a permis d'associer ces deux centres d'intérêt. Un stage de Master 2, déjà effectué au CRPAA sous la direction de Norbert Mercier, m'avait permis de prendre en main Geant4.

Il a été décidé durant la thèse d'essayer de publier les résultats obtenus aussi régulièrement que possible : par conséquent un certain nombre des chapitres qui vont suivre sont des articles, publiés pour certains, acceptés dans des journaux pour d'autres, soumis ou « prêts pour soumission », en attendant l'avis de certains co-auteurs, pour les derniers. Ils sont présentés sous leur forme actuelle, c'est-à-dire tels qu'ils ont été publiés, corrigés ou (presque) soumis.



Cette thèse n'aurait pas vu le jour sans le soutien d'un certain nombre de collègues, amis et proches.

En premier lieu, je tiens à remercier Pierre Guibert, directeur de l'IRAMAT-CRPAA, pour l'accueil au sein de son laboratoire et pour les excellentes conditions de travail dont j'ai bénéficié, tant matérielles que financières. Merci à l'ensemble de l'équipe du CRPAA, avec une mention spéciale pour Christelle qui m'a formé à l'enseignement, pour Ayed et ses cafés du matin, pour Steph et son intérêt stimulant pour GEANT4.

Merci beaucoup à Norbert Mercier, tout d'abord pour m'avoir proposé le sujet de ce travail et m'avoir convaincu de son intérêt. Merci ensuite pour m'avoir guidé dans mes recherches, en me laissant une autonomie appréciable, et pour les nombreuses discussions scientifiques qui ont enrichi ma culture de la luminescence.

Les simulations numériques effectuées dans le cadre de ce travail ont été rendues possibles grâce à l'accès au centre de calcul de l'IN2P3 : merci donc à Stéphane Pouyllau (TGE Adonis) pour m'en avoir fourni l'accès, Pascal Calvat et Thomas Kachelhoffer (CC-

IN2P3) pour le support technique, et Bruno Dutailly (Ausonius) pour m'avoir initié à cet environnement de calcul.

Une partie importante de ces travaux a bénéficié de collaborations avec Didier Miallier, Grzegorz Adamiec, l'équipe du Roc de Marsal : Alain Turq, Harold Dibble, Shannon McPherron, Paul Goldberg, Dennis Sandgathe, Vera Aldeias, Emily Hallett. Qu'ils en soient ici remerciés.

Merci également à Mayank Jain pour m'avoir invité à Risø, où j'ai pu échanger avec Kristina Thomsen, Andrew Murray et Jan-Pieter Buylaert, mais aussi pour avoir consacré beaucoup de temps à chercher des financements pour un postdoctorat : ce travail ne restera pas sans suite.

J'espère que Roger Nathan, qui a eu la tâche ingrate de débroussailler le terrain des recherches sur les effets dosimétriques et m'a largement fait profiter de ses travaux, trouvera sa place dans le monde de la luminescence. En tout cas, qu'il soit remercié pour son aide précieuse.

Merci à Manu Discamps pour les discussions passionnées et passionnantes que nous avons eues : elles m'ont donné envie d'approfondir les liens entre les différentes disciplines de la Préhistoire.

Un grand merci à Ziad et Marion, mes compagnons de route : ce travail n'aurait pas été le même sans vous – aussi bien au laboratoire qu'en dehors...

Merci aux amis, dont certains m'ont montré la voie : Ju, Mat, Nico. Merci aussi à Antoine, Clém, Cédric, Momo, Sarah, Docteur Laurent et Marie-Ange, Tom et Marionnette, p'tit Seb. Un merci tout particulier à Toutoune et Mathilde, et à Paulo.

Merci aussi à la famille : Philippe et Odette pour m'avoir fait curieux, Adrien pour être toujours là, Maïke, Guillaume et leurs petits pois pour m'avoir souvent changé les idées...

Enfin, un immense merci à Florie !

Sommaire

Liste des articles	5
Introduction	7

Première partie

La radioactivité des sols et la datation par luminescence : contexte et outils	11
Chapitre 1. Les méthodes de datation par luminescence : état de la question et problématique de ce travail	13
Chapitre 2. L'utilisation de GEANT4 pour l'étude des effets dosimétriques en milieux sédimentaires	43
Chapitre 3. Mise à jour des facteurs de conversion de teneurs en radioéléments en débits de dose	75

Deuxième partie

Les hétérogénéités radiochimiques à l'échelle décimétrique : détermination <i>in situ</i> de débits de dose gamma en milieux sédimentaires	83
Chapitre 4. Les techniques du seuil à l'épreuve des simulations numériques	87
Chapitre 5. Etalonnage d'un spectromètre gamma de terrain	97
Chapitre 6. Vers des mesures non invasives	107

Troisième partie

Au-delà de l'hypothèse de matrice uniforme, infinie : les débits de dose en milieux granulaires	119
Chapitre 7. Etude préliminaire des processus de dépôt d'énergie à l'échelle des grains des sédiments	121
Chapitre 8. De l'usage de l'hypothèse de matrice infinie et des concepts dérivés : une revue critique	133

Quatrième partie

Contribution à la chronologie du Paléolithique moyen aquitain	149
Chapitre 9. Les méthodes de datation par luminescence appliquées au site moustérien du Roc de Marsal, ou les facultés d'adaptation de l'Homme de Neandertal aux variations climatiques	151

Bilan et perspectives	169
Conclusion	183
Références bibliographiques	187

Annexes

Annexe 1 Applications ponctuelles de GEANT4	205
Radioprotection au CRPAA : l'irradiateur alpha externe	
Dosimètres artificiels : effet d'atténuation des enveloppes	
Reconstruction virtuelle de milieux hétérogènes pour la dosimétrie gamma	
Calibration des sources radioactives du CRPAA	
Débit de dose beta reçu par un silex	
Annexe 2 Quatre codes développés avec GEANT4	215 et CD
Les spectres utilisés pour simuler différentes sources radioactives	CD

Liste des articles

Guérin, G., Mercier, N., and Adamiec, G, 2011. Dose rate conversion factors : update. <i>Ancient TL</i> , 29 (1), 5-8.....	79
Guérin, G., Mercier, N., 2011. Determining gamma dose rates by field gamma spectroscopy in sedimentary media: results of Monte Carlo simulations. <i>Radiation Measurements</i> , 46 (2), 190-195.....	91
Miallier, D., Guérin, G., Mercier, N., Pilleyre, T., Sanzelle, S., 2009. The Clermont radiometric reference rocks: a convenient tool for dosimetric purposes. <i>Ancient TL</i> , 27 (2), 37-42.....	99
Guérin, G., Mercier, N. Field gamma spectrometry, Monte Carlo simulations and potential of non-invasive measurements. <i>Geochronometria</i> , accepté.....	113
Guérin, G., Mercier, N. Preliminary insight into dose deposition processes in sedimentary media on a grain scale: Monte Carlo modelling of the effect of water on gamma dose-rates. <i>Radiation Measurements</i> , accepté.....	125
Guérin, G., Mercier, N., Nathan R., Adamiec, G., Lefrais, Y. On the use of the infinite matrix assumption and associated concepts: a critical review. <i>Radiation Measurements</i> , soumis – actes de colloque du colloque LED.....	137
Guérin, G., Discamps, E., Lahaye, C., Mercier, N., Guibert, P., Turq, Z., Dibble, H., McPherron, S., Sandgathe, D., Goldberg, P., Jain, M., Thomsen, K., Patou-Mathis, M., Castel, J.-C., Soulier, M.-C. Multi-method (TL and OSL), multi-material (quartz and flint) dating of the Mousterian site of the Roc de Marsal (Dordogne, France): correlating Neanderthals occupations with the climatic variability of MIS 5-3. <i>Journal of Archaeological Science</i> , soumis.....	155

Introduction

Depuis la mise au point de la méthode de datation par le radiocarbone dans les années 1950, notre façon d'appréhender le passé a été bouleversée. La Préhistoire en particulier, jusqu'alors étudiée avec pour seuls outils chronologiques les principes de la stratigraphie, a largement bénéficié du développement de méthodes de chronologie numérique. Les questions de contemporanéité, d'évolution, de succession des événements passés ont ainsi pu être appréhendées à grande échelle avec un regard nouveau, à l'aune de données scientifiques quantitatives. Si le radiocarbone occupe toujours une place de premier choix dans les études chronologiques, sa portée limitée à environ cinquante milliers d'années dans le passé a laissé la place à nombre d'autres méthodes de datation, parmi lesquelles les méthodes paléodosimétriques : la thermoluminescence, la luminescence optique et la résonance paramagnétique électronique.

Au cours des dix dernières années, les méthodes de datation par luminescence ont connu un essor considérable, tant en termes de méthodologie que d'applications à des problématiques toujours plus variées : que l'on s'intéresse à l'évolution humaine ou à celle des climats et environnements, à la dynamique des processus de surface terrestres, voire extra-terrestre puisque l'application de la luminescence est aujourd'hui envisagée à la surface de Mars, ces méthodes sont de plus en plus utilisées. La diversité des problématiques étudiées tient en grande partie à l'ubiquité des matériaux étudiés par luminescence, à savoir nombre de minéraux et de roches. En particulier, le quartz et les feldspaths tiennent une place de choix pour l'application de la luminescence optique. Ces minéraux cristallins ont la propriété de se comporter comme des dosimètres naturels. Le phénomène de luminescence est observé lors de la recombinaison d'électrons et de trous piégés dans les défauts cristallins, lorsque les minéraux étudiés sont stimulés par chauffage ou éclairage. En ce qui concerne la luminescence optique, le signal de luminescence est remis à zéro (ou plus exactement, les charges sont libérées de leurs pièges), lors d'une exposition des minéraux à la lumière du jour avant, par exemple, un enfouissement dans le sol ; en ce qui concerne la thermoluminescence, c'est la chauffe du matériau qui constitue l'événement daté, en étant responsable de l'éjection des électrons et des trous de leurs pièges. Une fois enfouis dans le milieu sédimentaire, ces minéraux sont soumis aux rayonnements cosmiques, ainsi qu'aux irradiations alpha, beta et gamma dues à la radioactivité des sols. L'ensemble de ces rayonnements induit une croissance du nombre d'électrons et de trous piégés, si bien que l'on peut déterminer un âge par luminescence en mesurant deux grandeurs physiques : d'une part, ce que l'on a coutume d'appeler la paléodose, ou dose équivalente, c'est-à-dire la quantité d'énergie absorbée, par unité de masse, par le minéral depuis la remise à zéro du signal de luminescence ($\text{Gy}\cdot\text{a}^{-1}$), stockée

sous la forme de paires électrons-trous piégées ; d'autre part, ce que l'on appelle le débit de dose, qui est la vitesse de remplissage de ces pièges.

La plupart des travaux méthodologiques des vingt-cinq dernières années a été consacrée aux mesures de dose équivalente, afin d'étendre la portée chronologique des méthodes fondées sur la luminescence, d'en améliorer la précision et la justesse, etc. A l'inverse, très peu de travaux ont été consacrés à l'étude des débits de dose. Bien que les sédiments quaternaires soient connus pour leur complexité – minéralogique, structurale, radiochimique – il est d'usage de les considérer comme étant parfaitement homogènes du point de vue de la radioactivité. Cela tient principalement à des raisons pratiques : la réalisation d'expériences est rendue difficile par la multitude de paramètres à prendre en compte et par la complexité des milieux naturels. De plus, il est difficile d'obtenir une information dosimétrique détaillée qui rende compte de cette complexité. L'objectif de cette thèse a donc consisté à contourner ces problèmes pratiques par la réalisation d'expériences simulées, virtuelles. La mise au point d'outils logiciels de simulation des interactions particules-matière, dans le domaine de la physique des particules, a ainsi été mise à profit pour étudier les hétérogénéités de répartition des radioéléments en milieu sédimentaire.

Deux échelles spatiales ont été considérées dans le cadre de ce travail : en premier lieu, le parcours des rayons γ dans les sols étant de l'ordre de quelques dizaines de centimètres, nous avons mis à profit pour étudier des hétérogénéités à cette échelle, la technique de la spectrométrie γ de terrain couplée au logiciel Geant4, développé au Centre Européen de Recherche Nucléaire (CERN), et conduit une étude expérimentale, afin d'améliorer les techniques de spectrométrie γ *in situ*. Les rayonnements β ont une portée plus faible, de l'ordre de quelques millimètres pour les plus énergétiques, autrement dit d'un ordre de grandeur comparable aux dimensions des grains de sédiments. Dans le cadre de ces rayonnements, la réalisation d'expériences est encore plus compliquée : les simulations effectuées avec GEANT4 ont ainsi principalement été comparées aux prédictions théoriques, nous amenant à remettre en question certains concepts largement utilisés dans le domaine des méthodes de datation paléodosimétriques.

Enfin, ce travail méthodologique a été adossé à l'étude chronologique d'un gisement Moustérien : nous avons ainsi appliqué la thermoluminescence et la luminescence optique à l'étude de silex chauffés et de quartz sédimentaires provenant du Roc de Marsal, en Dordogne. Cette étude chronologique avait été initiée il y a quelques années au CRPAA durant la thèse de doctorat de Christelle Lahaye, avec la participation de Pierre Guibert, et a été poursuivie dans le cadre de ce travail avec pour objectif de placer les occupations humaines de cette grotte, ainsi que leur contexte climatique et environnemental, sur l'axe

des temps. En outre, cette étude a permis, non seulement de mettre en lumière divers problèmes méthodologiques d'ordre dosimétrique, mais également d'envisager de solutions qui pourraient être testées dans de futures campagnes de datation. Il nous a en effet paru important d'associer une approche de terrain aux études virtuelles de simulations numériques des effets dosimétriques.

Le premier chapitre de cette thèse présente l'état des lieux des recherches sur les méthodes de datation par luminescence et expose la problématique de ce travail dans son contexte. Le second est consacré à la présentation des différents radioéléments rencontrés en milieu sédimentaire, incluant une mise à jour des données nucléaires utilisées en datation paléodosimétrique : il s'agit des facteurs de conversion des teneurs en radioéléments en débits de dose. L'outil logiciel de type Monte Carlo GEANT4, qui permet de simuler les interactions particules-matière, sera ensuite présenté, en précisant l'utilisation qui en a été faite dans le cadre de cette thèse (chapitre 3). Suivra une partie dédiée aux techniques de spectrométrie gamma de terrain (chapitre 4, 5 et 6), dont le but est de définir puis de tester une nouvelle manière d'exploiter les spectres, mais aussi de présenter un protocole non-invasif de cartographie des radioéléments dans les sols. Les chapitres 7 et 8 concernent les effets dosimétriques à l'échelle des grains, étudiés au moyens de simulations numériques. Plusieurs concepts y sont discutés, remis en question et des solutions sont proposées pour une nouvelle approche de la dosimétrie en milieu sédimentaire. Le chapitre 9 est consacré à la chronologie du Roc de Marsal, pensée dans son contexte paléoclimatique. Enfin un bilan des travaux est présenté, suivi des perspectives qu'ils laissent entrevoir.

Première partie

La radioactivité des sols et la datation par luminescence : contexte et outils

**Chapitre 1. Les méthodes de datation
par luminescence : état de la question
et problématique de ce travail**

La luminescence est une propriété physique qu'ont certains minéraux cristallins à émettre un signal lumineux quand ils sont stimulés par excitation thermique, optique ou encore électronique. Il s'agit alors respectivement des phénomènes de thermoluminescence (TL), de luminescence stimulée optiquement (OSL pour *Optically Stimulated Luminescence*) et de cathodoluminescence (CL). Si le dernier de ces trois phénomènes ne trouve pas d'application en datation, les deux autres sont aujourd'hui largement mis à profit en chronologie.

Le but de cette introduction n'est pas de résumer plus de cinquante ans de recherche sur les méthodes de datation par luminescence ; on pourra trouver une remarquable synthèse des travaux de recherche menés dans ce domaine (Wintle, 2009) depuis ses origines. En revanche, les notions essentielles et nécessaires à la compréhension des chapitres suivants vont être brièvement présentées en essayant de répondre aux questions suivantes : que date-t-on par les méthodes de datation par luminescence (TL et OSL) ? Quels sont les mécanismes physiques mis en jeu ? Comment ces principes fondamentaux sont-ils dérivés dans le cadre d'une étude chronologique, et quelle est la portée de ces méthodes de datation ? Quels sont les domaines d'application ? Enfin, quels sont aujourd'hui les thèmes de recherche développés ? En regard des réponses à cette dernière question, nous exposerons la problématique de ce travail.

1. Les matériaux datés par luminescence

Le champ d'application des méthodes de datation par luminescence est constitué, de manière théorique, des solides inorganiques cristallins isolants ou semi-conducteurs. Ainsi pourront être étudiés des roches dures telles que les silex, les quartzites, les silcrètes, mais aussi des minéraux tels que les quartzs et les feldspaths sédimentaires.

2. Les mécanismes physiques de la luminescence

La luminescence met en jeu les porteurs de charge des solides cristallins, à savoir les électrons ainsi que leurs absences, désignées sous le terme de « trous ». Le modèle des bandes, qui a permis d'expliquer de nombreux phénomènes de physique des solides et en particulier beaucoup de caractéristiques des matériaux semi-conducteurs, permet également de décrire simplement le phénomène de luminescence. Ce modèle distingue un certain nombre de bandes d'énergies permises pour les électrons, entre lesquelles se trouvent les bandes dites « interdites » - c'est-à-dire que les électrons se trouvant dans de tels niveaux d'énergie sont instables. Il existe cependant ce qu'on désigne couramment sous le terme de centre-pièges, à savoir des états électroniques métastables, à l'intérieur de ces bandes interdites. Sous l'effet de rayonnements ionisants des électrons excités peuvent ainsi, depuis

la bande de conduction, se retrouver piégés dans de tels centre-pièges. De même, des lacunes électroniques sont également piégées dans de tels états métastables. La luminescence consiste alors en une émission lumineuse consécutive à une libération d'électrons piégés : il existe en effet lors de cette excitation - qu'elle soit thermique ou lumineuse - une certaine probabilité que l'électron sorti de son piège se recombine avec une lacune électronique en un centre dit radiatif. Notons que ces centre-pièges sont localisés au niveau de défauts cristallins : Duttine *et al.* (2005) ont par exemple montré l'importance des centres aluminium et des lacunes en oxygène dans les mécanismes de thermoluminescence. Sur l'étude des pièges électroniques impliqués en physique de la luminescence, on pourra se référer à Bailey (2001), Preusser *et al.* (2009).

3. Principe des méthodes de datation par luminescence

a. Equation d'âge

Le phénomène de luminescence a été mentionné pour la première fois par le physicien anglais Robert Boyle, au 17^{ème} siècle mais il faudra attendre 1953 pour que son utilisation comme outil de chronologie soit proposé (Daniels *et al.*, 1953). Sous l'effet des rayonnements ionisants, le nombre d'électrons piégés dans le solide irradié augmente. On dit souvent abusivement que l'énergie radiative est stockée dans le matériau, ce qui fait des méthodes de datation par luminescence des méthodes dites paléodosimétriques. Afin de déterminer un âge, il est donc nécessaire de mesurer la quantité d'électrons piégés dans le matériau, et de diviser cette quantité par la vitesse d'accumulation de ces électrons au cours du temps. Ces grandeurs sont *stricto sensu* impossibles à mesurer et par convention on utilisera l'équation d'âge suivante :

$$Age = \frac{Paléodose (Gy)}{Débit de dose (Gy.a^{-1})}$$

La paléodose est l'énergie emmagasinée par unité de masse dans le matériau utilisé comme chronomètre ($Gy = J.kg^{-1}$), et le débit de dose correspond à la dose emmagasinée par unité de temps. Ici se pose la question de l'événement daté : il s'agit de l'instant auquel la dose de l'objet a été remise à zéro, ou plus précisément le moment dans le passé où tous les électrons piégés ont été libérés. Cependant il existe plusieurs types de pièges, qui n'ont pas la même sensibilité aux différents types de stimulation que sont l'énergie thermique et le rayonnement lumineux. Cet instant initial, communément dénoté $t=0$, dépend donc des pièges impliqués dans la datation et ainsi, du moyen de stimulation utilisé. Avant de rentrer dans les détails on pourra considérer à ce niveau que, lorsqu'on stimule un matériau par excitation thermique (TL), on date la dernière chauffe de l'objet puisque l'on travaille sur les

pièges thermosensibles. Cela sous-entend que pour effectivement dater cette dernière chauffe, celle-ci doit avoir été suffisante pour vider tous les pièges électroniques thermosensibles dans le passé. Si cela peut paraître une évidence d'un point de vue physique, cette condition prend une signification toute autre dès lors que l'on travaille sur des périodes très reculées de la Préhistoire : les débuts de l'utilisation et de la maîtrise du feu par l'Homme restent flous et d'un point de vue pratique, le nombre d'artefacts lithiques suffisamment chauffés pour donner lieu à des datations par TL reste très limité pour les périodes antérieures au Paléolithique moyen. En ce qui concerne l'OSL, l'événement daté est la dernière exposition du matériau à la lumière du jour, c'est-à-dire l'enfouissement d'un sédiment lorsqu'on travaille sur du quartz sédimentaire. Cette exposition à la lumière naturelle peut également être problématique, notamment dans le cas de sédiments trouvés en grottes, ou de colluvions.

b. La paléodose

La paléodose étant par définition l'énergie par unité de masse emmagasinée par le minéral que l'on souhaite dater, il s'agit d'une grandeur physique impossible à mesurer. En pratique, on détermine une dose équivalente à cette paléodose, c'est-à-dire une dose administrée en laboratoire permettant d'obtenir un signal égal au signal de luminescence naturel, c'est-à-dire la même « quantité » de luminescence que celle induite par la paléodose. La détermination de la dose équivalente consiste tout d'abord à mesurer la quantité de lumière émise par le matériau daté, ce qui fournit en unités arbitraires une image du nombre d'électrons piégés dans le cristal. Pour une technique donnée, la sensibilité du matériau étudié varie largement d'un dosimètre à l'autre - ainsi l'origine géologique des quartzs et la distance sur laquelle ils ont été transportés semblent affecter la sensibilité de ces dosimètres. Il est donc nécessaire de comparer le signal de luminescence naturel à celui induit par des doses d'irradiations connues, administrées en laboratoire à l'aide de sources radioactives étalonnées.

Les protocoles diffèrent à ce niveau entre la TL et l'OSL ; nous allons brièvement présenter les méthodes d'obtention de dose équivalente pour ces deux méthodes.

- La thermoluminescence des roches chauffées

Dans le cadre de la thermoluminescence appliquée aux roches comme les silex, on peut raisonnablement supposer - mis à part dans certains cas où des hétérogénéités de couleur sont visibles à l'œil nu - que deux aliquotes d'un même échantillon sont similaires d'un point de vue de la luminescence. En conséquence, il est courant (Aitken, 1985a par exemple) de mesurer d'abord le signal naturel émis par quelques aliquotes puis de mesurer

le signal induit par l'accumulation de dose dans le silex sur d'autres aliquotes (donc supposées équivalentes). On parle dans ce cas de protocoles sur aliquotes multiples. La figure 1 présente une série de courbes de thermoluminescence obtenues pour un silex prélevé sur le site du Roc de Marsal (France), qui constitue un des échantillons datés dans le cadre de ce travail. Ces courbes mettent en évidence un pic d'intensité centré sur une température d'environ 380° C, pour une vitesse de chauffe de 4° s⁻¹. Cette température est liée à la profondeur des pièges électroniques correspondant, ou encore, à leur énergie d'activation (plus l'énergie d'activation est grande, plus la température du pic est élevée). Ces pièges métastables ont une durée de vie intimement liée à leur énergie d'activation et à la température, et donnée par l'équation de Boltzmann :

$$\lambda = s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

où λ (s⁻¹) désigne la probabilité d'éviction des électrons piégés, s (s⁻¹) est un facteur de fréquence propre à chaque piège, E (J) est l'énergie d'activation susmentionnée, k (1.38 10⁻²³ J.K⁻¹) est la constante de Boltzmann et T (K) la température. Plus l'énergie d'activation est élevée, plus la stabilité du piège, exprimée comme l'inverse de λ , est grande. Le pic à 380° C permet de remonter à des âges de plusieurs centaines de milliers d'années, sa durée de vie à température ambiante étant estimée à quelques milliards d'années.

On construit alors la courbe de croissance de ce pic en fonction de la dose, il s'agit de la courbe dite de première lecture. On pourrait, par extrapolation de la courbe de croissance présentée sur la figure 1 vers les faibles doses, en déduire la dose équivalente du silex. Cette courbe de croissance est linéaire en première approximation : le nombre d'électron croît avec la dose reçue ; cependant, vers les doses élevées, la courbe est infra-linéaire, ce qui peut s'expliquer - de manière simpliste - par une saturation des pièges électroniques, tandis que vers les faibles doses la croissance est supra-linéaire. Cette caractéristique est plus difficile à expliquer ; cependant, pour tenir compte de cet effet, on peut reconstruire cette partie de la courbe de croissance du signal en remettant la dose emmagasinée dans le cristal à zéro. Le principe est alors de remettre le matériau étudié dans des conditions thermodynamiques similaires à celles de l'instant daté, c'est-à-dire juste après la dernière chauffe. Pour les silex, une chauffe modérée, 350° C pendant une heure, permet de remettre à zéro le nombre d'électrons piégés en affectant peu la sensibilité de

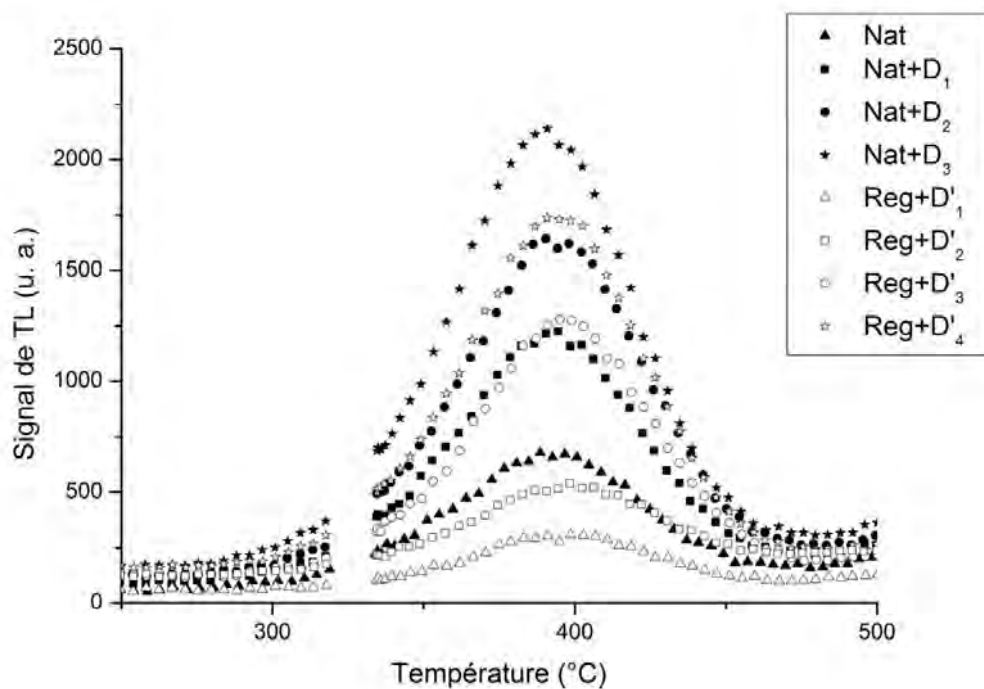


Figure 1. Echantillon de silex Bdx 13281, Roc de Marsal : série de courbes de thermoluminescence obtenues avec des nacelles contenant environ 10 mg de matière. Les symboles pleins correspondent aux courbes de première lecture, c'est-à-dire que l'on mesure le signal naturel puis trois signaux pour lesquels trois doses D_1 , D_2 et D_3 ont été ajoutées. Les symboles vides correspondent aux courbes de deuxième lecture : le signal a préalablement été remis à zéro, puis quatre doses de régénération ont été administrées. Chaque courbe est la moyenne des signaux obtenus sur quatre nacelles.

l'échantillon à l'irradiation¹. En tout état de cause, une deuxième courbe de croissance du signal de luminescence en fonction de la dose, appelée courbe de deuxième lecture, peut alors être obtenue en irradiant des aliquotes de l'échantillon remises à zéro et en mesurant leur luminescence. L'intérêt de cette courbe est de caractériser le comportement du matériau dans la région des faibles doses, qui n'est pas décrit par la première lecture. On peut alors soit déterminer l'écart entre la paléodose et la dose obtenue par extrapolation de la courbe de première lecture, dû à la supra-linéarité de la courbe de croissance du signal de luminescence en fonction de la dose, soit utiliser la méthode dite du « slide » (Mercier *et al.*,

¹ Il en va tout autrement dans le cas de quartz dont la sensibilité à l'irradiation dépend fortement du protocole de traitement thermique de remise à zéro du signal de luminescence. Cela a donné lieu à l'établissement de différents protocoles dits « de recuit » (par exemple Roque *et al.*, 2004) ; ayant travaillé par TL uniquement sur des silex nous ne rentrerons pas ici dans ces détails.

1992 puis Prescott, 1993), qui consiste à superposer les deux courbes de croissance et ainsi obtenir directement la dose équivalente.

- La luminescence optique du quartz

Dans cette partie, l'objectif est de décrire brièvement les protocoles de détermination de la paléodose en OSL sur du quartz. Un grand nombre de protocoles expérimentaux existent ; nous allons ici décrire le protocole « classique » de luminescence optique, à savoir le protocole sur aliquote unique par régénération de dose (protocole SAR pour *Single Aliquot Regenerative dose protocol*). Il est devenu classique du fait que son utilisation s'est généralisée, depuis une série de travaux parmi lesquels on citera Murray et Roberts (1998), Galbraith *et al.* (1999) et surtout Murray et Wintle (2000), à la plupart des études en OSL appliquées à la géologie ou à l'archéologie. La puissance de ce protocole est en effet telle qu'une très grande majorité d'échantillons de quartz peuvent être traités de cette manière.

Contrairement au cas des roches dures, l'histoire complexe de formation des sédiments a pour conséquence une potentielle diversité des grains de quartz présents dans les sédiments, qu'il s'agisse de leur origine géologique, de leur histoire dépositionnelle, de leur environnement en termes de radioactivité ou encore de la remise à zéro de leur signal de luminescence au moment de leur enfouissement. Il s'ensuit que différentes aliquotes d'un même échantillon ne seront pas forcément identiques et on ne peut pas, ou du moins pas souvent, contrairement au cas de la TL appliquée aux roches chauffées, construire une courbe de croissance du signal de luminescence en fonction de la dose qui soit représentative d'un échantillon.

Le protocole SAR tel qu'il est utilisé aujourd'hui, affiné par Murray et Wintle (2003), permet de mesurer dans un premier temps le signal de luminescence naturel d'une aliquote, puis de construire sa propre courbe de croissance en fonction de la dose. La dose équivalente est alors déterminée par interpolation du signal naturel sur la courbe de croissance obtenue. Les avantages d'un tel protocole sont multiples : ils réduisent la quantité de matière nécessaire pour calculer un âge, permettent donc ainsi de multiplier les analyses et d'acquérir un ensemble de données bien plus précis que les protocoles d'analyses sur aliquotes multiples. Le protocole utilisé est constitué de la série d'opérations suivante :

- Irradiation² ;
- Préchauffe à une température donnée, pendant dix secondes ;
- Lecture du signal d'OSL régénéré³, L_x , pendant quarante secondes à 125° C ;

² Nulle au premier cycle, puisque l'on mesure le signal naturel.

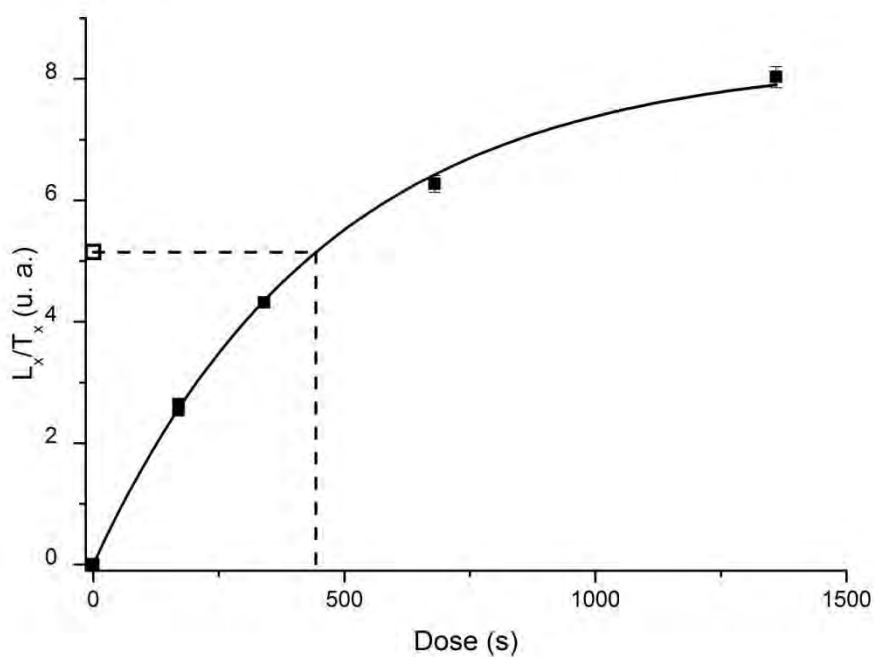
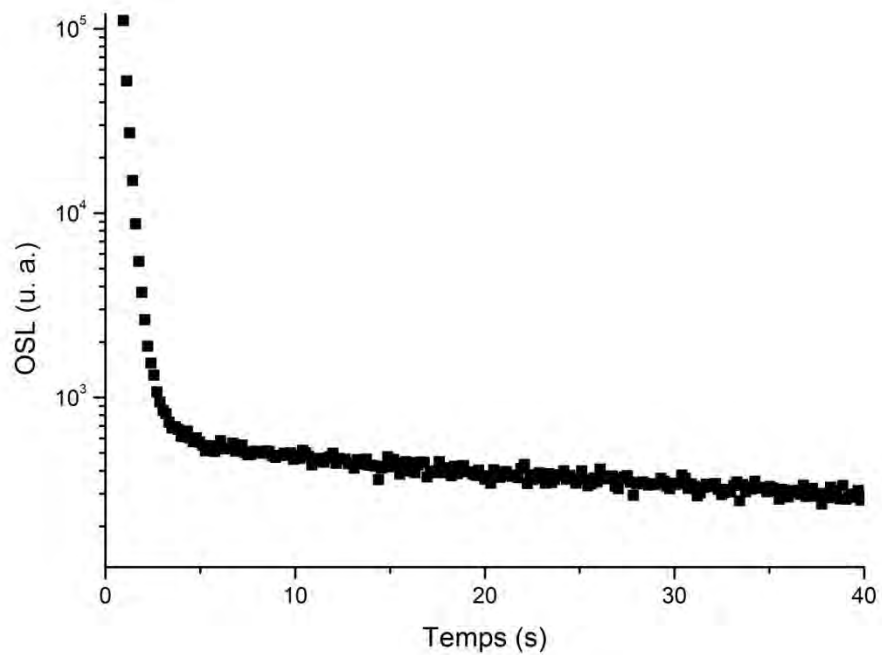


Figure 2. Signal de luminescence naturel d'un aliquote de quartz de l'échantillon Bdx 13396 (en haut). Pour une meilleure lisibilité une échelle logarithmique est utilisée pour l'axe des ordonnées. En bas de la figure, en symboles pleins, la courbe de croissance du signal de luminescence en fonction de la dose pour cette même aliquote. La dose est ici exprimée en secondes d'irradiation avec la source artificielle. Le report du signal naturel, représenté par un symbole vide, permet de déterminer la dose équivalente de cette aliquote.

³ Ou naturel au premier cycle.

- Irradiation pour normalisation, appelée aussi dose test ;
- Préchauffe à une température donnée, sans palier ;
- Lecture du signal d'OSL de normalisation, noté T_x , pendant quarante secondes à 125°C ;
- Blanchiment du signal résiduel par stimulation optique pendant quarante secondes à 280°C ;

Ce cycle est répété sept fois, la dose d'irradiation de début de cycle prenant les valeurs suivantes, exprimées en fraction de la dose équivalente : 0 pour le premier, qui permet de mesurer un rapport L_0/T_0 correspondant au signal naturel ; 1/3, 2/3, 4/3, 8/3, 0 et 1/3 pour les six cycles suivants. Le but de ces six cycles est d'obtenir une courbe de croissance du signal de luminescence en fonction de la dose - il s'agit des quatre premiers cycles - puis de vérifier deux points : tout d'abord qu'il n'y a pas de transfert de charges d'un cycle à l'autre, ce qui revient à vérifier que le signal de luminescence correspondant à une dose nulle est bien nul ; puis que l'on n'a pas modifié la sensibilité du quartz au cours de l'acquisition des données. On s'attend ainsi à retrouver le même signal lors du 2^{ème} et du 6^{ème} cycle, puisque la dose délivrée est la même. La figure 2 présente une courbe d'OSL naturelle obtenue sur une aliquote de l'échantillon de sédiment Bdx 13396 du Roc de Marsal, ainsi que la courbe de croissance correspondante. La figure 3 est un diagramme radial de la distribution des doses équivalentes mesurées sur cet échantillon. Wintle et Murray (2006) ont proposé une synthèse des différentes caractéristiques de luminescence optique du quartz fréquemment rencontrées, en discutant les conséquences sur les différents protocoles de détermination de doses équivalentes.

c. Le débit de dose

Il existe un certain nombre de procédures expérimentales permettant de déterminer le débit de dose reçu par un dosimètre naturel durant son enfouissement. Soulignons ici le fait que nous nous intéressons uniquement au débit de dose perçu soit par des roches chauffées, soit par des échantillons de sédiments. Tout d'abord, précisons l'origine des débits de dose : enfouis dans des sédiments, les dosimètres tels que les roches chauffées ou les grains de quartz ou feldspaths sédimentaires sont soumis à différents types de rayonnements. En effet les radioéléments présents dans les sols - à savoir l'isotope ^{40}K du potassium, les chaînes radioactives de l'uranium et du thorium - émettent des particules α , β et γ ⁴ susceptibles d'ioniser la matière. Ces particules, différentes par nature, présentent

⁴ Les γ sont généralement considérés comme des rayonnements ; la dualité onde-corpuscule nous autorise à parler de particules γ , d'autant plus que leurs interactions dans les milieux denses – effets Compton, photoélectrique,

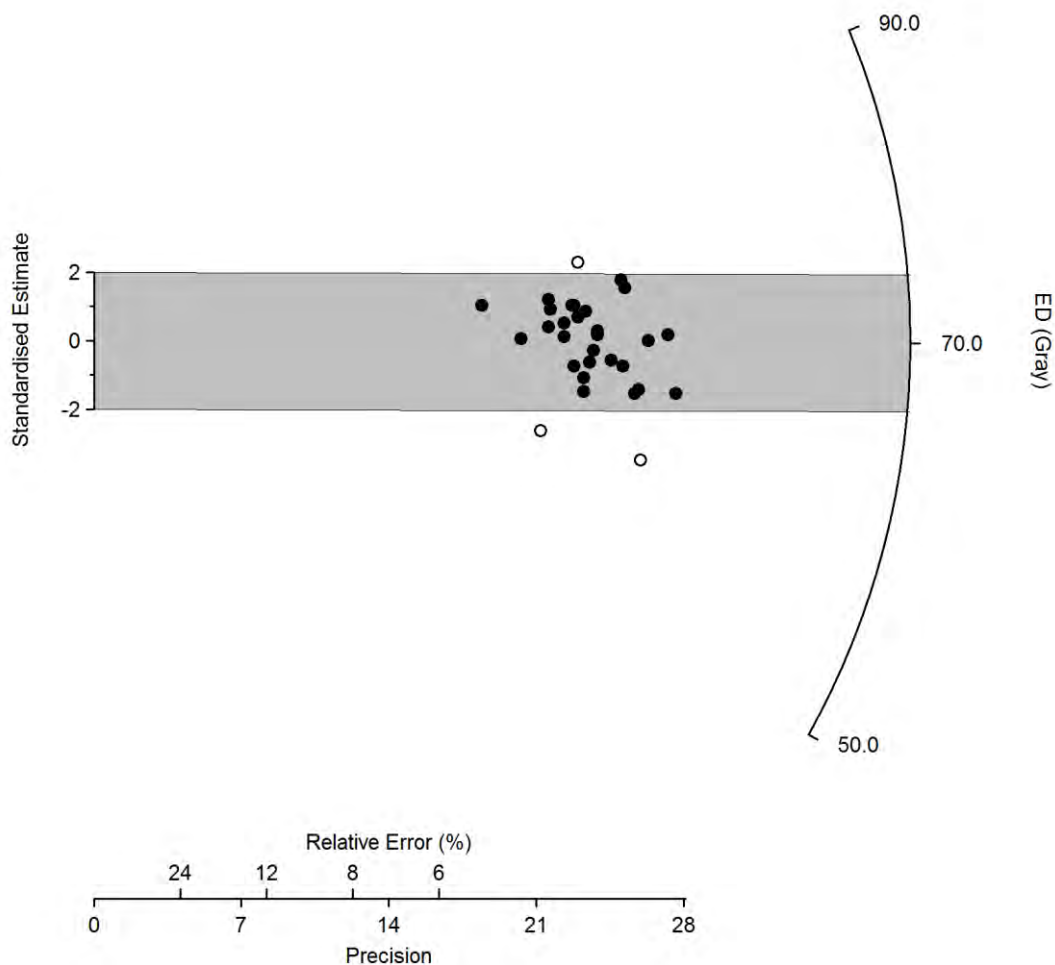


Figure 3. Diagramme radial de distribution des doses équivalentes (ED pour *Equivalent Doses*) pour l'échantillon Bdx 13396. Les symboles vides représentent les points incompatibles avec la distribution log-normale (Galbraith, 1999), caractérisée par sa valeur moyenne et son erreur standard sur la moyenne.

des spectres énergétiques spécifiques des radioéléments émetteurs, et sont caractérisées par leur portée dans les milieux denses : en milieu sédimentaire quelques dizaines de microns pour les particules α , quelques millimètres pour les β et plusieurs dizaines de centimètres pour les rayons γ . Enfin, les rayons cosmiques délivrent également un certain débit de dose à la surface de la Terre, leur intensité décroissant avec la profondeur d'enfouissement. En ce qui concerne le débit de dose dû aux rayonnements cosmiques, on distingue la composante douce - constituée d'électrons et de photons - arrêtée par quelques dizaines de centimètres de roche ou de sédiments, de la composante dure, constituée principalement de muons.

création de paires, et même dans une certaine mesure diffusion Rayleigh - sont ponctuelles ; les manifestations ondulatoires des γ ne sont d'aucun intérêt dans le cadre de ce travail.

Prescott et Hutton (1994) ont proposé une relation permettant de calculer le débit de dose d'origine cosmique en fonction de la profondeur d'enfouissement des échantillons, de la latitude et la longitude du site étudié, tout en incluant les variations d'intensité du champ magnétique terrestre.

Afin de déterminer ces différentes composantes, on distingue deux grands types de mesures : les mesures de dose et l'acquisition de spectres radioactifs.

- Mesures de doses

Il s'agit d'utiliser des dosimètres artificiels qui, placés dans les sédiments, enregistrent des débits de dose de façon similaire aux objets datés : en effet on mesure le signal de luminescence de cristaux sensibles aux rayonnements ionisants. On en déduit une dose reçue qui, ramenée au temps d'accumulation dans les sédiments, fournit un débit de dose caractéristique du point de mesure. Si les sulfates de calcium ont longtemps été utilisés du fait de leur forte sensibilité aux rayonnements, aujourd'hui on préfère utiliser des dosimètres en alumine. Ces derniers ont l'avantage d'être également très sensibles aux irradiations, ce qui permet de réaliser des mesures de dose en des temps raisonnables - de l'ordre de quelques mois - et surtout l'alumine présente des caractéristiques très semblables au dioxyde de silicium en ce qui concerne l'absorption de dose. Les sections efficaces d'interaction des rayons γ dans ces deux matériaux étant très proches, le débit de dose enregistré par l'alumine est équivalent au débit de dose reçu par un grain de quartz ou un silex. En pratique, de tels dosimètres sont le plus souvent utilisés pour mesurer des débits de dose γ , même si on pourra trouver des exemples où le débit de dose β est également mesuré dans des dépôts sédimentaires (Burbidge et Duller, 2003 ; Kalchgruber et Wagner, 2006). L'équipe du CRPAA dispose de pastilles d'alumine, de diamètre 5 mm et d'épaisseur 1 mm, qui sont placées par groupes de trois dans des tubes métalliques dont l'enveloppe a une épaisseur de 2.5 mm, et de longueur 30 cm. Ces tubes métalliques, composés d'un alliage à base d'aluminium, permettent premièrement d'insérer les pastilles dosimétriques dans les sédiments - à une profondeur de 30 cm permettant de considérer l'environnement infini, c'est-à-dire identique à l'environnement d'enfouissement des objets datés. La deuxième fonction de ces tubes métalliques est de stopper le rayonnement β - et à plus forte raison les particules α - du sédiment ; ainsi les pastilles d'alumine n'enregistrent que le débit de dose γ et le débit de dose cosmique.

- Spectrométrie

Si la finalité des mesures de spectrométrie reste de déterminer des débits de dose, l'approche est différente puisqu'il s'agit de mesures indirectes : les débits de dose sont

déduits de spectres radioactifs. Plus précisément, l'objectif est de déterminer la concentration en éléments radioactifs dans les sédiments, puis de convertir ces teneurs en débits de dose : on pourra se référer à Aitken (1985a) puis Nambi et Aitken (1986) et enfin Adamiec et Aitken (1998). Cette conversion s'appuie sur l'hypothèse de matrice infinie, développée par Roesch et Attix (1968) et reprise par Aitken (1985a): dans le cas d'une matrice infinie, c'est-à-dire en pratique de dimensions supérieures aux parcours des différentes particules considérées, toute l'énergie émise dans le milieu est absorbée dans ce même milieu. A partir des concentrations en radioéléments dans un milieu, la connaissance de leur durée de vie permet de calculer leur activité. En connaissant ensuite l'énergie moyenne émise par désintégration, il est alors possible de calculer le débit d'énergie émis par unité de temps et de masse du milieu qui est égal au débit de dose absorbé par les dosimètres naturels présents dans le milieu. On parle alors de « débit de dose en matrice infinie ».

Les radioéléments naturels sont l'isotope ^{40}K du potassium, les chaînes radioactives de l'uranium (^{238}U et ^{235}U) et celle du thorium. Si le potassium-40 est un émetteur γ et β , les chaînes radioactives de l'uranium et du thorium émettent également des particules α . On trouvera la liste des éléments constitutifs de ces chaînes plus loin dans ce manuscrit (chapitre 3). Dans le cas d'un système fermé, les chaînes radioactives sont équilibrées, c'est-à-dire que les désintégrations d'un élément de la chaîne sont compensées par la production de ce radioélément du fait des désintégrations de son parent direct. Cela se traduit par les équations

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \lambda_3 N_3 \dots$$

où λ_i et N_i représentent respectivement la constante d'activité et le nombre d'atomes - ou la concentration atomique - de l'élément i de la chaîne. Il s'ensuit que pour une chaîne équilibrée, la connaissance de la concentration en un quelconque des éléments de la chaîne donne la concentration en n'importe quel autre élément de la même chaîne.

Il existe un certain nombre de techniques spectrométriques permettant de déterminer des teneurs en radioéléments : on pourra citer les méthodes de spectrométrie γ , α , et l'activation neutronique. La technique ICP-MS (pour *Inductively Coupled Plasma - Mass Spectrometry*) permet également, compte tenu de sa grande résolution d'analyse, de mesurer la teneur en isotopes radioactifs naturels, bien que cette méthode n'exploite pas la radioactivité de ces nucléides. Ne seront ici décrites que les méthodes les plus utilisées au CRPAA, à savoir celles de spectrométrie γ .

On distingue deux grands types de spectrométrie γ : tout d'abord la spectrométrie à bas bruit de fond, effectuée en laboratoire, généralement sur des échantillons de sédiments,

plus rarement sur des objets lithiques (par exemple Guibert et Schvoerer, 1991) puisque pour ces derniers, les teneurs en radioéléments sont généralement faibles - l'obtention de résultats statistiquement satisfaisants nécessite ainsi des temps de comptage très longs ; ensuite la spectrométrie γ de terrain, qui permet d'acquérir des spectres *in situ* en insérant une cellule de détection à l'intérieur des sédiments. Ces deux méthodes ont en commun de mesurer la radioactivité de sédiments en acquérant des spectres mais elles présentent toutes deux des avantages et inconvénients, que nous allons essayer de synthétiser.

Le CRPAA est équipé de trois spectromètres γ de laboratoire et tous utilisent des détecteurs en Germanium : deux détecteurs coaxiaux, sur lesquels on place des échantillons de sédiments conditionnés en boîtes dont la capacité varie de 12 à 60 cm³, et un détecteur en géométrie « puits » à l'intérieur duquel on place des piluliers contenant les échantillons étudiés, de volume 5.6 cm³. Les échantillons mesurés ont donc une masse comprise entre quelques grammes et quelques dizaines de gramme. Cette méthode de mesure de la radioactivité présente certains avantages : la résolution en énergie de ces détecteurs est excellente (de l'ordre de 2 keV) et il est donc possible de distinguer des raies d'énergies très proches. De plus, les temps de comptage, de l'ordre de quelques jours, permettent de travailler sur des raies d'intensité faible ; cela d'autant plus qu'un blindage en plomb protège généralement les spectromètres du rayonnement ambiant, réduisant ainsi le bruit de fond des mesures. En particulier pour les séries de l'uranium et du thorium, un certain nombre de raies sont prises en compte pour calculer les concentrations en radioéléments, ce qui améliore la précision des mesures. Cela permet également d'étudier les déséquilibres éventuels des séries radioactives, ce qui est particulièrement important pour la série de l'uranium (cf. *infra*).

La spectrométrie de terrain permet quant à elle de multiplier les mesures en fonction des profils sédimentaires rencontrés. Une sonde contenant un cristal - généralement d'iodure de sodium NaI ou de tribromure de lanthane LaBr₃ - est insérée dans les sédiments afin d'enregistrer un spectre. De manière classique, on utilise la technique « des fenêtres » pour interpréter un spectre et en déduire les teneurs en radioéléments, c'est-à-dire que pour chaque radioélément, on met à profit une région du spectre contenant un pic associé à l'une des séries radioactives dont l'intensité est convertie en concentration. Chaque mesure nécessite environ vingt à trente minutes afin d'obtenir une statistique de comptage raisonnable.

4. Thèmes de recherche actuels

Les points mentionnés ici ne fournissent pas une liste exhaustive des thèmes de recherche actuels, mais dressent un tableau synthétique des principaux enjeux méthodologiques animant la communauté de datation par luminescence à l'heure actuelle.

a. Augmenter la résolution d'analyse

Le développement du protocole SAR, qui permet de déterminer une dose équivalente par aliquote, a ouvert le champ de la datation sur grain unique (Murray et Roberts, 1997 ; Roberts *et al.*, 1999 ; Duller *et al.*, 2000 ; Thomsen *et al.*, 2007). Les grains étant la plus petite unité de transport constituant les sédiments, il est donc possible de travailler sur des processus sédimentaires complexes.

Depuis les articles pionniers, se pose la question de l'interprétation des données. Un certain nombre de formalismes statistiques ont été proposés pour traiter de tels ensembles de données, cependant à l'heure actuelle la prise en compte des facteurs déterminant les distributions de doses équivalentes reste limitée. Ces facteurs peuvent être des remises à zéro du signal de luminescence problématiques, tous les grains d'un échantillon n'ayant pas été suffisamment exposés à la lumière pour remettre à zéro le signal de luminescence ; les études sur grains uniques peuvent également permettre de constater des perturbations post-dépositionnelles des sédiments, puisqu'il arrive qu'on retrouve au sein d'un échantillon des grains dont la dose équivalente correspond à celle trouvée pour un autre échantillon situé plus haut ou plus bas dans la même séquence stratigraphique (voir par exemple Tribolo *et al.*, 2010). La variabilité des doses équivalentes provient également en partie des appareils de mesure, comme l'étude publiée par Thomsen *et al.* (2005) l'a clairement montré. Enfin, d'un point de vue microdosimétrique, l'hétérogénéité de répartition des radioéléments dans les sédiments à l'échelle des grains a pour conséquence des distributions de débit de dose qui peuvent être complexes (par exemple Mayya *et al.* 2006).

b. Etendre la portée chronologique des méthodes

Une autre problématique de recherche particulièrement active actuellement vise à étendre la portée chronologique des méthodes de datation par luminescence. Actuellement, cette portée est limitée par deux facteurs : pour la thermoluminescence on estime que les minéraux présentent une saturation du signal vers 1 kGy, ce qui en termes d'ordre de grandeur correspond à des âges d'un million d'années. Si on peut effectivement travailler sur des problématiques géologiques à cette échelle de temps - par exemple en volcanologie - les applications à l'évolution humaine sont plus rares du fait de l'absence de matériaux chauffés

pour les périodes du Paléolithique ancien et, dans une moindre mesure, les débuts du Paléolithique moyen. En ce qui concerne la luminescence optique, le signal dit classique d'OSL du quartz - à savoir la composante rapide, qui est stable et facilement isolable - sature en général à des doses d'environ 100 Gy, ce qui correspond à des âges de 100 ka pour un débit de dose de 1 mGy.a⁻¹.

De manière schématique, on peut considérer que deux types de solutions sont envisagés pour étendre la portée chronologique des méthodes de datation par luminescence : d'une part, de nouveaux minéraux sont étudiés. L'exemple des feldspaths - excités à l'aide de rayonnements infrarouges, d'où l'acronyme IRSL pour *Infra-Red Stimulated Luminescence* - a fait l'objet de nombreux développements (Huntley et Lamothe, 2001 ; Lamothe *et al.*, 2003 ; Thomsen *et al.*, 2008 ; Buylaert *et al.*, 2009). La problématique spécifique à ce minéral est que le signal de luminescence est évanescent - on parle de *fading* en anglais : bien que les mécanismes physiques ne soient pas encore décrits de manière tout-à-fait satisfaisante, nombre d'études s'attachent à expliquer le phénomène (dernièrement Jain et Ankjærgaard, 2011) ou, le plus souvent, à proposer des solutions pour le contourner.

Une autre voie de recherche consiste à travailler sur d'autres signaux de luminescence que celui mis à profit de manière classique ; il est alors question d'OSL par transfert thermique (TT-OSL : Wang *et al.*, 2006 ; Adamiec *et al.*, 2008, 2010 ; Stevens *et al.*, 2009), de thermoluminescence isothermale (ITL : Choi *et al.*, 2006 ; Vandenberghe *et al.*, 2009 ; Jain *et al.*, 2007a), puis d'une série de combinaisons parmi lesquelles la luminescence violette post-excitation en lumière bleue (post-blue VSL : Jain, 2009). Les signaux correspondant sont alors des combinaisons de signaux dus aux différents centres-pièges et de recombinaison, dont les durées de vie, l'énergie d'activation, les sections efficaces d'interaction avec les photons varient.

5. Domaines d'application

Deux grands domaines d'étude peuvent être distingués dans l'application des méthodes de datation par luminescence : d'un côté les recherches en géologie et sédimentologie, et de l'autre les questions liées à l'archéologie au sens large, dans la mesure où la luminescence permet de travailler sur les périodes historiques et préhistoriques.

a. L'étude du quaternaire : changements climatiques et environnementaux, volcanologie, hydrologie, etc.

Le quartz et les feldspaths étant des minéraux ubiquistes, ils sont des matériaux de choix dans le domaine de la géochronologie. Les méthodes de luminescence font partie des

méthodes paléodosimétriques au même titre que la Résonance Paramagnétique Electronique (RPE, en anglais ESR pour *Electron Spin Resonance* ; voir Ikeya, 1975), et leur vaste portée chronologique permet de fournir des repères temporels dans nombre de domaines : l'application de la TL aux sédiments volcaniques a permis de dater des éruptions (par exemple Miallier *et al.*, 2004 ; Bassinet, 2007) ; l'OSL appliquée aux quartz a permis d'étudier toutes sortes de dépôts sédimentaires (Murray et Olley, 2002). L'évolution du niveau des océans, ainsi que certaines catastrophes naturelles telles que des ouragans, raz-de-marée, inondations (Davids *et al.*, 2010 ; Cunha *et al.*, 2010) ont également pu être étudiées. L'étude des variations environnementales et climatiques, qui prennent une place de plus en plus importante en ce début de XXIème siècle, bénéficient largement des apports chronologiques de la luminescence.

Enfin certains projets sont actuellement en développement pour élargir le champ d'application de ces méthodes à d'autres planètes : sans sortir de la sédimentologie, le terme de géologie n'est pour autant plus adéquat puisque la planète Mars fait l'objet de projets de datation en vue de déterminer la fin de l'activité fluviatile sur cette planète (McKeever *et al.*, 2006 ; Jain *et al.*, 2006, 2007b ; Kalchgruber *et al.*, 2007 ; Mortheikai *et al.*, 2007 ; Detschel et Lepper, 2009).

b. Archéologie au sens large : histoire et préhistoire.

Historiquement, la thermoluminescence a été développée pour dater des céramiques et ainsi apporter des éléments de chronologie dans le domaine de l'archéologie. Un célèbre exemple d'application est le cas de céramiques prétendument trouvées en fouilles à Hacilar, en Turquie, dans des niveaux d'occupation attribués au Néolithique (Aitken *et al.*, 1971). En particulier la datation par TL d'un vase à deux-têtes a permis de montrer que cet artefact n'était pas authentique mais de production récente.

La thermoluminescence est aujourd'hui appliquée à l'étude des périodes historiques - en particulier au CRPAA, où un programme de recherche européen vise à dater des édifices en travaillant sur les terres cuites architecturales (Guibert *et al.*, 2009b ; Blain *et al.*, 2010) - mais aussi préhistoriques, puisque les roches chauffées sont des marqueurs chronologiques mis à profit pour le Paléolithique. On pourra ainsi citer Mercier *et al.* (2007b) ou Tribolo *et al.* (2009) parmi nombre d'autres études.

En ce qui concerne la luminescence optique, la remise à zéro du signal de luminescence ne nécessite pas une chauffe du minéral, ce qui en fait une méthode applicable à la quasi-totalité des sites archéologiques en contexte stratigraphique. Indirectement, la datation des sédiments permet en effet de dater les niveaux d'occupation qu'ils contiennent

et/ou recouvrent. On pourra se référer par exemple à Mercier *et al.* (2009), Jacobs *et al.* (2008a), Jacobs (2010), etc.

La combinaison de ces deux méthodes, lorsque cela est possible, offre en outre un moyen de comparer les résultats obtenus de manière indépendante ; en plus de l'intérêt méthodologique, ce type d'associations permet souvent d'affiner des scénarii chronologiques (voir par exemple Mercier *et al.*, 2007b).

6. Problématique

A la lumière de cette brève présentation des méthodes de datation par luminescence, de leurs domaines d'application et de l'état des recherches méthodologiques, plusieurs constats peuvent être dressés. Tout d'abord, si la communauté est aujourd'hui largement focalisée sur les mesures de doses équivalentes et leurs corollaires - qu'il s'agisse d'exploiter de nouveaux signaux pour étendre la portée chronologique, de travailler sur de nouveaux minéraux pour diversifier les champs d'application ou d'améliorer la résolution des analyses - force est de constater que le débit de dose est le parent pauvre des recherches méthodologiques. Depuis les années 1970 et l'ouvrage de référence qui a entériné les travaux pionniers dans ce domaine (Aitken, 1985a), seuls des travaux sporadiques ont porté sur cette grandeur physique qui, pourtant, a autant d'importance que la paléodose dans la détermination d'âges.

a. Etat des recherches sur les débits de dose

La grande majorité des travaux effectués dans ce domaine est fondée sur la notion de matrice infinie, développée par Roesch et Attix (1968). Comme cela a déjà été expliqué précédemment, cette outil conceptuel permet de convertir des teneurs en radioéléments en débits de dose, au moyen de facteurs de conversion (Aitken, 1985a ; Nambi et Aitken, 1986 ; Adamiec et Aitken, 1998). Nombre de travaux sont alors dérivés du cas de la matrice infinie pour traiter le cas de grains de quartz dans une matrice - il s'agit en effet du cas d'étude typique jusque dans les années 1970-1980 : la datation de céramiques a été, et est encore aujourd'hui souvent fondée sur la technique des inclusions, qui consiste à travailler sur de gros grains (100-200 μm) de quartz perdus dans une matrice homogène.

- L'influence de la taille des grains sur les débits de dose β

Ainsi, par exemple, les travaux de Mejdahl (1979) traitent de l'effet de la taille des grains utilisés comme dosimètres. Si on considère un grain de quartz - généralement pas, ou très peu radioactif - dans une matrice homogène, infinie, le quartz représente une hétérogénéité du point de vue de la distribution des radioéléments. Dans le cas de grains de

quartz très petits - i.e. inférieur à 20 μm en diamètre, une longueur négligeable devant le parcours des particules β , de l'ordre de quelques millimètres - cette hétérogénéité a peu de conséquences sur le débit de dose β reçu par le grain. En revanche, si on considère un grain de dimensions largement supérieures au parcours des particules β , dans l'approximation où ce grain ne contient pas de radioéléments, il reçoit un débit de dose β externe négligeable. Pour traiter les cas intermédiaires, Mejdahl (1979) considère trois cas dont deux virtuels. Le premier consiste à considérer que le grain et la matrice sont homogènes du point de vue de la distribution des radioéléments. Dans ce cas le grain reçoit le débit de dose β de la matrice infinie. Un deuxième cas, virtuel également, consiste à considérer que seul le grain est radioactif; on peut dans ce cas déterminer, à l'aide d'un logiciel de simulation des interactions particules-matière ou plus simplement des courbes de dépôt de dose dans l'espace autour d'une source radioactive ponctuelle (DPK dans la suite, pour *Dose Point Kernel* en anglais), la fraction du débit de dose « matrice infinie » déposée dans le grain du fait de sa radioactivité virtuelle propre - on parle alors d'auto-dose. Le troisième cas, réel, considéré, est celui où seul le grain n'est pas radioactif: le théorème de superposition permet d'affirmer que le grain reçoit le débit de dose « matrice infinie » auquel on soustrait la composante d'auto-irradiation. Cette approche, qui a le mérite de s'appliquer dans les cas où on travaille sur des grains de quartz isolés dans une matrice, est très puissante puisque elle est fondée sur des calculs simples. Fain *et al.* (1999) ont repris cette approche en incluant le cas de grains non sphériques; Brennan (2003) a continué dans cette voie, avec des données nucléaires à jour et en traitant de l'effet de l'attaque chimique des grains de quartz par l'acide fluorhydrique; notons que l'effet de cette attaque chimique avait déjà été étudié par Bell et Zimmermann (1978), puis Bell (1979). Enfin Nathan (2011) a enrichi ces travaux en utilisant la méthode DPK et des simulations de type Monte Carlo des interactions particules-matière: outre cet apport méthodologique, il a étudié les effets de l'attaque chimique de manière plus approfondie, mais aussi l'influence de la nature des grains et de leur forme. Notons également que ce phénomène d'atténuation des débits de dose n'est pas traité pour les rayons γ , puisque l'effet est négligeable pour des grains de diamètre inférieur à 300 μm .

- Le débit de dose α

Le cas des particules α est plus complexe; tout d'abord parce que ces particules étant plus beaucoup plus lourdes que les électrons - qui déposent la dose dans le cas des radioactivités β et γ , à la suite d'interactions photoélectriques ou Compton dans ce dernier cas - elles ont un pouvoir d'ionisation supérieur, de plusieurs ordres de grandeur. Par

conséquent les particules α saturent les pièges électroniques le long de leur parcours - ce qui se traduit concrètement par une faible efficacité des particules α à produire de la luminescence (Zimmermann, 1971 ; Aitken et Bowman, 1975 ; Lyons et Brennan, 1989). Aitken (1985b) a proposé une synthèse des différentes manières de mesurer l'efficacité des particules α à produire de la luminescence. Il n'en demeure pas moins vrai que l'évaluation du débit de dose α reste problématique, puisque compte tenu du parcours des particules α - quelques dizaines de microns tout au plus - l'approximation de matrice infinie est délicate. Une possibilité est d'attaquer chimiquement les grains de quartz avec de l'acide fluorhydrique afin d'éliminer une enveloppe extérieure des grains, seule à recevoir un débit de dose α externe ; si cette approche est envisageable pour les gros grains (200 μm), pour les grains plus petits Brennan *et al.* (1991) ont proposé des coefficients d'atténuation en fonction de la taille des grains. Plus récemment Brennan (2006) a étudié la distribution des débits de dose α dans différents types d'environnements, en prenant des grains radioactifs - tels que des zircons - et a montré que pour les environnements simulés à l'aide d'un code écrit en MATLAB, l'utilisation des facteurs d'atténuation proposés par Brennan *et al.* (1991) ainsi que les facteurs de correction dus à l'humidité proposés par Aitken (1985a) avaient tendance à surestimer le débit de dose α reçu par les grains de quartz. Il est également mentionné que la présence de points chauds - à savoir des inclusions radioactives - implique des distributions de débits de dose asymétriques, avec des queues de distributions marquées vers les débits de dose élevés. Notons que l'article de Brennan (2006) constitue à ce jour la seule étude sur les débits de dose α en dehors de l'hypothèse de matrice infinie.

- L'effet de l'humidité sur les débits de dose

La détermination des teneurs en radioéléments d'un échantillon de sédiment se fait généralement sur des échantillons préalablement séchés. Or, dans la nature, les sédiments sont généralement humides - à de très rares exceptions près : même lorsque l'on se trouve en climat désertique, à quelques dizaines de centimètres de profondeur les sédiments sont humides. L'effet de l'eau sur les débits de dose est double : tout d'abord l'eau dilue les radioéléments, dans le sens où leur teneur massique diminue ; ensuite le pouvoir d'arrêt des électrons, mais aussi des particules α , ainsi que les sections efficaces d'interaction des photons sont plus élevées pour l'eau que pour le quartz. Il s'ensuit que « l'eau absorbe plus que sa part » de dose (« *water absorbs more than its fair share* » : Aitken, 1985a). Afin d'évaluer cet effet Zimmermann (1971) a comparé les pouvoirs d'arrêt et les sections efficaces d'interaction de l'eau et du quartz et a formalisé ce phénomène à l'aide de l'équation suivante :

$$D_h = \frac{D_s}{1 + xWF}$$

où D_h est le débit de dose reçu par le quartz en milieu humide, D_s ce même débit en milieu sec, W est la teneur en eau du milieu à saturation, exprimée comme le rapport de la masse d'eau à saturation sur la masse de sédiment sec, F est la teneur en eau, exprimée comme la fraction de saturation du sédiment, et x est le rapport des pouvoirs d'arrêt massiques ou des sections efficaces d'interaction. Aitken et Xie (1990) ont repris cette équation avec des spectres de photons dégradés et des données spectrométriques actualisées. Il est également intéressant de noter que cette étude inclue une discussion sur les effets de géométrie potentiels, à l'échelle de la taille des grains, qui constitue ainsi un exemple de raisonnement hors de l'hypothèse de matrice infinie. Cette discussion est purement qualitative, faute d'outils de simulations des interactions particules-matières à cette époque. Plus récemment Nathan et Mauz (2008) ont enrichi ces travaux à l'aide du logiciel de simulation des interactions particules-matières MCNP (Briesmeister, 2000 ; Briesmeister *et al.*, 2003). Dans cette étude le logiciel MCNP est utilisé pour générer les spectres dégradés de photons émis par le potassium, les séries de l'uranium et du thorium, dans un milieu donné, sec et sans calcaire, puis de les comparer aux mêmes spectres dans le même milieu auquel on a rajouté de l'eau du calcaire, en proportions variables. La conversion de ces spectres en dose, réalisée par MCNP, fournit alors une valeur de x pour chaque cas traité. Notons qu'ici encore, nous sommes dans l'hypothèse de matrice infinie, puisque aucun facteur géométrique n'est pris en compte.

- Les déséquilibres des chaînes radioactives

En milieu fermé, les chaînes radioactives de l'uranium et du thorium sont à l'équilibre, c'est-à-dire que si on considère un nucléide d'une de ces chaînes, ses désintégrations sont compensées par les désintégrations de son parent direct. En milieu ouvert en revanche, plusieurs phénomènes peuvent venir remettre en cause cet équilibre (Aitken, 1985a ; Readhead, 1987 ; Krbetschek *et al.*, 1994 ; Olley *et al.*, 1996). De manière générale la chaîne radioactive du thorium est équilibrée : la durée de vie des descendants du ^{232}Th étant de quelques années au plus, si un déséquilibre survient il a de fortes chances de disparaître rapidement, du moins à l'échelle des temps géologiques. En revanche pour les séries de l'uranium la situation est plus compliquée puisque la durée de vie de nucléides tel que ^{234}U , ^{230}Th et ^{226}Ra est suffisamment longue (de quelques milliers à quelques centaines de milliers d'années) pour qu'un déséquilibre puisse perdurer. De tels équilibres peuvent intervenir du fait de réactions de précipitation ou de dissolution, qui ne vont pas mobiliser

de la même manière les différents éléments de la chaîne de l'²³⁸U ; il peut aussi s'agir de diffusion des isotopes du Radon, qui est à l'état gazeux dans des conditions de pression et de température atmosphériques. Les implications sur les débits de dose sont alors variables : en effet si la concentration en radioéléments de la fin de chaîne de l'²³⁸U est constante au cours du temps, les effets sont relativement faibles puisque environ 60 % du débit de dose β et plus de 95 % du débit de dose γ sont dus aux éléments de la fin de chaîne ; en revanche dans le cas contraire les conséquences peuvent être importantes.

Un certain nombre d'études de cas existent dans la littérature : on pourra ainsi mentionner, entre autres, les travaux de Prescott et Hutton (1995), Olley *et al.* (1997). Un cas qui nous intéresse ici tout particulièrement est l'étude du Roc de Marsal (Guibert *et al.*, 2009a). Une analyse combinant spectrométrie α et spectrométrie γ à haute résolution a permis d'élaborer des hypothèses concernant le déséquilibre de la série de l'²³⁸U : de manière générale les études sur les déséquilibres des chaînes radioactives ont pour objectif de déterminer l'origine du déséquilibre puis d'estimer les variations des concentrations en radioéléments au cours du temps, afin de déterminer des débits de dose reçus par les objets datés aussi précis que possible.

- Les mesures de spectrométrie γ *in situ*

La portée d'interactions des rayons γ est de l'ordre de plusieurs dizaines de centimètres dans les milieux sédimentaires. Par conséquent, des hétérogénéités de composition chimique et de teneurs en radioéléments peuvent être la source de problèmes de dosimétrie γ . En particulier, la spectrométrie γ à haute résolution, de laboratoire, qui permet de traiter certains cas de déséquilibres des chaînes radioactives, n'est pas toujours adaptée à la détermination de débits de dose γ . Pour s'en convaincre, il suffit de considérer que les mesures effectuées en laboratoire caractérisent quelques cm³ de matière, alors que le volume à l'intérieur duquel sont émis les rayons γ absorbés par les grains de sédiments utilisés comme dosimètres lors d'une datation est de l'ordre du m³. Par conséquent, déterminer un débit de dose γ à partir de l'hypothèse de matrice infinie en travaillant sur un échantillon de quelques dizaines de grammes revient à considérer que ces quelques dizaines de grammes sont représentatives des quelques tonnes de sédiments environnant, du point de vue radiologique.

Afin de pallier ce problème, il est possible d'utiliser un spectromètre γ de terrain. L'interprétation des spectres peut être réalisée de différentes manières : le nombre de coups enregistrés dans certaines fenêtres de détection permet de déterminer, de manière analogue au cas de la spectrométrie γ à haute résolution, la teneur en potassium, uranium et thorium

(Aitken, 1985a). Cette technique ne met à profit qu'une faible partie des spectres enregistrés par le spectromètre portable, ce qui limite la précision des mesures ; plus grave, la fenêtre utile pour déterminer la teneur en potassium est polluée par des contributions provenant des chaînes de l'uranium et du thorium, et celle utile pour l'uranium est elle-même polluée par des contributions de la chaîne du thorium.

Une alternative, proposée par Løvborg et Kirkegaard (1974) puis Murray *et al.* (1978), Murray (1982), consiste à faire la somme des coups enregistrés au-delà d'un certain canal, appelé seuil. La technique du seuil repose alors sur une relation de proportionnalité entre le nombre de coups enregistrés par unité de temps au-delà du seuil et le débit de dose γ dans le milieu de mesure. Plus récemment Mercier et Falguères (2007) ont réévalué cette technique, qui semble présenter l'avantage d'un gain simultané en précision et en temps de mesure. Cependant ces travaux sont incomplets : les mesures n'ont été réalisées que sur les trois blocs enrichis respectivement en potassium, uranium et thorium du Laboratoire de Recherche en Archéologie et Histoire de l'Art (RLAHA) de l'université d'Oxford, utilisés à des fins de calibration depuis les années 1970 (Bowman, 1976 ; Rhodes et Schwenninger, 2007). Les effets d'un changement d'environnement sur cette technique du seuil n'ont jusqu'à présent pas encore été étudiés.

Notons que l'acquisition de ces spectres nécessite de creuser des trous (profondeur : 20 cm, diamètre : 3.8 cm) dans les coupes stratigraphiques, ce qui peut être gênant lorsqu'on travaille sur des gisements très riches en matériel anthropique.

- Les études sur mono-grains : observations et modélisation des distributions de débits de doses

Comme nous l'avons vu précédemment, un des thèmes de recherche les plus développés à l'heure actuelle concerne les analyses par luminescence sur grains uniques. Un certain nombre de problèmes liés à l'interprétation des distributions de doses équivalentes ont déjà été soulevés (cf. *supra*). Plusieurs modèles statistiques ont été proposés : on pourra ainsi se référer à Galbraith *et al.* (1999) pour la définition du modèle d'âge central (CAM pour *Central Age Model* en anglais) et du modèle d'âge minimum (MAM), ou encore à Roberts *et al.* (2000) pour la définition du modèle de mélanges finis (FMM pour *Finite Mixture Model* en anglais). Tous ces modèles sont fondés *a priori* sur des distributions log-normales, puisque c'est la distribution qui a été observée sur les échantillons utilisés pour définir le modèle. Cependant, la forme log-normale des distributions des doses équivalentes sur grains uniques n'a pas encore été démontrée. En ce qui concerne le modèle de mélanges, qui a pour but de permettre la distinction de plusieurs composantes de doses équivalentes,

cet *a priori* sur la distribution semble infondé puisque Roberts *et al.* (2000) ont travaillé sur des échantillons irradiés artificiellement : tous les grains ont reçu la même dose et le théorème central limite nous permet d'affirmer que la distribution de doses équivalentes attendue est normale, au sens statistique du terme. Qui plus est, le nombre de grains pris en compte dans l'étude de Roberts *et al.* (2000) pour définir les modèles statistiques varie entre 60 et 103 grains - parmi lesquels différentes populations sont présentes : parler alors de distributions log-normales lorsqu'on travaille sur moins de 30 grains, pour certaines composantes, pose question. Le modèle FMM est d'autant plus délicat dans son application qu'il suppose une connaissance *a priori* des écarts-types des populations étudiées. En conséquence, lorsqu'on travaille sur des échantillons naturels, l'application de ce modèle nécessite que soient spécifiés le nombre de populations attendues, ainsi que les écart-types caractéristiques de chaque population. Il nous semble donc que ce modèle laisse la possibilité d'introduire des biais dans l'interprétation.

Plus généralement, ces modèles définissent une extra-dispersion (*over-dispersion* en anglais) : il s'agit d'un paramètre statistique quantifiant la fraction de grains dont la dose équivalente, en prenant en compte l'incertitude associée, n'est pas compatible avec la distribution attendue compte tenu des incertitudes associées aux appareils de mesure. Comment expliquer alors qu'en travaillant sur des grains irradiés en laboratoire, dans des conditions contrôlées, on trouve toujours une extra-dispersion de 7 % (Jacobs *et al.*, 2006) ? Les distributions étudiées ont pourtant été « nettoyées », c'est-à-dire que les grains ne satisfaisant pas tous les critères d'applicabilité du protocole SAR, définis dans cet article, ont été rejetés. Il semble donc que nombre de facteurs de dispersion ne soient pas encore identifiés, malgré une étude très approfondie de Thomsen *et al.* (2005).

Jacobs *et al.* (2008b) ont à nouveau tenté d'expliquer certaines caractéristiques de distributions de doses équivalentes obtenues sur grains uniques. Cependant cette étude statistique pose plusieurs questions : tout d'abord en ce qui concerne les analyses sur aliquotes uniques, la question du nombre de grains est posée et deux tailles de disques sont proposées, un facteur égal à 2.5 existant entre les diamètres des deux tailles d'aliquotes étudiées. Or le nombre de grains varie d'après les auteurs d'un facteur 2, alors que le rapport attendu est 2.5^2 , soit 6.25. Cette question est pourtant cruciale : quelle que soit la distribution des doses équivalentes des grains individuels, le théorème central limite implique que pour un grand nombre de grains mesurés simultanément, la distribution doit être normale. Or le modèle appliqué est le CAM, qui suppose une distribution log-normale. Bien que fondamentale, la question de la proportion de grains contribuant, pour chaque aliquote, au signal de luminescence est éludée ; enfin des paramètres de dispersion sont

calculés sur 21 et 23 aliquotes, ce qui semble être un peu faible pour être statistiquement pleinement satisfaisant. En ce qui concerne l'étude portant sur les distributions de doses équivalentes sur grains uniques proprement dite, cette étude déduit des résultats des modèles statistiques tels que le FMM les caractéristiques des distributions des débits de dose reçus par les grains uniques. Cependant, le nombre de paramètres impliqués (concentration en radioéléments dans les sédiments, distribution spatiale de ces radioéléments, probable mélange de différentes populations de grains) rend cette interprétation très dépendante de la cohérence interne des résultats. En d'autres termes, seul un terme de l'équation d'âges est déterminé (la paléodose) et le terme de débit de dose est déduit des analyses statistiques, mais aucun argument quantitatif sur ce deuxième terme n'est présenté – ce qui pose question quant à la validité des âges présentés.

Un autre traitement statistique a été proposé par Thomsen *et al.* (2007), sur des échantillons de sédiments mal blanchis - c'est-à-dire insuffisamment, ou plus précisément partiellement exposés à la lumière de jour. La connaissance rigoureuse du contexte des échantillons, ainsi qu'une série de mesures visant à quantifier les paramètres de dispersion des distributions ont permis aux auteurs de cette étude de proposer une nouvelle approche fondée sur la sélection de grains par estimation de l'extra-dispersion attendue. Malheureusement, le traitement préconisé est très lourd, ce qui explique sans doute l'application relativement limitée de ce traitement statistique des données sur grains uniques.

Si cette étude traite du problème des échantillons mal blanchis, très peu de travaux ont concerné le premier facteur de dispersion des doses équivalentes, qui est le dénominateur de l'équation d'âge : les débits de dose. De nombreux auteurs mentionnent cette question (cf. Murray et Roberts, 1997 ; Olley *et al.*, 1999 ; Jacobs *et al.*, 2008b), malheureusement elle est souvent traitée qualitativement ; les raisons d'un tel traitement seront discutées plus loin, mais il faut ici mentionner certaines études sur les distributions de débits de dose. Nathan *et al.* (2003) ont démontré expérimentalement et à l'aide de simulations numériques, que la présence de points chauds, mais aussi de larges inclusions non radioactives, a pour conséquence des distributions de débits de dose asymétriques. Kalchgruber *et al.* (2003) ont également travaillé sur cette question à l'aide de grains d'alumine placés en contexte sédimentaire ; les résultats expérimentaux, bien que limités par le nombre de grains utilisés (26), montrent une distribution asymétrique des débits de dose dans le milieu considéré. Brennan (2006) explique que la localisation des radioéléments dans des grains (par exemple des zircons, monazites, etc.) considérés comme des points chauds implique une distribution asymétrique des débits de dose α . Enfin, Mayya *et al.*

(2006) ont montré que les feldspaths potassiques, qui sont des sources quasi-ponctuelles de radioactivité, impliquent des distributions asymétriques de débits de dose. Ces auteurs proposent même une relation numérique entre la concentration en potassium - dans l'hypothèse où tout le potassium est localisé dans des grains de feldspaths de diamètre 200 μm - et la dispersion attendue des débits de dose reçus par une population de grains de quartz de même diamètre.

Cependant, ces quelques études, si elles ont le mérite de s'attaquer à des questions d'autant plus intéressantes qu'à terme, les analyses sur grains uniques devraient permettre d'améliorer la précision des datations par luminescence, n'ont à l'heure actuelle pas ou peu été appliquées à l'étude de sédiments réellement datés.

b. Les raisons d'un relatif désintérêt

A la lecture de cet état des lieux des recherches sur les débits de dose dans le domaine de la datation par luminescence, un constat s'impose : la littérature consacrée à ce sujet est assez limitée. On peut légitimement se demander pourquoi une telle évolution - à savoir un intérêt croissant pour la détermination des doses équivalentes au détriment de recherches sur les débits de dose - s'est opérée ; nous allons à présent tenter de formuler quelques hypothèses.

Tout d'abord, une interprétation d'ordre historiographique peut être proposée : les débuts de la luminescence ont évidemment consisté à déterminer, puis caractériser l'évolution d'une grandeur physique dans le temps - la dose enregistrée dans un dosimètre naturel - qui forme l'essence même de toute méthode de datation. Cela correspond grossièrement aux années 1950-1960. Puis les membres de la communauté scientifique se sont penchés sérieusement sur la question des débits de dose, qui a connu d'importants développements dans les années 1970. Pour schématiser, on peut considérer qu'en 1985 les déterminations de doses équivalentes d'une part, des débits de dose d'autre part, avaient atteint des niveaux de précision comparables. Puis les années 1985-2000 ont été le théâtre du développement de l'OSL, qui a largement bouleversé le monde de la luminescence : non seulement d'importants développements méthodologiques ont été rendus nécessaires, mais en plus les méthodes de datation par luminescence ont commencé à être largement appliquées à des recherches purement géologiques. Aujourd'hui, il s'agit probablement du champ d'application le plus important de ces méthodes. Depuis les années 2000, les principales avancées concernent les protocoles de mesure de doses équivalentes sur aliquotes uniques, le développement d'analyses sur grains uniques et l'exploration de signaux de luminescence en vue de repousser les limites chronologiques. Compte tenu des

enjeux méthodologiques - développer le champ d'applications, améliorer la précision et augmenter la portée des méthodes de datation par luminescence - les recherches sur les débits de dose ont, depuis 1985 (nous prenons ici l'ouvrage (Aitken,1985) comme référence), été quelque peu délaissées.

Une deuxième piste de réflexion peut alors être avancée, qui ne contredit en rien ce constat d'ordre historiographique : les mesures de doses équivalentes se font en laboratoire, et pourvu qu'on ait du sédiment - ce qui n'est pas très contraignant - celles-ci peuvent être déclinées presque à l'infini. Chaque année ou presque, de nouveaux protocoles visant à étudier de nouveaux signaux de luminescence sont proposés, qu'il s'agisse du TT-OSL, de l'IRSL, de l'ITL ou du post-blue VSL, cette liste n'étant pas exhaustive - loin s'en faut. A l'inverse, les travaux effectués en dosimétrie sont très rarement de nature expérimentale. Ceci s'explique aisément lorsqu'on sait que de très nombreux paramètres influent sur les débits de dose : il s'agit des concentrations en radioéléments et de leur répartition à l'échelle micromorphologique, de la composition chimique des sédiments, de leur teneur en eau, de la taille des dosimètres, de la circulation d'eau qui peut entraîner des radioéléments solubles, d'émanations de radon qui peuvent briser les équilibres séculaires de la chaîne radioactive de ^{238}U ... Plus gênant encore : on travaille aujourd'hui très bien sur des matériaux d'histoire aussi récente, du point de vue de la luminescence, que des briques médiévales mais le signal de luminescence de sédiments modernes est tellement faible qu'il est difficilement mesurable. Les mesures de signaux induits par la radioactivité naturelle nécessiteraient donc des expériences s'étalant sur des dizaines voire des centaines d'années.

c. L'apport des simulations des interactions particules-matière

Aujourd'hui, le développement de logiciels de simulations des interactions rayonnement-matière, fondés sur des algorithmes de type Monte Carlo, modifie profondément ce constat : s'il est toujours compliqué de réaliser des expériences sur les débits de dose, il est désormais possible d'en simuler. Sans dresser une liste exhaustive des possibilités, des logiciels tels que MCNP (Briesmeister, 2000 ; X-5 Monte Carlo Team, 2003), PENELOPE (Sempau *et al.*, 2003 ; Salvat *et al.*, 2006), EGSnrc (Kawrakow et Rogers, 2003) ou encore GEANT4 (Agostinelli *et al.*, 2003 ; Allison *et al.*, 2006) sont aujourd'hui disponibles. Développés dans le domaine de la physique des particules ou nucléaire - la série des logiciels GEANT est développée par les chercheurs du CERN - ces logiciels sont depuis quelques temps détournés de leur finalité première pour résoudre des problèmes dosimétriques variés, notamment dans le champ de la physique appliquée à la médecine. Un

exemple frappant est celui des méthodes de radiothérapie, qui se sont largement développées grâce à ce type de logiciels.

En ce qui nous concerne, ces logiciels permettent de simuler les interactions des rayonnements ionisants dans des milieux sédimentaires de compositions données. En d'autres termes, GEANT4 permet de combler l'absence de possibilité de réaliser des études expérimentales de dosimétrie en milieux naturels. Les applications sont multiples : qu'il s'agisse de simuler le placement d'un détecteur - par exemple, de dosimètres artificiels ou d'une cellule spectrométrique - dans différents milieux sédimentaires, d'étudier l'effet de l'humidité des sédiments sur les débits de dose perçus par une population de grains de quartz ou encore d'évaluer le débit de dose perçu par l'enveloppe externe d'un silex ayant été soumise à des irradiations β provenant des sédiments environnants, GEANT4 peut - dans une certaine mesure - se substituer à des expériences difficilement réalisables. Un des avantages majeurs est la possibilité de travailler sur les effets géométriques de la détection des rayonnements, ce qui était jusqu'alors impossible.

Jusqu'à présent, un certain nombre de travaux ont mis à profit ces logiciels de simulation des interactions particules-matière. Ainsi, Aznar *et al.* (2003) ont étudié les effets d'une enveloppe métallique placée autour de pastilles d'alumine utilisées comme dosimètres ; l'objectif de cette étude a consisté à étudier l'atténuation des rayonnements β et γ par cette enveloppe, à l'aide du code MCNP. Une étude similaire, publiée par Bos *et al.* (2006), présente les résultats de simulations effectuées à l'aide du code MCNP sur des mesures de dosimétrie réalisées avec une solution de Fricke (solution aqueuse d'ions ferreux), à des fins de calibration d'une source radioactive. R. Nathan est probablement l'auteur le plus prolifique dans ce domaine : une étude couplant des expériences et des simulations numériques sur les hétérogénéités de débits de dose en milieu artificiel a ainsi été réalisée (Nathan *et al.*, 2003). Nathan et Grün (2003) ont modélisé le débit de dose reçu par une dent, datée par RPE, en évaluant l'influence de la mandibule ainsi que de la calotte crânienne associées, tant au niveau de l'émission de particules dans ces objets que de l'effet d'écran exercé. Les effets de la carbonatation et de l'humidité d'une dune ont également été simulés à l'aide de l'outil MCNP (Nathan et Mauz, 2008). Notons que ces deux derniers cas correspondent à des applications du code MCNP à des cas concrets : ces travaux sont très intéressants pour les cas simulés, mais leur portée en est malheureusement restreinte. Greilich *et al.* (2008), puis Chen *et al.* (2009) ont utilisé le code DOSRZnrc (ainsi que FLURZnrc dans le premier cas) de la distribution EGSnrc - et GEANT4 dans le premier cas - afin d'étudier les irradiations artificielles, à l'aide de sources β , d'échantillons de quartz. L'influence de l'épaisseur de l'échantillon, de la profondeur dans l'échantillon ainsi que le

choix du matériau constitutif du disque sur lequel sont déposés les grains irradiés, ont été ainsi discutés. Veronese *et al.* (2007) ont eux utilisés MCNP afin d'étudier les profils de dose délivrée sur les échantillons irradiés artificiellement au cours des expériences de datation par luminescence, depuis le centre du disque support jusqu'à ses bords. Enfin, mentionnons les travaux de Morthekei *et al.* (2007) ainsi que ceux de Banerjee et Dewangan (2008), à l'aide de l'outil GEANT4, sur les variations de débit de dose cosmique en fonction de la profondeur d'enfouissement des sédiments martiens. Dans ce cas plus que dans tout autre, les simulations numériques sont très précieuses puisque l'acquisition de données expérimentales est très délicate.

Mentionnons également une série de travaux dans lesquels une application ponctuelle des logiciels de simulation des interactions particules-matière est réalisée : dans le domaine de la contamination radioactive suite à des accidents nucléaires - en particulier l'accident de Tchernobyl - MCNP a été appliqué à des problématiques de pénétration des rayonnements γ dans des murs en briques, potentiellement utilisés comme dosimètres. On pourra ainsi se référer aux travaux de Bøtter-Jensen *et al.* (1995 ; 2000), prolongés par Thomsen *et al.* (2003), ainsi que ceux de Bailiff et Slim (2008). Enfin, Pilleyre *et al.* (2006) ont utilisé GEANT4 pour l'étude de l'efficacité de détection des rayons γ émis par le ^{210}Pb à l'aide d'un spectromètre à haute résolution en Germanium.

d. Les objectifs de ce travail

La problématique de ce travail consiste à simuler, puis modéliser certains effets dosimétriques dans les sédiments quaternaires en utilisant un logiciel de simulations Monte Carlo des interactions particules-matière. Le logiciel utilisé dans ce cadre, GEANT4, a été choisi pour plusieurs raisons : tout d'abord il s'agit d'un logiciel libre, c'est-à-dire dont le code source peut être modifié suivant les besoins spécifiques de chaque utilisateur ; plus qu'un logiciel, il s'agit d'un ensemble de codes et de bibliothèques permettant de simuler les interactions entre différents types de particules - celles mises en jeu dans le cadre de la radioactivité naturelle n'étant qu'une mince fraction des possibles - à l'intérieur de volumes spécifiés par l'utilisateur, ou plus précisément par le développeur. Il est possible d'étudier un grand nombre de grandeurs physiques : outre la localisation des particules et interactions, leur énergie ainsi que les spectres déposés dans les détecteurs spécifiés, il est également possible de suivre les particules pas à pas tout au long de leur parcours. Le langage de programmation étant le C++, son utilisation est relativement aisée. Enfin, son utilisation très répandue en physique des particules permet d'obtenir facilement de l'aide sur la programmation.

Etant donné l'importance du domaine de recherche concerné, à savoir le dénominateur de l'équation d'âge, des choix ont dû être effectués. Ainsi, adossée à cette partie méthodologique, l'étude chronologique d'un site préhistorique a été intégrée à ce travail. Le choix de ce site d'étude répond à plusieurs critères qui l'ont rendu intimement connecté à la recherche sur les débits de dose : d'un point de vue physique, la dosimétrie du Roc de Marsal (Dordogne) est très complexe ; en effet il s'agit d'une grotte creusée en milieu karstique, c'est-à-dire que le substratum est de nature calcaire, par essence très pauvre en radioéléments. Une grande partie des vestiges anthropiques d'intérêt étant localisée dans les premiers centimètres de sédiments recouvrant le substrat calcaire, il en résulte de fortes hétérogénéités de débit de dose à l'interface entre le calcaire et les sédiments. Nous verrons que ce sont ces hétérogénéités, difficiles à quantifier et pourtant lourdes de conséquences sur les résultats de datation, qui ont justifié les recherches méthodologiques présentées dans les chapitre 4, 5 et 6.

Par ailleurs, une partie des travaux effectués à l'aide de GEANT4 a porté sur l'étude approfondie de cas où le raisonnement dans l'hypothèse de matrice infinie n'est pas justifié. Ces travaux (chapitres 7 et 8) ne sont pas directement inspirés des travaux de datation du Roc de Marsal, et malheureusement il est encore compliqué d'appliquer les résultats à cette étude chronologique. L'idée est ici de développer une approche dosimétrique où l'aspect géométrique des sources radioactives et des dosimètres naturels est pris en compte.

D'un point de vue chronologique, la période d'occupation du site du Roc de Marsal, attribué au Paléolithique moyen par son industrie lithique et les ossements humains, correspond à un domaine temporel qui n'est pas couvert par le radiocarbone - ce qui en fait un site particulièrement adapté aux méthodes de la luminescence. En effet, seule la résonance paramagnétique électronique permet également de traiter de la chronologie de ce site, et cette méthode est au moins aussi dépendante des problèmes de dosimétrie mentionnés que la luminescence. En outre, en ce qui concerne la détermination des doses équivalentes, on se trouve dans une région des courbes de croissance du signal de luminescence en fonction de la dose très bien connue ; cela a permis de se focaliser pleinement sur les problèmes de dosimétrie sans consacrer trop de temps aux éventuels problèmes méthodologiques rencontrés, par exemple, pour des périodes plus anciennes.

Enfin, l'étude chronologique du Roc de Marsal (chapitre 9) présente un certain nombre d'enjeux de natures différentes : en premier lieu, il s'agit d'un des rares sites ayant livré un squelette presque complet d'un enfant néandertalien. Si le débat sur l'interprétation de ce squelette en tant que sépulture n'est pas clos (Sandgathe *et al.*, 2011), la comparaison de ce fait archéologique avec d'autres découvertes de squelettes néandertaliens,

potentiellement de la même période, dans la région présente un intérêt certain. Le Roc de Marsal est également un site de référence pour le techno-complexe moustérien de type Quina, dont la chronologie est encore mal connue. L'interprétation des résultats de datation en regard des données paléo environnementales, qui sont à la fois riches à l'échelle du site, plus pauvres en ce qui concerne le climat de la région et surtout son évolution au cours du temps, est également particulièrement importante. Plus que la datation d'un site préhistorique - aussi important qu'il soit - cette étude s'inscrit dans un travail de recherche sur les évolutions climatiques du passé, et notamment sur les cycles glaciaires. L'adaptation de l'homme à ses conditions environnementales étant aujourd'hui un enjeu de société majeur, nous espérons à travers l'exemple du Roc de Marsal fournir des éléments de réponses en ce qui concerne un ancêtre qui, bien qu'indirect, a précédé l'homme moderne sur le territoire aquitain.

Chapitre 2. L'utilisation de Geant4 pour l'étude des effets dosimétriques en milieux sédimentaires

L'objectif de ce chapitre est d'introduire l'outil de simulations numériques des interactions particules-matière GEANT4, basé sur un algorithme de type Monte Carlo, puis de préciser l'usage qui en a été fait dans le cadre de ce travail. Si la physique subatomique et des particules est à l'origine de GEANT4, ce logiciel a vu ses domaines d'application considérablement étendus. En particulier, ce travail ne constitue pas la première utilisation de GEANT4 dans le cadre de problèmes dosimétriques posés par des études géochronologiques, bien qu'il ne s'agisse que d'applications marginales de cet outil.

En premier lieu, nous nous proposons de définir GEANT4 et de donner ses raisons d'être. Une présentation générale de GEANT4 permettra ensuite d'en comprendre le fonctionnement, avant d'exposer l'utilisation qui en a été faite. Pour cela l'architecture des programmes développés avec GEANT4 sera détaillée, avant de préciser les ressources informatiques utilisées pour mener à bien les travaux présentés dans cette partie.

1. GEANT4 : définition et historique

GEANT4 est une immense bibliothèque de codes écrits en langage de programmation C++ (Agostinelli *et al.*, 2003 ; Allison *et al.*, 2006) permettant aux utilisateurs de simuler des interactions particules-matière. Ce terme d'utilisateur doit être précisé : en ce qui concerne ce travail, le terme de développeur d'outils, ou encore de programmeur d'applications est plus approprié dans la mesure où différents codes ont été écrits afin d'utiliser un certain nombre de fonctions de GEANT4 pour répondre à des problématiques spécifiques à la radioactivité naturelle dans les sédiments.

C'est en effet une des caractéristiques principales de GEANT4 : sa conception et son développement ont été effectués dans le but de rendre son utilisation possible dans un grand nombre de domaines.

GEANT4 a été créé dans les années 1990, alors que les expériences en physique subatomique et des particules prenaient une dimension de plus en plus importante. Ainsi, le Centre Européen d'Etudes Nucléaires (CERN), basé à Genève, a vu se mettre en place un certain nombre d'expériences de grande envergure - parmi lesquelles on ne peut s'empêcher de citer le LEP (*Large Electron Positron collider*) ou le tout récent LHC (*Large Hadron Collider*) et la multitude de détecteurs qui ont enregistré les collisions e-e et p-p. Tant pour la conception que pour l'analyse des résultats, les simulations numériques des interactions des particules avec la matière sont devenues un outil indispensable. En particulier, les simulations détaillées des détecteurs de particules de grande envergure et toujours plus complexes ont joué un rôle très important dans l'élaboration de GEANT4. Le désir de comprendre et de déterminer les interactions et les particules fondamentales de l'univers,

ainsi que leur comportement - en particulier les recherches sur l'asymétrie matière-antimatière - a été à l'origine de la création de cet outil logiciel.

En 1993, deux études menées indépendamment au CERN et au KEK (High Energy Accelerator Research Organization, Japon) ont eu pour objectif de construire un logiciel de simulations afin d'améliorer GEANT3, en le rendant à la fois plus efficace et plus complet. Les deux équipes se sont alors unies, et en 1998, grâce au travail d'une centaine de scientifiques et ingénieurs rattachés à une dizaine de programmes basés en Europe, aux Etats-Unis, en Russie, au Japon et au Canada, la première version de GEANT4 a vu le jour. La collaboration GEANT4 est née en 1999 avec pour but de continuer à développer et améliorer cette boîte à outils.

Aujourd'hui, la communauté de GEANT4 compte plusieurs centaines de physiciens et informaticiens contribuant à son développement et à son extension à des domaines de plus en plus variés. Au-delà de la physique subatomique et des particules, GEANT4 est utilisé en physique des rayonnements, en sciences de l'espace, en radiothérapie, et plus généralement dans n'importe quel domaine où les interactions particules/matière jouent un rôle.

GEANT4 est une boîte à outils de simulation écrite en langage orienté-objet - ce qui lui confère une flexibilité et une modularité certaines - qui peut être utilisée dans de nombreux domaines. Les aspects suivants sont inclus dans cette boîte à outils : la géométrie du système, les matériaux utilisés, les différents types de particules en jeu, la génération de particules primaires, le suivi de ces particules dans les différents éléments de volume, les processus physiques gouvernant leurs interactions, la réponse des détecteurs, la génération d'événements, la visualisation des éléments de volumes et des trajectoires des particules, et enfin l'enregistrement de données à des fins analytiques. Pour le dire en quelques mots : GEANT4 est un laboratoire virtuel de physique des particules. Dans une certaine mesure, il permet de compenser, dans le cadre de cette étude sur les problèmes de dosimétrie en milieu sédimentaire, l'absence de données expérimentales par d'immenses possibilités de définir, concevoir, puis analyser le passage et les interactions de particules dans la matière, tout en permettant d'accéder à quantité d'informations sur les particules - énergie, position, direction etc.

En termes de taille, d'objectifs du code source et du nombre de collaborateurs, GEANT4 est très certainement un des projets les plus larges et les plus ambitieux de ce type : on pourrait citer, entre autre, la série MCNP (Briesmeister, 2000, 2003), développée à Los Alamos (Etats-Unis), ou encore EGSnrc (Kawrakow et Rogers, 2001) et PENELOPE (Sempau *et al.*, 2003 ; Salvat *et al.*, 2006), les deux derniers étant restreints au transport de photons

et d'électrons. GEANT4 est un logiciel gratuit et dont la source est accessible, ce qui permet aux utilisateurs d'adapter au besoin le code source.

Compte tenu de la complexité et de la diversité des domaines mis en jeu, chaque partie du logiciel est gérée par un groupe d'experts. Une telle organisation a été rendue possible par l'utilisation d'un langage de programmation orienté-objet, qui sépare les différents domaines du logiciel en classes. Des instances de ces classes sont ensuite créées par l'utilisateur : on parle alors d'objets, qui ont des propriétés définies par leur classe d'appartenance. Les fonctions permettant de travailler sur ces objets sont également définies en fonction de leur classe, et les relations entre les différentes classes permettent d'échanger des informations suivant les besoins. Concrètement, cela signifie que l'implémentation d'un nouvel objet dans une classe ne nécessite pas de modifier le reste du programme : ainsi par exemple il devient facile de modifier un objet de la classe géométrie sans affecter les processus physiques, et inversement. Chaque groupe d'expert peut donc travailler uniquement sur les objets de la classe - ou plutôt d'un ensemble de classes regroupées en catégories - dont il a la charge, sans se soucier des autres catégories. Un autre groupe a la tâche de tester et documenter le logiciel. La collaboration est articulée autour d'un site internet (<http://www.geant4.org/geant4/>) fournissant une documentation détaillée, un service d'aide, des guides à destination des utilisateurs, des outils de formation ainsi qu'une « foire aux questions » et un forum des utilisateurs. L'objectif de ce dernier est à la fois d'aider les débutants et de rendre compte des éventuels problèmes rencontrés par des utilisateurs expérimentés. Un certain nombre d'exemples est également fourni aux utilisateurs afin d'illustrer les fonctions, basiques mais aussi plus évoluées, proposées par GEANT4.

En définitive, GEANT4 constitue un remarquable exemple de collaboration scientifique, dans la mesure où plusieurs centaines de physiciens ont collaboré, et collaborent toujours, à l'amélioration d'un outil de qualité exceptionnelle. L'accessibilité, gratuite, à l'ensemble des données en est une des caractéristiques particulièrement appréciables.

2. Le fonctionnement de GEANT4

La figure 4 (empruntée à Agostinelli *et al.*, 2003) présente schématiquement l'organisation hiérarchique des différentes catégories. Cette organisation en domaines, ainsi que leurs relations de dépendance quasi-unidirectionnelles, associée à la programmation orientée-objet, illustre la modularité de GEANT4 : il est possible de modifier un de ces domaines sans affecter le reste du programme.

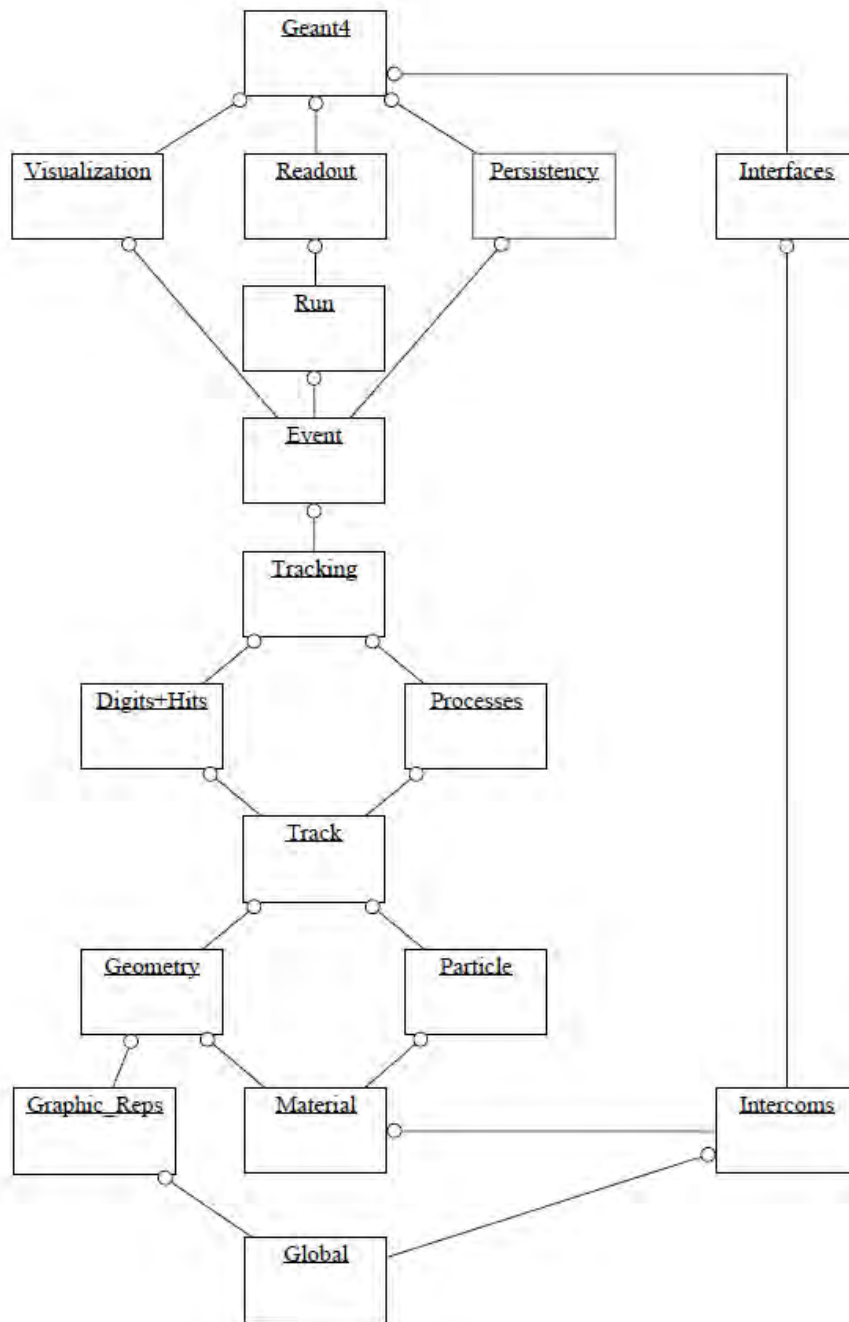


Figure 4. Diagramme hiérarchique de la boîte à outils GEANT4. Lorsque deux catégories sont liées par une droite, le cercle signifie que la catégorie se trouvant à cette extrémité de la droite utilise l'autre. Figure tirée d'Agostinelli *et al.*, (2003).

De manière générale, GEANT4 est constitué des domaines suivants, que nous allons ici décrire brièvement (le lecteur désireux d'approfondir ce sujet pourra se référer avantageusement aux différents guides disponibles en ligne sur le site dédié à GEANT4) :

- la géométrie et les matériaux ;
- les interactions des particules dans la matière ;

- le suivi des particules, primaires et secondaires ;
- la génération d'événements et de traces ;
- la visualisation
- une interface utilisateur.

En bas de la hiérarchie - tout repose sur ce domaine - se trouve la catégorie *socle¹* (*global*), qui couvre les systèmes d'unités, constantes fondamentales, la gestion des nombres aléatoires ; on trouve également à la base les catégories *particules* (*particles*), *matériaux* (*materials*), *représentations graphiques* (*graphical representations*), *géométrie* (*geometry*) ainsi que la catégorie *intercom* (*intercom*) qui permet à la fois à l'utilisateur d'interagir avec GEANT4, et aux différents modules de communiquer entre eux, sans toutefois dépendre les uns des autres.

Au-dessus de ces catégories fondamentales, se situe un ensemble de catégories concernant l'implémentation de la physique dans GEANT4 : la catégorie *suivi* - une proposition imparfaite de traduction de l'anglais *tracking*, qui a l'avantage de signifier également trace - contient des classes pour les traces ainsi que les pas, qui sont les subdivisions les plus petites des traces ; la catégorie *processus* (*process*) traduit les modèles mathématiques utilisés pour décrire les interactions physiques ainsi que le transport des particules sans interactions.

A l'échelle supérieure se trouve la catégorie *événement* (*event*), qui regroupe un certain nombre de traces : dans le cadre de ce travail, un événement regroupe les traces de toutes les particules correspondant à l'émission d'une particule primaire. La catégorie *exécution* (*run*) consiste alors en une somme d'événements : chaque exécution de programme, dans le cadre de ce travail de thèse, représente entre quelques centaines de milliers et plusieurs milliards d'événements simulés.

Enfin, au sommet se trouvent les catégories qui permettent les interactions avec l'utilisateur, à savoir les catégories *visualisation* (*visualization*) et *interface*, ainsi que *persistance* (*persistence*) - cette dernière permettant de garder en mémoire un certain nombre d'informations spécifiées par l'utilisateur.

Afin de bien comprendre le fonctionnement de GEANT4 certains éléments clés de ces catégories vont être brièvement décrits.

¹ Les termes sont ici francisés ; en l'absence de littérature en français dans ce domaine, l'équivalent anglais est précisé entre parenthèses afin d'éviter toute ambiguïté pour le lecteur averti.

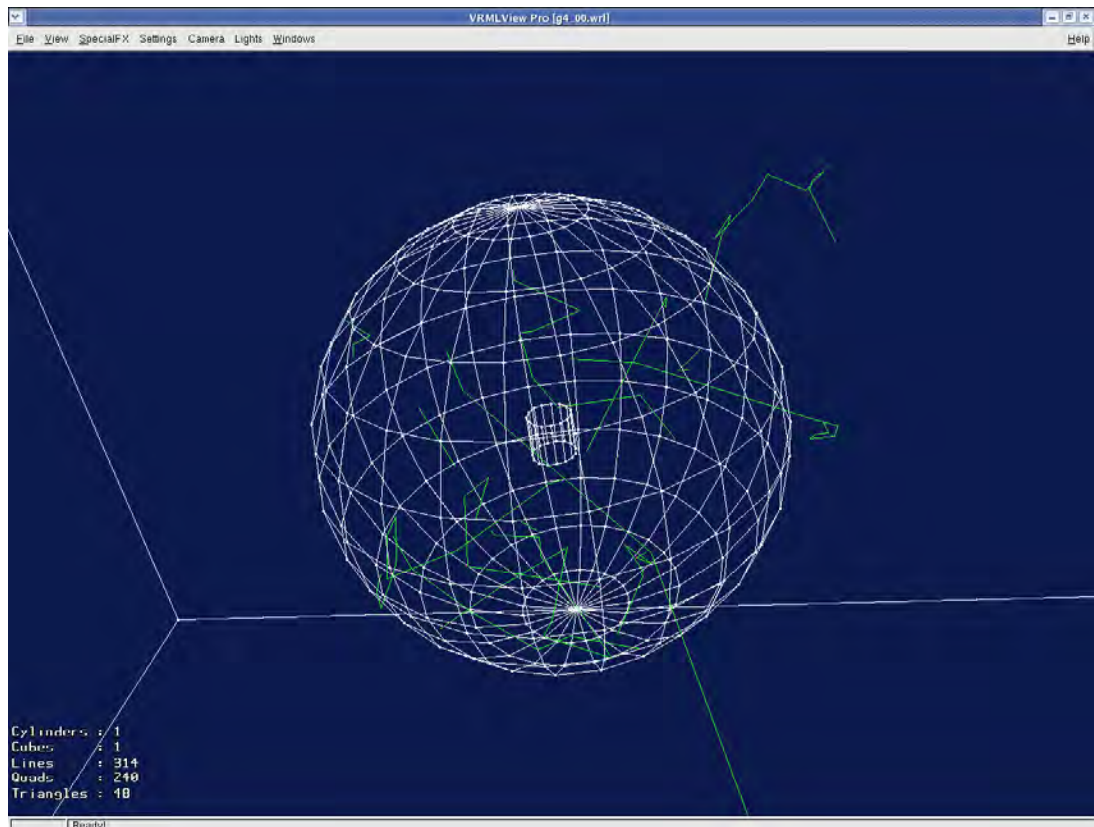


Figure 5. Visualisation de la trajectoire, simulée avec GEANT4 et représentée en vert, de quelques photons émis à l'intérieur d'une sphère au centre de laquelle est placé un détecteur cylindrique. L'image a été acquise à l'aide du logiciel VRMLVIEW.

a. Géométrie

Cette catégorie est généralement la première implémentée dans les programmes développés au cours de ce travail. C'est ici qu'intervient la description des structures géométriques dans lesquelles interagissent les différentes particules. On distingue les volumes solides (*solid*), qui consistent en une forme géométrique, des volumes logiques (*logical volumes*) qui sont une réalisation de ces formes avec une composition chimique et enfin des volumes physiques (*physical volumes*) qui sont des positionnements dans l'espace de ces volumes logiques. Les volumes physiques sont ainsi placés à l'intérieur d'un volume logique dit « mère » (*mother volume*), ce qui aboutit à une structure hiérarchique de volumes rappelant les poupées russes.

b. Particules et matériaux

Les particules simulées sont des photons ou rayons γ , des électrons et des positrons, puisque ces trois particules permettent de simuler les radioactivités β et γ - tant les particules primaires que secondaires - qui constituent généralement aux alentours de 90 % des débits de dose en datation par luminescence.

De manière générale, dans GEANT4 les matériaux sont définis par leur composition en éléments chimiques (exprimée en concentrations massiques ou stœchiométriques), ainsi que leur densité.

c. Suivi des particules et interactions

Le suivi des particules et de leurs interactions dans la matière est ce qui caractérise les différents programmes mentionnés précédemment (MCNP, EGSnrc, PENELOPE...) permettant de simuler les interactions particules-matières. Cette catégorie constitue le cœur de ces programmes et doit répondre à deux besoins : d'une part il est essentiel d'avoir un niveau de précision et de détail élevé, puisque il est fondamental d'avoir des simulations aussi réalistes que possibles ; d'autre part il est non moins essentiel que les simulations soient efficaces, c'est-à-dire qu'elles puissent être effectuées avec des ressources informatiques raisonnables - un ordinateur de bureau classique étant l'unité de simulation - en un temps limité. Notons ici deux points : si l'ordinateur de bureau est l'unité de base pour exécuter des programmes, rien n'empêche d'en utiliser plusieurs ; cette question du temps de simulation est d'autant plus cruciale que l'un des intérêts principaux des simulations est d'étudier l'influence d'un ou plusieurs paramètres sur telle ou telle mesure. Par conséquent, chaque problématique présentée dans cette partie a nécessité l'exécution d'un grand nombre de programmes, les différences entre deux programmes étant parfois limitées à un changement de valeur d'un paramètre : d'où l'importance de cette question du temps de simulation.

Le suivi des particules dans GEANT4, indépendamment du type de particule et des interactions implémentées, se fait pas-à-pas. Considérons une particule, de positions et impulsions quelconques : pour simuler sa trajectoire et ses interactions avec la matière, GEANT4 va la faire évoluer dans le milieu en découpant cette trajectoire en pas, qui sont ainsi les plus petites unités de déplacement dans GEANT4. Les processus physiques, en fonction de leur nature, peuvent alors intervenir soit le long du pas (*along step*) dans le cas des interactions continues - comme par exemple les pertes d'énergie par ionisation pour les électrons - soit après le pas (*post step*), de manière discrète pour, par exemple, la génération d'un électron secondaire par interaction Compton². Les processus continus sont cumulatifs,

² Il existe aussi des processus intervenant au repos, comme les désintégrations radioactives, mais ceux-ci n'ont pas été mis en œuvre dans ce travail. En effet, il a été jugé préférable de simuler la radioactivité des sols par l'émission de particules suivant des spectres établis en amont (Annexe 3). L'intérêt est, outre la mise à jour de données fondamentales pour les méthodes de datation par luminescence, de séparer les radioactivités en fonction de leur type. En plus d'une efficacité de calcul accrue, cela permet de mieux contrôler les simulations.

à l'inverse des processus discrets qui sont exclusifs : un photon peut interagir par effet Compton ou photoélectrique, mais pas les deux à la fois.

d. Processus physiques d'interactions

La simulation des radioactivités β et γ fait intervenir des photons, des électrons et des positrons : ces particules sont soumises aux seules interactions électromagnétiques et nous nous abstenons donc de détailler les interactions hadroniques également implémentées en détail dans GEANT4. Le lecteur averti et désireux d'en savoir plus au sujet du traitement des interactions dans GEANT4 pourra consulter le manuel de physique de GEANT4 (*Physics Reference Manual*, disponible en ligne sur le site internet de GEANT4) : il s'agit ici de donner les grandes lignes de ce traitement.

Les interactions en jeu sont donc la production de paires électrons-positrons, l'effet Compton, l'effet photoélectrique et la diffusion Rayleigh pour les photons ; la bremsstrahlung ou rayonnement de freinage, l'ionisation et la diffusion multiple pour les électrons et positrons, en rajoutant l'annihilation pour ces derniers.

Plusieurs options sont disponibles afin de simuler ces interactions électromagnétiques : les ensembles *standard* (Burkhardt *et al.*, 2004 ; Apostolakis *et al.*, 2008, 2009), *basse énergie (low energy)* : Chauvie *et al.*, 2001, 2004 ; Apostolakis *et al.*, 1999) basé sur les modèles de Livermore (Cullen *et al.*, 1991, 1997 ; Perkins et Cullen, 1994), ou de *PENELOPE* - inspiré du logiciel du même nom (Sempau *et al.*, 2003 ; Salvat *et al.*, 2006) - correspondent à différents jeux de données numériques de sections efficaces et de pertes d'énergies par ionisation ; le choix de l'un ou l'autre de ces ensembles dépend du domaine d'énergie d'intérêt et de la résolution souhaitée. La technologie orientée objet permet de passer d'un ensemble à l'autre sans modifier les autres catégories de chaque programme, ce qui permet une grande flexibilité. Les ensembles *basse énergie* couvrent un domaine énergétique allant de 250 eV à 1 GeV et sont donc bien adaptés pour les basses énergies, alors que l'ensemble *standard* est adapté à la gamme 1 keV - 100 TeV (voir, par exemple, le manuel de physique de GEANT4).

L'objet n'est pas ici de rentrer dans le détail des différents modèles physiques, mais plutôt d'adopter la position du développeur de programmes faisant appel à la boîte à outils qu'est GEANT4 : quel est le jeu de données physiques le plus adapté à telle ou telle problématique ? Un certain nombre de publications (parmi lesquelles, dernièrement, Faddegon *et al.*, 2009 ; Cirrone *et al.*, 2010) sont consacrées à des comparaisons entre des données expérimentales faisant office de référence, et les valeurs proposées par les ensembles de données de GEANT4. Il s'avère que l'ensemble *standard* est effectivement en

général moins adapté aux basses énergies (< 10 keV), ce qui dans le cas de problèmes dosimétriques en milieux sédimentaires peut être préjudiciable lorsqu'on étudie les dépôts d'énergie à l'échelle des grains.

Si la plupart des outils de simulations numériques des interactions particules-matière sont assez similaires en ce qui concerne les photons ou rayons γ , la principale différence entre PENELOPE et l'ensemble *standard* de GEANT4 intervient au niveau du traitement des particules chargées. Il existe différents types d'algorithmes : les algorithmes détaillés simulent toutes les interactions des particules chargées, ce qui présente l'avantage d'une grande précision mais est rédhibitoire en termes de temps de calcul, à de rares exceptions près. A l'inverse, on trouve les algorithmes condensés - par exemple GEANT4 avec le modèle standard, MCNP - dans lesquels les phénomènes de diffusion, qui peuvent donner lieu à des déviations angulaires importantes, sont traités de manière globale, moyenne, à la fin de chaque pas. Entre ces deux extrêmes, dans le cas de PENELOPE mais aussi de GEANT4 lorsqu'on utilise le modèle physique de PENELOPE, on parle de simulations mixtes pour décrire le transport des électrons et positrons. Une différence est faite entre les interactions « dures » et « douces », les premières se différenciant des secondes par une perte d'énergie ou une déviation de la particule chargée supérieure aux valeurs seuil spécifiées³. Ces interactions dures sont traitées individuellement tandis que les interactions douces - en très grand nombre entre deux événements durs - sont simulées de manière cumulative en utilisant des approches de diffusions multiples. Concrètement, à la fin d'un pas, l'énergie et le déplacement latéral sont modifiés comme si une seule interaction avait eu lieu, ce qui permet de ne pas simuler toutes les interactions. En tout état de cause, les algorithmes mixtes présentent de meilleurs résultats que les algorithmes condensés en termes de précision et de robustesse des résultats, au détriment d'un temps de calcul nécessairement plus long.

A l'inverse, l'ensemble *standard* décrivant les interactions physique de GEANT4 simule à chaque pas les effets des interactions douces et dures - parfois aussi appelées discrètes, à savoir les diffusions de Moller ($e^-e^- \rightarrow e^-e^-$) et de Bhabha ($e^+e^- \rightarrow e^+e^-$) ainsi que la production de rayons delta (c'est-à-dire d'électrons secondaires d'énergie suffisamment élevée pour ioniser la matière). De plus, l'ensemble *standard* ne distingue pas

³ Contrairement au logiciel PENELOPE, dans le cadre de l'implémentation des modèles physiques de PENELOPE dans GEANT4, une seule valeur seuil est spécifiée: il s'agit de l'énergie en dessous de laquelle les particules secondaires ne sont pas générées.

les différents effets de couches atomiques - qui deviennent importants pour des énergies inférieures à 1 keV - contrairement aux extensions à basse énergie.

Quel que soit le modèle physique utilisé, l'utilisateur a la possibilité de spécifier deux valeurs seuil afin d'adapter la résolution du suivi des particules aux dimensions des éléments de volume simulés : il s'agit d'une part du seuil de production (*production cut*), et d'autre part de la limitation de la longueur des pas de suivi des particules (*step limit*). Le seuil de production intervient afin de limiter les temps de calcul : il s'agit de considérer que les particules secondaires générées lors d'interactions déposent leur énergie localement, c'est-à-dire que leur suivi par GEANT4 est inutile compte tenu de leur faible portée. Evidemment, il convient d'adapter ce seuil de production à la géométrie simulée : si un parcours de 100 μm est négligeable lors de l'étude de la réponse d'un détecteur de taille centimétrique (chapitres 4, 5 et 6), il ne l'est évidemment plus lorsque l'on considère un assemblage de grains de quartz de diamètre inférieur à 1 mm (chapitres 7 et 8). Le seuil de production est donc fixé selon les dimensions des éléments de volumes étudiés.

La longueur des pas de suivi des particules intervient elle dans la mesure où, lorsqu'un électron ou un positron perd de l'énergie par ionisation continue, les sections efficaces d'interactions dépendent de l'énergie de la particule. Par conséquent, ces sections efficaces ne sont pas les mêmes en début et en fin de pas, c'est-à-dire au moment où les sections efficaces sont extrapolées à partir des valeurs tabulées. Limiter la longueur des pas revient ainsi à affiner le traitement des interactions par ionisation, au détriment du temps de calcul.

e. Traitement probabiliste des interactions, ou pourquoi GEANT4 est un algorithme de type Monte Carlo

Considérons une particule dans un milieu donné. Plusieurs processus peuvent la faire interagir avec la matière et le but de GEANT4 est de simuler, de manière aussi réaliste que possible, ces interactions. La physique de ces interactions étant par nature probabiliste, il est tout naturel, afin d'imiter la nature, de traiter ces interactions avec une approche stochastique. Ainsi dans GEANT4, à chaque processus est associée une section efficace d'interaction, qui représente la probabilité, pour la particule, d'interagir suivant le processus correspondant.

Section efficace microscopique. Considérons une particule en mouvement et un atome. Plus la trajectoire de la particule passe près de l'atome et plus la probabilité d'interaction est forte. Formellement on traduit cela en attribuant au processus une surface « efficace » de l'atome pour cette interaction : on peut dire de manière simpliste que

l'interaction a lieu si la trajectoire de la particule passe par cette surface virtuelle, que l'on appelle section efficace (conventionnellement notée σ). Cette section efficace dépend de l'énergie de la particule, ainsi que des atomes rencontrés sur son chemin et en particulier de leur numéro atomique. Un certain nombre de modèles physiques, dont la description dépasse le cadre de ce travail, permettent de déterminer ces sections efficaces microscopiques, dont l'unité est le cm^2 ou plus commodément le barn (10^{-24}cm^2).

Section efficace macroscopique. Considérons à présent cette même particule évoluant dans un milieu dense. Il est évident que la probabilité d'interaction de la particule est proportionnelle au nombre d'atomes par unité de volume, noté N (exprimé en cm^{-3}). Lorsqu'une particule se déplace dans un milieu dense, elle a donc une probabilité $\Sigma = N \sigma$ (cm^{-1}) d'interagir par cm parcouru.

En définitive, à chaque pas, chaque interaction est caractérisée par une probabilité par unité de longueur. Le libre parcours moyen est alors défini comme l'inverse de cette probabilité et représente, lorsque l'on considère une particule à un endroit donné, dans un milieu donné, la distance moyenne qu'elle va parcourir avant sa prochaine interaction. Mathématiquement, cette longueur moyenne d'interaction λ pour un processus est définie par la relation :

$$\lambda = \left(\sum_i N_i \sigma(E, Z_i) \right)^{-1}$$

N_i représente le nombre d'atomes i par unité de volume, Z_i leur numéro atomique et E est l'énergie de la particule. La somme s'effectue sur tous les éléments chimiques constituant le matériau. La probabilité pour la particule de n'avoir pas interagi au bout d'une distance l s'écrit alors :

$$P(l) = e^{-n_\lambda}$$

où $n_\lambda = \int_0^l dl / \lambda(l)$. Notons que λ varie de manière continue, à mesure que la particule perd de l'énergie, et de manière discontinue lorsqu'elle change de milieu. A chaque pas, il est donc nécessaire de recalculer λ et on échantillonne la loi de probabilité précédente de la manière suivante :

$$n_\lambda = -\ln \eta$$

où η est un nombre aléatoire⁴ tiré au hasard entre 0 et 1. Pour chaque interaction, ce tirage au sort fournit ainsi une longueur de pas au bout de laquelle la particule va interagir, et le

⁴ En réalité, il est strictement impossible de parler de nombres aléatoires en informatique, puisque il s'agit d'une science fondamentalement déterministe. Au sens strict, il s'agit de tirages pseudo-aléatoires, c'est-à-dire de tirages dans une liste de nombres ayant une périodicité - ce qui la rend donc déterministe. On s'approche d'autant plus de

pas le plus court définit l'interaction retenue, ainsi que le point auquel elle se produit. C'est ce qui définit les algorithmes de type Monte Carlo : le traitement des interactions est probabiliste. Notons que le terme Monte Carlo est inspiré des jeux de hasard pratiqués dans la ville du même nom.

Ce traitement stochastique des interactions est particulièrement adapté aux processus discrets ; cependant les pertes d'énergies continues, comme dans le cas de l'ionisation pour les particules chargées, peuvent également limiter la longueur des pas afin de mettre à jour régulièrement les valeurs des paramètres physiques variant en fonction de l'énergie des particules. Dans le cas des diffusions multiples, GEANT4 effectue une correction de la longueur moyenne du pas prenant en compte le fait que la trajectoire des particules chargées n'est plus linéaire, et calcule le déplacement latéral de la particule. Afin d'améliorer la finesse et la précision des simulations, l'utilisateur peut également fixer, comme cela a déjà été précisé, une longueur maximale de pas pour le suivi des particules. Enfin, la catégorie transport interdit le passage d'un volume à un autre au cours d'un même pas.

Chaque processus - discret, continu ou virtuel, c'est-à-dire fixé par l'utilisateur ou la classe géométrie - propose donc une longueur d'interaction : c'est la plus petite qui est retenue et son action « post pas » (*post step action*) est appliquée. Selon les cas, la particule peut être tuée (*killed*) et les particules secondaires sont générées pour un suivi individuel ultérieur, ou alors les paramètres d'énergie, vitesse, position sont mis à jour et l'algorithme est répété en tenant compte des variations de λ , qui est diminué en fonction de la longueur du pas effectué.

f. Événements

L'exécution d'un programme avec la boîte à outils GEANT4 consiste en une succession d'événements simulés : un événement est l'unité principale des simulations. Chaque événement débute par l'émission d'une particule primaire avec une position, une énergie et une direction données et se termine une fois que toutes les particules secondaires ont été absorbées dans la géométrie, ou alors sont sorties du volume « monde » - i.e. le volume englobant tous les éléments géométriques simulés. L'utilisateur peut recourir à un Module appelé *General Particle Source* permettant de simuler une source avec une énergie, des distributions spatiales angulaires spécifiées. Cependant, il est également possible de coder l'émission des particules directement dans GEANT4 avec tous les degrés de liberté

l'aléatoire que la période est grande ; en pratique dans GEANT4 on dispose de plusieurs générateurs de nombres pseudo-aléatoires performants puisque c'est le cœur de cette boîte à outils.

imaginables ; c'est cette seconde approche qui a été retenue. Les informations concernant chaque événement ne sont pas conservées une fois l'événement terminé, il appartient donc à l'utilisateur de définir les informations qui doivent être gardées en mémoire - par exemple les spectres de dépôt d'énergie dans un détecteur.

g. Les tâches spécifiques à l'utilisateur (*UserActions*)

GEANT4 présente huit classes destinées à l'utilisateur afin de permettre l'utilisation de ce logiciel dans un vaste ensemble de domaines. L'implémentation de trois de ces classes est obligatoire pour toute simulation, tandis que les cinq autres sont optionnelles - elles sont implémentées en fonction des besoins de l'utilisateur. Les trois classes obligatoires sont : la classe *G4VUserDetectorConstruction* pour la définition des matériaux et de la structure géométrique des éléments de volumes ; la classe *G4VUserPhysicsList* pour définir les particules, leurs processus d'interaction et les différentes valeurs seuil intervenant dans le suivi des particules ; enfin la classe *G4VUserPrimaryGeneratorAction* pour la génération des particules primaires. Aucun comportement par défaut n'est défini pour ces classes dans GEANT4, l'utilisateur doit les implémenter. En revanche, un certain nombre d'exemples sont fournis avec GEANT4, ce qui permet de comprendre l'implémentation de ces différentes classes lors de la prise en main du logiciel.

En plus de ces trois classes obligatoires, les suivantes sont disponibles : *G4UserRunAction* permet de définir des actions en début et en fin d'exécution ; *G4UserEventAction* au début et à la fin de chaque événement ; *G4UserStackingAction* permet d'accéder à l'empilement des trajectoires ; *G4UserTrackingAction* permet des actions au début et à la fin de chaque trajectoire ; *G4UserSteppingAction* au début et à la fin de chaque pas.

Dans le cadre de ce travail, seules trois classes optionnelles ont été utilisées, en plus des trois obligatoires : il s'agit de *G4UserRunAction*, *G4UserEventAction* et *G4UserSteppingAction*.

h. Visualisation

Il est possible de visualiser la géométrie simulée et les traces des particules dans GEANT4 ; cela permet ainsi à l'utilisateur de vérifier l'agencement des différents éléments de volume les uns par rapport aux autres, mais aussi que les particules sont bien émises à l'endroit - ou dans l'élément de volume - souhaité. Les outils de visualisation permettent également d'illustrer les phénomènes simulés (figures 5 à 8). Dans le cadre de ce travail des fichiers VRML ont été créés lors de l'exécution de programmes afin soit de procéder à des vérifications, soit d'obtenir des images à des fins de communication des résultats des

simulations. GEANT4 contient un certain nombre d'autres logiciels de visualisation, VRMLFILE étant directement intégré à tous les exécutable. Une fois les fichiers générés, il est alors possible de zoomer sur les différents éléments, de tourner autour d'eux et plus généralement de se déplacer à l'intérieur de la géométrie.

3. Architecture des programmes implémentés dans de le cadre de ce travail

En annexe sont fournis quelques exemples de programmes implémentés et utilisés dans le cadre de ce travail, l'objectif est de décrire ici leur architecture : nous préciserons donc quelles classes ont été utilisées, comment et dans quel but. Un certain nombre de programmes ont été développés, et il ne s'agit pas ici de détailler l'architecture de chaque programme mais plutôt de donner l'architecture générale des codes.

a. La fonction ou méthode principale (*main*)

Cette fonction a pour rôle d'organiser les programmes écrits en C++, en particulier ceux utilisant la boîte à outils GEANT4. C'est dans la fonction *main* que sont déclarées les différentes classes utilisées par le programme, à savoir : la classe *RunManager*, responsable de l'exécution du programme ; la classe *DetectorConstruction*, dans laquelle sont spécifiés la géométrie et les matériaux simulés ; la classe *PhysicsList*, où les particules et processus d'interaction sont définis et associés ; la classe *PrimaryGeneratorAction*, qui est responsable de l'émission des particules primaires avec une énergie, une position et une direction particulières ; enfin les classes *RunAction*, *EventAction* et *SteppingAction* qui permettent de définir les actions à effectuer respectivement en début et fin d'exécution, d'événement et de pas. C'est également dans la fonction *main* qu'est choisi le générateur de nombre aléatoire. Un certain nombre de générateurs sont disponibles, parmi lesquels on trouve ceux du module *HepRandom* du projet CLHEP (*Class Library for High Energy Physics*). Il a été choisi de travailler avec le générateur *RanecuEngine*, qui est initialisé à partir d'un tableau de graines. Un avantage de ce générateur est qu'il dispose de méthodes permettant à la fois de fixer les graines et de les récupérer (via les méthodes *setTheSeeds* et *getTheSeeds*). Le fait de fixer les graines est particulièrement intéressant dès lors que l'on travaille sur plusieurs machines en même temps, par exemple lorsqu'on effectue les simulations dans un centre de calcul.

Les programmes dans GEANT4 peuvent être exécutés soit en mode interactif, soit par lots de commandes (*batch mode*). Dans le premier cas, un terminal permet d'interagir avec GEANT4 : les commandes sont alors exécutées à la demande de l'utilisateur. Dans le second cas, une liste de commandes est consignée dans un fichier texte fourni en argument de la ligne de commande permettant de lancer un programme dans GEANT4. Le programme

effectue alors automatiquement les commandes les unes à la suite des autres, sans intervention de l'utilisateur. La fonction *main* permet de rendre possible le fonctionnement dans les deux modes, suivant que l'utilisateur lance les programmes avec ou sans fichier de liste de commandes en argument.

b. Les différentes classes implémentées et les fonctions associées

Dans un premier temps sont décrites les classes obligatoires : *DetectorConstruction*, *PhysicsList* et *PrimaryGeneratorAction*. Ensuite viennent les trois classes optionnelles : *RunAction*, *EventAction* et *SteppingAction*, qui définissent les actions effectuées durant les simulations à des niveaux de résolution de plus en plus fins.

DetectorConstruction

- Recherches fondamentales

Il s'agit probablement de la classe dont les variations sont les plus importantes lorsque l'on passe d'une problématique à une autre : selon que l'on s'intéresse aux spectres enregistrés par une sonde spectrométrique γ placée dans - ou sur - des sédiments (chapitres 4 et 6), aux effets de dépôt de dose dans des grains de quartz modélisant un milieu sédimentaire (chapitres 7 et 8), ou à des utilisations *ad hoc* de GEANT4 pour traiter de problèmes dosimétriques très spécifiques (cf. annexe 1), les éléments géométriques et les matériaux simulés ne sont évidemment pas les mêmes.

Pour l'étude des spectres enregistrés par la cellule en matériaux semi-conducteurs d'une sonde spectrométrique lorsqu'elle est placée en contexte sédimentaire (chapitre 4), les éléments de volume définis sont un cube d'arête 2 m représentant les sédiments et un cylindre de dimensions 1.5 pouces de diamètre par 1.5 pouces de hauteur (diamètre : 3.81 cm ; hauteur : 3.81 cm) pour simuler la cellule de détection. Les matériaux sont divers types de sédiments : un sédiment siliceux dont la composition correspond à un échantillon du site de Croix-de-Canard (Dordogne, composition fournie par Christelle Lahaye), de densité 1.8 g.cm^{-3} ; un sédiment calcaire correspondant à un échantillon du Roc de Marsal de densité 1.8 g.cm^{-3} ; un sédiment meuble et riche en matière organique correspondant à un échantillon du site de Diepkloof Rock Shelter, de densité 1.6 g.cm^{-3} (composition fournie par Chantal Tribolo) ; enfin une lave basaltique correspondant à un échantillon de lave de l'Etna, de densité 2.6 g.cm^{-3} (composition fournie par Christelle Lahaye). Ces sédiments ont été simulés dans le cas où ils sont pris secs, puis humides. Les compositions et densités ont alors été modifiées pour tenir compte de la présence d'eau. En ce qui concerne le matériau constitutif du détecteur, deux semi-conducteurs ont été simulés : l'iodure de sodium (NaI, densité : 3.67 g.cm^{-3}) et le tribromure de lanthane (LaBr_3 , densité : 5.29 g.cm^{-3}).

Une fois traitées les questions de l'exploitation des spectres enregistrés en insérant une sonde spectrométrique dans les sédiments, à la fois à l'aide de simulations avec GEANT4 et expérimentalement (chapitres 4 et 5), nous avons voulu travailler sur la possibilité de procéder à des mesures de spectrométrie γ non-invasives. Dans le chapitre 6, nous avons donc simulé des mesures de surface effectuées au cours de la fouille d'un site archéologique. Le cube de sédiments décrit précédemment a donc été divisé en tranches de sédiments superposées. La cellule détectrice a été placée sur l'empilement de ces tranches et une série de simulations a été entreprise en enlevant, à chaque fois, une tranche de sédiments. La nature des sédiments est restée la même - il s'agit de sédiments siliceux - mais nous avons fait varier la concentration en radioéléments en fonction des couches sédimentaires (cf. section sur la classe *PrimaryGeneratorAction*).

En ce qui concerne l'étude des effets dosimétriques à l'échelle des grains de sédiments, les éléments de volume, leurs dimensions et matériaux constitutifs sont très différents : des billes de dioxyde de silicium (SiO_2 , densité : 2.65 g.cm^{-3} pour simuler du quartz) ou d'aluminosilicates potassiques (KAlSi_3O_8 , densité : 2.65 g.cm^{-3} pour simuler des feldspaths) sont agencées suivant différents systèmes dans un cube, les interstices étant remplis d'air (en pourcentages massiques N : 76.5%, O : 23.5%, densité : 1.276 mg.cm^{-3}) ou d'eau (H_2O , densité : 1 g.cm^{-3}) suivant les besoins.

La question des simulations numériques des effets dosimétriques à l'échelle des grains de sédiments est délicate, dans la mesure où on s'intéresse à la structure du milieu à l'échelle millimétrique. Deux chapitres concernent de telles études (chapitres 7 et 8), et tant les objectifs que la finesse de résolution de l'agencement des grains diffèrent. Dans le cadre de l'étude de l'effet de l'humidité sur les débits de dose γ en milieu sédimentaire (cf. chapitre 7), l'objectif était d'étudier l'influence de différents paramètres physiques. Afin d'étudier indépendamment ces différents facteurs, la géométrie simulée a été définie assez simplement : des boules ont été agencées suivant différents systèmes inspirés de la cristallographie. Les réseaux cubique simple, cubique centré et cubique à faces centrées ont ainsi été implémentés afin de faire varier la porosité de l'assemblage. Le diamètre des grains a varié de $40 \mu\text{m}$ à 1 mm , tous les grains ayant le même diamètre, afin d'étudier l'effet de la taille des grains. Cette géométrie correspond aux cas particuliers des environnements bien triés. Enfin, nous avons fait varier la quantité d'eau dans les interstices de ces assemblages. Pour des raisons pratiques il a été décidé de simuler ces variations en définissant des matériaux virtuels, de composition H_2O et de densité variant entre 0.2 g.cm^{-3} et 1 g.cm^{-3} , ce

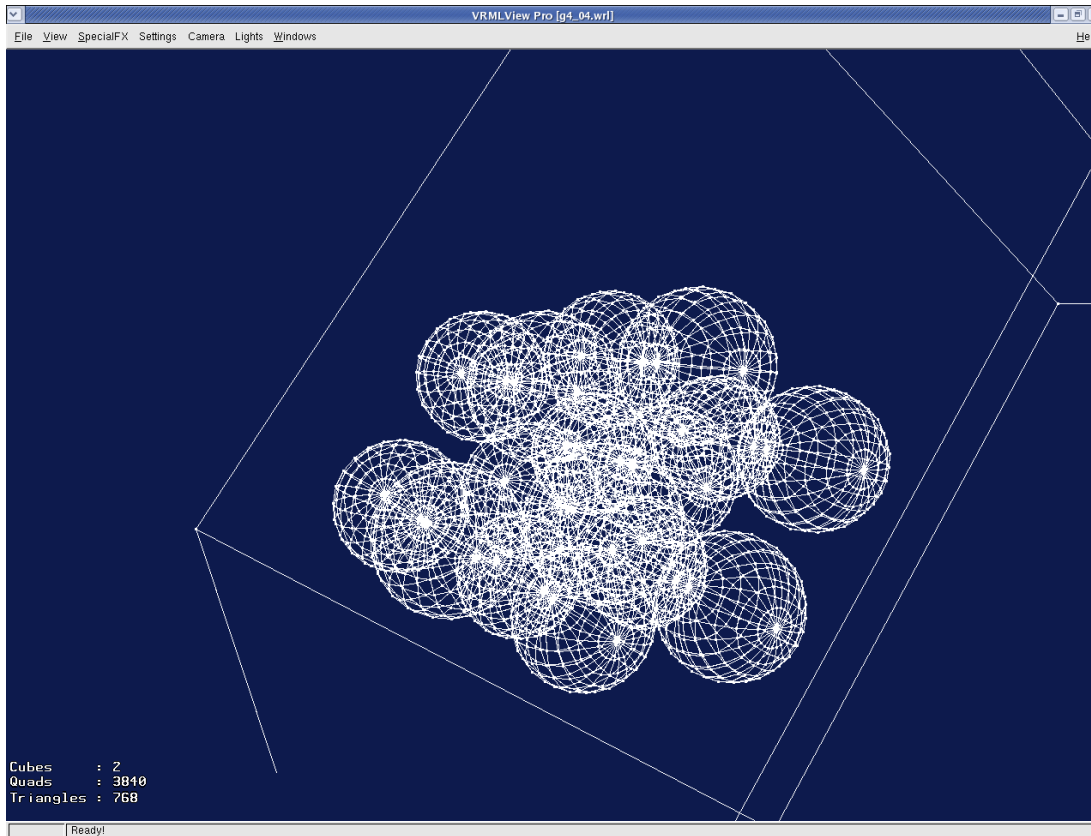


Figure 6. Quelques billes, représentant des grains de sédiments, agencées suivant le système cristallographique cubique centré. L'image a été générée avec le logiciel VRMLVIEW.

qui est une approximation des cas où respectivement 20% et 100 % des interstices sont remplis d'eau. Ce chapitre a une approche « physicienne », dans la mesure où l'influence de différents paramètres a été étudiée, en prenant soin de découpler les effets et de mettre en évidence des tendances.

Par contraste, l'étude des débits de dose β reçus par les grains de quartz en milieu sédimentaire a été réalisée dans un souci d'application plus directe. Par rapport à la géométrie précédente, l'assemblage des grains a été simulé à l'aide du logiciel PackLSD. Ce logiciel, distribué par E. Donev, permet de générer des empilements aléatoires denses (*random close packing* ou *random close jamming*) à partir de distributions de tailles de grains fixées (Donev *et al.*, 2005). La compacité de ces assemblages est bien entendu plus faible que dans le cas de l'assemblage cubique à faces centrées, mais ces modèles sont censés représenter de façon assez réaliste la structure de milieux granulaires denses. Ce type de simulations permet d'étudier de façon réaliste n'importe quel échantillon de sédiments à partir de données telles que la composition chimique et la distribution granulométrique, ainsi que la répartition des radioéléments. Dans le cadre de l'étude présentée au chapitre 8, le logiciel PackLSD a été utilisé pour simuler l'assemblage des grains d'un échantillon de

sédiment prélevé sur une crête sableuse à Skagen (Danemark). Cet échantillon a été présenté en colloque par Buylaert *et al.* (2006) et fait actuellement l'objet d'une campagne de comparaison des résultats de datation obtenus par différents laboratoires.

En tout état de cause, le nombre d'éléments de volume qu'il est possible de simuler est limité par la mémoire vive des processeurs utilisés. En pratique, sur un ordinateur disposant d'un Giga-octet de mémoire vive, environ un million d'éléments de volume sphériques peuvent être simulés. GEANT4 dispose d'outils tels que G4PVReplica qui permettent de répliquer un même volume un grand nombre de fois, mais il est nécessaire que ces volumes répétés remplissent complètement le volume mère, ce qui n'est évidemment pas le cas des assemblages granulaires - par définition poreux. L'utilisation de l'outil *G4PVParameterised* a également été envisagée, mais a été abandonnée pour les mêmes raisons. Un algorithme spécifique a donc été implémenté (cf. section sur la classe *SteppingAction*) afin de résoudre un problème de taille - aux sens propre et figuré : si on arrange un million de billes de diamètre 40 μm suivant un système cubique à faces centrées, on remplit un cube d'arête 3.4 cm. Or la portée d'interaction des rayons γ est de l'ordre de quelques dizaines de centimètres : pour simuler les effets de la radioactivité γ dans les sédiments, il a donc été nécessaire d'avoir recours à un algorithme particulier pour pallier cette limite due à la mémoire des ordinateurs.

- Applications ponctuelles de GEANT4

Les derniers types de géométries simulées avec GEANT4 correspondent aux applications ponctuelles réalisées dans le cadre de ce travail, qui sont présentées en annexe (Annexe 1). Ainsi, des sources radioactives ont été simulées pour une étude de radioprotection ainsi que pour une étude concernant l'irradiation d'échantillons de quartz par des sources servant de références, afin d'étalonner les sources radioactives utilisées en datation par luminescence au CRPAA. Dans ce but, la géométrie de différents faisceaux de particules et sources radioactives a été modélisée.

Pour mesurer les débits de dose γ dans les milieux sédimentaires, des pastilles d'alumine (hauteur : 1 mm, diamètre : 5 mm, composition : Al_2O_3 , densité : 3.66 g.cm^{-3}) sont utilisées comme dosimètres au CRPAA. Elles sont insérées dans les sédiments à l'intérieur d'une enveloppe métallique, qui atténue la composante γ des rayonnements. Afin de quantifier cette correction à apporter aux débits de dose γ mesurés avec les pastilles d'alumine, une série de simulations a été entreprise ; les résultats sont actuellement utilisés pour l'analyse des mesures de dosimétrie au CRPAA.

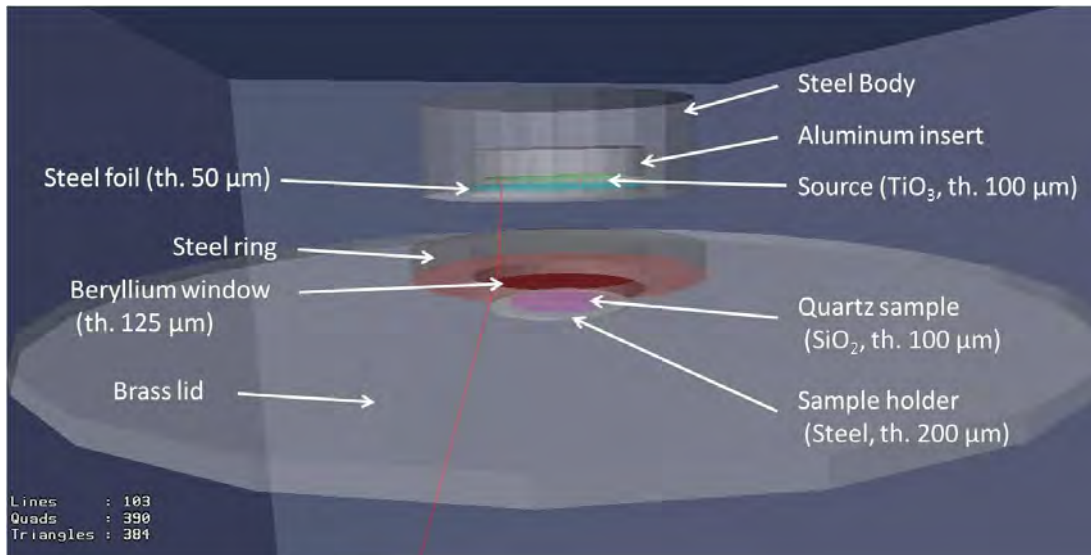


Figure 7. Simulation avec GEANT4 d'une source radioactive $^{90}\text{Sr}/\text{Y}$, telle qu'elle est positionnée sur les appareils de luminescence Risø DA-20, pour irradier les échantillons étudiés (du quartz sur la figure). La partie active figure en vert, tandis que le cylindre de quartz irradié est représenté en mauve.

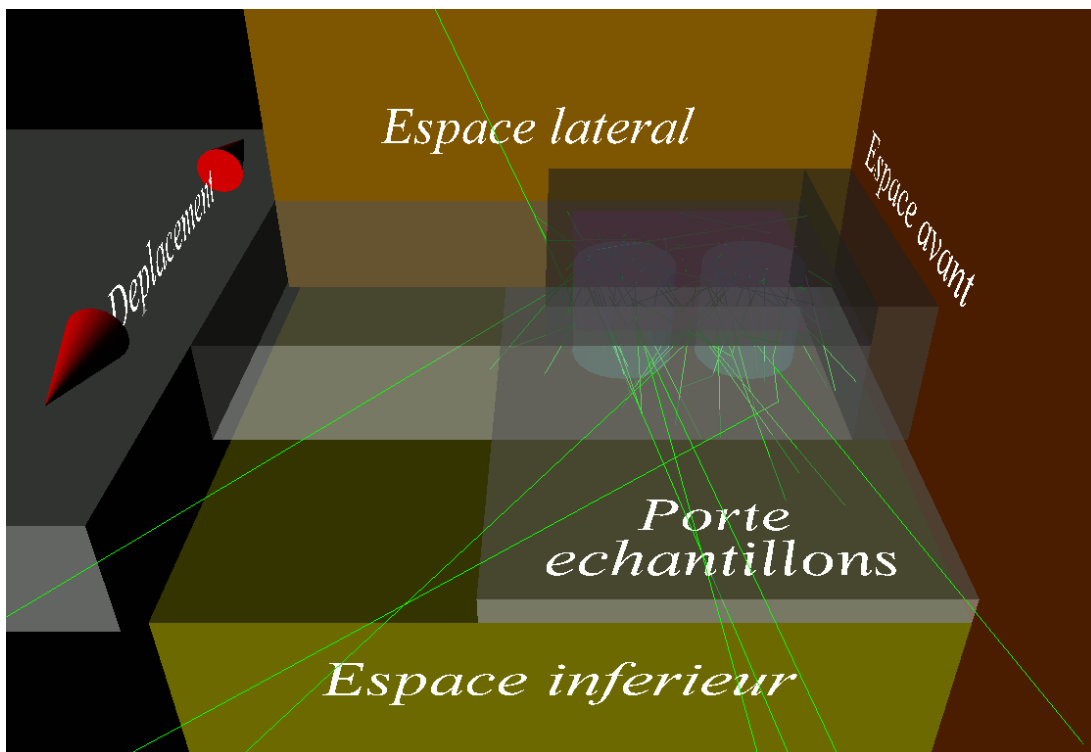


Figure 8. Visualisation de la trajectoire, simulée avec GEANT4, de quelques photons γ émis par une source d'américium (^{241}Am), en mauve sur la figure, utilisée au CRPAA pour des irradiations α . L'émission de rayons γ présentant d'éventuels risques au regard de la radioprotection des personnels du laboratoire, des simulations ont été réalisées avec GEANT4 afin d'évaluer le débit de dose reçue par les utilisateurs (image S. Dubernet).

Enfin plusieurs simulations ont été réalisées afin de reconstruire l'environnement radioactif d'échantillons datés par luminescence. Dans le cas d'échantillons de sédiments prélevés à Mussig (Alsace), aucune mesure de spectrométrie γ n'a pu être réalisée *in situ*. Si cela ne pose pas de problème lorsque les sédiments sont homogènes, puisque les teneurs en radioéléments peuvent être mesurées en laboratoire, à Mussig les échantillons étaient soit proches de la surface des sédiments, soit proches d'un niveau géologique de composition et de concentrations en radioéléments très différentes de l'échantillon. Des simulations avec GEANT4 ont permis de reconstituer l'environnement de chaque échantillon et de déterminer ainsi les débits de dose γ appropriés. Un cas similaire est celui d'un silex prélevé sur le site de Duclos (Auriac, Pyrénées Atlantiques) et daté par thermoluminescence : habituellement, une enveloppe externe des silex (d'épaisseur environ 2 mm) est éliminée par sciage afin de s'affranchir du débit de dose β externe dû au contact avec les sédiments environnants, radioactifs. Cependant, il arrive que les silex soient de trop faibles dimensions pour un tel traitement : dans le cas du silex de Duclos, des simulations numériques avec GEANT4 ont permis de déterminer le débit de dose β , émis par le sédiment, reçu par le silex. Un dernier exemple est fourni par le cas d'un échantillon de brique provenant de la crypte de l'église Saint-Seurin (Bordeaux), pour lequel se posaient des problèmes d'hétérogénéités de l'environnement radioactif.

PhysicsList

Cette classe permet de définir les particules simulées, ainsi que leurs processus d'interactions. Seuls trois types de particules ont été simulés dans le cadre de ce travail : les photons, les électrons et les positrons, qu'il s'agisse des particules primaires ou secondaires. En ce qui concerne les processus, outre le transport (*transportation*) des particules, les interactions électromagnétiques ont été implémentées.

Pour les photons, les diffusions de Rayleigh et de Compton ont été prises en compte, ainsi que l'effet photoélectrique et la création de paire. Pour les électrons et les positrons, les processus simulés sont la diffusion multiple, l'ionisation et la brehmsstrahlung ou rayonnement de freinage. L'annihilation des positrons a également été simulée. Deux ensembles de données d'interaction ont été utilisés : l'ensemble *standard* pour les applications mettant en jeu des éléments de volume de dimensions au moins centimétrique (chapitres 4 et 6) et l'ensemble PENELOPE pour les effets de dépôt de dose à l'échelle des grains de sédiments (chapitres 7 et 8).

En plus de ces interactions, deux valeurs seuil ont été utilisées : le parcours en dessous de laquelle aucune particule secondaire n'est générée (le *ProductionCut*) a été fixé à

1 mm pour le premier type de simulations et a été adapté à la géométrie pour le second. En pratique ce seuil a été fixé de manière à ce qu'il soit toujours nettement inférieur aux dimensions des plus petits éléments de volume simulés afin d'éviter qu'un problème de finesse de traitement des particules secondaires n'affecte les résultats. La longueur maximale des pas de suivi des particules a également été limitée et ce pour deux raisons : comme nous l'avons mentionné précédemment, le suivi des particules chargées interagissant par ionisation est d'autant plus précis que les valeurs des tables sont mises à jour en fonction de leur énergie ; de plus, dans le cadre des simulations mettant en jeu des grains de sédiments, l'algorithme utilisé nécessite un suivi particulier (cf. section sur la classe *SteppingAction*). Le pas maximum a donc été limité, parfois jusqu'à 10 μm , suivant les besoins.

PrimaryGeneratorAction

Cette classe est responsable de l'émission des particules en un point particulier de la géométrie, avec une énergie et une direction fixées. Si la position est largement liée à la géométrie et est donc adaptée à chaque simulation, en revanche la distribution des directions est isotrope - ceci a été réalisé en tirant au sort les directions suivant une symétrie sphérique, en utilisant la loi de probabilité associée (voir les codes en annexe) - et l'énergie est tirée au sort en fonction des radioéléments simulés. Ainsi ont été construits des spectres d'émission pour la radioactivité γ du potassium (l'isotope ^{40}K est naturellement présent dans les sols), mais aussi des chaînes radioactives de l'uranium et du thorium. Si le cas du potassium est simple puisqu'il n'existe qu'une raie γ d'énergie 1460.8 keV, les spectres des séries de l'uranium et du thorium ont été déterminés à l'aide des données concernant les raies d'émission de tous les radioéléments impliqués (voir par exemple Aitken, 1985a) à partir des données fournies par le *National Nuclear Data Centre* (NNDC, Brookhaven National Laboratory, Etats-Unis, <http://www.nndc.bnl.gov/>), téléchargées le 5 novembre 2009 (figures 9 et 10).

En ce qui concerne les spectres β utilisés, ils ont été fournis par Roger Nathan (de l'université d'Oxford, au Royaume-Uni) et ont été calculés suivant le modèle de Fermi (Evans, 1955), modifié par Behrens et Szybisz (1976), en incluant les conversions internes ainsi que l'émission d'électrons Auger (figures 11 à 13). Pour certaines applications ponctuelles d'autres types de sources ont été simulés : citons par exemple des faisceaux γ de ^{137}Cs (662 keV), ^{60}Co (deux raies à 1173 keV et 1332 keV) ainsi que des sources β de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ (données utilisées fournies par Steffen Greulich, de l'université d'Heidelberg, en Allemagne, correspondant aux spectres fournis par le logiciel MCNP). L'ensemble des spectres utilisés est fourni en annexe.

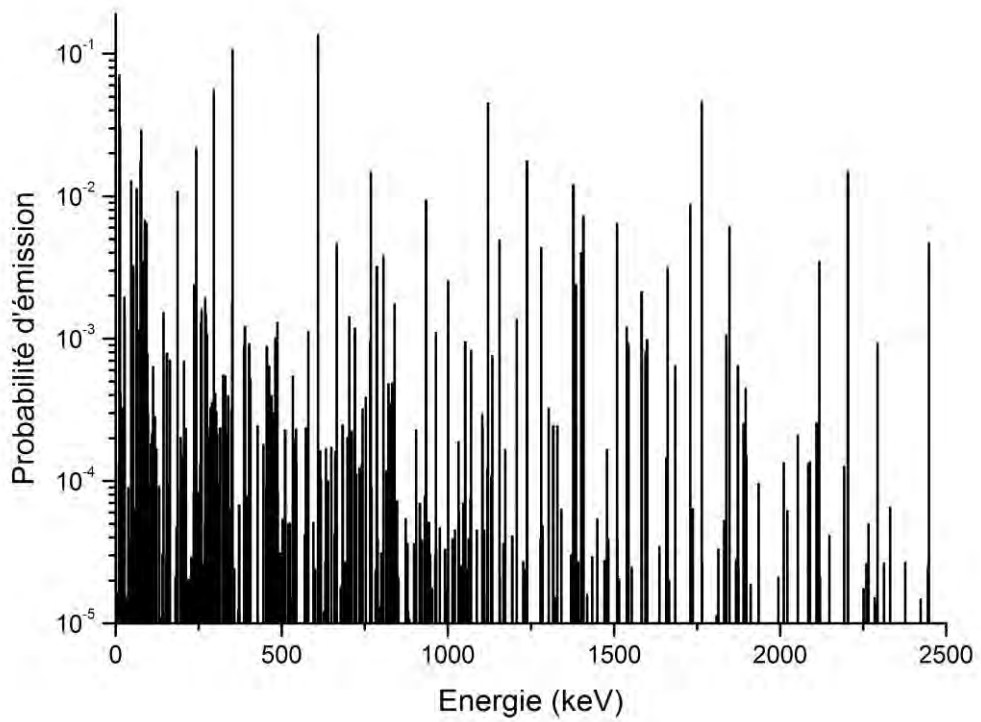


Figure 9. Spectre d'émission γ des chaînes de l'uranium (^{235}U et ^{238}U). Une échelle logarithmique a été choisie pour l'axe des ordonnées, afin de représenter un grand nombre de raies.

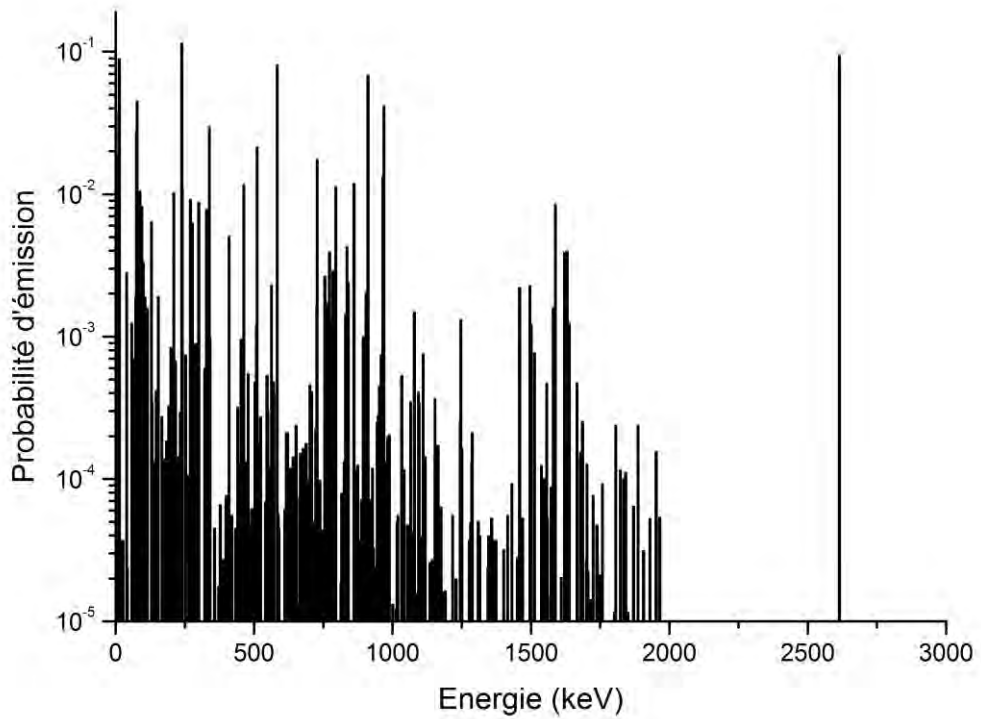


Figure 10. Spectre d'émission γ de la chaîne du thorium.

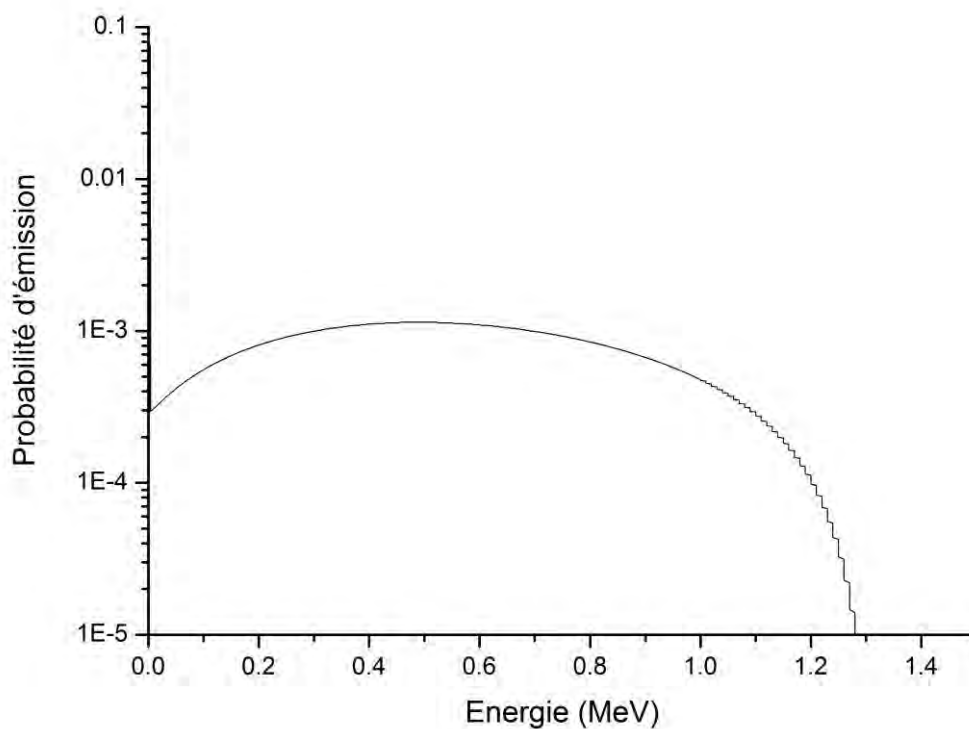


Figure 11. Spectre d'émission β du potassium (^{40}K). Une échelle logarithmique a été choisie pour l'axe des ordonnées pour une meilleure lisibilité.

Le tirage de la position d'émission des particules dépend largement des géométries simulées. De manière générale, on effectue les tirages au sort, de façon homogène, à l'intérieur d'un cube ou d'une sphère, à l'exclusion éventuelle d'une partie de la géométrie. Par exemple dans le chapitre 4 où on simule le placement d'une cellule spectrométrique dans des sédiments, les photons sont émis uniquement dans les sédiments ; tous les tirages de positions à l'intérieur de la cellule sont donc rejetés.

Quelques cas particuliers méritent cependant d'être précisés. Dans le chapitre 6, cette même cellule spectrométrique est placée sur un empilement de couches sédimentaires de teneurs en radioéléments différentes ; ces couches ayant toutes le même volume, le nombre de particules émises par unité de temps et par couche diffère donc d'un niveau à l'autre. Dans ce but, un algorithme particulier a été développé : à chaque couche est attribuée une couleur - rouge, verte ou bleue - correspondant à une teneur en radioéléments et donc à un nombre d'événements à simuler. En partant du bas de la séquence stratigraphique, on émet donc, au hasard, dans chaque couche un certain nombre de photons, en changeant de couche une fois que le nombre fixé d'événements a été simulé. Etant donné que l'on simule une fouille en stratigraphie, le nombre total de

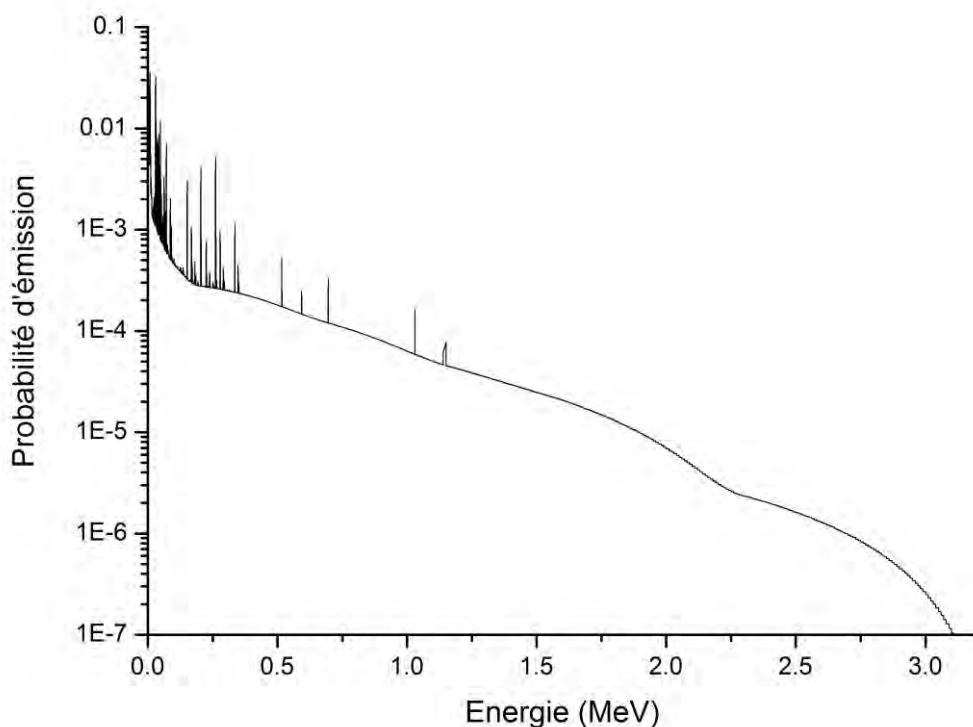


Figure 12. Spectre d'émission β des séries de l'uranium (^{235}U et ^{238}U).

couches varie en fonction de la configuration simulée : le nombre total d'événements simulés lors de l'exécution des programmes varie donc en fonction.

L'unité de simulation de GEANT4 est l'événement - i.e. l'émission d'une particule primaire - et non l'unité de temps ; or, lorsqu'on travaille sur des débits de dose (Gy.a^{-1}), la variable temps est essentielle. Il est donc primordial de convertir le nombre d'événements simulés durant l'exécution d'un programme en durée simulée. Cette correspondance dépend de la concentration en radioéléments, de leur durée de vie et de leur abondance isotopique, ces données se traduisant par une activité spécifique de chaque radioélément ou chaîne radioactive. Un travail préliminaire a donc été entrepris afin de mettre à jour les valeurs d'activités spécifiques, exprimées en Bq.kg^{-1} de sédiment par unité de concentration en radioéléments. La mise à jour de ces données fondamentales a également permis de mettre à jour les facteurs de conversion entre concentrations en radioéléments et débits de dose (chapitre 3).

Du point de vue des simulations, un tirage au sort de l'énergie des particules primaires est donc effectué à chaque émission de particule, suivant les probabilités d'émission de chaque raie. Que le spectre soit continu dans le cas des particules β ou discret dans le cas des rayonnements γ , le traitement est le même : les spectres β ont en

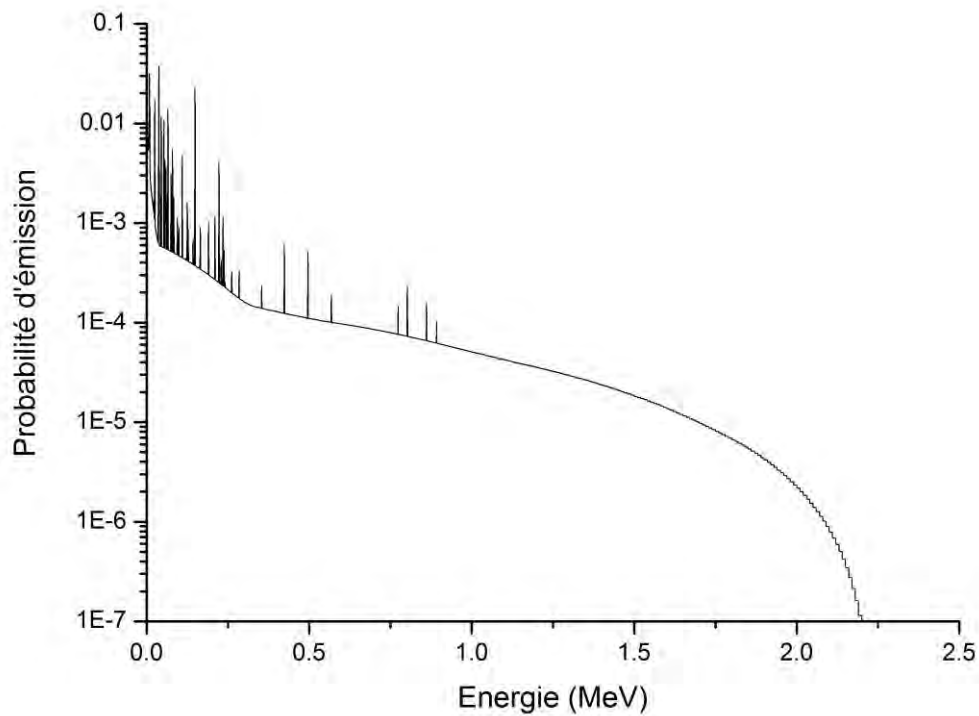


Figure 13. Spectre d'émission β de la chaîne du thorium (^{232}Th).

effet été discrétisés, avec un pas de 0.5 keV ou 1 keV. Les spectres utilisés comportent entre quelques centaines et quelques milliers de raies. Pour rendre le tirage au sort de l'énergie primaire plus efficace, un algorithme de tirage au sort par dichotomie a été implémenté (cf. codes en annexe), ce qui permet de gagner un facteur 9 dans le temps de simulation pour le cas des spectres comportant le plus de raies. Précisément pour la simulation de la radioactivité β de l'uranium, le spectre compte 6450 raies et l'utilisation de la méthode de tirage au sort par dichotomie fait gagner un facteur $\ln(6450)=8.8$ par rapport à une méthode incrémentielle simple.

RunAction

Cette classe permet à l'utilisateur de définir certaines actions en début et fin d'exécution (*run*) de programme. Un certain nombre de paramètres sont initialisés à l'intérieur de cette classe comme la dimension des spectres enregistrés, la taille de différents éléments de volume simulés, etc. Certaines fonctions permettant d'échanger des informations avec les autres classes sont définies, ainsi que les fonctions d'enregistrement des spectres.

Outre ces objets et fonctions, les actions sont les suivantes : en début d'exécution, le spectre d'énergie primaire correspondant aux particules émises est construit ; un tableau contenant les énergies et probabilités des raies d'émission est construit en vue d'échantillonnage dans la classe *PrimaryGeneratorAction* pour la génération des vertex primaires (*primary vertices*). Le choix du générateur de nombres aléatoires est également effectué en début d'exécution et son initialisation est réalisée suivant les besoins. Il a été ici choisi de travailler avec le générateur *RanecuEngine*, module de HepRandom, distribué par le projet CLHEP. Si, dans un premier temps, l'initialisation a été effectuée en prenant comme paramètre l'heure du début d'exécution - cela correspond par exemple aux simulations effectuées pour le chapitre 4 - cette démarche s'est révélée problématique pour les simulations lancées simultanément, en parallèle sur plusieurs ordinateurs, au centre de calcul de l'Institut National de Physique Nucléaire et des Particules (IN2P3, cf. infra : section sur les ressources informatiques utilisées). Il a donc été nécessaire de trouver une alternative, sans quoi les statistiques de comptage des résultats auraient été biaisées : plusieurs simulations lancées en parallèle auraient donné exactement le même résultat puisque le générateur de nombres aléatoires aurait été initialisé de la même manière pour plusieurs exécutions de simulations.

Afin de pallier ce problème, l'initialisation du générateur s'est faite en utilisant le fichier */dev/urandom* de la plate-forme Linux exploitant le processeur utilisé pour chaque simulation. Il s'agit d'un fichier pouvant servir de générateur de nombres aléatoires, ou pseudo-aléatoire pour être plus précis, basé sur le bruit électronique des pilotes de périphériques du processeur. Ainsi, chaque exécution est initialisée à partir de graines indépendantes, dépendant du bruit du processeur d'exécution. En réalité, cette affirmation doit être nuancée par le fait que ces nombres générés par */dev/urandom* sont utilisés pour sélectionner un couple d'entiers servant effectivement de graine au générateur de nombres aléatoires. Or *RanecuEngine* dispose d'un tableau de 256 graines disponibles pour l'initialisation : plus le nombre d'exécutions d'un même programme est élevé, plus la probabilité que deux simulations soient initialisées avec la même graine est forte. Un simple calcul de probabilités permet d'affirmer qu'en lançant 20 simulations à l'aide d'un seul programme, la probabilité que les graines soient toutes différentes est de l'ordre de 50%, pour 30 simulations ce pourcentage tombe à 17%, et pour 40 à 4%. Il a été décidé que le fait de lancer 20 simulations en parallèle était un bon compromis, et que la probabilité d'avoir 3 graines identiques était suffisamment faible pour avoir peu de conséquences sur les statistiques de comptage. Le fait de lancer 20 simulations en parallèle réduit d'autant le

temps de simulation nécessaire, à nombre d'événements simulés constant, par rapport à une seule simulation.

En fin d'exécution, les programmes affichent à l'écran les résultats des simulations, ou plus précisément l'énergie totale déposée dans le ou les détecteurs simulés. C'est également à ce moment que sont sauvegardés, dans différents fichiers, les spectres enregistrés par les détecteurs.

EventAction

Cette classe permet d'intervenir en début et en fin d'événement. Or, de manière générale, les détecteurs utilisés en luminescence, comme les détecteurs de particules à semi-conducteurs utilisés pour la spectrométrie γ , enregistrent des coups correspondant à l'émission d'une particule primaire. En d'autres termes, par exemple lorsqu'un photon interagit dans le détecteur par effet Compton ou photoélectrique, l'énergie mesurée par le détecteur correspond à la somme des énergies déposées par l'ensemble des particules secondaires ionisantes interagissant dans le détecteur. A l'exception des coïncidences - qui correspondent au dépôt simultané, à l'échelle du temps de réponse du détecteur, d'énergie par deux particules indépendantes - les spectres enregistrés par GEANT4 en comptant un coup à la fin de chaque événement au cours duquel de l'énergie a été déposée dans le ou les détecteurs, correspondent aux spectres expérimentaux qui seraient obtenus dans les conditions simulées.

Par conséquent, la variable *EEvent*, qui représente l'énergie totale déposée au cours d'un événement, est remise à zéro au début de chaque événement. A la fin de chaque événement, les spectres sont incrémentés, c'est-à-dire qu'on augmente d'une unité le nombre de coups détectés à l'énergie détectée. Cette énergie est déterminée à partir du suivi pas à pas des particules de l'événement considéré, c'est-à-dire au niveau de la classe *SteppingAction*.

La classe *EventAction* joue également le rôle de subdiviser chaque simulation en tranches correspondant à un nombre d'événements fixés : ainsi une simulation fournit plusieurs valeurs d'énergie déposée (une tous les n événements simulés). Cette procédure permet d'obtenir, dans la limite où le pseudo-aléatoire des simulations équivaut à de l'aléatoire au sens strict, une série de valeurs correspondant à plusieurs expériences successives et indépendantes. On obtient ainsi une liste de valeurs indépendantes sur lesquelles un traitement statistique permet de déterminer la tendance centrale - la moyenne - de la grandeur physique qu'est l'énergie déposée, ainsi que différents indices de dispersion comme la variance ou l'écart-type.

SteppingAction

Il s'agit de la classe permettant de suivre les particules interagissant dans la matière à l'échelle la plus fine. Cette classe joue donc un rôle particulièrement important dès lors que l'on s'intéresse de près à ces interactions.

Le rôle principal de cette classe, commun à tous les programmes développés dans le cadre de ce travail, est de déterminer l'énergie déposée par les particules dans les détecteurs. Dans ce but, plusieurs fonctions ont été utilisées : lorsque la géométrie du détecteur est simple (chapitres 4 et 6) un contrôle peut être effectué sur les coordonnées de la particule suivie ; si elle se trouve à l'intérieur du détecteur, on incrémente à la fois l'énergie totale déposée au cours de la simulation et l'énergie déposée durant l'événement en cours de simulation.

Pour l'étude des dépôts de dose à l'échelle des grains, un contrôle sur les coordonnées aurait été désastreux en termes de temps de calcul, compte tenu de la complexité des géométries simulées. Par conséquent, une approche alternative a été implémentée, en effectuant un test sur le matériau – ou sur le volume logique dans certains cas - dans lequel se trouve la particule suivie. Ainsi, par exemple pour les chapitres 7 et 8, l'énergie a été enregistrée pour des interactions ayant lieu dans du dioxyde de silicium pour simuler le dépôt d'énergie dans le quartz, ainsi que dans les aluminosilicates pour le dépôt dans les feldspaths.

Toujours dans le cadre de ces études sur la structure granulaire des sédiments, s'est posé le problème, mentionné dans la section concernant la classe *DetectorConstruction*, du nombre d'éléments de volume qu'il est possible de simuler compte tenu de la mémoire vive d'un ordinateur de bureau standard. Afin de résoudre ce problème, un algorithme suggéré, dans son principe par Roger Nathan et pour sa réalisation pratique dans GEANT4 par John Apostolakis (du Centre Européen de Recherche Nucléaire, en Suisse), a été implémenté. Il s'agit de faire en sorte que les particules se déplaçant dans un cube de dimensions largement inférieures à leur parcours, ne puissent en sortir : de manière imagée, on peut considérer qu'un photon par exemple, sortant du cube rempli de grains, y rentre à nouveau par le point opposé à celui de sa sortie. Cela équivaut à dire que l'on déplace le cube de sédiments de manière à suivre le photon en question, de manière à ce qu'il voie toujours le même assemblage de grains comme s'il couvrait tout l'espace.

Concrètement, cette relocalisation du cube ou - ce qui est équivalent - du photon n'est pas possible : cela va à l'encontre du bon fonctionnement de plusieurs classes de GEANT4 comme le gestionnaire des pas (*SteppingManager*), le transport (*Transportation*) et le navigateur (*Navigator*). Afin de contourner ce problème, une alternative a consisté à

changer la direction de la particule lorsqu'elle atteint les limites du cube. Ce cube rempli de grains devient alors réfléchissant, ce qui le rend de dimensions infinies pour la particule suivie. A la fin de chaque pas, un test est donc effectué sur la position de la particule : si elle est proche de la limite du cube - une distance de sécurité a été définie afin d'éviter d'éventuels effets de bords - sa direction est alors inversée. Afin que les particules soient toutes réfléchies au même endroit, un pas maximal a été imposé à toutes les particules, y compris les photons (cf. section sur la classe *PhysicsList*) pour lesquels une telle limitation ne présente aucun intérêt du point de vue de la physique des interactions. Ainsi on teste précisément et régulièrement si la particule suivie a franchi les limites du cube rempli de grains et le cas échéant, on opère une réflexion de sa direction.

c. Les fichiers de données : entrée

Afin de simuler l'émission de particules correspondant à différentes sources - artificielles dans le cas des études de radioprotection et d'étalonnage des sources radioactives du CRPAA, ou naturelles dans le cas des radioactivités β et γ du potassium et des séries de l'uranium et du thorium - différents couples de fichiers ont été créés : pour chaque source un fichier contient les énergies des raies prises en compte et un second les probabilités correspondantes.

Le chapitre 6 a également nécessité un fichier de couleurs de couches afin d'attribuer aux différents éléments de volume un nombre d'événements à simuler ; cela a permis de faire varier la teneur en radioéléments d'une couche de sédiments à une autre. De même, en ce qui concerne l'étude des débits de dose β en milieu sédimentaire (chapitre 8), le fichier de sortie du logiciel PackLSD - qui permet de générer des assemblages aléatoires compacts de grains - a été utilisé comme fichier de données pour réaliser, dans GEANT4, l'assemblage des grains. Un fichier concernant la distribution des feldspaths a également été utilisé dans ce cadre.

d. Les fichiers de données : sortie

Deux fichiers sont récupérés à la fin de l'exécution de chaque programme : un fichier spectre correspondant au nombre de coups en fonction de l'énergie déposée dans le ou les détecteurs, et un fichier dit de suivi contenant les valeurs intermédiaires d'énergie déposée dans le ou les détecteurs au cours des simulations. Ces fichiers ont servi à un traitement statistique des données de simulations, similaire aux traitements classiques effectués en physique expérimentale.

4. En pratique : ressources informatiques utilisées pour les simulations

GEANT4 fonctionne sous les systèmes d'exploitation Linux. Depuis 2004, le Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux-Gradignan (CENBG) diffuse gratuitement un émulateur de système d'exploitation Linux sur lequel est installé GEANT4 (<http://www.scientificlinux.org>). Il s'agit de la dernière version⁵ de GEANT4 fourni avec un VMware Player (<http://www.vmware.com>), qui permet de travailler sur une machine virtuelle Linux installée sur un PC fonctionnant, en ce qui concerne ce travail, sous le système d'opération Windows Vista®. Ce système est disponible à l'adresse suivante : <http://geant4.in2p3.fr/spip.php?rubrique8&lang=en>.

Outre une installation grandement facilitée ainsi que les variables d'environnement correctement initialisées, cela permet à l'utilisateur d'avoir, en plus de GEANT4 « prêt à l'emploi », un certain nombre de logiciels de visualisation - incluant VRMLVIEW, utilisé dans ce travail - et plusieurs outils d'analyse ainsi qu'un environnement de développement intégré : SourceNavigator IDE (<http://sourcenv.sourceforge.net>). Cet environnement de développement a servi pour l'élaboration de tous les codes présentés dans ce travail.

En termes de quantité, plus de mille programmes ont été créés puis exécutés dans le cadre de ce travail ; ce nombre inclut la création de nouveaux programmes dès lors que la valeur d'un paramètre devait être modifiée dans le cadre d'études systématiques. L'effort de développement n'a donc pas été aussi significatif que ce grand nombre pourrait le laisser penser. Cependant, l'exécution de ces programmes a nécessité des ressources informatiques importantes et à partir de décembre 2009 nous avons eu accès au centre de calcul de l'IN2P3 (CC-IN2P3). Le Très Grand Equipement Adonis nous a permis d'avoir accès à ce centre, le CRPAA étant une Unité Mixte de Recherche affiliée à l'Institut National des Sciences Humaines et Sociales du CNRS. Ainsi, il a été possible d'avoir accès à quelques milliers de processeurs via des connections sécurisées. Le fait que GEANT4 puisse être utilisé en mode *batch*, c'est-à-dire que l'on puisse lancer les programmes utilisant GEANT4 avec une liste de commandes, a ainsi permis de disposer de ressources informatiques extrêmement importantes. Il est évident que nombre de simulations réalisées ici, surtout celles concernant l'influence de différents paramètres, avec une approche systématique, n'aurait pas été possible sans l'accès à ce centre de calculs.

⁵ Dans le cadre de ce travail, les versions allant de 9.4.1 à 9.4.4 ont été utilisées.

Chapitre 3. Mise à jour des facteurs de conversion de teneurs en radioéléments en débits de dose

*Introduction à l'article : Guérin, G., Mercier, N., and Adamiec, G, 2011. Dose
rate conversion factors : update. Ancient TL, 29 (1), 5-8.*

Déterminer un âge (a) par luminescence consiste à diviser la dose équivalente (Gy) emmagasinée par un dosimètre naturel - qu'il s'agisse de quartz ou de feldspath sédimentaire, ou encore de roches chauffées - par le débit de dose ($\text{Gy}\cdot\text{a}^{-1}$) reçue par ce dosimètre. Les principales composantes de ce débit de dose sont dues à la présence de radioéléments, à savoir l'isotope ^{40}K du potassium et les chaînes radioactives de l'uranium et du thorium, dans les sols.

A l'exception des mesures de dosimétrie directes, telles que celles mettant à profit l'enfouissement de dosimètres artificiels dans les milieux à caractériser (pour les mesures de débits de dose en milieu sédimentaire, voir Burbidge et Duller, 2003 ; Kalchgruber et Wagner, 2006 ; pour la dosimétrie β par thermoluminescence voir par exemple Bailiff, 1982), la détermination des débits de dose nécessite la mesure des teneurs en radioéléments dans les sols. Cette mesure peut se faire de différentes manières, la plus répandue à l'heure actuelle étant probablement la spectrométrie γ ; on pourrait également citer la spectrométrie de flamme, l'activation neutronique, les techniques de spectrométrie de masse, etc. A partir de ces teneurs, les données nucléaires telles que l'énergie moyenne émise par désintégration, la durée de vie et donc l'activité des radioéléments considérés permettent de calculer le débit d'énergie émise par unité de temps et de masse dans le milieu étudié. L'hypothèse de matrice infinie stipule que toute l'énergie émise dans le milieu est également absorbée dans ce milieu, à condition que les dimensions du milieu soient suffisamment grandes devant le parcours des particules ionisantes. Dans le cadre de cette hypothèse, le débit de dose reçu par un élément de volume de sédiment est égal au débit de dose émis par ce même volume.

Il en résulte que les teneurs en radioéléments sont converties en débits de dose en utilisant des facteurs de conversion calculés à l'aide des propriétés fondamentales des radioéléments. Plusieurs jeux de données ont été utilisés et on recense différentes mises à jour : Aitken (1985), Nambi et Aitken (1986), et enfin Adamiec et Aitken (1998). Dans le cadre de l'étude des effets dosimétriques en milieu sédimentaire, les données nucléaires telles que les raies d'émission γ mais aussi les spectres β des radioéléments, ainsi que leurs activités spécifiques (exprimée $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de sédiment par unité de concentration en radioéléments) constituent les fondements des simulations numériques présentées ultérieurement. Afin d'établir les données concernant l'émission de particules primaires dues à la radioactivité dans les sols, un recensement des données nucléaires a été entrepris à partir des données du National Nuclear Data Centre (NNDC, Brookhaven National Laboratory, Etats-Unis) sous la forme des *Evaluated Nuclear Structure Data Files* et des *Nuclear Wallet Cards* (<http://www.nndc.bnl.gov/>). Il s'est avéré que depuis l'article

d'Adamiec et Aitken (1998), un certain nombre de données nucléaires ont été mises à jour, en particulier concernant la durée de vie du ^{40}K (Grau Malonda et Grau Carles, 2002; Kossert et Gunther, 2004) et les radioéléments de la chaîne de ^{235}U (Browne, 2001). Un nouvel ensemble de facteurs de conversion de teneurs en débits de dose est donc proposé ici. Afin de répondre aux besoins posés par les déséquilibres éventuels des chaînes radioactives du thorium et surtout de l'uranium, puisque ces dernières sont plus sujettes à de tels déséquilibres, il a été décidé de fournir la contribution de chaque radioélément aux débits de doses α , β et γ .

Ce nouveau jeu de données devrait ainsi permettre de corriger un certain nombre d'erreurs systématiques sur les âges calculés, pouvant atteindre 2.5 % dans le cas des débits de dose dus à la présence de potassium. Afin de quantifier l'effet de la correction de ces erreurs, les différences entre les valeurs proposées ici et celles d'Adamiec et Aitken (1998) sont également indiquées.

Dose-rate conversion factors: update

G. Guérin^{1,*}, N. Mercier¹, G. Adamiec²

¹Institut de Recherche sur les Archéomatériaux, UMR 5060 CNRS - Université de Bordeaux, Centre de Recherche en Physique Appliquée à l'Archéologie (CRP2A), Maison de l'archéologie, 33607 Pessac cedex, France

²Department of Radioisotopes, Institute of Physics, Silesian University of Technology, ul. Krzywoustego 2, 44-100 Gliwice, Poland

* Corresponding Author : guillaumeguerin@gmail.com (G. Guérin)

(Received 10 November 2010; in final form 13 May 2011)

Abstract

In the field of luminescence and electron spin resonance dating, dose rate conversion factors are widely used to convert concentrations of radioactive isotopes to dose rate values. These factors are derived from data provided by the National Nuclear Data Center of the Brookhaven National Laboratory, which are compiled in Evaluated Nuclear Structure Data Files (ENSDF) and Nuclear Wallet Cards. The recalculated dose rate conversion factors are a few percent higher than those previously published, except for beta and gamma emissions of the isotopes of the U-series decay chains.

Introduction

In luminescence and electron spin resonance dating, an age is obtained by dividing the palaeodose with the dose-rate that an object to be dated has been exposed to. The latter is determined by measurements of concentrations of radioelements or activity using gamma spectrometry, ICP MS, neutron activation analysis, alpha counting, beta counting or flame photospectrometry. The elemental concentrations are then converted in dose rates using conversion factors. These depend on the properties of the nuclear decays involved. The conversion factors have been calculated from time to time, for example by Nambi and Aitken (1986) or Adamiec and Aitken (1998; see also references therein) based on the ENSDF data. However, a new data set is available and an update is timely. The data used here were downloaded on 5th November 2009 on the Chart of Nuclides (<http://www.nndc.bnl.gov/chart/index.jsp>) and are based on Evaluated Nuclear Structure Data Files (ENSDF) and Nuclear Wallet Cards. This paper presents updated conversion factors following the approach of Adamiec and Aitken (1998).

The data

Tables 1 and 2 show the energy emission values for the ²³²Th, ²³⁸U and ²³⁵U and series for alpha, beta and

gamma rays as derived from the data of the National Brookhaven Laboratory website. The most appreciable differences between the data in these tables and those of Adamiec and Aitken (1998) are in the ²³⁵U series, since updated values for these radioelements have been published since 1998 (e.g. Browne, 2001) for ²³¹Th, ²³¹Pa, ²²⁷Ac, ²²⁷Th, ²²³Fr, ²²³Ra, ²¹⁹Rn.

The dose-rate values are given for infinite matrices (Aitken, 1985), for secular equilibrium of the radioactive decay chains as well as for total radon escape. Table 2 presents dose rate data for natural uranium, taking account of isotopic abundances (mass fractions: 99.29% for ²³⁸U and 0.71% for ²³⁵U). It should be noted here that the infinite matrix assumption implies homogeneity in absorption coefficients; taking account of different absorption characteristics between e.g. X-rays and gamma rays would require Monte Carlo modelling and is therefore beyond the scope of this paper.

Data for potassium and rubidium are given in Table 3. It should be noted that there is a significant difference for the potassium because the half-life of ⁴⁰K was recently reevaluated (Grau Malonda & Grau Carles, 2002; Kossert & Gunther, 2004) and is now 2.3% lower than previously published.

Concluding remarks

Even though uncertainty factors such as moisture content, heterogeneity of sedimentary media etc. have significant effects on the accuracy of dose rate, it is of paramount importance to minimize all sources of systematic errors. The overall effect of our update obviously depends on each case, but may reach a few percent on the final obtained age calculation. We therefore recommend that our newest conversion factors, which are derived from the up-to-date nuclear data, should be henceforth used for luminescence and ESR age calculations.

Table 1: Energy release and dose rates in the ^{232}Th decay series.

Isotope	Half-life (s)	Alpha		Beta		Gamma	
		Energy	Dose rate	Energy	Dose rate	Energy	Dose rate
^{232}Th	$4.43 \cdot 10^{17}$	4.003	0.0821	0.0113	0.0002	0.0011	0.0000
^{228}Ra	$1.81 \cdot 10^8$	-	-	0.0092	0.0002	0.0004	0.0000
^{228}Ac	$2.21 \cdot 10^4$	-	-	0.4171	0.0086	0.8602	0.0176
^{228}Th	$6.03 \cdot 10^7$	5.406	0.1109	0.0195	0.0004	0.0031	0.0001
^{224}Ra	$3.16 \cdot 10^5$	5.673	0.1164	0.0023	0.0000	0.0104	0.0002
^{220}Rn	$5.56 \cdot 10^1$	6.288	0.1290	-	-	0.0006	0.0000
^{216}Po	$1.45 \cdot 10^{-1}$	6.778	0.1390	-	-	0.0000	0.0000
^{212}Pb	$3.83 \cdot 10^4$	-	-	0.1721	0.0035	0.1437	0.0029
^{212}Bi	$3.63 \cdot 10^3$	2.175	0.0446	0.5034	0.0103	0.1039	0.0021
^{212}Po (0.641)	$2.99 \cdot 10^{-4}$	5.631	0.1155	-	-	-	-
^{208}Tl (0.359)	$1.83 \cdot 10^2$	-	-	0.2140	0.0044	1.2136	0.0249
Total			0.7375		0.0277		0.0479
Pre-Rn total			0.3093		0.0094		0.0180
Adamiec & Aitken (1998)							
Total			0.7320		0.0273		0.0476
Pre-Rn total			0.3050		0.0091		0.0178
Rel. Difference (%)							
Total			0.75%		1.34%		0.70%
Pre-Rn total			1.42%		3.53%		0.84%

Notes for table 1.

1. Energies are given in MeV and represent the energy emitted per disintegration.
2. Branching ratios are shown in parenthesis against the radioelements in the branches; associated values given for energy release are after adjustment for branching. Note that the branching also affects the energy release of the radioelement at which the branching occurs; thus the value given for the alpha release by ^{212}Bi is 35.9% of the full energy - because ^{208}Tl is formed by alpha emission from ^{212}Bi .
3. Beta components include Auger electrons and internal conversion; gamma components include X-rays and annihilation radiation; alpha recoil and neutrinos are not included due to their insignificant contribution to dose-rates (cf. Adamiec and Aitken, 1998).
5. A dash indicates that no radiation of that type is mentioned by the National Nuclear Data Centre.
6. Dose rate values are given in Gy ka^{-1} per ppm of parent (i.e. mg of parent per kg of sample), assuming equilibrium in the decay chains. The activity of the parent is 4.057 Bq kg^{-1} of sample.
7. The rows labelled 'pre-Rn' give the values for 100% escape of radon.
8. Relative differences are calculated between this paper and values from Adamiec and Aitken (1998).
9. ^{216}At has been omitted since its contribution to the total energy is insignificant.

Table 2: Energy release and dose rates in the uranium (^{238}U and ^{235}U) decay series.

Isotope	Half-life (s)	Alpha			Beta			Gamma		
		Energy	Dose rate	Dose rate, nat. U	Energy	Dose rate	Dose rate, nat. U	Energy	Dose rate	Dose rate, nat. U
^{238}U	$1.41 \cdot 10^{17}$	4.193	0.264	0.262	0.007	0.0005	0.0004	0.001	0.0001	0.0001
^{234}Th	$2.08 \cdot 10^6$	-	-	-	0.059	0.0037	0.0037	0.008	0.0005	0.0005
$^{234}\text{Pa}_m$	$6.95 \cdot 10^1$	-	-	-	0.810	0.0509	0.0506	0.016	0.0010	0.0010
$^{234}\text{Pa}_{(0.0016)}$	$2.41 \cdot 10^4$	-	-	-	0.001	0.0001	0.0001	0.001	0.0001	0.0001
^{234}U	$7.75 \cdot 10^{12}$	4.759	0.299	0.297	0.012	0.0007	0.0007	0.001	0.0001	0.0001
^{230}Th	$2.38 \cdot 10^{12}$	4.664	0.293	0.291	0.013	0.0008	0.0008	0.001	0.0001	0.0001
^{226}Ra	$5.05 \cdot 10^{10}$	4.775	0.300	0.298	0.004	0.0002	0.0002	0.007	0.0005	0.0005
^{222}Rn	$3.30 \cdot 10^5$	5.489	0.345	0.343	-	-	-	0.000	0.0000	0.0000
^{218}Po	$1.86 \cdot 10^2$	6.001	0.377	0.375	-	-	-	-	-	-
^{214}Pb	$1.61 \cdot 10^3$	-	-	-	0.291	0.0183	0.0182	0.239	0.0150	0.0149
^{214}Bi	$1.19 \cdot 10^3$	0.001	0.000	0.000	0.654	0.0411	0.0408	1.475	0.0928	0.0921
^{214}Po	$1.64 \cdot 10^{-4}$	7.687	0.483	0.480	-	-	-	0.000	0.0000	0.0000
^{210}Pb	$7.01 \cdot 10^8$	-	-	-	0.033	0.0021	0.0021	0.005	0.0003	0.0003
^{210}Bi	$4.33 \cdot 10^5$	-	-	-	0.389	0.0245	0.0243	-	-	-
^{210}Po	$1.20 \cdot 10^7$	5.304	0.333	0.331	0.000	0.0000	0.0000	0.000	0.0000	0.0000
^{238}U total			2.695	2.676		0.1429	0.1419		0.1104	0.1096
^{238}U Pre-Rn total			1.156	1.148		0.0570	0.0566		0.0022	0.0022
^{235}U	$2.22 \cdot 10^{16}$	4.114	1.663	0.012	0.029	0.0117	0.0001	0.164	0.0665	0.0005
^{231}Th	$2.20 \cdot 10^6$	-	-	-	0.146	0.0591	0.0004	0.023	0.0094	0.0001
^{231}Pa	$1.03 \cdot 10^{12}$	4.924	1.990	0.014	0.032	0.0130	0.0001	0.040	0.0160	0.0001
^{227}Ac	$6.87 \cdot 10^8$	0.070	0.028	0.000	0.012	0.0049	0.0000	0.001	0.0002	0.0000
$^{227}\text{Th}_{(0.986)}$	$1.61 \cdot 10^6$	5.808	2.347	0.017	0.050	0.0202	0.0001	0.154	0.0621	0.0004
$^{223}\text{Fr}_{(0.014)}$	$1.32 \cdot 10^3$	0.005	0.002	0.000	0.000	0.0002	0.0000	0.001	0.0003	0.0000
^{223}Ra	$9.88 \cdot 10^5$	5.664	2.289	0.016	0.068	0.0275	0.0002	0.135	0.0546	0.0004
^{219}Rn	$3.96 \cdot 10^0$	6.753	2.729	0.019	0.007	0.0027	0.0000	0.058	0.0235	0.0002
^{215}Po	$1.78 \cdot 10^{-3}$	7.392	2.987	0.021	-	-	-	-	-	-
^{211}Pb	$2.17 \cdot 10^3$	-	-	-	0.450	0.1817	0.0013	0.064	0.0258	0.0002
^{211}Bi	$1.28 \cdot 10^2$	6.549	2.647	0.019	0.013	0.0053	0.0000	0.047	0.0191	0.0001
^{211}Po	$5.16 \cdot 10^{-1}$	0.021	0.008	0.000	-	-	-	-	-	-
^{207}Tl	$2.86 \cdot 10^2$	-	-	-	0.495	0.2002	0.0014	0.002	0.0009	0.0000
^{235}U total			16.690	0.1185		0.5265	0.0037		0.2807	0.0020
Total				2.795			0.1457			0.1116
Pre-Rn total				1.267			0.0603			0.0042
Adamiec & Aitken (1998)										
Total				2.78			0.146			0.113
Pre-Rn total				1.26			0.06			0.0044
Rel. Difference (%)										
Total				0.53%			-0.24%			-1.28%
Pre-Rn total				0.52%			0.54%			-4.43%

Notes for table 2.

- See notes 1-8 of Table 1.
- The mass abundances used in the natural uranium calculations for ^{238}U and ^{235}U (respectively 99.29% and 0.71%) correspond to the natural atomic abundances of 99.28% and 0.72% respectively.
- The activity of the parent (per ppm of parent) is 12.44 Bq kg⁻¹ of sample for ^{238}U , 79.94 for ^{235}U and 12.92 for natural uranium.
- The rows labelled 'pre-Rn' give the values for 100% escape of radon in the case of ^{238}U series, but because of the short half-life of ^{219}Rn the values given for natural uranium include contributions of that gas and its daughters.
- ^{218}At , ^{218}Rn , ^{210}Tl , ^{206}Tl and ^{215}At have been omitted since their contribution to the total is insignificant.

Table 3: *Dose-rate data for Potassium and Rubidium.*

		⁴⁰ K	⁸⁷ Rb
Natural abundance (mg.g ⁻¹)		0.119	283
Half-life (Ga)		1.248	48.1
Average energy per disintegration (MeV)	Beta	0.499	0.0817
	Gamma	0.1557	
Specific activity (Bq.kg ⁻¹) for concentration of 1% nat. K and 50 ppm of nat. Rb	Total	316.4	44.8
	Beta	282.5	44.8
	Gamma	33.73	
Dose-rate (Gy.ka ⁻¹) for concentrations as above	Beta	0.7982	0.0185
	Gamma	0.2491	
Dose-rate, Adamiec & Aitken (1998)	Beta	0.782	0.019
	Gamma	0.243	
Relative differences	Beta	2.07%	-2.67%
	Gamma	2.49%	

Notes for table 3.

1. The energy given for potassium is that released per disintegration, i.e. after allowance for branching between beta and gamma (89.28% and 10.72% respectively).
2. The contents given in row 1 correspond to natural atomic abundances of 116.7 ppm and 27.8%.

Acknowledgements

The authors would like to thank R. Grün for his helpful remarks and suggestions, and the University of Bordeaux 3 for financial support.

References

- Adamiec, G., Aitken, M.J. (1998). Dose-rate conversion factors: update. *Ancient TL* 16, 37-50.
- Aitken, M.J. (1985). *Thermoluminescence dating*. Academic Press, London.
- Browne, E. (2001). Nuclear Data Sheets for A = 215,219,223,227,231. *Nuclear Data Sheets* 93, 763-1061.
- Grau Malonda, A., Grau Carles, A. (2002). Half-life determination of ⁴⁰K by LSC Measurements. *Applied Radiation and Isotopes* 56, 153-156.
- Kossert, K., Gunther, E. (2004). LSC Measurements of Half-life of ⁴⁰K. *Applied Radiation and Isotopes* 60, 459-464.
- Nambi, K.S.V., Aitken, M.J. (1986). Annual dose conversion factors for TL and ESR dating. *Archaeometry* 28, 202-205.

Reviewer

R. Grün

Deuxième partie

Les hétérogénéités radiochimiques à
l'échelle décimétrique :
détermination *in situ* de débits de
dose gamma en milieux
sédimentaires

L'objectif de cette introduction aux recherches effectuées sur les débits de dose γ en milieu sédimentaire est de définir les raisons d'être de cette partie méthodologique. L'étude chronologique du Roc de Marsal (chapitre 9) a mis en lumière un certain nombre de questions concernant les méthodes de datation par luminescence. Si quelques questions posées par l'étude de ce site vont ici être exposées afin de placer les recherches en dosimétrie γ dans leur contexte, le lecteur est renvoyé au chapitre 9 pour tout ce qui concerne l'étude de ce site. En particulier, les affirmations et questions d'ordre archéologique ne seront pas détaillées ici, ni même justifiées et les références bibliographiques correspondantes sont délibérément absentes de cette partie. Il est important de souligner que le Roc de Marsal n'est qu'un exemple servant à illustrer les problèmes rencontrés ; les solutions proposées dépassent le cadre de cet exemple.

Compte tenu de l'importance du Roc de Marsal dans l'étude du paléolithique moyen en Aquitaine, il a été décidé de mettre en œuvre d'importants moyens de datation. Ainsi, une trentaine d'échantillons ont été prélevés à des fins de datation, parmi lesquels on recense des silex chauffés, des échantillons de quartz provenant des différents niveaux identifiés en stratigraphie, ainsi que des échantillons de quartz provenant de zones de combustions, c'est-à-dire du quartz chauffé. Deux méthodes de datation ont été mises en œuvre : la thermoluminescence a été employée pour étudier les roches chauffées et trois échantillons de sédiment rubéfié, et la luminescence optique a été appliquée aux échantillons de sédiment, incluant ceux provenant de zones de combustion.

En ce qui concerne la dosimétrie γ , il est important de rappeler que tout échantillon enfoui en milieu sédimentaire reçoit un débit de dose γ provenant de plusieurs dizaines de centimètres alentour. Le Roc de Marsal est une cavité naturelle en milieu karstique, creusée dans les falaises surplombant la vallée de la Vézère. Le substratum rocheux est de nature calcaire, et cette nature calcaire correspond généralement - c'est le cas du Roc de Marsal - à des teneurs en radioéléments très faibles comparées à celles communément trouvées en milieux argileux. Il existe donc au sein de cette cavité partiellement remplie de sédiments de fortes hétérogénéités radiochimiques, en particulier au contact entre le substratum et le remplissage sédimentaire.

Afin de déterminer les débits de dose γ reçue par les échantillons, des fractions d'échantillons ont été séchées puis broyées afin de procéder à des mesures de spectrométrie γ à bas bruit de fond. Ces fractions représentent entre quelques grammes et quelques dizaines de grammes ; compte tenu des fortes hétérogénéités radiochimiques à l'échelle de la dizaine de centimètres, il est apparu risqué de considérer que les quelques grammes de

sédiment ainsi analysés étaient représentatifs de la masse de sédiment - de l'ordre de quelques tonnes - impliquée dans les débits de doses γ reçu par les échantillons. Ainsi les mesures de dosimétrie γ directes, c'est-à-dire réalisées en mesurant la dose reçue par des dosimètres artificiels insérés dans les coupes stratigraphiques pendant une période connue, ont été privilégiées.

Deux cas de figure très distincts se présentent alors, suivant les échantillons prélevés à des fins de datations paléodosimétriques¹. En ce qui concerne les échantillons prélevés sur les sections du site, nous avons inséré les dosimètres, dans des tubes métalliques bloquant la composante β du rayonnement, à l'endroit même des prélèvements : ainsi les débits de dose mesurés sont aussi proches que possible des débits effectivement reçus les échantillons. Le deuxième cas de figure concerne les échantillons directement reliés à l'activité humaine sur le site, à savoir les pièces chauffées ainsi que les échantillons de sédiments prélevés dans les zones de combustion. La localisation de ces artefacts est inconnue avant les fouilles : par conséquent, il est impossible d'effectuer les mesures directement à l'emplacement des échantillons. Or, les débits de dose mesurés à l'aide de dosimètres varient d'un facteur allant de 1 à 5 - pour des distances entre deux points de mesure n'excédant pas 60 cm.

Dans ces conditions, les très fortes variations de débit de dose γ sur le site limitent sérieusement la précision des âges déterminés pour des échantillons directement reliés à l'activité anthropique. Les chapitres suivants concernent l'amélioration des protocoles de mesure des débits de dose γ *in situ*. Le chapitre 4 consiste en une étude, fondée sur des simulations numériques réalisées à l'aide de GEANT4, de l'applicabilité des techniques de seuil en spectrométrie γ de terrain dans le but d'améliorer la précision des mesures, tout en les rendant plus courtes. Le suivant (chapitre 5) présente une série de mesures expérimentales validant ces simulations, tout en ayant permis d'étalonner le spectromètre γ à cellule de détection en tribromure de lanthane (LaBr₃) récemment acquis par le CRPAA. Enfin le chapitre 6 consiste en la définition d'un protocole de mesures non-invasives permettant de reconstruire, en trois dimensions, les profils de débits de dose γ en milieu sédimentaire hétérogène.

¹ Les problèmes exposés ici s'appliquent tout autant aux datations par Résonance Paramagnétique Electronique qu'aux datations par luminescence.

Chapitre 4. Les techniques du seuil à l'épreuve des simulations numériques

*Introduction à l'article : Guérin, G., Mercier, N., 2011. Determining gamma dose rates by field gamma spectroscopy in sedimentary media: Results of Monte Carlo simulations, *Radiation Measurements* **46** (2), 190-195.*

L'approche classique d'exploitation des spectres acquis à l'aide d'un spectromètre γ de terrain est calquée sur celle utilisée en spectrométrie γ à bas bruit de fond de laboratoire : il s'agit d'exploiter un certain nombre de pics de détection, d'énergies caractéristiques des radioéléments que l'on souhaite doser. Ainsi, par exemple, le pic à 1460.82 keV est caractéristique du ^{40}K . Si cette exploitation des spectres, appelée technique des fenêtres puisque l'on n'exploite que certaines portions bien précises des spectres acquis, est très efficace pour la spectrométrie de laboratoire, elle est beaucoup moins satisfaisante pour la spectrométrie de terrain. Cela est dû à plusieurs facteurs : tout d'abord les spectres enregistrés en laboratoire sont très peu dégradés et donc très proches des spectres d'émission des rayons γ puisque les rayons γ traversent un faible volume avant de rentrer dans la cellule détectrice ; lors de mesures *in situ* les rayons γ proviennent d'un volume sphérique d'un rayon de plusieurs dizaines de centimètres, on enregistre donc des spectres largement dégradés suite aux interactions Compton dans le sédiment. Ensuite, les spectromètres de laboratoires sont généralement entourés de blindages en plomb atténuant les rayonnements extérieurs, synonymes de bruit ; enfin le temps d'acquisition des spectres en laboratoire n'est pas limité, contrairement aux mesures de terrain qui doivent être assez rapides.

Pour toutes ces raisons, une alternative a été proposée pour exploiter les spectres enregistrés sur le terrain : il s'agit de la technique dite du seuil (Murray *et al.*, 1978), qui repose sur une relation de proportionnalité entre, d'une part le nombre de coups enregistrés, par unité de temps, par le spectromètre de terrain inséré dans un milieu sédimentaire, et d'autre part le débit de dose γ de ce milieu. Cette relation empirique a récemment été démontrée pour un spectromètre à sonde en LaBr_3 , de diamètre 3.8 cm et de hauteur 3.8 cm (Mercier et Falguères, 2007), en utilisant les blocs de calibration du laboratoire de recherche pour l'histoire de l'art et l'archéologie de l'université d'Oxford (Bowman, 1976 ; Rhodes et Schwenninger, 2007). L'objectif de l'article qui suit est d'étudier l'applicabilité de la technique du seuil dans différents milieux, d'évaluer la précision que l'on peut attendre de cette technique lorsque différents paramètres varient. Le placement d'une cellule de détection en iodure de sodium (NaI) a été simulé numériquement avec GEANT4 : les effets de la composition chimique et radiochimique du milieu, de la teneur en eau et des déséquilibres de la chaîne de ^{238}U ont ainsi été quantifiés. Ces simulations ont permis de définir une autre technique d'exploitation des spectres, baptisée technique du seuil en énergie par opposition à la technique du seuil en nombre de coups. Exploitant une plus grande partie des spectres, cette technique du seuil en énergie est plus précise, plus rapide et moins sensible aux variations de milieu mentionnées précédemment que la technique du seuil en nombre de

coups, et *a fortiori* que la technique des fenêtres. Le gain en temps de mesure est significatif : pour le même nombre de coups exploités la technique du seuil en énergie réduit le temps d'acquisition des spectres d'un facteur compris entre 10 et 100.



Contents lists available at ScienceDirect

Radiation Measurements

journal homepage: www.elsevier.com/locate/radmeas

Determining gamma dose rates by field gamma spectroscopy in sedimentary media: Results of Monte Carlo simulations

Guillaume Guérin*, Norbert Mercier

Institut de Recherche sur les Archéomatériaux, UMR 5060 CNRS - Université de Bordeaux, Centre de Recherche en Physique Appliquée à l'Archéologie (CRP2A), Maison de l'archéologie, 33607 Pessac cedex, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 17 September 2009

Received in revised form

21 October 2010

Accepted 24 October 2010

Keywords:

Gamma dose rate

Monte Carlo simulations

Geant4

Threshold technique

ABSTRACT

Field gamma spectrometers are widely used to determine gamma dose rates in sedimentary media. However the most widely used technique—the ‘window technique’—is time consuming and introduces important statistical uncertainty in the determination of the radioelement contents, and finally on the gamma dose rate. The threshold technique directly relates the number of counts recorded above certain threshold energy to the gamma dose rate. Recently new experimental measurements further investigated this technique but it has not been tested in various sedimentary media. In this paper, numerical simulations using a specifically designed Geant4 code allow to test the sensitivity of this technique to changes of sediments nature, humidity content and disequilibrium in the U-series. Finally another threshold technique, relating the gamma dose rate to the energy per unit time deposited above another threshold energy, is investigated. It is shown that the latter has a number of advantages compared to the classical techniques. Experimental results testing this approach are presented.

Published by Elsevier Ltd.

1. Introduction

In the field of paleodosimetric dating methods, it is quite common to use a field gamma spectrometer to determine the gamma contribution to the environmental dose rate. The most widely used technique to convert the obtained spectrum to dose rate is the ‘window technique’ – which consists of selecting three different parts of the spectrum to calculate the concentrations of uranium, thorium and potassium (U- and Th-series, and K) in the sediment surrounding the detector.

Alternatively the ‘threshold technique’ (Murray et al., 1978) is based on a relation of proportionality between the number of counts recorded above certain ‘threshold energy’ and the gamma dose rate, independently of the gamma source composition (U and Th-series, and K). The gamma dose rate is directly deduced from the cumulative spectrum scored in the sediment. The main advantage of this technique is that it does not require the calculation of radionuclide content, has improved precision and reduces the counting time of measurement. Nevertheless, the only available experimental observations were made on the Oxford calibration blocks, which differ significantly from typical sediments (Mercier and Falguères, 2007).

In this paper, we present the results of Monte Carlo modeling of gamma rays emitted in various typical sediments and interacting with a detector—which is the cell of a field gamma spectrometer, represented in the model by a 1.5 inch × 1.5 inch Sodium Iodide (NaI) crystal. We first detail results concerning the threshold technique as proposed by Murray et al. (1978), and then the results concerning another version of this technique. It appears that the most efficient solution consists of measuring the energy deposited above a threshold, instead of the number of counts. The second objective is to see how these two threshold techniques respond to variations in composition, density, moisture content of the soil, and disequilibrium in the U-series.

The sediments meet the ‘infinite matrix assumption’ (Aitken, 1985), and several case studies are investigated: first the threshold technique is applied to measure dose rates in a calcareous environment; then these results are compared with those obtained in other typical soils (siliceous ground, organic rich sediments and basaltic lava). The effects of moisture and of disequilibrium in the U-series are discussed. Finally an experimental validation of spectra published by Mercier and Falguères (2007) is presented.

2. Geant4 and its validation

Numerical modeling has already been applied to luminescence dosimetry questions (see Nathan et al. (2003), Aznar et al. (2003)). Monte Carlo calculation techniques are perfectly suited for the

* Corresponding author. Tel.: +33 5 57 12 10 84; fax: +33 5 57 12 45 50.
E-mail address: guillaumeguerin@gmail.com (G. Guérin).

simulation of particles (in this case gamma and secondary beta radiations) interacting in a soil. In this paper results were obtained with the GEANT4 code, developed at CERN, Geneva (<http://geant4.web.cern.ch/geant4/>). This simulation tool allows the emission of particles—here photons—at specific points within a specified volume, with a certain energy (either fixed in the case of potassium or sampled among the spectral lines of the U and Th-series; see [supplementary material](#)). The primary photon is then tracked in the soil and interactions are stochastically treated according to tabulated cross sections; the treatment for such a primary particle ends when all secondary particles—e.g., electrons generated by Compton and photoelectric effect—either exit the geometry or lose their energy. It should be noted here that secondary particles having a range or mean free path lower than 1 mm are not generated to avoid infrared divergence. In this case, the residual energy is scored at the interaction point. It has been shown (e.g. [Guimarães et al. \(2008\)](#)) that the GEANT4 toolkit is suitable for dosimetry questions that involve photons of energy ranging from a few keV to a few MeV. Moreover, GEANT4 is an open-source software.

2.1. Annual dose in the “infinite matrix assumption”

To validate the GEANT4 code for dosimetry purposes, a simple geometry, basically formed by a uniform sediment cube (side: 2 m) and a small dimensioned detector placed at the centre of this cube, leads to a good verification tool: the dose rate in the ‘infinite matrix’ case ([Aitken, 1985](#)) for a given gamma source concentration. Simulations consist of studying the energy recorded by the detector cell placed in a uniform matrix, these two geometry elements having the same density and chemical composition. In order to match the geometry of NaI cells commonly used in field gamma spectroscopy measurements, the detecting cell is defined as a cylinder of dimensions 1.5 inch \times 1.5 inch. Gamma particles are homogeneously and isotropically emitted within a sphere of radius 80 cm—including in this case the detecting cell—with energies corresponding to the desired spectrum (K, U and Th-series). These emission spectra have been derived from data provided by the National Nuclear Data Center (NNDC)¹, downloaded on 1 May, 2008. The simulation results are presented in [Table 1](#), and are consistent with the values of dose rate in the infinite matrix assumption deduced from the NNDC data. These two sets of data however slightly differ from the data in [Adamiec and Aitken \(1998\)](#), downloaded on 22nd June 1998. This is due to updated values of radioactive period for ⁴⁰K ([Grau Malonda and Grau Carles \(2002\)](#) and [Kossert and Gunther \(2004\)](#)) and of decay radiation data for a number of nuclides (see [Browne \(2001\)](#)) for ²³¹Th, ²³¹Pa, ²²⁷Ac, ²²⁷Th, ²²³Fr, ²²³Ra, ²¹⁹Rn).

2.2. Energy deposition range

To characterize the energy deposition, the detecting cell was placed at the centre of the emission sphere whose radius was increased in size from 10 to 80 cm. The growth of the measured dose rate with radius is shown in [Fig. 1](#). With a radius of 80 cm more than 99% of the infinite matrix dose rate is recorded by the detector. Hence a radius 80 cm provides a matrix that can be considered infinite.

3. The counting threshold technique

3.1. Normalized cumulative spectra

In these simulations, a fixed number of photons are emitted inside the emission sphere (radius: 80 cm) of calcareous sediment

Table 1

Comparison of the calculated dose rates (mGy ka^{-1}) in the infinite matrix assumption with the results of simulations. Concentrations are given in mass percentage. The values were obtained by uniformly and isotropically emitted photons in a sphere of radius 80 cm, made of calcareous sediment. Uncertainties in italic correspond to one standard deviation of the mean values of 20 independent runs.

	Tabulated value	Simulation result	
Potassium (1%)	248.5	245.5	4.8
Thorium (1 ppm)	47.93	48.44	1.22
Uranium (1 ppm)	111.5	111.1	2.7

(see [Table 2](#) for composition) with uniform and isotropic sampling. The detector is a cylinder (1.5" \times 1.5") made of NaI surrounded by a metallic shell of thickness 1 mm (mass composition is Al: 95%, Cu: 4% and Mg: 1%). The energy deposited by gamma and beta radiations in the detecting cell is recorded. The simulated spectra (U and Th-series, and K) are thus as they are recorded with field gamma spectrometers, even though in this modeled case the efficiency of the detector is not taken into account.

The corresponding cumulative spectra are built: for each channel the number of photons depositing energy greater than the channel value is calculated. In order to compare the spectra corresponding to the U and Th-series, and K, they are normalized to match a value of 1 Gy ka^{-1} according to the conversion factors given in [Table 1](#). [Fig. 2](#) displays the three normalized cumulative spectra obtained with a NaI crystal. The two spectra corresponding to the U and Th-series are similar within the whole energy range, whereas the potassium spectrum has a different shape. However, around 300 keV, the three spectra are close to each other.

3.2. Standard deviation and energy band for the threshold

The relative standard deviation between the three cumulative spectra as a function of energy is plotted on [Fig. 2](#). As expected, it reaches a minimum (3.3%) at 296 keV. Moreover, the curve is approximately flat in the 296–338 keV region, at values lower than 5%. In other words, for a 1 Gy ka^{-1} dose rate, the number of counts per second recorded by the NaI crystal above a fixed energy within this range depends only slightly on the nature of the emitting radioelements. Our simulated cumulative spectra, as well as the relative standard deviation plot, are in good agreement with the experimental data in [Mercier and Falguères \(2007\)](#) for the Oxford calibration blocks, comprising one spectrum for each gamma source.

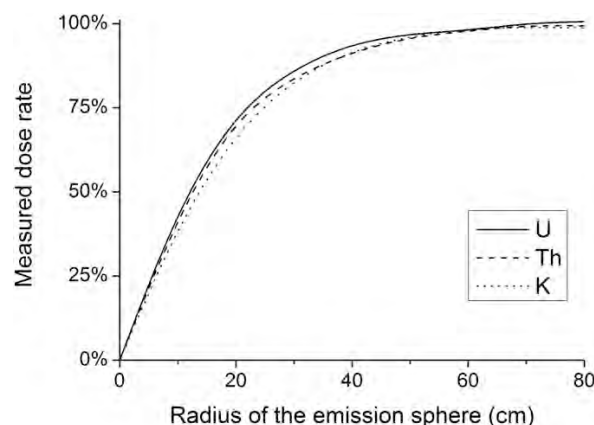


Fig. 1. Dose rate measured with a detecting cell as a function of the emission sphere radius, expressed as a percentage of the tabulated dose rate in the infinite matrix assumption. In this case, the soil and the sediment have the same chemical composition (calcareous soil, dry).

¹ <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>

Table 2

Composition of the different simulated environments, given in weight %. Contents for humid soils have been calculated after estimation of the porosity by comparing densities of materials in geological and solid crystalline forms; the value for water content is set at 80% of the saturation level.

Sediment	Calcareous		Siliceous		Organic rich		Basaltic lava
	Dry	Humid	Dry	Humid	Dry	Humid	
H	0.0	1.5	0.0	1.4	0.0	1.6	0.0
C	8.4	7.3	0.0	0.0	29.0	24.9	0.0
N	0.0	0.0	0.0	0.0	1.2	1.0	0.0
O	52.1	56.9	52.9	57.3	38.3	45.5	44.0
F	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.4	0.0
Na	0.1	0.1	0.2	0.2	1.9	1.6	3.0
Mg	0.2	0.1	0.5	0.4	2.2	1.9	3.9
Al	2.0	1.7	8.8	7.7	1.0	0.9	8.5
Si	6.5	5.6	27.7	24.3	5.4	4.6	21.9
P	1.6	1.4	0.1	0.1	3.3	2.8	0.2
S	0.1	0.0	0.0	0.0	0.7	0.6	0.0
Cl	0.1	0.0	0.0	0.0	4.1	3.5	0.0
K	0.3	0.3	1.6	1.4	1.9	1.6	1.7
Ca	25.2	21.9	0.5	0.4	9.7	8.3	7.2
Ti	0.1	0.1	0.6	0.5	0.1	0.1	1.2
Mn	0.1	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	0.2
Fe	3.4	3.0	7.0	6.1	0.7	0.6	8.4
Density	1.80	2.07	1.80	2.05	1.60	1.87	2.60

3.3. Number of counts above threshold

As a first approximation we considered the gamma dose rate to be the result of equal contributions from potassium, thorium and uranium. In this particular case a simple proportionality rule allows the dose rate to be calculated using the average value given in Table 3. Henceforth the threshold will be taken at the particular value of 300 keV; this choice is partly arbitrary, but the lower the energy (inside the suitable energy band), the higher the number of counts and thus the more precise in statistical terms. It should be noted here that the uncertainties concerning the number of counts above threshold taken independently for U, Th, and K are 0.8%, 0.7% and 0.6% respectively (estimation on 20 independent simulation runs).

3.4. Uncertainties and counting time

It is worth noting here the main advantages of this technique, compared with the 'classical' window approach. The first source of

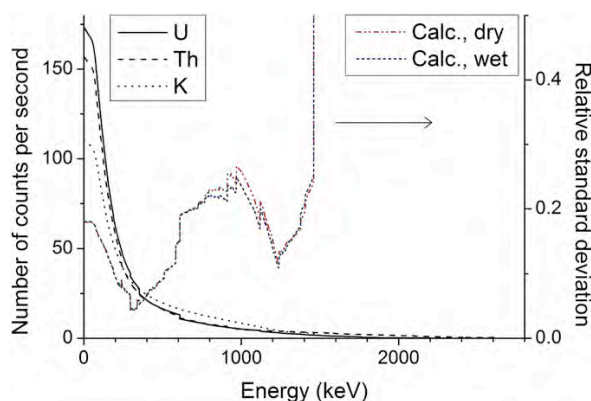


Fig. 2. Simulated cumulative spectra recorded by a 1.5 inch \times 1.5 inch NaI detector in an infinite calcareous homogeneous sediment. Each spectrum has been normalized to a dose rate of 1 Gy ka⁻¹, according to conversion factors presented in Table 1. The standard deviation between the three spectra (U and Th-series, and K) is shown in this dry calcareous sediment, and then in the wet same soil. Notice the energy band around 300 keV, where the standard deviation reaches its minimum (4%).

Table 3

Counts (s⁻¹) recorded above 300 keV by a 1.5" \times 1.5" NaI detector in different infinite homogeneous sediments, after normalization to a dose rate of 1 Gy ka⁻¹.

Sediment	Element			Average	Stand. dev.
	U	Th	K		
Calcareous	33.92	30.48	31.93	32.1	1.4
Calc. wet	33.82	30.42	31.59	31.9	1.4
Siliceous	34.11	30.47	32.27	32.3	1.5
Silic. wet	33.72	30.17	32.00	32.0	1.0
Org. rich	33.73	30.41	31.89	32.0	1.4
Org. wet	33.47	30.05	31.81	31.8	1.4
Lava	34.50	31.34	32.60	32.8	1.3
Average	33.9	30.5	32.0	32.1	1.4
Stand. dev.	0.3	0.4	0.3	0.3	

uncertainty in the window technique lies in the interdependency of the three-radioelement concentrations. The thorium concentration is calculated using the number of counts in the 2.615 MeV spectral peak (²⁰⁸Tl is the only contributor) and the concentrations in potassium and uranium are deduced from the numbers of the counts in the 1.461 MeV (⁴⁰K) and 1.764 MeV (²¹⁴Bi) peaks, respectively. For the latter two cases, the peaks also contain unwanted components from Compton edges emitted by higher energy primary photons, including those from other isotopes, which potentially gives rise to error propagation. The threshold technique allows the removal of this interdependency. However, in a case where, for instance, thorium contributes far more to the dose than uranium and potassium, taking the average value of the three counting rates would result in an overestimation of the measured dose rate, by up to 5%.

Even though the two approaches have specific sources of uncertainty, the threshold approach offers a statistical advantage by taking into account a very wide part of the spectrum. In a sediment containing only potassium as a source of radioactivity, the counting time necessary to get the same arbitrary number of counts above threshold energy as the number of counts recorded in the 1.461 MeV channel (used in the window technique)—hence the same statistical precision—appears to be roughly divided by a factor 10. By the same reasoning, the counting time is divided by a factor of 100 for the corresponding U case, and 80 for Th. Practically it reduces measurement time in the field and also provides the opportunity to increase number of measurements, which is important when dealing with heterogeneous configurations.

3.5. Comparison with other typical sediments

To evaluate the applicability of the threshold technique to real cases, several soil compositions were investigated.

Here, it should be emphasized that we restricted ourselves to homogeneous sediments, of such volume to obtain an infinite matrix. The objective was here to sweep a wide range of typical soil compositions; first, simulations were carried out for a siliceous soil, of density 1.8 g cm⁻³ (see Table 2 for element content). To also test the influence of both density and average atomic number the simulated NaI detecting cell was placed in a heavy, dense soil (basaltic lava of density 2.6 g cm⁻³) and in a very porous soil containing organic matter (density 1.6 g cm⁻³).

For each soil, two parameters are of great importance: the energy range suitable for the definition of the threshold and the number of counts above it. The question of the energy band is clearly dependent on the emission spectra of the different gamma sources. For each tested soil composition, the relative standard deviation between normalized cumulative spectra corresponding to the U and Th-series, and K, ranges from 4 to 5% between 296 and 338 keV.

The counting rates were drawn from the simulated spectra recorded by the NaI cell (Table 3), by calculating the average number of counts per second recorded for energies above 300 keV, after normalization of the cumulative spectra to match a 1 Gy ka^{-1} dose rate; no significant differences were found between the different simulated media. These results show that the threshold technique seems to be suitable regardless of the soil nature, whereas the only experimental results available were taken in radioactive doped blocks set up at the Research Laboratory for Archaeology and the History of Art, in Oxford (Rhodes and Schwenninger, 2007). Yet the effect of moisture on this technique still needs to be evaluated.

3.6. Effect of moisture

We addressed the question of whether the water content changes either the energy band where the relative standard deviation reaches its minimum, or the values of counting rates.

The first question was to determine the quantity of water that could be added to a soil in order to retain realistic conditions. To tackle this problem, we first estimated the porosity of the different simulated media by comparing the typical densities of dry soils (siliceous and calcareous soils, 1.8 g cm^{-3} ; organic rich environment, 1.6 g cm^{-3} ; lava, 2.6 g cm^{-3}) with the densities of the same materials when fully compacted, i.e. in their crystalline form. Measurements of the density of sediments found in Diepkloof, South Africa (C. Tribolo, personal communication) were used in arriving at the value used for the organic rich sediment. Such calculations gave porosity values close to 20%, that is the fraction of volume that is filled with air when the soil is dry and—partly—with water when humid. Setting the water content at 80% of the saturation value for each soil was judged to be a reasonable choice, since it is a common value in moderate climate regions, and then new soil compositions (Table 2) were calculated. Note that water does not penetrate the basaltic lava.

In this simulation series, making the homogeneous matrix assumption, the only change lies in the addition of water to the soil compositions. For each simulation, the number of primary photons that are generated during the run is set. Fixing a content for the parents of the radioactive series (1% for potassium, 1 ppm for uranium and thorium, in weight concentrations in dry sediments) enables the calculation of the specific activity of soil (Bq kg^{-1}) and hence the gamma dose rates for the ‘infinite matrix’ assumption. When water is added to the sediment, the weight concentrations are recalculated since water has its own weight. Then gamma dose rates obtained for each soil are compared, first dry and then with water. It appears that the measured dose rates are proportional to the concentrations—thus reflecting the dilution of radioelements.

The effect of water on the threshold technique was first examined by testing for a shift in the energy band suitable for the definition of the threshold. Fig. 2 shows that this energy band has exactly the same boundaries as in the case of dry soils, thus showing that the introduction of water has no effect on this part of the technique. It also confirms the impression that this band depends more on the primary emission spectra than on parameters characterizing the environment of measurement.

The potential effect of water content on the number of counts used to determine the environmental gamma dose rate was then checked. Table 3 shows that there is no significant difference between the counting rates for wet sediments, as compared to the corresponding values for dry sediment. Hence this series of simulations shows that the threshold technique is applicable independently of the nature of the soil (including its density) and the moisture content.

Table 4

Counts (s^{-1}) recorded above 300 keV by a $1.5'' \times 1.5''$ NaI detector for different cases of U-series disequilibrium (100% post Rn - post Rn progeny are absent) in a calcareous sediment, after normalization to a dose rate of 1 Gy ka^{-1} .

U-series			
Equilibrium	Loss of 100% post ^{222}Rn	Loss of 50% post ^{222}Rn	Loss of 100% pre ^{222}Rn
33.92	18.76	32.00	32.22

3.7. Disequilibrium in the U-series

The most frequent source of disequilibrium in radioactive series lies in the leaching of ^{226}Ra and/or ^{222}Rn escape (in the ^{238}U -series). The effects of different types of disequilibrium on the threshold technique were tested: a) an emission spectrum with all ^{222}Rn and progeny removed; b) upper members of the chain removed (i.e., no pre- ^{222}Rn elements present); c) an intermediate situation where ^{222}Rn partially escaped (50% of the ^{222}Rn and progeny lost). It should be noted that the pre- ^{222}Rn elements contribute less than 5% of the annual gamma dose (Aitken, 1985) for the U-series.

The results for the threshold technique are shown in Table 4. The numbers of counts above threshold are similar to the values already presented, except for the case where no post- ^{222}Rn elements are present. In this case following normalization, approximately half as many counts above 300 keV are detected compared with the whole U-series. Although in such conditions the contribution from the U-series to the total gamma dose rate is relatively small, there are some differences in counting rates where ^{222}Rn loss occurs. In a soil where the contents in post- ^{222}Rn elements are only half of the parent content, the averaging of K, U and Th factors gives 32.1 photons per second without correction for disequilibrium, and 31.5 with the appropriate correction, corresponding to a difference of 1.9%.

4. The energy threshold technique

4.1. Simulation results

While investigating the threshold technique as proposed by Murray et al. (1978), another approach to determine directly the gamma dose rates was investigated. Instead of building cumulative spectra in terms of number of counts, we plotted for each channel

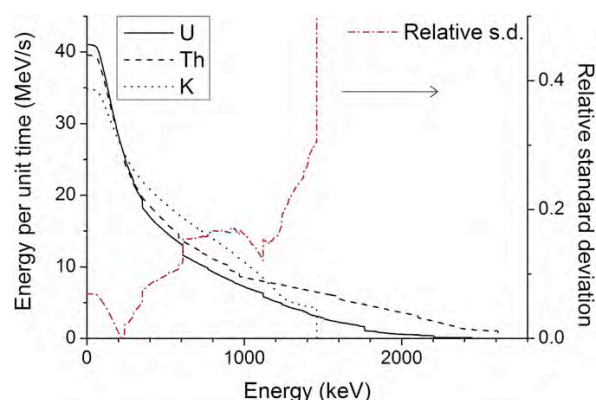


Fig. 3. Simulated cumulative energies recorded by a 1.5 inch \times 1.5 inch NaI detector in an infinite calcareous homogeneous sediment. Each spectrum has been normalized to a dose rate of 1 Gy ka^{-1} . The relative standard deviation between the three cumulative energy lines reaches a minimum (0.1%) at around 200 keV.

Table 5

Energy per unit time (MeV s^{-1}) recorded above 215 keV by a $1.5'' \times 1.5''$ NaI detector in different infinite homogeneous sediments, after normalization to a dose rate of 1 Gy ka^{-1} .

Sediment	Element			Average	Stand. dev
	U	Th	K		
Calcareous	27.14	27.07	26.98	27.1	0.1
Calc. wet	27.04	27.04	26.70	26.9	0.2
Siliceous	27.26	27.05	27.31	27.2	0.1
Silic. wet	26.82	26.78	27.03	26.9	0.1
Org. rich	26.96	27.10	27.01	27.0	0.1
Org. wet	26.77	26.73	26.85	26.8	0.1
Lava	27.55	27.85	27.48	27.6	0.2
Average	27.1	27.1	27.1	27.1	0.0
Stand. Dev.	0.2	0.3	0.2	0.3	

the energy deposited above the corresponding energy (Fig. 3). A convergence of curves obtained with the U and Th-series, and K is also observed at a particular energy value. This technique has some advantages. The threshold energy is lower than for the cumulative spectra, thus increasing the useable part of the spectrum (doubling the counts) and so lowering the statistical uncertainty for a given measurement time. Also the relative standard deviation between values obtained with U and Th-series, and K (Fig. 3) is lower than that obtained with the cumulative number of counts (ranging between 0.1% and 1% for the 206–231 keV energy interval) for all the simulated sediments. The threshold value was arbitrarily fixed at 215 keV, and the energy per second deposited above it was calculated for each gamma source in the different soils (Table 5). For the calcareous sediment, the rate of energy deposition above 215 keV for K, U and Th-series is $26.98 \pm 0.08 \text{ MeV s}^{-1}$, $27.14 \pm 0.11 \text{ MeV s}^{-1}$ and $27.07 \pm 0.11 \text{ MeV s}^{-1}$ respectively.

The average rate of energy deposition for the three gamma sources, 27.1 MeV s^{-1} , corresponds to a gamma dose rate of 1 Gy ka^{-1} and the calculated variation in this value by change of environment is less than 3%. An examination of the effect of disequilibrium in the U-series produced similar results (Table 6) for the counting threshold technique; in the case of a soil where 50% of ^{222}Rn and progeny are lost, the rate of energy deposition above threshold is 26.9 MeV s^{-1} per 1 Gy ka^{-1} , which is 0.7% lower than the above average value.

4.2. Experimental validation

To test the new threshold technique, the experimental data obtained by Mercier and Falguères using a NaI detector placed in the Oxford calibration blocks (Fig. 4) were used. This series of measurements was used to determine the optimum threshold energy for the spectrometer, and the corresponding rate of energy deposited above it per second.

These results give an energy deposition rate of $49.8 \pm 0.6 \text{ MeV s}^{-1}$ above 194 keV—where the standard deviation between the rates for K, U- and Th-series reaches its minimum value (1.2%)—for a dose rate of 1 Gy ka^{-1} . With the same spectrometer, Mercier and Falguères recorded a spectrum in the block made of building bricks available at the Gif laboratory. The

Table 6

Energy per unit time (MeV s^{-1}) recorded above 215 keV by a $1.5'' \times 1.5''$ NaI detector for different cases of disequilibrium in the U-series in a calcareous sediment, after normalization to a dose rate of 1 Gy ka^{-1} .

U-series			
Equilibrium	Loss of 100% post Rn	Loss of 50% post Rn	Loss of 100% pre Rn
27.14	13.63	26.71	27.29

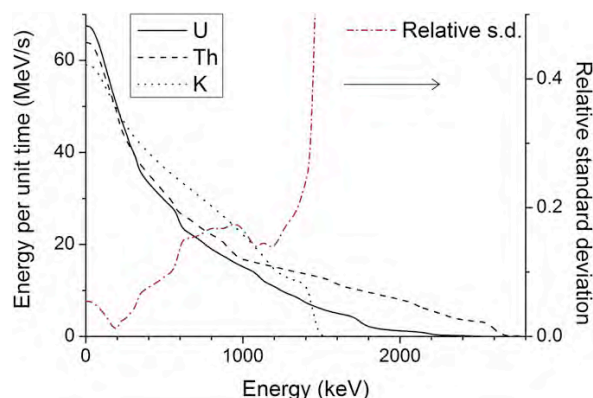


Fig. 4. Normalized experimental cumulative energies recorded by a 1.5 inch \times 1.5 inch NaI detector on the Oxford calibration blocks (Mercier and Falguères, 2007). The relative standard deviation between the three experimental normalized cumulative energies reaches its minimum (1.2%) at 194 keV.

radioisotope content of these bricks produced in the Auvergne region (France) was determined by NAA and high resolution gamma spectrometry and are, on average: U, $6.40 \pm 0.68 \text{ ppm}$; Th, $22.89 \pm 2.43 \text{ ppm}$; K, $3.61 \pm 0.23\%$. These analyses indicated no disequilibrium in the U- or Th-series. A $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ dosimeter placed at the centre of the block recorded a dose rate to quartz of $2.578 \pm 0.080 \text{ Gy ka}^{-1}$ —corrected for a small cosmic contribution estimated to be 0.160 Gy ka^{-1} (Prescott and Hutton, 1994). The gamma dose rate deduced from the energy threshold technique ($2.52 \pm 0.03 \text{ Gy ka}^{-1}$) was found to be in good agreement with these values. The associated uncertainty comes from the calibration (systematic, 1.2%) and the number of counts (statistical, 0.2%).

5. Conclusion

Assuming that the range of the different soil compositions tested is sufficiently wide, the series of simulations used indicates that the two threshold techniques, used to calculate the environmental gamma dose rate are applicable in any sediment and are not sensitive to either the presence of water in the ground or disequilibrium in the U-series chain.

Seen as an alternative to the classical 'window technique', the threshold techniques offer a number of advantages. The concentrations of radioelements do not need to be calculated, reducing error propagation and lower counting times are possible, in particular a doubling of the number of counts is obtained in the energy threshold technique. Also, both techniques show low variability (1% s.d. for average counting/energy deposition rate) with change in the sedimentary media. While the counting technique is more sensitive to changes in the energy of the gamma source ($32.1 \pm 1.4 \text{ counts s}^{-1}$ above 300 keV for a calcareous environment) than the energy technique ($27.1 \pm 0.1 \text{ MeV s}^{-1}$ above 215 keV for the same environment), the systematic errors for the latter do not exceed 0.4%.

The simulated data for the energy threshold technique show good qualitative agreement with the experimental spectra obtained by Mercier and Falguères. However, the efficiency factors of real detectors may affect the energy deposition rate and also the selection of the energy band for the threshold, which strongly depends on the emission spectra. This is reflected in the difference observed between the threshold energy bands and the energy deposition rate obtained from the experimental data and those obtained from the simulations. Hence in practical terms a good

energy calibration of the spectrometer is required and Miallier et al. (2009), who applied the two threshold techniques to a series of radiometric reference rocks, have shown that they are well suited for dosimetry measurements.

Acknowledgements

The authors would like to thank Ian Bailiff for his helpful remarks and suggestions, the University of Bordeaux 3 for financial support and the calculation centre of the IN2P3-CNRS for access to simulation facilities.

Appendix A. Supplementary material

Supplementary data related to this article can be found online at doi:10.1016/j.radmeas.2010.10.003.

References

- Adamiec, G., Aitken, M.J., 1998. Dose-rate conversion factors: update. *Ancient TL* 16, 37–50.
- Aitken, M.J., 1985. *Thermoluminescence Dating*. Academic Press, London.
- Aznar, M.C., Nathan, R.P., Murray, A.S., Bøtter-Jensen, L., 2003. Determination of differential dose rates in a mixed beta and gamma field using shielded Al₂O₃:C: results of Monte Carlo modeling. *Radiation Measurements* 37, 329–334.
- Browne, E., 2001. Nuclear data sheets for A = 215,219,223,227,231. *Nuclear Data Sheets* 93, 763–1061.
- Grau Malonda, A., Grau Carles, A., 2002. Half-life determination of ⁴⁰K by LSC measurements. *Applied Radiation and Isotopes* 56, 153–156.
- Guimarães, C.C., Moralles, Maurício, Okuno, Emico, 2008. Performance of GEANT4 in dosimetry applications: calculation of X-ray spectra and kerma-to-dose equivalent conversion coefficients. *Radiation Measurements* 43, 1525–1531.
- Kossert, K., Gunther, E., 2004. LSC measurements of half-life of ⁴⁰K. *Applied Radiation and Isotopes* 60, 459–464.
- Mercier, N., Falguères, C., 2007. Field gamma dose-rate measurement with a NaI(Tl) detector: re-evaluation of the "threshold" technique. *Ancient TL* 25, 1–4.
- Miallier, D., Guérin, G., Mercier, N., Pilleyre, T., Sanzelle, S., 2009. The Clermont radiometric reference rocks: a convenient tool for dosimetric purposes. *Ancient TL* 27, 37–44.
- Murray, A.S., Bowman, S.G.E., Aitken, M.J., 1978. Evaluation of the gamma dose-rate contribution. *PACT* 2, 84–96.
- Nathan, R.P., Thomas, P.J., Jain, M., Murray, A.S., Rhodes, E.J., 2003. Environmental dose rate heterogeneity of beta radiation and its implications for luminescence dating: Monte Carlo modeling and experimental validation. *Radiation Measurements* 37, 305–313.
- Prescott, J.R., Hutton, J.T., 1994. Cosmic ray contributions to dose rates for luminescence and ESR dating: large depths and long-term variations. *Radiation Measurements* 23, 497–500.
- Rhodes, E., Schwenninger, J.-L., 2007. Dose rates and radioisotope concentrations in the concrete calibration blocks at Oxford. *Ancient TL* 25, 5–8.

Chapitre 5. Etalonnage d'un spectromètre gamma de terrain

*Introduction à l'article : Miallier, D., Guérin, G., Mercier, N., Pilleyre, T.,
Sanzelle, S., 2009. The Clermont radiometric reference rocks: a convenient
tool for dosimetric purposes, Ancient TL, 27 (2), 37-42.*

L'acquisition par le CRPAA, en 2009, d'un spectromètre de terrain équipé d'une sonde en tribromure de lanthane (LaBr_3) a nécessité une campagne d'étalonnage de cet appareil en vue de déterminer des débits de dose γ en milieu sédimentaire. Cet article est donc la suite logique de l'article précédent concernant la définition d'un nouveau protocole de mesure. Les simulations réalisées dans l'article précédent concernaient une sonde en iodure de sodium (NaI) ; une première étape a donc consisté à simuler les spectres enregistrés par une sonde de LaBr_3 en milieu sédimentaire afin de déterminer si la technique du seuil pouvait également être mise à profit dans ce cas. En effet, la densité du LaBr_3 est beaucoup plus élevée que celle de NaI , et par conséquent la probabilité d'interaction des rayons γ n'est pas la même dans ces deux cristaux. Qui plus est, cette différence entre les probabilités d'interaction dépend de l'énergie des rayons γ incidents.

Les simulations numériques ont permis de vérifier que les techniques du seuil - en nombre de coups et en énergie - peuvent être mises à profit avec une sonde en LaBr_3 . Des valeurs de seuils spécifiques ont donc été déterminées pour une telle sonde, et ont été utilisées pour étalonner le spectromètre. Les droites d'étalonnage présentées dans l'article qui suit ont été obtenues sur un ensemble de roches de références mises à profit en dosimétrie par le laboratoire de datation par thermoluminescence de Clermont-Ferrand. Ces roches de références sont de compositions chimiques variables et l'étendue des teneurs en radioéléments est très vaste. Les courbes d'étalonnage obtenues ont tout d'abord permis de valider l'approche définie par les simulations numériques ; l'excellente corrélation obtenue pour les deux courbes d'étalonnage a montré l'intérêt de la mise en œuvre de ces techniques de détermination des débits de doses γ pour un ensemble de milieux différents. Cet article constitue la preuve expérimentale que les techniques du seuil permettent de réaliser des mesures de spectrométrie précises et rapides - le gain de temps, à incertitudes statistiques équivalentes, est de l'ordre d'un facteur 10 à 100 suivant les situations (cf. article précédent sur les simulations).

The Clermont radiometric reference rocks: a convenient tool for dosimetric purposes

D. Miallier¹, G. Guérin², N. Mercier², T. Pilleyre¹ and S. Sanzelle¹

1. Laboratoire de Physique Corpusculaire (LPC), Université Blaise Pascal, CNRS/IN2P3, UMR 6533, F-63177 Aubière cedex, France

2. Institut de Recherche sur les Archéomatériaux, UMR 5060 CNRS - Université de Bordeaux, Centre de Recherche en Physique Appliquée à l'Archéologie (CRP2A), Maison de l'archéologie, 33607 Pessac cedex, France

(Received 14 October 2009; in final form 6 November 2009)

Abstract

Boreholes drilled in 8 different rocks situated in the vicinity of the Clermont TL laboratory have been used for testing and calibrating methods devoted to measurement of natural radioactivity. The present paper gives updated data for the nuclide contents and internal dose rates for those reference media. Two examples of application are presented. The first example shows dose rate calibration of a scintillator gamma probe using a threshold method. The second example shows a routine technique for TL dosimetry, based on the rocks for dose rate reference.

Introduction

Various experiments aimed at testing or calibrating techniques devoted to the measurement of natural gamma and X-ray emissions necessitate reference homogeneous media of well known radioactivity. For this purpose, the Clermont TL group (Clermont-Ferrand, France) has been using natural rocks for many years (Sanzelle et al., 1988; Miallier et al., 1988; Soumana et al., 1994). This approach has also been adopted by other luminescence dating groups (Prescott and Hutton, 1988). The use of rocks is an alternative to built blocks such as those prepared at Oxford University with doped concrete (Murray, 1982; Aitken, 1985) or those made of building bricks available in different laboratories (e.g. Gif-sur-Yvette and Bordeaux). One advantage of natural rocks is that they can easily provide homogeneous media, large enough to represent an infinite volume from the point of view of natural gamma emissions. This is particularly the case for lava flows, which, moreover, are numerous in the vicinity of Clermont-Ferrand. In contrast, the laboratory blocks have generally dimensions lower than the maximal range of the most energetic natural gamma rays. For instance, the cubic Oxford blocks (side = 50 cm) have a thickness (50 g.cm⁻²) which is only equal to around two mean free paths for the 2.61 MeV photons emitted by ²⁰⁸Tl.

Additionally, it is suspected that the Oxford blocks are affected by radon loss in proportions which might attain 10% (Aitken, Pers. com., 2009 and Bowman, 1976). Such effects have to be accounted for in certain calculations, such as, for example, evaluating the factor between the nuclide content and the derived induced radiation dose rate (Soumana, 1993; Rhodes and Schwenninger, 2007).

However, the inner radioactivity of naturally occurring rocks is not determined in the course of construction, as it can be theoretically with doped blocks; this can be a drawback for certain experiments using rocks.

Since the beginning of the 1980's, a dozen boreholes were drilled in a variety of rocks whose bare surfaces were exposed either naturally or by human action. These different sites are situated within 25 km of the laboratory. Recently, in order to reduce the distance to be travelled for experiments, two large blocks, weighing 10.5 t and 9.5 t were transported close to the laboratory (Fig. 1).



Figure 1: Drilling the block of granite C347, weighing 9500 kg

Reference	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	TiO ₂	P ₂ O ₅	MnO	H ₂ O	H ₂ O	total	Nature
											(1000°C)	(110°C)		
PEP	60.0	16.2	5.6	2.85	3.19	3.36	4.63	0.84		0.08	2.1	0.11	98.96	granite
LAS	49.5	16.0	10.6	5.67	8.68	4.21	2.33	2.25		0.18	0.21	0.26	99.89	basalt
LMP	42.9	12.6	12.8	10.6	11.1	2.64	0.87	2.84		0.17	2.1	1.06	99.75	basalt
MPX	86.0	6.89	0.83	0.11	0.07	0.19	3.08	0.05		0.01	1.35	0.1	98.59	sandstone
MAZ	49.19	17.13	12.12	4.69	8.47	4.36	2.24	2.39		0.2	0	0.33	100.07	trachyandesite
GOU	54.9	18.2	7.91	2.25	5.47	5.4	3.13	1.38		0.22	0	0.03	98.9	trachyandesite
C347	73.09	15.05	1.45	0.38	0.89	3.62	4.27	0.13	0.19			0.82	99.79	granite
C341	46.95	16.67	12.15	6.16	9.59	3.71	1.65	2.44	0.57	0.19	0.17		100.28	trachybasalt

Table 1: *Composition and nature of the reference rocks*

On the other hand, some sites are no longer accessible at present, so that 8 reference rocks are currently available (and possibly 2 more, slightly less convenient). The boreholes are horizontal, they have a diameter of 70 mm and a length between 0.39 m and 1.5 m. The cores extracted in the course of drilling were crushed and homogenized before being distributed among several laboratories for elemental analyses, including nuclide assessment. Some of the nuclide analyses gave rise to inter-laboratory comparisons (Fain et al., 1997). Dose rates in the different rocks were derived from the nuclide contents. Dose rate measurements were also performed in situ, in the holes, by independently calibrated means including TL dosimeters and NaI gamma probes.

This paper is aimed at giving updated data for those reference media and at presenting two examples of their use. The first one concerns the calibration of a field probe for gamma dose rate measurements. The second one is a simple and advantageous method for TL dosimetry, where the reference rocks are used as radiation-dose-sources, avoiding the use of a laboratory calibrated source.

Data concerning the reference rocks

The reference rocks include two granites, one sandstone and six lavas (Table 1). Apart from the two blocks settled close to the laboratory (C341 and C347), the rocks do not appear as free blocks, but as outcrops in geologic massive formations. Homogeneity at the metre scale around the boreholes is assumed from the geological nature of the rocks, which are not bedded, and from visual inspection. The water content is nil, or low but stable. Certain lavas are porous; however the pores are not interconnected, so that time-variation in water content is not possible. Although the holes are

horizontal, they may sometimes be wet inside, due to rain, but this cannot affect the dose rate.

The nuclide contents of the rocks were assessed by various laboratory methods, comprising: low background gamma spectrometry, ICP-MS, NAA and flame photometry (for K). ²³⁰Th was measured by means of alpha spectrometry for recent lavas since these can show a slight disequilibrium in the U-series.

The nuclide contents were also verified in situ for C341 and C347 by using a NaI gamma probe. The laboratories or persons who participated in the measurements are listed in Annex 1.

Reference	[U] ppm	[Th] ppm	²³⁰ Th/ ²³⁸ U	²²⁶ Ra/ ²³⁰ Th
PEP	6.00 ± 0.20	19.0 ± 2.0	1	1
LAS	2.14 ± 0.04	7.57 ± 0.15	1	1
LMP	1.60 ± 0.14	5.91 ± 0.09	1	1
MPX	1.38 ± 0.03	3.61 ± 0.20	1	1
MAZ	2.39 ± 0.08	8.58 ± 0.04	1.00 ± 0.01	1.07 ± 0.01
GOU	3.18 ± 0.12	11.95 ± 0.06	1.00 ± 0.01	1.11 ± 0.01
C 347	2.84 ± 0.12	4.67 ± 0.10	1	1
C 341	1.80 ± 0.05	6.42 ± 0.40	1.10 ± 0.01	1.0 ± 0.01

Table 2: *Nuclide contents of the reference rocks. The ²³⁰Th/²³⁸U and ²²⁶Ra/²³⁰Th ratios are given for activities. For the older rocks, PEP, LAS, LMP, MPX, and C347, these ratios were not measured; they were inferred from the ages of the rocks (3 Ma for the youngest one, LMP). Uncertainties are quoted at the 95% level of confidence.*

Reference	D γ $\mu\text{Gy}\cdot\text{a}^{-1}$	D $_{\text{cosmic}}$ $\mu\text{Gy}\cdot\text{a}^{-1}$	Total
PEP	2536 \pm 110	140 \pm 14	2676 \pm 110
LAS	1082 \pm 10	120 \pm 20	1202 \pm 22
LMP	641 \pm 18	120 \pm 20	761 \pm 27
MPX	962 \pm 13	110 \pm 15	1072 \pm 20
MAZ	1140 \pm 12	200 \pm 20	1340 \pm 23
GOU	1573 \pm 17	110 \pm 11	1683 \pm 23
C347	1421 \pm 25	170 \pm 18	1591 \pm 29
C341	849 \pm 21	170 \pm 18	1019 \pm 26

Table 3: Gamma and cosmic dose-rates in the reference rocks. Gamma dose rates were calculated using the data of Adamiec and Aitken (1998) revised for ^{40}K and the Th-series by Guérin and Mercier (submitted). Cosmic dose rates were derived from the data of Prescott and Hutton (1994).

The gamma dose rates in the different media were calculated on the basis of the conversion coefficients published by Adamiec and Aitken (1998), and the updated coefficients given by Guérin and Mercier (submitted) for ^{40}K and the Th-series. Allowance was made for disequilibrium where necessary. The cosmic contribution was evaluated using the data of Prescott and Hutton (1994).

Radon loss has not been specifically measured. It has been considered as negligible for all the rocks, because of their compactness and it has been indirectly verified by the good agreement between the calculated dose rates and the in situ measured dose rates. Moreover, the activity ratios $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ for the rocks are not significantly differing from 1.

Application to the calibration of a portable gamma spectrometer

The Clermont reference rocks were used for calibrating a probe aimed at being a convenient tool for gamma dose rate determinations in the field. The detecting cell of the probe is made of a 1.5" x 1.5" scintillation crystal (LaBr_3). According to the manufacturer (Canberra), this material exhibits a higher detection efficiency and a higher resolution than the more classical $\text{NaI}(\text{Tl})$ crystals. An example of a spectrum recorded in a cubic block made of building bricks (side: 1.5 m) available at the CRP2A laboratory (Bordeaux) is given in Fig. 2. However, this probe has the disadvantage of a relatively high background (Fig. 2), due to the presence of the ^{138}La isotope in the crystal lattice which generates γ -rays at 1436 and 789 keV, this second emission following a beta decay (end-point energy: 255 keV) that induces counts in the 789-1044 keV range. Thus, in the background spectrum, one also notices the presence of a line at 1461 keV, probably due to the

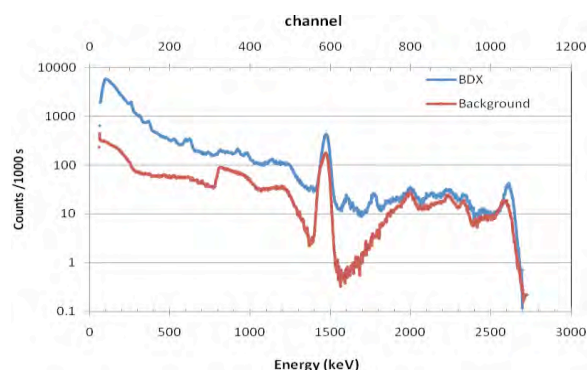


Figure 2: Time-normalized spectra (1000 s) recorded with a LaBr_3 probe placed in the block of bricks available at CRP2A (BDX- gamma dose rate = $2010 \pm 35 \mu\text{Gy/a}$) and in a lead housing (Background). High resolution gamma spectrometry performed on bricks used for building the CRP2A block allowed determination of their average radioisotopic contents: $\text{U}(^{238}\text{U}) = 4.27 \pm 0.68 \text{ppm}$, $\text{U}(^{226}\text{Ra}) = 4.10 \pm 0.14 \text{ppm}$, $\text{Th} = 13.7 \pm 0.3 \text{ppm}$, $\text{K} = 3.50 \pm 0.05\%$. Note that the Y-scale is logarithmic.

summation of gamma rays of 1436 keV and X-rays following electron capture, as well as peaks related to the Th-series.

Counts were performed with this probe in the following Clermont reference rocks: C347, C341, PEP, LMP, MAZ and GOU, as well as in the Bordeaux block of bricks in order to get a point at $\sim 2000 \mu\text{Gy/a}$. As each spectrum is a mixture of γ -rays coming from the ^{40}K and U- and Th-series, we analyzed the spectra by applying two threshold techniques (Guérin and Mercier, submitted). With the first technique, the total number of pulses above a fixed threshold was accumulated and counted. This threshold value was determined with the Geant4 code simulating a LaBr_3 cell (encapsulated in a 1 mm thick duraluminium layer) placed in infinite media. These media had various compositions similar to sediments rich in carbonates, silicates, organic materials or lavas; the different radio-emitters - ^{40}K and those of the U- and Th-series- were distributed uniformly. According to these Monte-Carlo simulations, the number of counts detected per unit time by the LaBr_3 cell above an energy of 300 keV (ΣNi , $E > 300 \text{keV}$), normalized to $1 \mu\text{Gy/a}$, is independent of whether the γ -rays originated from K, U or Th, and this value was then used as the low threshold. A high threshold of 2800 keV was set in order to eliminate the cosmic contribution to the counts (see Prescott and Clay, 2000). Fig. 3 shows the total count between 300 keV and 2800 keV as a function of the

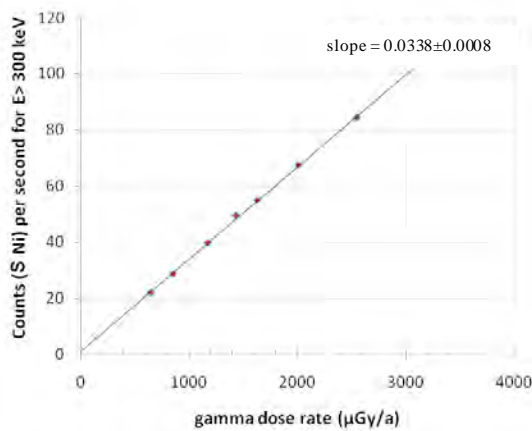


Figure 3: Net counts per second (ΣNi for $E > 300$ keV) deduced from measurements in the Clermont reference rocks and in the Bordeaux block of bricks as a function of the gamma dose rate (see values in Table 3). The upper discrimination level was fixed at 2800 keV, in order to eliminate the counts due to cosmic rays. Notice the good linearity and that the intercept is compatible with 0.

gamma dose rate, indicating that 0.0338 ± 0.0008 counts per second for a $1 \mu\text{Gy/a}$ dose rate are detected with this probe.

The analysis of the same simulated data indicated that above 165 keV, the sum of the energy per unit time i.e. $\Sigma Ni \cdot Ei$ (which is, for each channel, the product of the number of counts in this channel with the corresponding energy) is also independent when normalized to $1 \mu\text{Gy/a}$, of the origin of the gamma-rays. In applying this second threshold technique, a larger part (about twice in counts number) of the recorded spectrum is used, which improves the counting statistics used for the dose rate determination. Moreover, Guérin and Mercier showed that this technique is less sensitive than the previous one to the repartition of the gamma dose rate between ^{40}K and the U- and Th-series. The same Geant4 simulations indicated that this technique is also nearly insensitive to the composition of the medium. With this second technique, a good linearity was found between the signals ($\Sigma Ni \cdot Ei$) and the gamma dose rates (Fig.4).

In situ TL dosimetry using the reference rocks

Verification of the consistency of the dose rate data

A campaign of TL dosimetry was especially devoted to check the internal consistency of the dose rate data (Table 3). For that purpose, powdered $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$

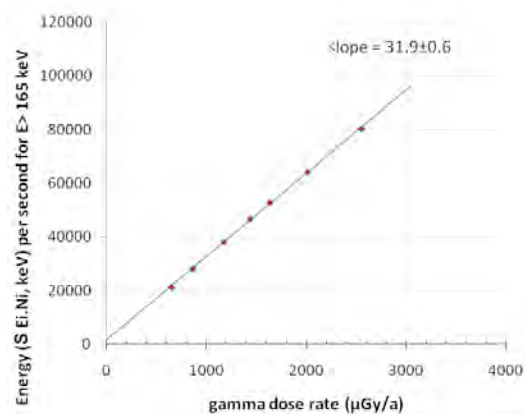


Figure 4: Time-normalized signal ($\Sigma Ni \cdot Ei$ for $165 \text{ keV} < E < 2800 \text{ keV}$) deduced from measurements in the Clermont reference rocks and in the Bordeaux block of bricks as a function of the gamma dose rate. The background was subtracted after time normalization.

(provided by Landauer Inc., Stillwater Crystal Growth Division) was used (grain size 200-315 μm). The Clermont laboratory routine dosimeter consists of a stainless steel tube (1.5 mm thick, 0.25 cm^3 of capacity) completely filled with the zeroed powder. The cap is held in place by a heat shrinkable tube, slightly longer than the steel tube (+ 1 cm at both ends). When in place and very hot, the shrinkable tube is pinched at both ends so as to form a water proof bag around the steel tube, in the form of a candy wrapping.

Such dosimeters were inserted in the holes for a few months and afterwards they were measured in the laboratory, all at the same time. The intensities of the TL peaks were plotted against the known dose rates (Fig. 5). No correction was applied to the results, because possible undesirable effects, such as self dosing and fading, would be the same for all the dosimeters and therefore should not affect the linearity of the curve. However, this is not true for attenuation by the walls of the tube, which depends on the gamma spectrum – that is the respective proportions of U, Th and K in the rocks – and on the composition of the rock (see e.g., Valladas, 1982; Faïn et al., 1985). The exact attenuation in the different media for the given configuration has not been computed yet. It can be expected from preliminary results that the difference of attenuation between the samples is in the range 0 – 3 %.

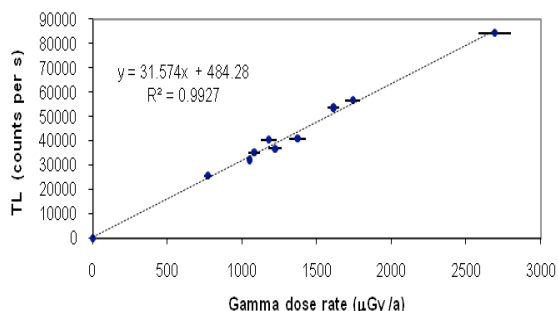


Figure 5: Plot of TL signal vs dose rate for 8 reference rocks.

A good correlation between TL and estimated dose rates was obtained (Fig.5), thus proving the validity of the data.

TL dosimetry

Routine methods for evaluating the dose acquired in situ by a TL dosimeter imply the use of a calibrated radiation-source (X, beta or gamma) for getting the correspondence: TL vs dose. Conversion of the measured equivalent dose in terms of in situ annual dose may require application of correction factors such as those evoked above for fading or self-dose; such corrections are routinely made by certain laboratories. Moreover, it necessitates a precise knowledge of the dose rate delivered by the laboratory source. So, inevitably, errors and uncertainties accumulate in the conversion. To overcome such problems, the Clermont TL group proceeds as follows.

When a set of dosimeters is to be placed in sites to be dated, 3 more dosimeters are prepared and placed in 3 of the 8 reference boreholes at the same time. After the dosimeters have been collected months later, all the phosphors are measured at the same time. Then, the TL intensities are plotted vs annual dose for the three known dosimeters. The dose rates in the different measured sites are then obtained by a simple interpolation (Fig.6). The overall uncertainty (systematic + statistical) on the result is estimated at 4.5 % of the annual radiation dose. The 3 reference rocks that have been chosen are C341, C347 and PEP. The advantages of choosing these rocks are: (i) the representative points on the initial experiment (see Fig.4) are on the mean regression straight-line (least squares method), meaning that the dose rates have been correctly evaluated for those 3 holes; (ii) the dose rates are significantly different from each other, allowing exploration of a large range of dose rates and, (iii) the sites are the most convenient, being the closest to the laboratory.

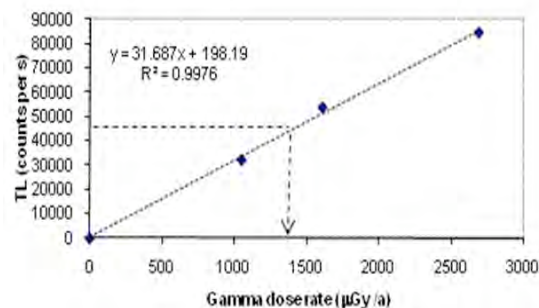


Figure 6: Plot of TL signal vs dose rate for 3 selected reference rocks (C341, C347 and PEP) based on a different campaign of measurements than the one for Fig.5. The dotted line shows the determination, by interpolation, of the annual dose for a dosimeter placed in a site to be dated.

Discussion of the method

The method offers advantages that have already been mentioned: several possible sources of error with the standard techniques have no effect here because they are the same for all the dosimeters and they are automatically corrected for by the interpolation. The method avoids the use of a laboratory source, with the relevant difficulties (authorization and calibration). Moreover, the number of TL (or OSL) measurements is limited: for N dosimeters, the total number of useful series of measurements is N+3 only (a "series" corresponds to the several measurements necessary for reducing statistical uncertainty for a given sample). Additionally, there is no need to measure the background (noise) or to worry about possible spurious signal.

However, the drawback of the method is that the sites of application must not be too far away from the laboratory. For remote sites, it is necessary to introduce complementary measurements for evaluating the travel dose; in any case, the in situ duration must be long enough for the corresponding dose to be significantly higher than the travel dose. Improvements of the method could consist of: (i) using a housing that would induce less dependence of the dose acquired by the TL phosphor on the composition of the measured medium and (ii), evaluation of the attenuation for a given medium with, e.g., a Monte Carlo code. Note that this applies to the standard methods too.

Conclusions

The reference rocks established around the Clermont laboratory can be considered as a convenient tool for various dosimetric experiments. The accuracy and precision of the data published in the present paper

can still be improved by new independent measurements, either in the boreholes or in the assessment of the nuclide content of samples from the cores.

Acknowledgements

We are grateful to Professor Martin Aitken for revision of the manuscript and useful comments.

References

- Adamiec, G., Aitken, M.J. (1998). Dose-rate conversion factors: update. *Ancient TL*, 16, 37–50.
- Aitken, M.J. (1985). *Thermoluminescence dating*. Academic Press, London.
- Bowman S.G.E. (1976). *Thermoluminescent dating: the evaluation of radiation dosage*. Unpublished D.Phil. thesis, Faculty of Physical Sciences, Oxford University.
- Faïn, J., Erramli, H., Miallier, D., Montret, M., Sanzelle, S. (1985). Environmental Gamma Dosimetry using TL dosimeters: efficiency and absorption calculations. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 10, 639-649
- Faïn, J., Miallier D., Montret, M., Pilleyre, T., Sanzelle, S., Soumana, S., Bechtel, F., Guibert, P., Schvoerer, M., Vartanian, E., Mercier, N., Valladas, H., Bahain, J.J., Falguères, C., Tripier, J., Joron, J.L. (1997). Inter-comparisons dosimétriques dans le cadre de la datation par thermoluminescence et par résonance paramagnétique électronique: validation de milieux naturels témoins de la région de Clermont-Ferrand, Puy-de-Dôme, France. *Revue d'Archéométrie*, 21, 29-34.
- Guérin, G., Mercier, N. (submitted) Determining gamma dose rates by field gamma spectroscopy in sedimentary media: results of Monte Carlo simulations. *Radiation Measurements*
- Miallier, D. Erramli, H., Faïn, J., Sanzelle, S. (1988). Doserate measurement by the enclosure method using Al₂O₃ TL dosimeters. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 14, 193-197
- Murray, A.S. (1982). *Environmental radiation studies relevant to thermoluminescence dating*. Unpublished D.Phil. Thesis, Faculty of Physical Sciences, Oxford University.
- Prescott, J.R., Hutton, J.T. (1988). Cosmic ray and gamma ray dosimetry for TL and ESR. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* 14, 223-227
- Prescott, J.R., Hutton, J.T. (1994). Cosmic ray contributions to dose rates for luminescence and ESR dating: large depths and long-term variations. *Radiation Measurements*, 23, 497-500.
- Prescott, J.R., Clay, R.W. (2000). Cosmic ray dose rates for luminescence and ESR dating: measured with a scintillation counter. *Ancient TL* 18, 11-14.
- Rhodes, E. J., Schwenninger, J.-L. (2007). Dose rate and radioisotope concentrations in the concrete calibration blocks at Oxford. *Ancient TL*, 25, 5-8.
- Sanzelle, S., Erramli, H., Faïn, J., Miallier, D. (1988) The assessment of gamma dose rate by gamma ray field spectrometer. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 14, 209-213
- Soumana, S. (1993). *Amélioration des techniques de dosimétrie appliquées à la datation par thermoluminescence*. Unpublished Thesis, Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand, France.
- Soumana, S., Faïn, J., Miallier, D., Montret, M., Pilleyre, T., Sanzelle, S., and Akselrod, M. (1994) Gamma and enclosure dosimetry for TL/ESR dating with the new AL₂O₃:C TL dosimeter. *Radiation Measurements*, 23, 501-505.
- Valladas, G. (1982). Mesure de la dose γ annuelle de l'environnement d'un site archéologique par un dosimètre TL, *PACT6*, 77-85.

Reviewer

J.R. Prescott

Referee Comments

The major thrust of the paper is the idea of using boreholes in massive rocks as defined locations for dose rate calibration. Both gamma-ray spectrometry and in situ TL dosimetry are described. The idea is a good one and very useful if they are not too far from home, as the authors state. Many laboratories have access to pads of known composition with added K, U and Th. Some have substantial blocks, buried underground. The use of natural features avoids the need to make your own pads. Although it requires more work, the procedure described for in situ TL dosimeters and to minimise sources of error will appeal to those who do not have “in house” radiation facilities.

The use of the relatively new LaBr₃ (Ce) scintillation counters, as described in the text, is satisfactory for total gamma ray dosimetry. It must be noted however that the manufacturers explicitly do not recommend them for low level counting. In the present context this would be the case if concentrations of K, U or Th were being measured individually.

Annex 1

List of the persons who contributed to the assessment of the nuclide content and/or gamma dose rate in the reference blocks.

Laboratory	Person	Method
Centre de Recherches en Physique Appliquée à l'Archéologie, CRP2A, Université de Bordeaux 3.	P. Guibert, N. Mercier	Gamma spectrometry (Hp- Ge detector), field gamma-probe.
Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, LSCE, Gif-sur-Yvette.	N. Mercier, H. Valladas	TL, field gamma-probe.
Institut de Paléontologie Humaine, IPH Paris	J.J. Bahain, C. Falguères	Gamma spectrometry (Hp- Ge detector)
Laboratoire Pierre Sue, CEA, Saclay	J.L. Joron	NAA
Laboratoire Magmas et Volcans, Clermont-Ferrand.	M. Condomines	ICP-MS, alpha spectrometry
Laboratoire d'analyses et mesures, CRN, Strasbourg	J. Tripier	TL
Laboratoire de Physique Corpusculaire, LPC, Clermont-Ferrand	J. Faïn, H. Erramli, D. Miallier, T. Pilleyre, S. Soumana, S. Sanzelle	Gamma spectrometry (Hp- Ge detector), TL
Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques, CRPG, Vandoeuvre-lès-Nancy		ICP-MS
Hokkaido University of Education, Japan.	Y. Ganzawa	NAA

Chapitre 6. Vers des mesures non invasives

*Introduction à l'article : Guérin, G., Mercier, N. Field gamma spectrometry,
Monte Carlo simulations and potential of non-invasive measurements.*

Accepté pour publication, Geochronometria.

La question du traitement des spectres acquis en milieu sédimentaire a été discutée dans les deux articles précédents. D'après ces travaux, il est possible de réaliser des mesures précises, en un temps relativement court - quelques minutes permettent d'obtenir une statistique de comptage satisfaisante puisque une grande partie des spectres est mise à profit. Cependant, cette approche souffre de plusieurs problèmes ; tout d'abord l'emploi de ces techniques de mesure nécessite l'insertion de la sonde d'un spectromètre de terrain dans les milieux à étudier. Si dans le cas d'études de sites ne contenant pas de vestiges de l'activité humaine cela ne pose *a priori* pas de problème, la situation est différente lorsqu'on s'intéresse à un site archéologique. En effet, les dimensions de la sonde spectrométrique (longueur : 20 cm, diamètre 5 cm en incluant l'enveloppe protectrice de la sonde pour celle du CRPAA) implique une potentielle destruction de vestiges, ou tout au moins une perturbation des vestiges situés à l'emplacement de mesure. Outre cet aspect destructif des mesures, le problème d'adéquation entre ce que l'on mesure et ce que l'on souhaiterait mesurer se pose ; en particulier dans le cas d'artefacts tels que des pièces chauffées ou des structures de combustions, comme cela a déjà été mentionné l'ignorance de leur localisation avant la fouille implique que les débits de dose γ mesurés ne correspondent en général pas au débit de dose γ reçu par l'objet daté.

L'article qui suit constitue une proposition de protocole de mesure de la radioactivité γ dans les sols à partir de mesures non invasives, réalisées en surface des sédiments fouillés. L'idée consiste à mettre à profit les techniques du seuil en les adaptant à la géométrie des mesures, qui permettent d'utiliser une partie importante des spectres et donc de réaliser des mesures en un temps raisonnable. La technique des fenêtres nécessiterait en effet des temps de comptage beaucoup plus long, or ce protocole de mesures implique l'acquisition régulière de spectres au cours des fouilles afin de prendre des mesures tous les 5 cm environ, à mesure que les sédiments sont fouillés. Une telle série de mesure vise à caractériser le demi-espace des sédiments sous-jacents au point de mesure ; un modèle de reconstruction des débits de dose en trois dimensions est proposé, afin d'obtenir une cartographie des débits de dose γ des sédiments fouillés. Ainsi, lorsqu'un artefact susceptible d'être daté est retrouvé pendant la fouille, le protocole proposé permettrait de connaître le débit de dose γ effectivement reçu par cet objet. Un soin tout particulier a été apporté au traitement des signaux parasites. Etant donné que cette approche repose sur la caractérisation des sédiments sous-jacents aux points de mesure, une approche est proposée pour s'affranchir des composantes spectrales provenant des autres sources radioactives impliquées, telles que les sections des sites laissées en place lors des fouilles adjacentes aux parties fouillées.

En l'état actuel de ces travaux, seules des simulations numériques ont été réalisées. De même que pour les techniques du seuil définies dans les deux articles précédant, une vérification expérimentale, associée à une application de ce protocole de mesure, sera nécessaire pour valider et, le cas échéant, affiner la démarche.



FIELD GAMMA SPECTROMETRY, MONTE CARLO SIMULATIONS AND POTENTIAL OF NON-INVASIVE MEASUREMENTS

GUILLAUME GUÉRIN and NORBERT MERCIER

*Institut de Recherche sur les Archéomatériaux, UMR 5060 CNRS – Université de Bordeaux,
 Centre de Recherche en Physique Appliquée à l'Archéologie (CRP2A), Maison de l'archéologie,
 33607 Pessac cedex, France*

Received 5 November 2010

Accepted 2 November 2011

Abstract: The determination of gamma dose rates is of prior importance in the field of luminescence dating methods. *In situ* measurements are usually performed by the insertion of dosimeters or a portable gamma spectrometer cell in sediments. In this paper, Monte-Carlo simulations using the GEANT4 toolkit allow the development of a new technique of in-situ gamma dose rate evaluations: a spectrometer cell is placed on the surface of sediments under excavation to acquire successive spectra as sediments are removed by excavations. The principle of this non-invasive technique is outlined and its potential is discussed, especially in the case of environments in which radioelements are heterogeneously distributed. For such cases, a simple method to reconstruct gamma dose rate values with surface measurements using an attenuator is discussed, and an estimation of errors is given for two simple cases. This technique appears to be applicable, but still needs experimental validation.

Keywords: luminescence, dose rate, Monte-Carlo simulations, non-invasive measurements.

1. INTRODUCTION

Determining an age with luminescence dating methods requires knowledge of two physical units: the paleodose (Gy) and the dose rate ($\text{Gy}\cdot\text{a}^{-1}$). The latter can be divided into the cosmic radiation contribution and the one resulting from the radioelements present in the object to be dated and its environment. This radioactivity consists of several components, namely alpha, beta and gamma radiations. If in the case of sediment grains dating, gamma radiation will contribute approximately 30% to the total dose rate, this component may go up to 80% in the case of archaeological stone artifacts (flint, quartzite, etc.). Precise ages are therefore dependent on a good knowledge of the gamma dose rate received by the object

when buried, and this parameter is particularly difficult to determine in sites where heterogeneous environments result in high spatial variability of this physical quantity (e. g. Aitken, 1985; Aitken *et al.*, 1985; Sanderson and Placido, 1985; Mercier *et al.*, 1995; Brennan *et al.*, 1997). Actually, one should make in that case a measurement of the gamma dose rate at the exact location where the sample comes from (by inserting a dosimeter or a portable gamma spectrometer). However, especially in the case of dating rocks (burnt artefacts) or teeth from archaeological sites, since their location is unknown before the excavation, the gamma dose rate is estimated from dosimetric data collected some distance from the piece, or after removal of material within the range of gamma radiation during the excavation. In heterogeneous sites this can potentially lead to a loss of accuracy.

Corresponding author: G. Guérin
 e-mail: gguerin@u-bordeaux3.fr

The aim of this paper is first to outline a new method for gamma radioactivity measurements of soils and test its feasibility. This non-invasive method will not solve the problem of equivalence between the measured dose rates and the dose rates really received by the objects to be dated; however it can help to reduce the potential errors by providing a set of gamma dose rate values allowing the reconstruction of the spatial variations of this quantity; this is the second scope of the paper. These developments follow requests from archaeologists who expressed their wish to avoid damaging archaeological remains when performing gamma dose rate measurements.

Due to the complexity of the problem, the approach developed here is based on Monte-Carlo simulations performed with the GEANT4 toolkit (Agostinelli *et al.*, 2003; Allison *et al.*, 2006), designed at the CERN (Geneva), whose use as a dosimetric tool involving gamma and X rays has already been demonstrated (e. g. Guimarães *et al.*, 2008). The advantage of such simulations is that a number of parameters can be separately tuned, which would otherwise be experimentally difficult to achieve. In the field of luminescence dating techniques, Monte Carlo simulations have already been performed to overcome the lack of experimental data for a number of situations (Fain *et al.*, 1985; Brennan *et al.*, 1997; Nathan *et al.*, 2003; Aznar *et al.*, 2003; Nathan and Mauz, 2008). Such simulation techniques have also been undertaken for *in-situ* environmental gamma spectrometry studies (Bailiff and Slim, 2008; Allyson and Sanderson, 1998; 2001).

The gamma dose rate determination at the surface of sediments will be described in the simple case of homogeneous sediments (section 2) and then, the dose rate reconstruction will be treated in the case where the radioelements contents vary with height (section 3).

2. GAMMA SPECTROMETRY SIMULATIONS

Gamma dose rate determination from surface measurements

In order to derive dose rates from spectra recorded with a portable gamma spectrometer inserted in sediments, the two most common techniques are the ‘window technique’ and the ‘threshold technique’ that was first described for a semi-infinite geometry by Løvborg and Kirkegaard (1974), followed by investigations with gamma spectrometers inserted in radioactive media (Murray *et al.*, 1978; Liritzis and Galloway, 1980; Løvborg *et al.*, 1979; Mercier and Falguères, 2007). Sanderson and Placido (1985) studied variations in the count rate recorded above a threshold by a NaI (Tl) spectrometer as a function of depth in Scottish vitrified forts. It has been shown that the threshold technique provides more precise results in a shorter amount of time (see Miallier *et al.*, 2009). More precisely, thus far the ‘energy threshold technique’ seems the most efficient solution (Guérin and Mercier, 2011). This technique consists of converting the

energy deposition rate above threshold – which is the sum of the products of count-rate by corresponding channel energy for each channel above a lower threshold - in dose rate and is a variant of the Spectral Dose Index (SDI) approach proposed by Bargholz and Korsbech (1997) and Bucher *et al.* (2008), in which the count-rates are multiplied by the channel numbers (before energy calibration of the spectrometer). Simulated spectra recorded by a LaBr₃ cell placed on the surface of calcareous sediment in which the radioactivity is homogeneously distributed have been obtained with a specifically designed GEANT4 code. The compositions of this sediment as well as the others simulated in this paper are the same as in Guérin and Mercier (2011). For all the simulations discussed in the following, the cut-off has been set to 1 mm for the tracking of particles, which means that particles whose range is below 1 mm are not tracked; in such cases energy deposition is considered local.

The simulated setup for this section is shown in Fig. 1a where the cell is simply placed on the surface of the sediment, in the air, and Fig. 2 shows the corresponding spectra, presented in the form of cumulative energy recorded above each channel (equivalent to the SDI approach). For these simulations gamma rays were homogeneously emitted in a semi-sphere of radius 70 cm just underneath the spectrometer cell, in the sedimentary medium. Each spectrum corresponds to one radioactivity source, i.e. thorium or uranium decay chains and potassium. Notice that the primary emission spectra have been

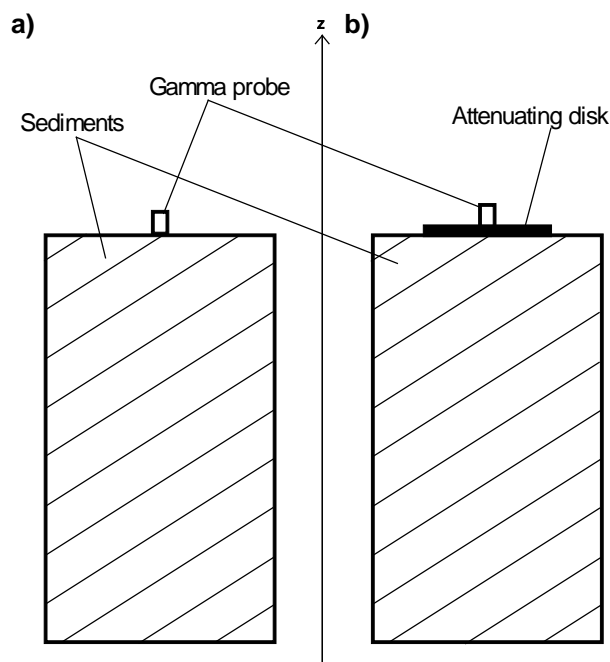


Fig. 1. Simulated setup. The crystal cell of a gamma probe is placed on top of sediments. a) The cell is directly placed on top of the sediments. b) An attenuating disk is placed between the sediments and the detecting cell.

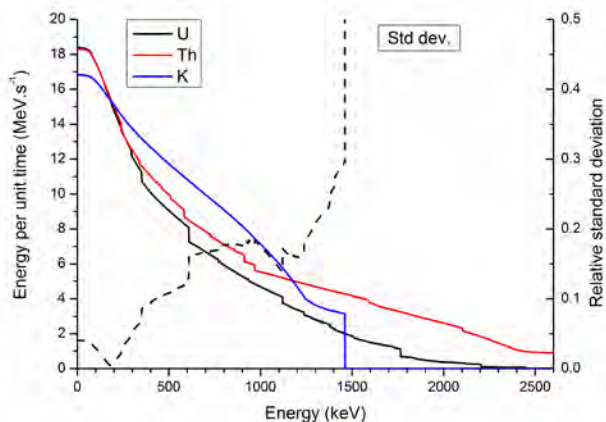


Fig. 2. Simulated cumulative energies recorded by a 1.5 inch \times 1.5 inch LaBr_3 detector placed on the surface of infinite calcareous homogeneous sediment. Each spectrum has been normalized to a $1 \text{ Gy}\cdot\text{ka}^{-1}$ dose-rate. The relative standard deviation between the three cumulative energy lines reaches a minimum (0.04%) at around 180 keV.

derived from nuclear data available on the National Nuclear Data Center website¹ and can be found in the electronic version of the paper by Guérin and Mercier (2011). The spectra have been normalized to match a $1 \text{ Gy}\cdot\text{ka}^{-1}$ dose rate. As can be seen, the three spectra are close to each other around 180 keV, which is emphasized by the relative standard deviation between the three curves. In other words, the energy deposited per second above 180 keV (hereafter referred to as the threshold value) does not depend on the origin of gamma rays. For this calcareous sediment, $1 \text{ Gy}\cdot\text{ka}^{-1}$ corresponds to $15.4 \pm 0.1 \text{ MeV}\cdot\text{s}^{-1}$ deposited above threshold. The influence of the nature of sediments has also been tested using numerical simulations with the GEANT4 code and results are given in **Table 1**, indicating for each gamma source the energy deposition rate recorded above threshold. It appears that, for the sediments tested here, the energy deposition rate

Table 1. Energy deposition rate above threshold ($\text{MeV}\cdot\text{s}^{-1}$) in a LaBr_3 cell for the different radioelements found in soils and for different types of sediments. Data are normalized to a $1 \text{ Gy}\cdot\text{ka}^{-1}$ dose-rate and correspond to $\dot{E}_{0,\text{threshold}}$ in Eq. 2.1. Densities are $1.8 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ for the calcareous and siliceous sediments, $2.6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ for the lava and $1.6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ for the organic rich sediment. Uncertainties correspond to one standard deviation calculated on a series of 20 independent simulation runs.

Sediment composition	U	Th	K
Calcareous	15.4 0.2	15.5 0.3	15.4 0.2
Siliceous	15.5 0.2	15.6 0.3	15.4 0.2
Basaltic lava	15.5 0.2	15.9 0.3	15.7 0.2
Organic rich	15.4 0.2	15.5 0.3	15.4 0.2
Average	15.4	15.6	15.5
Standard deviation	0.1	0.2	0.1

¹ www.nndc.bnl.gov

above threshold is very little dependent on the nature of the soils – tested sediments are a calcareous soil, a siliceous one, an organic-rich, low density sediment and a high density basaltic lava. In other words this energy deposition rate can be converted into gamma dose rate, regardless of the radiochemical composition and nature of the sedimentary environment. For that matter a simple proportionality rule would be used:

$$\dot{D}(\text{Gy}\cdot\text{ka}^{-1}) = \frac{\dot{E}_{\text{threshold}}(\text{MeV}\cdot\text{s}^{-1})}{\dot{E}_{0,\text{threshold}}(\text{MeV}\cdot\text{s}^{-1})} \quad (2.1)$$

where \dot{D} is the dose rate of the measured sediment, $\dot{E}_{\text{threshold}}$ is the energy deposition rate above threshold and $\dot{E}_{0,\text{threshold}}$ is the same rate for sediment in which the dose rate is $1 \text{ Gy}\cdot\text{ka}^{-1}$.

The issue of parasitic signals

In the case of archaeological excavations, it is very common to preserve portions of the sites for further research. This results in a number of exposed sections close to the measurements points – i.e. on top of sediments under excavation – which may induce a significant parasitic signal in the spectrometer. To overcome this problem, a lead shield placed around the cell was considered first (for similar approaches see ICRU, 1994). If one wishes to get rid of at least 95% of the parasite signal, the lead shield should be at least 4 cm thick. If one imagines a cylindrical sheathing wrapped around the detecting cell, its mass would reach approximately 20 kg, which for practical reasons is unsatisfactory – archaeological remains might be damaged.

Another solution consists of a combination of two series of measurements performed at the same location: in the first the detector would simply be placed on top of the sediments, while in the second an attenuating disk would be placed between the cell and the sediments; in this latter case, only the signal emitted by the measured surface would be affected (see Fig. 1b). Consequently the difference between the two spectra, taken at the same location, would be free of parasite signal. The question remains to determine an attenuating disk that would satisfy the following conditions: a) the signal emitted by the measured surface must be attenuated in a way that makes it exploitable, in the sense that the threshold technique can still be applied to compute a reliable dose rate value and b) the signal must be affected enough for a difference between the two series of measurements to be significant.

To compute a dose rate from the difference between the two energy deposition rates (Eq. 2.1) then becomes:

$$\dot{D}(\text{Gy}\cdot\text{ka}^{-1}) = \frac{\dot{E}_{\text{threshold}}(\text{MeV}\cdot\text{s}^{-1}) - \dot{E}_{\text{threshold}}^{\text{attenuated}}(\text{MeV}\cdot\text{s}^{-1})}{\dot{E}_{0,\text{threshold}}(\text{MeV}\cdot\text{s}^{-1}) - \dot{E}_{0,\text{threshold}}^{\text{attenuated}}(\text{MeV}\cdot\text{s}^{-1})} \quad (2.2)$$

where $\dot{E}_{threshold}^{attenuated} (MeV \cdot s^{-1})$ and $\dot{E}_{0,threshold}^{attenuated} (MeV \cdot s^{-1})$ correspond respectively to $\dot{E}_{threshold}$ and $\dot{E}_{0,threshold}$ when the crystal cell is placed on top of the attenuating disk.

To determine the optimal disk, we first tested different materials: lead, brass, aluminum and polymethyl methacrylate.

Table 2 summarizes the results for the different simulated options. For this series of simulations, the radius of the attenuating disks was arbitrarily chosen to be equal to 15 cm. The choice of attenuator is then driven by the precision on the dose rate computed using the difference in energy deposition rate (see **Eq. 2.2**); since the potassium has an average primary energy of gamma rays higher (1461 keV) than the uranium (537 keV) and thorium (615 keV) decay chains, a high atomic number attenuating material is less effective for potassium than for the other two radioactive sources. This induces a loss in precision when applying the threshold technique. Polymethyl methacrylate was selected and since the precision is the same for the two tested thicknesses (2 and 4 cm), it was decided to work with a thickness of 4 cm: it gives a larger difference in energy deposition rate, and thus improves the accuracy of the subtraction. The second step was to determine the adapted radius of the disk. **Fig. 3** shows the results of numerical simulations performed with GEANT4: the energy deposition rate above threshold is shown for a 1.5×1.5 inches LaBr₃ crystal placed on top of a disk made of polymethyl methacrylate (cf. **Fig. 1b**), as a function of the disk radius. The simulated sediment is the same calcareous sediment as for **Fig. 2**. A radius of 20 cm gives an attenuation of 91% of the maximum difference achievable with the chosen thickness and has been used for the simulations presented hereafter. The choice of this radius may be discussed, for instance a value of 30 cm would also be acceptable (98% of attenuation). However, to make this technique easily applicable, in-situ, over a significant portion of excavated surfaces, it is important to work with a disk as small as possible, hence the choice of 20 cm for the disk radius in the simulations hereafter. **Fig. 4** shows the spectra corresponding

to gamma irradiations from potassium, the uranium and thorium chains simulated for such an attenuating disk on the same sediment as for **Fig. 2**. Here again, the threshold is located at 180 keV and 1 Gy·ka⁻¹ corresponds to 10.6 ± 0.2 MeV·s⁻¹.

3. GAMMA DOSE RATE RECONSTRUCTION

Here comes the question of reconstructing gamma dose rate patterns from the series of dose rates measured on the different surfaces exposed during the excavation. The issue of depth distributions of gamma emitting radionuclides has been the subject of several studies in the field of in-situ gamma spectrometry. Mainly three approaches have been proposed: a) the differential attenuation of gamma emission lines as a function of energy, sometimes referred to as the two lines method (Miller *et*

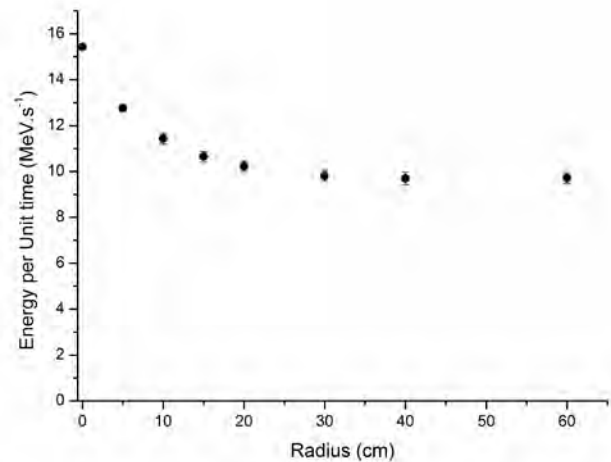


Fig. 3. Attenuated deposited energy above threshold per unit time in a 1.5 inch × 1.5 inch LaBr₃ crystal placed on top of calcareous sediment, as a function of the attenuating disk radius. The attenuating disk is made of polymethyl methacrylate and is 4 cm thick. Error bars correspond to the standard deviation, for energy deposition rates, between the potassium, the uranium and thorium decay chains.

Table 2. Rate of energy deposition above threshold (MeV·s⁻¹) in a LaBr₃ cell placed on top of an attenuating disk for various materials and thicknesses. Coefficients are an average of coefficients for potassium, uranium and thorium. For details, see the text and **Eq. 2.2**.

	Thickness (mm)	$\dot{E}_{0,threshold}^{attenuated}$ (MeV·s ⁻¹ /Gy·ka ⁻¹)	Std dev.	$\frac{1}{\dot{E}_{0,threshold} - \dot{E}_{0,threshold}^{attenuated}}$	
				(Gy·ka ⁻¹ / MeV·s ⁻¹)	Std dev. (%)
Aluminum oxide	10	12.6	0.2	350	6.6
	20	10.7	0.2	210	4.9
Brass	5	11.4	0.3	246	6.8
	10	8.7	0.4	149	5.4
Lead	1	12.3	0.5	322	17.5
	2	10.6	0.7	208	14.0
polymethyl methacrylate	20	12.6	0.1	355	4.1
	40	10.6	0.2	209	4.1

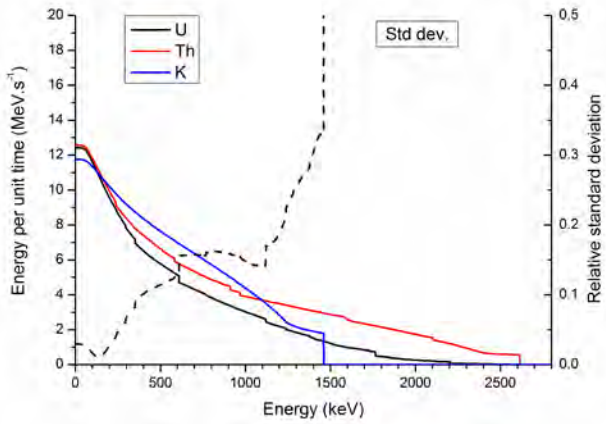


Fig. 4. Simulated cumulative energies recorded by a 1.5 inch \times 1.5 inch LaBr_3 detector placed on the surface of an infinite calcareous homogeneous sediment, with an attenuating disk of polymethyl methacrylate (radius: 20 cm, thickness: 4 cm). Each spectrum has been normalized to a dose-rate of $1 \text{ Gy}\cdot\text{ka}^{-1}$. For clarity the scale is the same as in Fig. 2. At 180 keV, the relative standard deviation between the three cumulative energy lines is 1.2%.

al., 1994; Thummerer and Jacob, 1998); b) the forward scattering or photopeak to valley method, based on the ratio of count-rates in the full energy peak of a specific emission line and the count-rate in the valley between the corresponding Compton edge and the photopeak (Zombori *et al.*, 1992; Tyler *et al.*, 1996; Tyler, 1999, 2004; Kastlander and Bargholtz, 2005; Tyler and Copplestone, 2007); c) the use of lead plates and/or collimators (Korun *et al.*, 1994; Benke and Kearfott, 2001). While the application of the two first approaches is limited to simple depth distributions of radioelements – e. g. exponential decrease for ^{137}Cs – the third suffers from the need for repeated measurements and long counting times. Besides it also requires heavy collimators, which is not satisfying when working on sites rich in archaeological material.

The approach presented here takes advantage of the excavation process; a series of measurements performed with a spectrometer cell placed directly above the sediments is proposed, where two spectra are acquired (one with the attenuating disk between the sediments and spectrometer cell, and one without attenuator) every 5 cm of removed sediments. An excavation is here simulated to outline a way of computing a one-dimensional reconstruction of gamma dose rate pattern along the altitude (z) axis, in a case where the radioelement contents are homogeneous in (x, y) directions. A block of sediments is materialized by 32 siliceous layers (thickness: 5 cm, same composition as for Table 1) on top of each other, for a total height of 160 cm. Two simple case studies will be presented here: in both cases the gamma dose rate varies by a factor of 2 along the measurement profile (z axis on Fig. 1), but in the first case – called the ‘smoothly heterogeneous’ one – the variations in radioelement contents are divided in five steps; in the second case, referred to as

the ‘strongly heterogeneous’ case, the variations occur all at once.

To simulate the excavation process, a series of simulations is performed where the total number of layers is varied, starting with 32 layers (corresponding to a height of 1.60 meters) and ending with 12 layers (only 60 cm of sediments are remaining: one meter has been removed).

When a dating object (e.g. heated flint, tooth or combustion feature) is found during the excavation process at an altitude z , only half of its environment is remaining, since the sediments lying above have been removed. Therefore the spectrum acquired with the spectrometer placed on top of the sediments at this altitude only characterizes the environment lying underneath the artifact. To overcome this problem, one has to find a way of taking the missing part of the environment into account. A simple way consists of taking the average of the dose rate determined at the altitude z and the dose rate determined previously at a higher altitude ($z+a$), which is supposed to characterize the environment that was lying above the artifact and that has been removed by the excavation process. This corresponds to the equation:

$$\dot{D}(z) = \frac{\dot{D}_s(z) + \dot{D}_s(z+a)}{2} \quad (3.1)$$

where \dot{D} stands for the gamma dose rate received by the object to be dated, \dot{D}_s the dose rate derived from the gamma spectrum placed above the sediments, and a a distance parameter – to be determined – that would take account of the missing part of the environment.

The ‘smoothly heterogeneous’ case

To test the validity of this approach and get a first value of the key parameter a , the following configuration was simulated for smooth variations in radioactivity. Two levels were displayed on top of each other: the lower one was made of 18 layers of thickness 5 cm for a total height of 90 cm with radioisotopic contents of K: 1%, U: 1 ppm and Th: 6 ppm (concentrations are given in mass fractions), and the uranium series was taken at equilibrium. The upper level consisted in 10 individual layers of thickness 5 cm with radioelement contents greater by a factor two, i.e. K: 2%, U: 2 ppm, Th: 12 ppm. Between the two levels, four intermediate layers of thickness 5 cm, had contents of layer 1 multiplied respectively by a factor 1.2, 1.4, 1.6 and 1.8. Fig. 5 shows the image of the radioisotopic contents along the profile, as well as the results of Monte Carlo simulations. ‘Infinite matrix’ dose rates obtained by integrating the energy deposited per unit time in sediment detecting cells (thickness: 1cm) placed every 5 cm along the profile are displayed as a function of altitude; reconstructed values deduced from the simulated surface gamma spectra recorded by the LaBr_3 crystal and computed using Eq. 3.1 are also shown. The value for the parameter a that gives the best reconstructed results,

compared to the infinite matrix dose rates, is 20 cm and discrepancies are smaller than 7%.

The ‘strongly heterogeneous’ case

In the case of large calcareous blocks present in clayed sediments for instance, the nature of the heterogeneity is significantly different: the radioisotopic contents may strongly vary at the interface between the two elements (limestone and clay). For that matter, a similar case was simulated: the nature of the sediments was not changed - there were two levels of siliceous soil on top of each other - and the proportions of radioelements remained the same, but this time the contents were multiplied by a factor 2 at the interface between the two layers. In this case the bottom level was made of 20 layers (5 cm thick) with contents K: 1%, U: 1 ppm and Th: 6 ppm and the upper level of 12 layers (5 cm thick) with contents K: 2%, U: 2 ppm and Th: 12 ppm. The variations in the infinite matrix dose rate, as detected by layers of sediments (thickness: 1 cm as above) were much steeper and Fig. 6 shows reconstructed values. Taking a equal to 20 cm gives again the best agreement between the two series of dose rates, but in this case, as expected, differences are higher, especially at the level of the interface. However these differences are inferior to 20%.

4. DISCUSSION

This series of numerical simulations is meant to try and design a new technique for gamma dosimetry mapping, which offers the advantage of avoiding the drilling of holes in archaeological sites and thus answers expectations from archaeologists, and which could be processed during excavation campaigns.

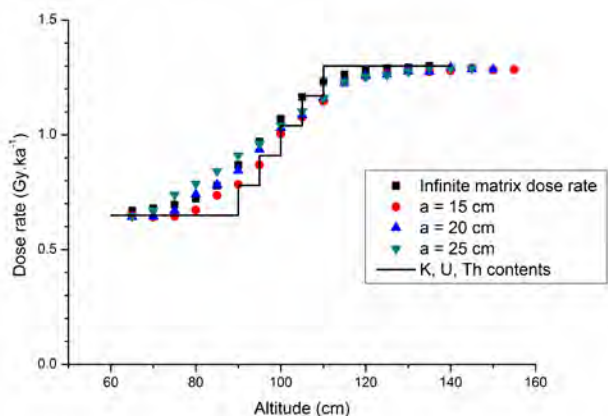


Fig. 5. Dose-rates as a function of altitude in the ‘smoothly’ heterogeneous case. Radioisotopic contents along the profile have been converted in infinite matrix dose-rates (solid line) and the dose-rate recorded by sediment volume elements are displayed (squares). Three sets of reconstructed values using Eq. 3.1 are plotted for a values equal to 15 cm, 20 cm and 25 cm (respectively circles, upwards pointing triangles and downwards pointing triangles).

In the field of retrospective dosimetry dating methods, it is common to perform gamma dose rates measurements in 4π geometry, either with passive dosimeters or portable gamma spectrometry cells inserted in sediments. The precision of such measurements generally is of a few % but the number of measurements is often limited; as a result there may be inadequacy between measured gamma dose rates and dose rates received by the objects to be dated.

In comparison, this paper deals with 2π , or semi-infinite geometry measurements. The first outcome of this paper is a new method for determining gamma dose rates in such geometries, using a subtraction technique involving an attenuator. This technique allows characterizing the radioactivity of a great number of exposed surfaces during excavations processes, since the measurements are quickly performed (in a few minutes) and do not damage the sediments. Consequently, one can take advantage of these numerous determinations for calculating the dose rate really received by the samples which will be dated.

The second question is then to find a way to exploit the 2π data for determining the 4π gamma dose rates received by the objects to be dated. The model presented here is very simple: it consists of an average of two measurements taken at two different altitudes. Experimental validation will be needed to test and, if necessary, refine this model. It should be noted that in practice, such purely one-dimensional variations do not seem very realistic. Variations in the (x, y) plane should also occur; for a good coverage of sites, measurements should be performed on each surface in different (x, y) locations. Therefore a more realistic model would include variations on these axes, and one can expect that taking account of

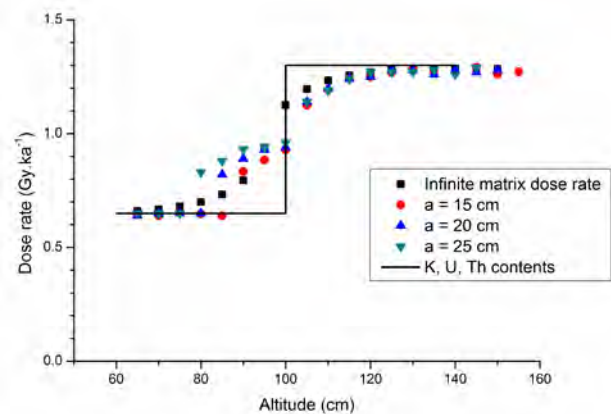


Fig. 6. Dose-rates as a function of altitude in the ‘strongly’ heterogeneous case. Radioisotopic contents along the profile have been converted in infinite matrix dose-rates (solid line) and the dose-rate recorded by sediment volume elements are displayed (squares). Three sets of reconstructed values using Eq. 3.1 are plotted for a values equal to 15 cm, 20 cm and 25 cm (respectively circles, upwards pointing triangles and downwards pointing triangles).

these variations may help reducing the differences between 2π reconstructed and 4π dose rates. The advantage of the outlined measurement technique lies in the great number of spectra that can be acquired *in-situ*, allowing a detailed characterization of radioactivity in soils. One can therefore reasonably expect that the use of this technique will improve the accuracy of retrospective dosimetry dating methods, by reducing the inadequacy between measured gamma dose rates and the gamma dose rates of interest.

This being said, problems such as moisture content and radon escape are still not dealt with at this stage. During excavations, the surface of sediments is exposed to open air conditions and this will likely favor some drying and radon leakage from the sediments. To answer such questions would go beyond the scope of the study; however they should be born in mind when applying the technique outlined in this paper.

ACKNOWLEDGEMENTS

The authors would like to thank Andrew Murray for constructive discussions; the Calculation Centre of the Institut National de Physique Nucléaire et de Physique des Particules for providing important calculation resources; and Prof. David Sanderson and an anonymous reviewer for helpful comments on a previous version of this paper.

REFERENCES

- Agostinelli S, et al. (Geant4 Collaboration), 2003. Geant4 – a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods A* 506: 250-303, DOI 10.1016/S0168-9002(03)01368-8.
- Aitken MJ, 1985. *Thermoluminescence dating*. London, Academic Press: 359pp.
- Aitken MJ, Clark PA and Gaffney CF, 1985. Beta and gamma gradients. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements* 10(4-6): 647-653, DOI 10.1016/0735-245X(85)90071-7.
- Allison J., et al. (Geant4 Collaboration), 2006. Geant4 developments and applications. *IEEE Transactions on Nuclear Sciences* 53: 270-278, DOI 10.1109/TNS.2006.869826.
- Allyson JD and Sanderson DCW, 1998. Monte Carlo simulations of environmental airborne gamma-spectrometry. *Journal of Environmental Radioactivity* 38(3): 259-282, DOI 10.1016/S0265-931X(97)00040-4.
- Allyson JD and Sanderson DCW, 2001. Spectral deconvolution and operational use of stripping ratios in airborne radiometrics. *Journal of Environmental Radioactivity* 53(3): 351-363, DOI 10.1016/S0265-931X(00)00141-7.
- Aznar MC, Nathan RP, Murray AS and Botter-Jensen L, 2003. Determination of differential dose rates in a mixed beta and gamma field using shielded Al_2O_3 : C results of Monte Carlo modelling. *Radiation Measurements* 37(4-5): 329-334, DOI 10.1016/S1350-4487(03)00003-9.
- Bailliff IK and Slim HA, 2008. Development of reference database for gamma dose assessment in retrospective luminescence dosimetry. *Radiation Measurements* 43(2-6): 859-863, DOI 10.1016/j.radmeas.2007.12.020.
- Bargholz K and Korsbech U, 1997. Conversion of Airborne Gamma Ray Spectra to Ground Level Air Kerma Rates. *Radiation Protection Dosimetry* 73(1-4): 127-130.
- Benke RR and Kearfott KJ, 2001. An improved in situ method for determining depth distributions of gamma-ray emitting radionuclides. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 463(1-2): 393-412, DOI 10.1016/S0168-9002(01)00449-1.
- Brennan BJ, Schwarcz HP and Rink J, 1997. Simulation of the gamma radiation field in lumpy environments. *Radiation Measurements* 27(2): 299-305, DOI 10.1016/S1350-4487(96)00133-3.
- Bucher B, Rybach L and Schwarz G, 2008. Search for long-term radiation trends in the environs of Swiss nuclear power plants. *Journal of Environmental Radioactivity* 99(8): 1311-1318, DOI 10.1016/j.jenvrad.2008.04.004.
- Fain J, Erramli H, Miallier D, Montret M and Sanzelle S, 1985. Environmental gamma dosimetry using TL dosimeters: Efficiency and absorption calculations. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements* 10(4-6): 639-646, DOI 10.1016/0735-245X(85)90070-5.
- Guérin G and Mercier N, 2011. Determining gamma dose rates by field gamma spectroscopy in sedimentary media: results of Monte Carlo simulations. *Radiation Measurements* 46(2): 190-195, DOI 10.1016/j.radmeas.2010.10.003.
- Guimarães CC, Moralles M and Okuno E, 2008. Performance of GEANT4 in dosimetry applications: Calculation of X-ray spectra and kerma-to-dose equivalent conversion coefficients. *Radiation Measurements* 43(9-10): 1525-1531, DOI 10.1016/j.radmeas.2008.07.001.
- ICRU, 1994. In situ Gamma-ray Spectrometry in the environment. *Report by the International Committee for Radiological Units* No. 53.
- Kastlander J and Bargholtz C, 2005. Efficient in situ method to determine radionuclide concentration in soil. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 547(2-3): 400-410, DOI 10.1016/j.nima.2005.03.143.
- Korun M, Likar A, Lipoglavsek M, Martincic R and Pucelj B, 1994. In situ measurement of Cs distribution in soil. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 93(4): 485-491, DOI 10.1016/0168-583X(94)95638-3.
- Liritzis Y and Galloway RB, 1980. A new technique for calibrating a NaI(Tl) scintillometer used to measure gamma dose rates in archaeological sites. *Nuclear Instruments and Methods* 174(3): 593-597, DOI 10.1016/0029-554X(80)91115-5.
- Løvborg L and Kirkegaard P, 1974. Response of 3" x 3" NaI(Tl) detectors to terrestrial gamma radiation. *Nuclear Instruments and Methods* 121(2): 239-251, DOI 10.1016/0029-554X(74)90072-X.
- Løvborg L, Bøtter-Jensen L, Kirkegaard P and Christiansen EM, 1979. Monitoring of soil natural radioactivity with portable gamma-ray spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods* 167(2): 341-348, DOI 10.1016/0029-554X(79)90021-1.
- Mercier N, Valladas H, Joron J-L, Schiegl S, Bar-Yosef O and Weiner S, 1995. Thermoluminescence dating and the problem of geochemical evolution of sediments. A case study: the Mousterian levels at Hayonim. *Israel Journal of Chemistry* 35: 137-141.
- Mercier N and Falguères C, 2007. Field gamma dose rate measurement with a NaI (Tl) detector: re-evaluation of the "threshold" technique. *Ancient TL* 25: 1-4.
- Miallier D, Guérin G, Mercier N, Pilleyre T and Sanzelle S, 2009. The Clermont radiometric reference rocks: a convenient tool for dosimetric purposes. *Ancient TL* 27: 37-44.
- Miller KM, Shebell P and Klemic GA, 1994. In situ gamma ray spectrometry for the measurement of uranium in surface soils. *Health Physics* 67(2): 140-150.
- Murray AS, Bowman SGE and Aitken MJ, 1978. Evaluation of the gamma dose rate contribution. *PACT* 2: 84-96.
- Nathan R, Thomas PJ, Murray AS and Rhodes EJ, 2003. Environmental dose rate heterogeneity of beta radiation and its implications for luminescence dating: Monte Carlo modelling and experimental validation. *Radiation Measurements* 37(4-5): 305-313, DOI 10.1016/S1350-4487(03)00008-8.
- Nathan RP and Mauz B, 2008. On the dose rate estimate of carbonate-rich sediments for trapped charge dating. *Radiation Measurements* 43(1): 14-25, DOI 10.1016/j.radmeas.2007.12.012.

- Sanderson DCW and Placido F, 1985. Scottish vitrified forts: background and potential for TL dating. *Nuclear Tracks* 10(4-6): 799-809, DOI 10.1016/0735-245X(85)90093-6.
- Thummerer S and Jacob P, 1998. Determination of depth distributions of natural radionuclides with in situ gamma ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 416(1): 161-178, DOI 10.1016/S0168-9002(98)00636-6.
- Tyler AN, 1999. Monitoring anthropogenic radioactivity in salt marsh environments through in situ gamma ray spectrometry. *Journal of Environmental Radioactivity* 45(3): 235-252, DOI 10.1016/S0265-931X(98)00110-6.
- Tyler AN, 2004. High accuracy in situ radiometric mapping. *Journal of Environmental Radioactivity* 72(1-2): 195-202, DOI 10.1016/S0265-931X(03)00202-9.
- Tyler AN, Sanderson DCW and Scott EM, 1996. Estimating and accounting for ¹³⁷Cs source burial through in situ gamma spectrometry in salt marsh environments. *Journal of Environmental Radioactivity* 33(3): 195-212, DOI 10.1016/0265-931X(95)00098-U.
- Tyler AN and Copplestone D, 2007. Preliminary results from the first national in situ gamma spectrometry survey of the United Kingdom. *Journal of Environmental Radioactivity* 17(2-3): 97-106, DOI 10.1016/0265-931X(02)90019-P.
- Zombori P, Andrrasi A and Nemeth I, 1992. In situ gamma spectrometric measurements of the contamination in some selected settlements of Byelorussia (BSSR), Ukraine (UkrSSR) and the Russian Federation (RSFSR). *Journal of Environmental Radioactivity* 96(1-3): 94-102, DOI 10.1016/j.jenvrad.2007.01.029.

Troisième partie

**Au-delà de l'hypothèse de matrice
uniforme, infinie : les débits de dose
en milieux granulaires**

Jusqu'à présent, nous nous sommes penchés sur les hétérogénéités des débits de dose gamma dans les sédiments. L'échelle considérée était alors de l'ordre de la dizaine de centimètre, et les détecteurs considérés étaient de dimensions pluri-centimétriques. Cette partie est le prolongement de la précédente, à ceci près que l'échelle considérée est très différente et concerne un autre type d'hétérogénéité : par essence les sédiments sont des milieux granulaires, donc hétérogènes à l'échelle de la taille des grains. Cette échelle dépend alors de la nature des sédiments, puisqu'un sable grossier est de ce point de vue très différent d'un limon ou d'une argile. Néanmoins quel que soit le milieu considéré, le cadre théorique habituellement utilisé pour déterminer les débits de dose reste le même : il s'agit de l'hypothèse de matrice infinie, uniforme.

Dans cette partie nous nous sommes donc intéressés à l'effet des hétérogénéités des sédiments à l'échelle des processus de dépôt d'énergie par les particules ionisantes, plus précisément par les électrons secondaires générés par les interactions des rayons gamma dans les sols (chapitre 7) et par les rayons beta (chapitre 8). Une des motivations de cette étude a été la réalisation de mesures de luminescence sur grains uniques pour l'étude géochronologique du Roc de Marsal (cf. chapitre 9). Il est apparu que la distribution de doses équivalentes, obtenue pour un des échantillons de sédiment, était caractérisée par une dispersion très élevée. Les facteurs d'une telle dispersion sont de plusieurs natures : on distingue d'une part les facteurs internes aux mesures (cf. Thomsen *et al.*, 2005), à savoir la reproductibilité des instruments de mesures, les éventuelles incertitudes de mesure non ou mal prises en compte, la nature potentiellement variable des grains de quartz, une dépendance de la croissance du signal de luminescence en fonction de la nature et de l'énergie des particules ionisantes, etc. ; d'autre part, les facteurs externes, parmi lesquels d'éventuels problèmes de remise à zéro du signal de luminescence avant l'enfouissement, des mélanges de couches stratigraphiques après enfouissement, enfin les problèmes liés aux hétérogénéités de distribution des radioéléments à l'échelle millimétrique.

Cette partie a pour but d'étudier les débits de dose avec le même niveau de détail que les études par OSL sur grains uniques, c'est-à-dire en considérant les grains comme étant les plus petites unités de matière des sédiments. Dans cette partie comme dans la précédente, la possibilité de simuler les interactions rayonnement-matière dans des géométries complexes avec GEANT4 a été mise à profit.

Chapitre 7. Etude préliminaire des processus de dépôt d'énergie à l'échelle des grains de sédiments

Introduction à l'article : Guérin, G., Mercier, N. Preliminary insights into dose deposition processes on a grain scale: the effect of moisture on gamma dose rates. Accepté pour publication, Radiation Measurements.

La première partie de ce travail sur les processus de dépôt d'énergie à l'échelle des grains de sédiments a consisté à écrire différents programmes permettant de simuler ces effets. Une géométrie simple a été choisie, en l'occurrence nous avons travaillé sur des assemblages périodiques de grains de quartz. Dans ce but nous avons utilisé les systèmes d'assemblage cristallographiques cubique simple, centré et à faces centrées. Ces géométries sont les plus simples que nous ayons imaginés, et nous ont autorisés à travailler avec une taille unique de grains. Afin de s'affranchir des problèmes de localisation des radioéléments, nous avons travaillé sur les débits de dose gamma, puisque les rayonnements mis en jeu ont une portée très largement supérieure aux dimensions des grains et pores typiquement rencontrés dans les milieux sédimentaires.

A partir de ces assemblages de grains, nous avons considéré une variation très simple de la composition du milieu, à savoir l'ajout d'eau entre les grains. L'effet de l'humidité sur les débits de dose est connu depuis longtemps : l'article fondateur de Zimmermann (1971) est ainsi encore couramment cité dans les travaux de datation par luminescence. Dans cet article, l'effet de l'humidité est traité en considérant un milieu uniforme, infini, dans lequel l'eau modifie les flux de particules ionisantes du fait d'un pouvoir d'arrêt massique supérieur à celui du quartz et autres aluminosilicates généralement constitutifs des sols. Une autre référence a largement orienté ces travaux : Aitken et Xie (1990) ont discuté les effets de taille des dosimètres – grains de quartz, silex – sur les facteurs de correction permettant de prendre en compte l'effet de l'humidité sur les sédiments. Ces auteurs concluent une discussion principalement qualitative sur la nécessité de recourir à des simulations Monte Carlo afin d'étudier les processus mis en jeu dans cet effet : c'est l'objet de l'article qui suit. Notons ici que des simulations Monte Carlo des interactions rayonnement-matière ont déjà été utilisées pour traiter cette question de l'effet de l'humidité sur les débits de dose (Nathan et Mauz, 2008).

L'originalité de l'article qui suit tient probablement au fait de considérer les grains de quartz non plus individuellement, puisqu'à eux seuls ils constituent déjà des hétérogénéités en termes de radioactivité (cf. Mejdahl, 1979), mais dans leur environnement par nature hétérogène dans le cas des dunes de sable simulées de manière simpliste par des assemblages périodiques de grains. Ainsi la principale différence avec les travaux de Nathan et Mauz (2008) réside dans la prise en compte des effets géométriques des processus de dépôt d'énergie en milieu sédimentaire, en plus des effets dus au changement de composition chimique du milieu. Les programmes écrits, dont l'architecture est présentée dans l'article, ont été mis à profit pour identifier les différents facteurs – taille de grains,

compacité des assemblages, énergie des particules ionisantes, teneur en eau - influençant le débit de dose reçus par les grains de quartz.



Contents lists available at SciVerse ScienceDirect

Radiation Measurements

journal homepage: www.elsevier.com/locate/radmeas

Preliminary insight into dose deposition processes in sedimentary media on a scale of single grains: Monte Carlo modelling of the effect of water on the gamma dose rate

Guillaume Guérin*, Norbert Mercier

Institut de Recherche sur les Archéomatériaux, UMR 5060 CNRS – Université de Bordeaux, Centre de Recherche en Physique Appliquée à l'Archéologie (CRP2A), Maison de l'archéologie, 33607 Pessac cedex, France

HIGHLIGHTS

- ▶ Monte Carlo simulations allowed us to study dose deposition processes in sediments.
- ▶ Simulation tools are presented and their performance is discussed.
- ▶ Beyond matrix effects, geometry parameters are of paramount importance.
- ▶ Grain/pore size is the most important parameter in such grain scale effects.

ARTICLE INFO

Article history:

Received 2 February 2011
 Received in revised form
 26 April 2012
 Accepted 2 May 2012

Keywords:

Gamma dose rate
 Monte Carlo simulations
 GEANT4
 Moisture effect

ABSTRACT

Water in soil affects the dose rate in sedimentary media. First it dilutes the radioelements, and second the mass stopping power as well as photon interaction cross sections are greater in water than in typical sediment constituents (Aitken, 1985). Here the effect of moisture on the gamma dose rate is investigated using Monte Carlo simulations based on the GEANT4 toolkit. Dose deposition processes are studied on the scale of individual grains in modelled well-sorted sediments: detailed tracking of gamma rays and secondary electrons shed light on the relative importance of the different interaction modes at stake, as a function of grain size, porosity and fraction of saturation of the sediments, as well as the energy of gamma rays. A description of the specifically designed GEANT4 codes is provided, followed by a comprehensive analysis of the phenomena. It is shown that geometry effects, specifically grain size and compactness, have a great impact on gamma dose rates received by sediment grains and that these can be quantified in the case of very simple grain assemblages. For a better accuracy in retrospective dosimetry dating methods, morphological features of the sediments that influence dose rates should be characterized and their influence on dose rate studied; Monte Carlo transport codes seem to be the favoured tools for that purpose.

© 2012 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

In retrospective dosimetry dating methods such as luminescence, the dose rate is affected by moisture in the environment. Zimmerman (1971) evaluated the effect of moisture content on alpha, beta and gamma dose rates for the case of pottery dating with an approach based on what Aitken (1985) called “the infinite matrix assumption”. In that case radioactivity measurements are performed on dry bulk samples, and dose rates are calculated using the deduced radioisotopic contents multiplied by conversion

factors (Guérin et al., 2011). The measured or estimated water content is then taken into account: not only does water dilute the radioisotope concentration in sediments, but also the mass stopping power and attenuation cross sections of water are higher than those of typical sediments. Zimmerman (1971), followed by Aitken (1985), proposed the following equation to calculate the annual gamma dose in a moist medium:

$$D_w = \frac{D_d}{1 + xWF} \quad (1)$$

where D_d is the dose in the medium when dry, W is the saturation water content expressed as (weight of water/dry weight), F is the fraction of pore space occupied by water and x is the correction

* Corresponding author. Tel.: +33 5 57 12 10 84; fax: +33 5 57 12 45 50.
 E-mail address: guillaume.guerin@gmail.com (G. Guérin).

factor to make allowance for the different energy absorption between water and medium.

2. Background

Taking $x = 1$ leads to consider only the dilution effect, i.e. water and sediment absorb the same amount of dose when averaged over the spectrum of beta and gamma radiations. To estimate x , Zimmerman (1971) computed the ratios of stopping powers and absorption coefficients at representative energies (around 1 MeV for gamma rays) and calculated a value $x = 1.14$ for gamma rays. Bowman (1976), Aitken and Xie (1990), followed by Nathan and Mauz (2008) suggested correction factors calculated using the differences in degraded spectra between dry and moist media.

These calculations were performed for ‘typical’ sediments and were focussed on the effect of the composition change in the matrix, due to the addition of water, on gamma interactions. It should be noted here that the addition of water in sediments is only a particular case, as was illustrated by Nathan and Mauz (2008) who considered pores of their sediments filled with carbonates.

Besides what can be referred to as matrix composition effects, Aitken and Xie (1990) give a detailed description of the physics processes at stake in the moisture correction effect for gamma radiation. Two individual values are suggested, for two different cases: the case where the approach based on the ratio of interaction cross sections is valid, which assumes that the size of dosimeters is greater than the electron range; in this case $x = 1.065$. The second case deals with the situation where Charged Particles Equilibrium (CPE) is reached; here the ratio of mass stopping powers should be used and $x = 1.19$. The underlying assumption is that the dimensions of sediment grains and interstitial spaces are negligible compared to charged particles range. These two cases highlight the importance of the grain size on dosimetry. This paper follows this discussion with an approach focussed on the effects of geometry, on the scale of dose deposition processes.

Considering pure siliceous environments, even though they are not realistic, allows an investigation of geometry effects on dose rate correction factors in a simple and comprehensive way, matrix composition effects (i.e. addition of water in the interstitial spaces) being reduced to their simplest form. The aim of the paper is to a) present the Monte Carlo simulation tools used to study geometry effects, on a grain scale, on dose deposition processes and b) discuss the results of the first attempts at characterizing these effects in simple modelled cases. A detailed study would involve micromorphology characterization of real sediments in order to determine where the water is present at the grains level; however this goes far beyond the scope of the present study, whose objective is to identify and describe key parameters in the variations of correction factors.

3. The model and corresponding simulation algorithms

The effects of grain size, gamma rays energy and consequently source radioisotopes (potassium, uranium and thorium decay chains), porosity and water filling of the pores, on gamma dose rates in a moist medium were investigated. For that matter simple geometries were simulated with the Monte Carlo simulation software GEANT4 (Agostinelli et al., 2003; Allison et al., 2006), which has already been used in the field of luminescence dating: recently, studies regarding gamma spectrometry using GEANT4 have been performed by Guérin and Mercier (2011) to study the response of a gamma spectrometer cell inserted in sediments to improve the accuracy of *in-situ* dose rate measurements. This work was associated with an experimental validation by Miallier et al. (2009) demonstrating the interest of numerical simulations for cases where experimental data may be difficult to obtain. Bailiff and Slim

(2008) used MCNP for the design of a model to determine kerma in air from retrospective dosimetry measurements (luminescence on building bricks). Greulich et al. (2008) designed a GEANT4 code to study artificial beta irradiation of samples in luminescence readers. More generally, the use of GEANT4 in dosimetry studies involving X rays, gamma rays and electrons (e.g. Guimarães et al., 2008) has been shown to be very accurate in the energy range between 1 keV and 100 TeV with the standard physics package (Burkhardt et al., 2004; Apostolakis et al., 2008, 2009), and between 250 eV and 1 GeV for low energy extensions (Chauvie et al., 2001, 2004; Apostolakis et al., 1999) such as the one derived from Penelope (Sempau et al., 2003; Salvat et al., 2006) or the package based on the models of Livermore (Cullen et al., 1991, 1997; Perkins and Cullen, 1994). Faddegon et al. (2009) and Cirrone et al. (2010) provide benchmark results regarding the tracking of particles with GEANT4 compared with experimental data.

The low energy extension based on the Penelope physics list package was used to accurately simulate low energy interactions, which is of paramount importance when working on small scale processes such as energy deposition in individual grains of sediments. During the Monte Carlo tracking of gamma rays and secondary electrons, the production cut-off (i.e. the range under which no secondary particle is generated) was set to 1 μm so that the accuracy of the tracking is sufficient to observe effects on grains of radius 20 μm and greater. The spectra used in this study to simulate gamma radioactivity of potassium, the uranium and thorium decay chains, have been derived from the ENSDF files and were published in a previous study (Guérin and Mercier, 2011).

For the geometric parameters to be easily tuned, crystallographic packing systems of monodisperse grains were simulated, and between two simulation runs the grain size was changed. These systems are far from representing real sediments on a grain scale, but present the advantage of allowing geometric features of dose deposition processes to be studied in the frame of Monte Carlo simulations. As a first step, an assemblage of quartz grains packed in a body-centred cubic system was simulated; this choice was dictated by the density of such an assemblage of quartz grains (density: 2.62 g cm^{-3}): the packing factor of this system being 0.680, the dry bulk density is 1.78 g cm^{-3} and is thus close to the density of typical sedimentary environments. To derive correction factors, two sets of simulations are needed: in the first one, the pores between the grains are filled with air, and in the second water is the interstitial material (except in the study concerning the amount of water in the pores, see Section 5).

In practice, these simulations require the use of a volume filled with silicon dioxide grains, with dimensions approximating the infinite matrix assumption; with a RAM memory of 2 Gigabytes, approximately 1,000,000 grains can be simulated. In a body-centred cubic system, it corresponds to a porous cube edge of 9 cm for grain radius of 500 μm , 3.7 cm for grain radius of 20 μm , which are far from an infinite medium as far as gamma rays are concerned. Therefore the cube containing quartz grains was placed at the centre of a homogeneous siliceous matrix, of composition silicon dioxide and density 1.78 g cm^{-3} . This way the simulated sediment may be considered homogeneous, although the granular structure of the medium is only simulated at the centre of simulated volume, where dose deposition processes are studied. The detectors are the quartz grains themselves, and the effects of heterogeneities at the level of dose deposition can be investigated. It should be noted here that the infinite matrix degraded gamma spectra entering the cube filled with quartz grains will not be affected by the geometric features of the surrounding matrix since the pore/grain size is negligible compared to the mean free path of gamma rays in sedimentary media. In the following this algorithm will be referred to as the ‘infinite matrix’ algorithm.

A sphere of 70 cm in radius in which gamma rays are emitted uniformly gives, at its centre, $99.3 \pm 0.1\%$ of the infinite matrix dose rate for uranium, $98.5 \pm 0.4\%$ for thorium and $99.6 \pm 0.2\%$ for potassium. For many questions these fractions of infinite matrix dose rates would be satisfactory, however in the case of moisture correction factors the density of humid sediments is higher than of dry ones; as a consequence, the “almost” infinite matrix approximation is not exactly the same in these two cases. It should also be noted that variations of 1% on dose rates will result in differences of approximately 6% on correction factors. The radius of homogeneous matrix for gamma emission should therefore be increased, at the expense of reasonable calculation time.

To overcome this technical problem, an algorithm has been developed to simulate infinite matrices. Only the porous cube, made of quartz grains and air or water filling the pores, is simulated. Gamma rays are emitted homogeneously and isotropically within the cube, and whenever a particle – either photon or electron – reaches the edge of this cube it is reflected, i.e. its direction is artificially reversed; this algorithm will be referred to as the reflection algorithm hereafter. It is equivalent to a replacement of the sediment grains, i.e. the cube, in order to follow photons and electrons. It greatly improves statistical uncertainties since all the emitted energy is deposited either in quartz or in air/water, whereas in the ‘infinite matrix’ algorithm the rate of deposited energy in the quartz grains is determined by the volume ratio between the porous cube and the surrounding environment.

In order to validate this algorithm, three virtual cases were simulated using both the ‘reflection’ algorithm and the ‘infinite matrix’ algorithm (Fig. 1). To achieve the infinite matrix approximation, three virtual monoenergetic sources were investigated with different energies: 50 keV, 100 keV and 200 keV. Taking respectively 20 cm, 40 cm and 60 cm for the radius of the surrounding homogeneous environment ensures that the quartz grains record respectively $99.97 \pm 0.07\%$, $99.96 \pm 0.23\%$ and $99.97 \pm 0.36\%$ of the corresponding infinite matrix dose rates. For the three different energies, different grain sizes were simulated using both algorithms and all data points, within uncertainties, are consistent with the 1:1 line. Uncertainties are given as one standard deviation estimated after at least 150 independent simulation runs.

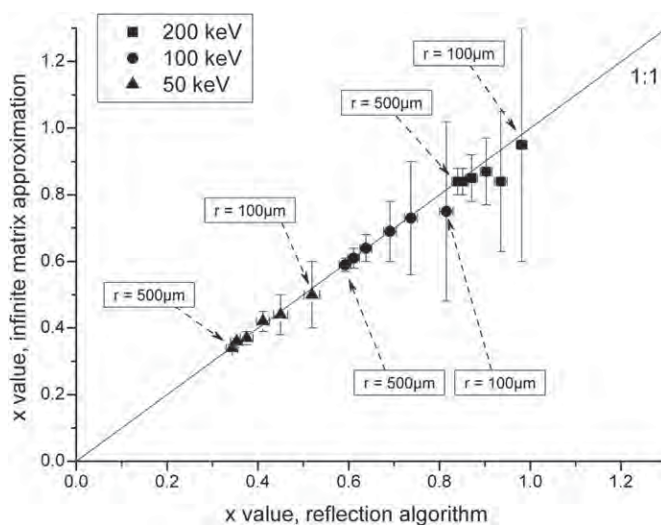


Fig. 1. Validation of the reflection algorithm. Correction factors obtained in the infinite matrix approximation are plotted against correction factors obtained using the reflection algorithm for different virtual monoenergetic gamma ray sources. For each energy the grain radius, assembled in a body-centred cubic crystal system, is increased from 100 to 500 μm (intermediate values are 150, 200, 300 and 400 μm). The line 1:1 is also plotted, and all data points are consistent with this line, within uncertainties.

It should be noted that validation of the ‘reflection algorithm’ is achievable – within reasonable uncertainties and simulation time – only with low energy gamma and X rays (<200 keV), i.e. in a region where photoelectric effect is dominant. For greater energies the radius of emission sphere should be drastically increased to satisfy the infinite matrix assumption, which would result in great uncertainties for the calculations performed with the infinite matrix algorithm. However from a tracking point of view, the performance of the reflection algorithm should not be affected by the studied energy range: the important feature is that gamma rays (and secondary electrons) are reflected when exiting the cube containing the quartz grains, which involves the GEANT4 transportation manager and should, therefore, not depend on interaction processes. We thus assume that the performances of this algorithm are not dependent on the photon primary energies.

In the following, results are obtained using the ‘reflection’ algorithm since it simultaneously reduces calculation times and statistical uncertainties. Using this algorithm, gamma rays are emitted homogeneously and isotropically in the cube containing the silicon dioxide. The underlying assumption is that the grain size is negligible compared to the mean free path of gamma rays.

4. Grain size and energy dependency

The physics mechanisms driving the evolution of correction factors as a function of energy and grain size were investigated. Interaction cross sections (without coherent scattering, i.e. based on Photoelectric and Compton cross sections) have been calculated using the XCOM software (Berger et al., 2009) and are shown in Fig. 2; results in the following section will be analysed in regard to these data. In this section, all simulations are still performed in a geometry made of SiO_2 grains packed in a body-centred cubic system. Either air – in the dry case – or water – in the humid case – completely fills the interstitial spaces between grains. The influence of packing factor and water filling of the pores is discussed in Section 5.

4.1. Monoenergetic gamma rays

The objective is here to provide a description of the variations in the moisture correction coefficients as a function of two parameters: energy and grain size in the sediments. Fig. 3 shows correction

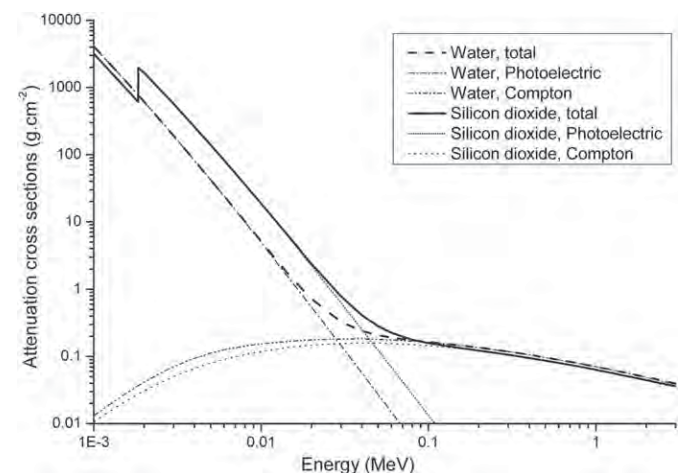


Fig. 2. Attenuation cross sections according to the XCOM software (Berger et al., 2009). Total cross sections do not include coherent scattering. Below 100 keV attenuation is higher in SiO_2 than in water. Photoelectric cross sections are greater than Compton ones below 40 keV in SiO_2 , below 20 keV in water.

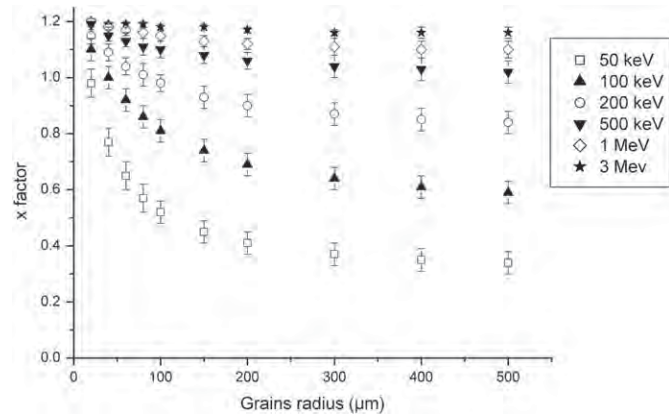


Fig. 3. Influence of energy on x factor, as a function of grain size. Grains are assembled according a cubic-centred crystal system. The variations in correction factors depend on the energy of the primary gamma rays.

factors for different energies and grain sizes. As can be seen, for a given grain size, the x value is increased with the gamma rays energy. In other words the dose absorbed by water is all the more important when the energy is high. Moreover for a given energy, the x value is increased as the grain size is reduced; these two features can be explained using interaction characteristics, first for gamma rays and then for secondary electron particles.

Let us first consider the simple case of low energy gamma rays in a large grain size environment. For $E = 50$ keV and $r = 500$ μm , secondary electrons have a range smaller than grain and pore dimensions, so one can consider in a first approximation that secondary electrons deposit dose mainly in the volume where they are generated. Therefore, the gamma interaction cross sections of silicon dioxide (0.282 g cm^{-2} without coherent scattering) and water (0.207 g cm^{-2}) play a dominant role since they define the probability of a secondary electron to be generated in or outside a grain. Moreover, secondary gamma rays will greatly affect the correction factor because Compton cross sections (0.158 g cm^{-2} for SiO_2 , 0.180 g cm^{-2} for water) are significantly higher than Photoelectric cross sections (0.124 g cm^{-2} for SiO_2 , 0.027 g cm^{-2} for water). The correction factor $x = 0.34 \pm 0.04$ is thus lower than the ratio of attenuation cross sections (0.73) and the dose absorbed in water is lower than in SiO_2 .

When the energy is increased for a given grain size, two variations will cause the increase of dose absorbed by water: first, secondary electrons will deposit dose in a number of grains and pores, and since the electron stopping power is higher in water than in SiO_2 , the fraction of dose deposited in water is also higher. Second, Compton cross sections in water are higher than in SiO_2 . As a result water will absorb more than its share by weight for primary gamma energies greater than 1 MeV ($x > 1$), for a 500 μm radius.

Fig. 3 also shows that, for a given energy, the x value is increased when the grain size is decreased. It seems that all energy series tend towards a limit value, which is $x = 1.19$ – 1.20 for small grain sizes (radius: 20 μm). This value corresponds to the correction coefficient proposed by Aitken and Xie (1990) as well as Nathan and Mauz (2008) for beta radiation. These results can be interpreted in the light of the infinite matrix assumption: for small grains, the range of the electrons that are generated through either Compton or photoelectric effects is greater than grain or pore dimensions. As a result, electrons will deposit a small amount of energy in a great number of volume elements, and their energy in two consecutive volume elements will be only slightly changed. When the dimensions of grains and pores are negligible compared with the electron range, the correction factors are then determined by matrix

composition effects rather than by geometry effects. The way electrons are generated in the sedimentary medium, as well as their location – inside or outside a SiO_2 grain – has no effect on the correction factor. In this case, this factor is determined by the ratio of mass stopping powers between water and SiO_2 , hence the convergence of the gamma correction factor towards the one calculated for beta radiation (for the mass stopping powers, see Berger et al. (2005)).

The two extreme cases – low energy, large grain size or high energy, small grain size – correspond to the two cases discussed by Aitken and Xie (1990), and the x factor variations are similar.

4.2. Potassium, uranium and thorium series

The processes driving the variations in x being determined, the same algorithm can be used to determine values that are of direct interest in the field of luminescence dating. If the case of potassium is a particular case of a monoenergetic source, with an energy of 1.46 MeV, the cases of thorium and uranium are more complex, since a great number of gamma ray lines are to be considered. Formally the correction factors can be taken as the weighted mean of the correction factors explicitly calculated for each different line; the weighting would be computed using the line intensities and more precisely their contribution to dose rate. However, for convenience simulations were performed using the spectra from Guérin and Mercier (2011): in this case the energy sampling is achieved in the simulation code, at the level of gamma rays emission. The results are shown in Fig. 4. As expected, the correction factors increase when the grain size is decreased, and the value for small grains (20 μm) is 1.19 , in agreement with published data for beta radiation. Moreover, for a given grain size, the x value is increased from uranium to thorium series and then to potassium, a trend already shown by Nathan and Mauz (2008).

In the field of luminescence dating, grain sizes are generally between a few μm and 100 μm in radius. Within this grain size interval, our correction factors range between 1.16 and 1.19 for potassium, 1.13 and 1.18 for uranium, 1.14 and 1.19 for thorium. These values are consistent with the values proposed by Aitken and Xie (1990) in the small grains case but are significantly higher than the values proposed by Nathan and Mauz (2008) – between 0.98 and 1.06 , because the secondary electrons were not considered in this study – i.e. only gamma interactions were simulated. Our values are actually much closer to the original value proposed by

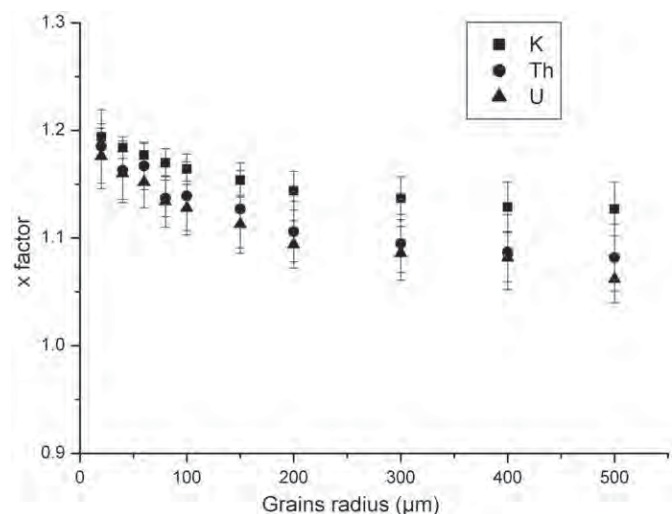


Fig. 4. K, U and Th values for x in a body-centred cubic assemblage of grains, as a function of grain size.

Table 1

Characteristics of the three packing systems simulated to study the influence of porosity on correction factors. In this series of simulations the interstitial spaces are completely filled with air or water, respectively in the dry and humid cases.

Packing system	Cubic simple	Body-centred cubic	Face-centred cubic
Packing factor	0.524	0.680	0.740
Density, dry (g cm^{-2})	1.37	1.78	1.94
Density, humid (g cm^{-2})	1.85	2.10	2.20
W	0.347	0.180	0.134

Zimmerman (1971) – $x = 1.14$ – although the approaches are very different.

5. The effects of porosity and water filling of the pores

The use of a simple geometry provides a tool to investigate the effects induced by parameter variations on moisture correction coefficients. In this section, the objective is to focus on sediment parameters such as porosity – represented by the factor W in Eq. (1) – and water filling of the pores – factor F in Eq. (1). Simulations presented hereafter have been performed using the reflection algorithm, for different geometrical configurations: first is discussed the effect of W , and for that matter the packing of the grains is varied. Then the amount of water filling the pores is changed.

5.1. The effect of porosity

Table 1 summarizes the physical parameters such as densities in the dry and humid cases, packing factor and related W factor for three cubic packing systems: the cubic simple system, the body-centred cubic system and finally the face-centred cubic system.

Fig. 5 shows the results of simulations for uranium, thorium and potassium in the different packing systems, for different grain sizes. A first result is that x depends on W , which is not assumed in Eq. (1). The correction factor is increased with the water content at saturation, which can be interpreted as follows: since the sediment composition does not change from one packing system to another, the electron range in the different configurations is roughly the same. However given a range, the number of grains and pores crossed by secondary electrons is increased with the extent of compaction. Therefore the higher the value of W is, the greater the dose absorbed by water. In this case again, it can be interpreted in terms of closeness to the infinite matrix assumption: the closer to this assumption, the higher the correction coefficient. It may also be noticed that the differences between the three packing systems is decreased when the grains are small, since the three curves – for each radioactivity source – tend towards the same limit of 1.19–1.20 discussed above. Table 2 summarizes the correction factors simulated for K, U and Th in the three packing systems and for different grain sizes. Values for massive dosimeters (e.g. rock pieces) are given in Table 3.

5.2. The effect of water filling the pores

The last factor appearing in Eq. (1), F , is now investigated: the amount of water in the pores was tuned. Pragmatically it was achieved by changing the density of the water that fills the pores. Indeed when a photon or an electron is tracked between grains, the interaction probability and dose deposited will in a first order approximation not be affected by the geometrical repartition of water between the grains – i.e. it is equivalent to crossing 0.2 mm of water with a density of 1 g cm^{-3} or 1 mm of water of density 0.2 g cm^{-3} . However, in terms of angular scattering these two

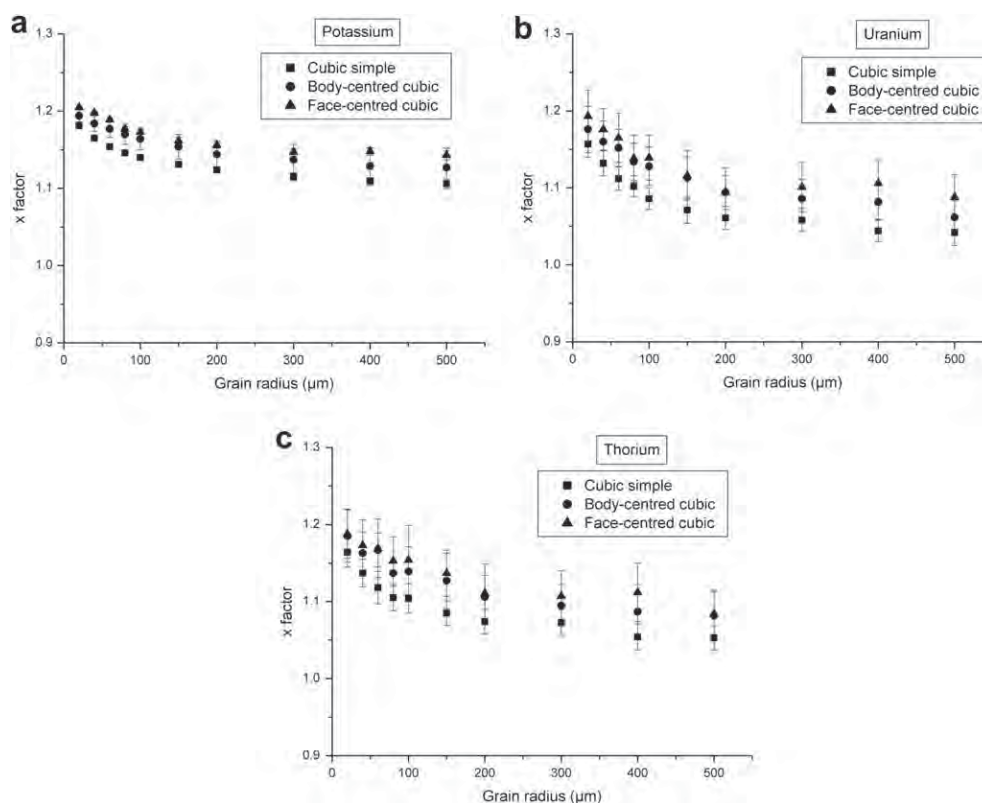


Fig. 5. The influence of W on correction factors, respectively for potassium (a), uranium (b) and thorium (c). The densities, packing factors and W values of the three pure quartz assemblages – with air/water filling the pores – are shown in Table 1.

Table 2

Water correction factors for gamma radiation obtained using Monte Carlo simulations for the three radioelements found in sediments, as a function of the packing system and grain size. Uncertainties are given in italic and correspond to one standard deviation.

Grain radius (μm)	Cubic simple			Body-centred cubic				Face-centred cubic		
	K	U	Th	K	U	Th	K	U	Th	
20	1.181 <i>0.002</i>	1.157 <i>0.017</i>	1.164 <i>0.019</i>	1.194 <i>0.008</i>	1.176 <i>0.030</i>	1.185 <i>0.034</i>	1.205 <i>0.002</i>	1.193 <i>0.034</i>	1.188 <i>0.032</i>	
40	1.165 <i>0.002</i>	1.132 <i>0.016</i>	1.137 <i>0.019</i>	1.184 <i>0.010</i>	1.160 <i>0.027</i>	1.163 <i>0.027</i>	1.198 <i>0.002</i>	1.176 <i>0.027</i>	1.173 <i>0.033</i>	
60	1.154 <i>0.003</i>	1.112 <i>0.015</i>	1.118 <i>0.021</i>	1.177 <i>0.011</i>	1.152 <i>0.024</i>	1.167 <i>0.022</i>	1.189 <i>0.003</i>	1.165 <i>0.032</i>	1.169 <i>0.038</i>	
80	1.146 <i>0.003</i>	1.102 <i>0.014</i>	1.105 <i>0.017</i>	1.170 <i>0.013</i>	1.134 <i>0.024</i>	1.137 <i>0.017</i>	1.177 <i>0.003</i>	1.138 <i>0.030</i>	1.153 <i>0.031</i>	
100	1.140 <i>0.003</i>	1.086 <i>0.014</i>	1.104 <i>0.019</i>	1.164 <i>0.014</i>	1.128 <i>0.025</i>	1.139 <i>0.032</i>	1.173 <i>0.003</i>	1.139 <i>0.029</i>	1.154 <i>0.045</i>	
150	1.131 <i>0.003</i>	1.071 <i>0.017</i>	1.085 <i>0.016</i>	1.154 <i>0.016</i>	1.113 <i>0.027</i>	1.127 <i>0.036</i>	1.162 <i>0.004</i>	1.116 <i>0.032</i>	1.137 <i>0.030</i>	
200	1.124 <i>0.004</i>	1.061 <i>0.015</i>	1.074 <i>0.016</i>	1.144 <i>0.018</i>	1.094 <i>0.022</i>	1.106 <i>0.028</i>	1.156 <i>0.004</i>	1.095 <i>0.031</i>	1.111 <i>0.038</i>	
300	1.115 <i>0.005</i>	1.058 <i>0.015</i>	1.073 <i>0.017</i>	1.137 <i>0.02</i>	1.086 <i>0.025</i>	1.095 <i>0.027</i>	1.147 <i>0.005</i>	1.101 <i>0.032</i>	1.107 <i>0.033</i>	
400	1.109 <i>0.005</i>	1.044 <i>0.014</i>	1.054 <i>0.017</i>	1.129 <i>0.023</i>	1.082 <i>0.023</i>	1.087 <i>0.035</i>	1.148 <i>0.005</i>	1.106 <i>0.029</i>	1.112 <i>0.038</i>	
500	1.106 <i>0.006</i>	1.042 <i>0.017</i>	1.053 <i>0.016</i>	1.127 <i>0.025</i>	1.062 <i>0.022</i>	1.082 <i>0.031</i>	1.143 <i>0.006</i>	1.088 <i>0.029</i>	1.084 <i>0.031</i>	

Table 3

Correction factors computed by Aitken and Xie (1990), Nathan and Mauz (2008) and in the present study, in the case of a massive dosimeter such as a rock piece. In this case the flux variations induced by the presence of water are the only cause of correction coefficients. Uncertainties are given in italic and correspond to one standard deviation.

	Aitken and Xie (1990)	Nathan and Mauz (2008)	This paper
K	1.065	1.04–1.06	1.089 <i>0.029</i>
U		0.99–1.02	1.074 <i>0.046</i>
Th		0.98–1.02	1.056 <i>0.049</i>

situations are different and further studies would be needed to quantify the effect of this simplification on the correction factor values. Simulation results are shown on Fig. 6, for two different grain sizes: 60 μm and 400 μm , which are assumed to give an estimation of the behaviour in this size range.

Before discussing the general tendency, it should be noted that when the density of water filling the pores is decreased, the relative amount of dose deposited in water is lower which reduces counting statistics. Despite the high uncertainties, the two datasets show a common trend: the correction factors are increased when F is decreased. This feature can be explained by the number of pores and grains in which electrons deposit dose, which is increased when F is decreased. The same reasoning as above can be applied: the closer to the infinite matrix assumption, the higher is x . However, for given grain size and radioisotope, the variations in x do not exceed 5%, and these variations can hardly be taken as quantitative results because of the lack in precision.

6. Discussion

This simulation series gives information on the dose deposition processes in sedimentary media, and more specifically at the level

of quartz grains which are the simulated dosimeters in the present study. First, for sediment grains the equation proposed by Zimmerman (1971) should be rewritten in the form:

$$D_w = \frac{D_d}{1 + x(W, F, r, [K], [U], [Th])WF} \quad (2)$$

However before adding several steps in the dating process, the variations induced by the different factors should be clearly assessed. First, the effect of the amount of water filling the pores is relatively low on the correction factor, especially if sediments remain in the field of typical humidity conditions, i.e. between 40 and 80% of the saturation level. The effect of porosity can be treated in the same way; if one assumes that typical densities for dry bulk sediments are of the order of 1.8–2 g cm^{-3} , variations due to the W factor are of 2–3% at most.

By contrast, the source of the gamma rays -i.e. U, Th or K - may induce important variations for large grains but this effect is reduced for radii smaller than 150 μm : differences between correction factors calculated for K, U and Th do not exceed 2% in that case. So, in practice, taking the mean value - i.e. assuming that K, U and Th equally contribute to gamma dose rates - should not be too problematic, except in extreme cases.

Consequently, the most important source of variation in the correction factor is the grain size. For a grain radius of 100 μm , for the current models $x = 1.14$ in average whereas for smaller grains (radius: 20 μm) $x = 1.19$ - hence a variation of 4%. It should also be noted here that for smaller grains, correction factors should be close to 1.19–1.20, which seems to be a limit value that can be derived from calculations on the ratio of electron mass stopping powers of water and silicon dioxide.

Despite these general conclusions, it is needed here to temper the numerical results obtained in this study since it is based on

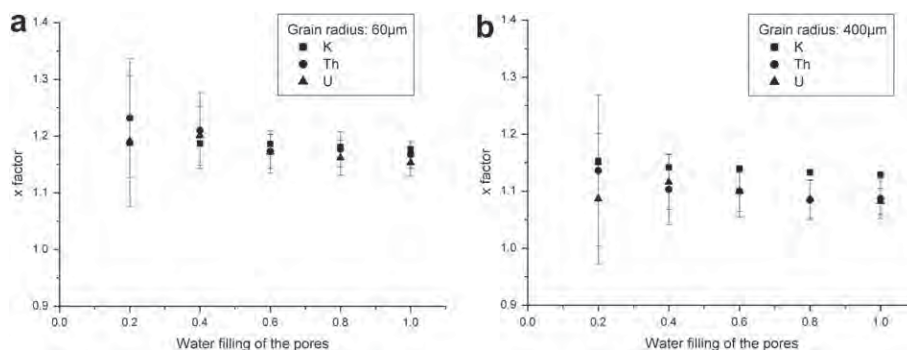


Fig. 6. Influence of the water filling of the pores on the correction factor, for two different grain sizes. Grains are packed in a body-centred cubic crystal system; the grain radius is (a) 60 μm and (b) 400 μm .

simulations performed in perfectly sorted, simple environments, and the application of these values in sediments exhibiting complex grain size distributions is not straightforward. Nevertheless it becomes clear that combining experimental characterization of the environment of the natural dosimeters (grains) used for dating purposes, with Monte Carlo simulations will be of paramount importance to determine a) dose rates for specific dosimeters in given environments and b) the key parameters influencing the dose rates received by natural dosimeters such as quartz grains.

7. Conclusion

Dose rate determination in sedimentary media has been long known to be dependent on matrix composition effects. In this paper it is shown that another set of parameters, related to geometry, should be taken into account: the way space is filled by grains and pores of various dimensions have a significant influence on dose deposition processes and thus dose rates to natural dosimeters. These effects have been quantified in simple cases using Monte Carlo simulations with the GEANT4 toolkit. The range of applicability of the results is limited by the very simplified description of sedimentary media. However the investigated dose rate effects are important; characterization of samples on a micro-morphological scale, coupled to numerical simulation of dose deposition processes using codes similar to the ones described here, should be considered in the future.

In typical sediments, beta radiation plays a more important role in the total dose rate – especially when working with sediment grains – so future work should tackle the question of correction factors for beta radiation. In this case, a good knowledge of the radiochemistry of sediments will be needed since radioisotope spatial distributions will play a determining role. Assessing the impact of parameter variation on correction factors for beta radiation will also certainly help interpreting equivalent dose distributions obtained using the single grain technique since, until now, it remains difficult to obtain valuable dosimetric information on the scale of individual grains. Finally, considering these difficulties in getting such reliable experimental data, it seems that numerical modelling is a powerful tool to investigate this field of luminescence dating methods.

Acknowledgements

The authors are grateful to an anonymous reviewer for helpful remarks and suggestions. This work was supported by a PhD scholarship awarded by the French Ministry of Research, and Monte Carlo simulations were performed at the Calculation Centre of the French National Institute for Nuclear and Particle Physics (CC-IN2P3).

References

Agostinelli, S., et al., Geant4 Collaboration, 2003. Geant4-a simulation toolkit. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 506, 250–303.

Aitken, M.J., Xie, J., 1990. Moisture correction for annual gamma dose. *Ancient TL* 8 (2), 6–9.

Aitken, M.J., 1985. Thermoluminescence Dating. Academic Press, London, 378 pp.

Allison, J., et al., Geant4 Collaboration, 2006. Geant4 developments and applications. *IEEE Transactions on Nuclear Sciences* 53, 270–278.

Apostolakis, J., Giani, S., Maire, M., Nieminen, P., Pia, M.G., Urban, L., 1999. Geant4 Low Energy Electromagnetic Models for Electrons and Photons. preprint CERN-OPEN-99-034.

Apostolakis, J., Bagulya, A., Elles, S., Ivanchenko, V.N., Kadri, O., Maire, M., Urban, L., 2008. The performance of the Geant4 standard EM package for LHC and other applications. *Journal of Physics: Conference Series* 119, 032004.

Apostolakis, J., Asai, M., Bogdanov, A.G., Burkhardt, H., Cosmo, G., Elles, S., Folger, G., Grichine, V.M., Gumplinger, P., Heikkinen, A., Hrivnacova, I., Ivanchenko, V.N., Jacquemier, J., Koi, T., Kokoulin, R.P., Kossov, M., Kurashige, H., McLaren, I., Link, O., Maire, M., Pokorski, W., Sasaki, T., Starkov, N., Urban, L., Wright, D.H., 2009. Geometry and physics of the Geant4 toolkit for high and medium energy applications. *Radiation Physics and Chemistry* 78, 859–873.

Bailliff, I.K., Slim, H.A., 2008. Development of reference database for gamma dose assessment in retrospective luminescence dosimetry. *Radiation Measurements* 43, 859–863.

Berger, M.J., Coursey, J.S., Zucker, M.A., Chang, J., 2005. ESTAR, PSTAR, and ASTAR: Computer Programs for Calculating Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions (version 1.2.3). [Online] Available: National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD [2009]. <http://www.nist.gov/pml/data/star/index.cfm>.

Berger, M.J., Hubbell, J.H., Seltzer, S.M., Chang, J., Coursey, J.S., Sukumar, R., Zucker, D.S., Olsen, K., 2009. Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients (version 3.1). [Online] Available: National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD <http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm> [2010].

Bowman, S.G.E., 1976. Thermoluminescence dating: the evaluation of radiation dosage. Unpublished D. Phil. thesis. Faculty of Physical Sciences, Oxford University.

Burkhardt H., Grichine V.M., Gumplinger P., Ivanchenko V.N., Kokoulin R.P., Maire M., Urban L., 2004. Geant4 standard electromagnetic package for HEP applications, Nuclear Science Symposium Conference Record, IEEE 3, 16–22 Oct. 2004, 1907–1910.

Chauvie, S., Depaola, G., Ivanchenko, V., Longo, F., Nieminen, P., Pia, M.G., 2001. Geant4 low energy electromagnetic physics. In: Proceedings of Computing in High Energy Physics 2001, Beijing.

Chauvie S., Guatelli S., Ivanchenko V., Longo F., Mantero A., Mascialino B., Nieminen P., Pandola L., Parlati S., Peralta L., Pia M.G., Piergentili M., Rodrigues P., Saliceti S., Trindade A., 2004. Geant4 low energy electromagnetic physics, IEEE Nuclear Science Symposium 2004 Conference Record, Rome.

Cirrone, G.A.P., Cuttone, G., Di Rosa, F., Pandola, L., Romano, F., Zhang, Q., 2010. Validation of the Geant4 electromagnetic photon cross-sections for elements and compounds. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 618, 315–322.

Cullen, D.E., Perkins, S.T., Seltzer, S.M., 1991. Tables and Graphs of Electron Interaction Cross 10 eV to 100 GeV Derived from the LLNL Evaluated Electron Data Library (EEDL), Z = 1–100. Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-50400, 31. Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA.

Cullen, D.E., Hubbell, J.H., Kissel, L., 1997. EPDL97 The Evaluated Data Library, '97 Version. Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-50400. Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA.

Faddegon, B.A., Kawrakow, I., Kubyshev, Y., Perl, J., Sempau, J., Urban, L., 2009. Accuracy of EGSnrc, Geant4 and PENELOPE Monte Carlo systems for simulation of electron scatter in external beam radiotherapy. *Physics in Medicine and Biology* 54, 6151–6163.

Greulich, S., Murray, A.S., Bøtter-Jensen, L., 2008. Simulation of electron transport during beta irradiation. *Radiation Measurements* 43, 748–751.

Guérin, G., Mercier, N., 2011. Determining gamma dose rates by field gamma spectroscopy in sedimentary media: results of Monte Carlo simulations. *Radiation Measurements* 46, 190–195.

Guérin, G., Mercier, N., Adamiec, G., 2011. Dose rate conversion factors: update. *Ancient TL* 29 (1), 5–8.

Guimarães, C.C., Moralles, Maurício, Okuno, Emico, 2008. Performance of GEANT4 in dosimetry applications: calculation of X-ray spectra and kerma-to-dose equivalent conversion coefficients. *Radiation Measurements* 43, 1525–1531.

Miallier, D., Guérin, G., Mercier, N., Pilleyre, T., Sanzelle, S., 2009. The Clermont radiometric reference rocks: a convenient tool for dosimetric purposes. *Ancient TL* 27, 37–44.

Nathan, R.P., Mauz, B., 2008. On the dose rate estimate of carbonate-rich sediments for trapped charge dating. *Radiation Measurements* 43, 14–25.

Perkins, S.T., Cullen, D.E., 1994. ENDL Type Formats for the LLNL Evaluated Atomic Data Library, EADL, for the Evaluated Electron Data Library, EEDL, and for the Evaluated Photon Data Library, EPDL. LLNL, California. UCRL-ID-117796.

Salvat, F., Fernández-Varea, J.M., Sempau, J., 2006. Penelope-2006: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. NEA, Barcelona.

Sempau, J., Fernández-Varea, J.M., Acosta, E., Salvat, F., 2003. Experimental benchmarks of the Monte Carlo code PENELOPE. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interaction with Materials and Atoms 207, 107–123.

Zimmerman, D.W., 1971. Thermoluminescence dating using fine grains from pottery. *Archaeometry* 13, 29–52.

Chapitre 8. De l'usage de l'hypothèse de matrice infinie et des concepts dérivés : une revue critique

*Introduction à l'article : : Guérin, G., Mercier, N., Nathan, R., Adamiec, G.,
Lefrais, Y. On the use of the infinite matrix assumption and associated
concepts : a critical review. Soumis, Radiation Measurements.*

Le chapitre précédent a constitué l'étape préliminaire à cet article. Une remise en contexte nous semble ici nécessaire pour comprendre les enjeux de ces travaux. Historiquement, les premiers objets datés par luminescence étaient des terres cuites, par la technique dite des inclusions de quartz. Il s'agissait de travailler sur les grains de quartz formant le dégraissant de céramiques principalement constituées d'argile. D'un point de vue dosimétrique, les grains de quartz, généralement très peu radioactifs par rapport à leur environnement, sont donc entourés par une matrice homogène et infinie à l'échelle du parcours des particules alpha et beta, ainsi que des électrons secondaires générés par les interactions des interactions gamma. La mesure des teneurs en radioéléments des échantillons de céramiques permettait de déterminer les débits de dose en matrice infinie correspondant. Puis l'effet de la taille des grains de quartz était pris en compte grâce au théorème de superposition – il s'agit de considérer le débit de dose reçu par une inclusion non radioactive entourée d'une matrice infinie, homogène. De même, l'effet de l'humidité sur les débits de dose était calculé en considérant l'atténuation des flux de particules ionisantes à partir des seules sections efficaces d'interaction de l'eau par rapport à celles des milieux sédimentaires typiques – ce qui signifie qu'aucun facteur géométrique n'était pris en compte.

Au cours des dernières décennies, le domaine d'application des méthodes de datation par luminescence s'est considérablement étendu. Pour autant, les méthodes d'évaluation des débits de dose n'ont pas évolué : on continue à considérer les grains de quartz datés par OSL entourés par une matrice uniforme, infinie. L'article qui suit est consacré à une évaluation de la pertinence des concepts ainsi utilisés de manière routinière en datation par luminescence (et par résonance paramagnétique électronique) sur quartz. Quelques considérations théoriques y sont exposées, qui permettent de comprendre pourquoi l'hypothèse de matrice infinie n'est pas toujours justifiée, et d'estimer les effets attendus d'*a priori* théoriques injustifiés. Afin de quantifier les effets ainsi mis en évidence, nous avons alors travaillé sur les codes écrits pour l'article précédent afin de simuler la radioactivité beta d'un échantillon de sable proposé pour une étude d'inter-comparaison entre différents laboratoires de datation. Cette étape a nécessité une caractérisation de l'échantillon : sa nature, sa composition chimique et radiochimique, la distribution des radioéléments ont ainsi été déterminées à l'aide des outils de caractérisation du CRPAA. Les simulations numériques ont ainsi permis de simuler les effets dosimétriques dans cet échantillon, afin de les comprendre et de comparer les résultats de l'approche classique de détermination des débits de dose avec ceux des expériences virtuelles réalisées.

Outre la portée théorique de ces travaux concernant les débits de dose moyens reçus par une population de grains de quartz en milieu sédimentaire, le prolongement naturel de ces simulations numériques des effets dosimétriques en milieux hétérogènes résidait dans l'étude des débits de dose reçus par les grains de quartz considérés comme une population de grains individuels. Les programmes informatiques sont présentés, validés et les premiers résultats des simulations des débits de dose sur grains uniques sont discutés dans l'article suivant. En particulier nous avons démontré que la forme même des distributions de paléodoses attendues dépend de la répartition des radioéléments. Nous espérons ainsi, par le développement de tels outils méthodologiques, être prochainement en mesure d'améliorer l'analyse et le traitement des distributions de doses équivalentes sur grains uniques obtenues en OSL : une meilleure compréhension des effets dosimétriques nous permettrait alors de nous interroger, avec des arguments quantitatifs, sur d'éventuels problèmes de remise à zéro du signal de luminescence dans les sédiments, ainsi que sur les phénomènes post-dépositionnels à l'origine de mélanges de couches stratigraphiques.

Contents lists available at [SciVerse ScienceDirect](http://www.sciencedirect.com)

Radiation Measurements

journal homepage: www.elsevier.com/locate/radmeas

On the use of the infinite matrix assumption and associated concepts: A critical review

Guillaume Guérin^{a,*}, Norbert Mercier^a, Roger Nathan^b, Grzegorz Adamiec^c, Yannick Lefrais^a

^a Institut de Recherche sur les Archéomatériaux, UMR 5060 CNRS – Université de Bordeaux, Centre de Recherche en Physique Appliquée à l'Archéologie (CRP2A), Maison de l'archéologie, 33607 Pessac cedex, France

^b Research Laboratory for Archaeology and the History of Art, South Parks Road, Oxford OX1 3QY, UK

^c Silesian University of Technology, Institute of Physics, GADAM Centre of Excellence, ul. Krzywoustego 2, 44-100 Gliwice, Poland

ARTICLE INFO

Article history:

Received 27 September 2011

Received in revised form

28 March 2012

Accepted 5 April 2012

Keywords:

Paleodosimetric dating methods

Dose rate conversion factors

Infinite matrix assumption

Monte Carlo modelling

GEANT4

ABSTRACT

The infinite matrix assumption is commonly used to derive dose rates in the field of paleodosimetric dating methods. The update of nuclear data allowed calculating new dose rate conversion factors and attenuation factors for taking account of grain size. The relevance of the infinite matrix assumption was found to be limited to specific cases and a discussion of potential errors in estimating dose rates to natural dosimeters in sedimentary media is proposed. A new set of geometric features is shown to be of paramount importance for estimating dose rates in sedimentary media. To quantify these effects, Monte Carlo modelling was applied and the architecture of the programmes is described. It is also shown that proper characterization of sediment samples, coupled to the modelling of radioactivity in these sediments may provide more accurate dose rates to quartz grains, down to the single grain scale.

© 2012 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Quaternary studies increasingly involve physical dating methods. Among the most widely used, trapped charge dating methods on crystalline minerals allow the dating of sediment deposition (optically stimulated luminescence – OSL, and Electron Spin Resonance – ESR; in these methods exposure to sunlight is dated), teeth (ESR) and last heating of stones (thermoluminescence – TL). In particular, quartz and feldspars, due to their ubiquity on the Earth surface, are extensively used. Determining an age requires the knowledge of two physical quantities: the paleodose or accumulated energy per unit mass since the last luminescence signal resetting and the dose rate which is the rate of dose accumulation in the minerals. During the last two decades, much effort in the OSL field has been devoted to the development of methods aimed at determining the dose equivalent (ED) to the palaeodose.

By contrast, very few studies have focused on the dose rate received by sedimentary grains (e.g. Brennan, 2003, 2006; Fain et al., 1999; Nathan and Mauz, 2008; Mayya et al., 2006;

Cunningham et al., in this issue). Dose rate contributions are due to cosmic radiation and the different types of radioactivity from the regolith: gamma, beta and alpha rays are emitted following radioactive decay from the uranium and thorium decay series and potassium (as well as rubidium to a lesser extent). The infinite matrix assumption is the most widely used concept to evaluate dose rates to sedimentary grains, except for gamma dose rates which are by some workers measured *in situ*. The infinite matrix allows the radioisotopic contents in the studied samples to be converted into corresponding alpha and beta dose rates using conversion factors (e.g. Adamiec and Aitken, 1998). Allowance for grain size and moisture content is made using *ad hoc* factors which are themselves derived from infinite matrix considerations. The aim of this paper is to present the underlying concepts for dose rate estimation, provide sets of updated conversion and correction factors, and discuss their validity. Beta dose rates will be the main focus of this paper, because it is generally the most important contribution to dose rates in sedimentary media. A case study of small-scale beta dose rate variations modelling will be presented where: 1) experimental characterization of a sample is made; 2) Monte Carlo simulations of beta radioactivity is run using a specifically designed GEANT4 code; and 3) single grain dose rates are extracted.

* Corresponding author. Tel.: +33 5 57 12 10 84; fax: +33 5 57 12 45 50.
E-mail address: guillaumeguerin@gmail.com (G. Guérin).

2. The infinite matrix assumption: concepts and validity

2.1. Dose rate conversion factors

The infinite matrix concept in the field of radiation physics (Fano, 1954; Roesch and Attix, 1968; Aitken, 1985) is based on conservation of energy such that all the energy that is emitted in an infinite matrix – in practice of dimensions greater than the range of the considered particles – is also absorbed in this matrix. In the case of a homogeneous matrix, the rate of emitted energy per unit mass and unit time is equal to the rate of absorbed dose; this physical quantity is named the infinite matrix dose rate. In practice knowledge of radioisotopic contents, as well as the radioelements half-life and mean energy per disintegration, allows calculating the dose rate received by any volume element taken in this infinite, uniform matrix. Tables 1–3 present up-to-date dose rate conversion factors respectively for the different radioisotopes in the Th- and U-decay chains, and for K (adapted from Guérin et al., 2011 – see references therein for former values¹). However, these conversion factors do not take account of spatial heterogeneities in sediments such as restricted radioactive source geometries where grain size and source density are significant for accurate beta dose rate calculation. As an example, consider a medium in which all the potassium is located in monodisperse (single-sized) potassium feldspar grains mixed with monodisperse quartz grains (whose size may be different from feldspars). The energy available for quartz depends on the self-dose to these feldspars, i.e. the dose received by feldspar grains due to their internal potassium content, which depends on their size: whether feldspars have a diameter of 200 μm (self-dose: 7.3%) or 20 μm (self-dose: 0.7%) will cause differences in dose rates received by the quartz grains, even if their size is the same in both cases. In the former case, only 92.7% of the energy emitted by feldspars is available for quartz, in the latter 99.3%. Hence the use of conversion factors, without taking account of the self-dose to radioactive minerals, overestimates beta dose rate to quartz by a factor that depends on the size and mass of the radioactive sources.

2.2. Beta dose rates: attenuation factors

Quartz grains generally have very low radioisotopic contents compared to typical sedimentary media. They represent heterogeneities in the uniform infinite matrix considered so far, and allowance has to be made for this non-uniformity in the radiation field. Based on the principle of energy conservation, the superposition theorem allowed Mejdahl (1979), followed by Fain et al. (1999) and Brennan (2003) to calculate attenuation factors for quartz grains, as a function of their size and shape. The approach consists of considering a quartz grain in an infinite homogeneous matrix; in the case where radioelements are uniformly distributed in the matrix and in the grain, the grain receives the infinite matrix dose rate. So in the real case, where the quartz grain is not radioactive, it receives the infinite matrix dose rate minus the self-dose component. In this study we present up-to-date self-dose values for quartz and feldspars, calculated with GEANT4 (Table 4) and with dose point kernels² derived from experimental data (Supplementary Data: Table SD1). The two independent approaches are in good agreement; hence we advocate their use in the field of paleodosimetric dating methods.

¹ Updates of conversion factors follow the evolution in nuclear fundamental data. The most important variation in the last decade corresponds to a new evaluation of ⁴⁰K half-life.

² Dose point kernels are the density probability functions of dose deposition around a point source of a given radionuclide.

Table 1
Energy release and dose rates in the ²³²Th decay series.

Isotope	Half-life (s)	Alpha		Beta		Gamma	
		Energy	Dose rate	Energy	Dose rate	Energy	Dose rate
²³² Th	4.43 · 10 ¹⁷	4.003	0.0821	0.0113	0.0002	0.0011	0.0000
²²⁸ Ra	1.81 · 10 ⁸	–	–	0.0092	0.0002	0.0004	0.0000
²²⁸ Ac	2.21 · 10 ⁴	–	–	0.4171	0.0086	0.8602	0.0176
²²⁸ Th	6.03 · 10 ⁷	5.406	0.1109	0.0195	0.0004	0.0031	0.0001
²²⁴ Ra	3.16 · 10 ⁵	5.673	0.1164	0.0023	0.0000	0.0104	0.0002
²²⁰ Rn	5.56 · 10 ¹	6.288	0.1290	–	–	0.0006	0.0000
²¹⁶ Po	1.45 · 10 ⁻¹	6.778	0.1390	–	–	0.0000	0.0000
²¹² Pb	3.83 · 10 ⁴	–	–	0.1721	0.0035	0.1437	0.0029
²¹² Bi	3.63 · 10 ³	2.175	0.0446	0.5034	0.0103	0.1039	0.0021
²¹² Po	2.99 · 10 ⁻⁴	5.631	0.1155	–	–	–	–
(0.641)							
²⁰⁸ Tl	1.83 · 10 ²	–	–	0.2140	0.0044	1.2136	0.0249
(0.359)							
Total			0.7375		0.0277		0.0479
Pre-Rn total			0.3093		0.0094		0.0180
Adamiec and Aitken (1998)							
Total			0.7320		0.0273		0.0476
Pre-Rn total			0.3050		0.0091		0.0178
Rel. difference (%)							
Total			0.75%		1.34%		0.70%
Pre-Rn total			1.42%		3.53%		0.84%

- Energies are given in MeV and represent the energy emitted per disintegration.
- Branching ratios are shown in parenthesis against the radioelements in the branches; associated values given for energy release are after adjustment for branching. Note that the branching also affects the energy release of the radioelement at which the branching occurs; thus the value given for the alpha release by ²¹²Bi is 35.9% of the full energy – because ²⁰⁸Tl is formed by alpha emission from ²¹²Bi.
- Beta components include Auger electrons and internal conversion; gamma components include X-rays and annihilation radiation; alpha recoil and neutrinos are not included due to their insignificant contribution to dose rates (cf. Adamiec and Aitken, 1998).
- A dash indicates that no radiation of that type is mentioned by the National Nuclear Data Centre.
- Dose rate values are given in Gy ka⁻¹ per ppm of parent (i.e. mg of parent per kg of sample), assuming equilibrium in the decay chains. The activity of the parent is 4.057 Bq per kg of sample.
- The rows labelled 'pre-Rn' give the values for 100% escape of radon.
- Relative differences are calculated between this paper and values from Adamiec and Aitken (1998).

These attenuation factors are valid for quartz grains surrounded by a uniform, infinite matrix. However, for highlighting the limits of validity of this assumption, one can consider a typical sample currently dated by OSL as, for instance, an infinite sand-dune made of 200 μm quartz grains. In such a case, radioelements may be located in potassium feldspar grains, heavy minerals such as zircons, apatites, or monazites, etc. Let us assume that the radioelements are located in volume elements that follow two conditions: a) they represent a mass fraction negligible compared to that of quartz; and b) their size is negligible compared to the range of beta particles. Since all the energy that is emitted in this medium is absorbed in it, and given the fact that quartz is the only absorbing material, the 200 μm quartz grains receive the infinite matrix dose rate, without attenuation. Taking the classical attenuation factor derived from the self-dose values (Table 4) would result in underestimating beta dose rate to the quartz grains by 7.5% for potassium, 14.3% for uranium series and 20.0% for thorium series. A second case of interest is an infinite sand-dune made of quartz grains, with two different sizes: 100 μm and 200 μm grains, 50% each in mass composition. Conservation of energy requires that the quartz grains receive, on average, the infinite matrix dose rate. Since they are greater in size, the 200 μm grains “attenuate” radiation more than the 100 μm grains and, therefore, receive lower dose rates than the 100 μm ones. As a consequence the 200 μm quartz grains will

Table 4
Beta self-dose values (ϕ) used to derive attenuation factors ($1 - \phi$) following the approach of Mejdahl (1979). Values were calculated with GEANT4 for potassium, uranium and thorium, for two different minerals: quartz and potassium feldspar.

Grain size (diameter, μm)	GEANT4					
	Potassium		Uranium		Thorium	
	Quartz ($d = 2.65 \text{ g cm}^{-3}$)	KAlSi ₃ O ₈ ($d = 2.60 \text{ g cm}^{-3}$)	Quartz ($d = 2.65 \text{ g cm}^{-3}$)	KAlSi ₃ O ₈ ($d = 2.60 \text{ g cm}^{-3}$)	Quartz ($d = 2.65 \text{ g cm}^{-3}$)	KAlSi ₃ O ₈ ($d = 2.60 \text{ g cm}^{-3}$)
20	0.007	0.007	0.038	0.037	0.048	0.047
40	0.014	0.014	0.057	0.056	0.077	0.075
60	0.022	0.021	0.072	0.070	0.098	0.097
80	0.029	0.028	0.084	0.082	0.117	0.115
100	0.037	0.035	0.095	0.093	0.134	0.131
120	0.044	0.042	0.105	0.103	0.149	0.146
140	0.052	0.050	0.115	0.113	0.163	0.160
160	0.059	0.057	0.125	0.122	0.176	0.173
180	0.067	0.064	0.134	0.131	0.188	0.185
200	0.075	0.072	0.143	0.140	0.200	0.196
250	0.095	0.091	0.165	0.161	0.225	0.221
300	0.114	0.110	0.185	0.181	0.247	0.243
400	0.154	0.148	0.223	0.217	0.286	0.281
600	0.231	0.223	0.289	0.282	0.350	0.343
800	0.304	0.294	0.346	0.338	0.403	0.395
1000	0.372	0.360	0.395	0.387	0.449	0.441

where D_d is the dose in the medium when dry, W is the saturation water content expressed as (weight of water/dry weight), F is the fraction of pore space occupied by water and x is the correction factor to make allowance for the different energy absorption coefficients between water and medium. For beta radiation Zimmermann proposed $x = 1.25$. Recently Nathan and Mauz (2008) used the radiation transport code MCNP to calculate a value for x in a specific medium. For a calcareous medium they found $x = 1.19$ – 1.20 , in agreement with a value proposed by Aitken and Xie (1990) – all these approaches being based on homogeneous, infinite matrix considerations.

However, Guérin and Mercier (accepted for publication) have recently discussed the effect of moisture on gamma dose rates in sedimentary media. The x value (Eq. (1)) has been shown to be dependent on the packing geometry of the grains and mainly on the grain/pore size compared to the secondary electrons range. In the case of beta radiations, one can for simplicity consider once again the case of beta particles emitted in potassium feldspars. Before reaching quartz grains, these particles will necessarily cross pore space, filled at least partially with water, before reaching quartz. For example if pore space was infinite compared to this range, beta particles would deposit all their energy in water, i.e. before entering quartz grains. The x value, accounting for the effect of water, would in this case tend towards the infinite. Hence the effect of water – the x value – is underestimated by the classical approach, although it remains valid when the grain/pore size is negligible compared to the range of beta particles.

2.4. Summary

From a historical point of view, it should be noted that the infinite matrix dose rates and associated concepts (the attenuation factors and the classical formulation of the effect of moisture on dose rates (Eq. (1))) were developed before the reference work of Aitken (1985). At this time the most widely studied objects in the field of luminescence was pottery using the quartz inclusion technique. From this perspective, the infinite matrix approach – including attenuation factors and classically calculated effect of water – was probably justified as in many cases quartz grains are surrounded by a quasi-infinite, uniform (on the scale of electrons range) medium. However, the range of applications of luminescence dating methods has greatly increased, and nowadays most

luminescence dating studies concern sedimentary deposits – from sand dunes to loess through clays and silts. In such contexts, sedimentary grains may not be surrounded by an infinite, uniform matrix. To evaluate the effects of radioactive source geometry, grain size distribution and moisture content on beta dose rates to quartz grains, Monte Carlo simulations of beta radioactivity were performed on a sample exhibiting geometrical characteristics as far as possible from an infinite, uniform medium.

3. A case study: experimental characterization and simulation of beta radioactivity

For this purpose experimental characterization, followed by beta radioactivity modelling was achieved on an inter-laboratory comparison sample, taken from a Beach-ridge in Skagen (Denmark). This sample, presented by Buylaert et al. (2006; see also Nielsen et al., 2006), is made of coarse grains, which means that the infinite matrix assumption is not verified (cf. Section 2). The aim of this modelling study was to determine beta dose rates to quartz grains in the inter-laboratory comparison sample.

3.1. Experimental characterization

Radioisotopic contents were measured with a low-background high purity Ge gamma spectrometer. However since this sample has been proposed for an inter-comparison study between a number of luminescence dating laboratories, absolute values for radioisotopic contents will not be provided in this paper. For localizing the potassium emitters, further analysis was performed with a Scanning Electron Microscope (SEM) coupled to an Energy Dispersive X-ray Spectrometer (EDS): a few grams of sample were spread on a glass plate and a total of 10,434 grains were analysed. In a first step, the grain size distribution was determined (Fig. 1), assuming sphericity of the grains – i.e. equivalent circle diameter was determined for each grain, based on its surface on the SEM images. Fain et al. (1999), as well as Nathan (2011), showed that in general the shape of the grains does not affect dose rates to grains by more than a few %. EDS analysis was also performed on each of the 10,434 grains and it was found that a great majority of these grains were made of quartz, even though feldspars also contributed to a significant fraction of the total. Whereas SEM-EDS is not well suited to localize uranium or thorium in sedimentary media

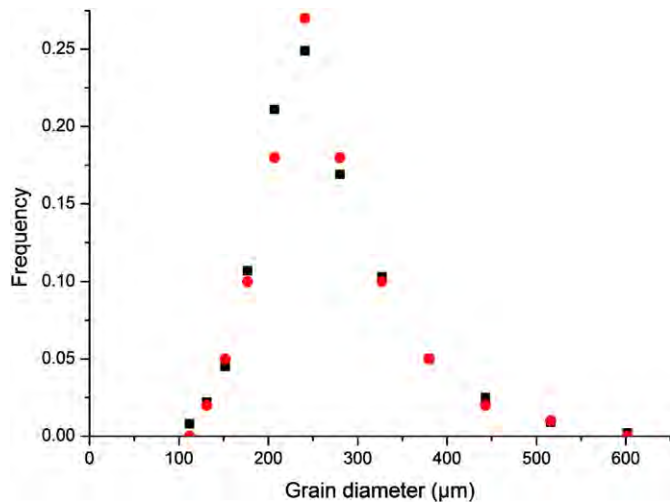


Fig. 1. Grain size distribution for the inter-laboratory comparison sample. Black squares: all grains in the sample. Red circles: only potassium feldspars (see text for details). (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

because of insufficient concentrations of these elements, the distribution of potassium in the sample was obtained (Fig. 2). A peak of potassium content equal to 14% (in mass) showed a number of pure potassium feldspar grains.

3.2. Monte Carlo modelling of beta radioactivity: dry sediments

Simulation tools combined the PackLSD software (Donev et al., 2005), based on the Lubachevsky–Stillinger–Donev (LSD) algorithm, and specifically designed GEANT4 codes, which are presented in Supplementary Data (SD1). Validation of these simulation tools is also presented in Supplementary Data (SD2), in the case of grains surrounded by a uniform, infinite matrix (Fig. SD1). In such configurations, the beta dose rates to quartz were in good agreement with the calculations using the attenuation factors derived from Table 4; the x values to account for the effect of moisture were also in good agreement with the values proposed by Nathan and Mauz (2008).

The PackLSD software achieved random close packing with a compactness value equal to 0.635 with the grain size distribution taken from Fig. 1, which is close to typical densities for sediments.

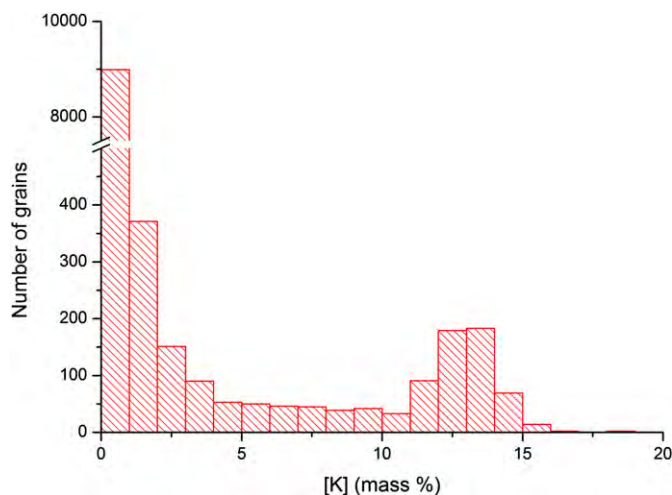


Fig. 2. Potassium content distribution in the sedimentary grains of the inter-laboratory comparison sample.

Initially, all the grains were simulated as silicon dioxide exclusively (density: 2.65 g cm^{-3}) and the interstitial spaces were filled with air, i.e. the sand was simulated dry. Beta particles were emitted with energies randomly sampled according to the Fermi model for beta spectra, modified by Behrens and Szybisz (1976) (primary spectra are provided as SD3). Primary particle source positions were sampled inside the grains, within $2 \mu\text{m}$ from the surface with constant activity, to mimic a situation where grains would be surrounded by a radioactive grain coating. In this case, self-dose to coating was negligible and the only effect studied here was the deviation between the dose rates received by the grains and the predicted values using attenuation factors. The fraction of infinite matrix dose rate received by the grains is shown as a function of their size (Fig. 3) for the three different emission series: potassium, uranium and thorium. As expected, quartz, on average, received the infinite matrix dose rate. However, the differences between attenuation values calculated using the self-dose approach (Table 4) and the direct evaluation of beta dose rates to grains were found to be very important. For grains in the $180\text{--}250 \mu\text{m}$ grain size range, taking the values from Table 4 would result in approx. 15% underestimation of beta dose rate to quartz for potassium, 25–30% for the uranium series and 40–45% for the thorium series.

Due to the characterization of the studied sample, potassium could be localized by SEM-EDS analysis. Therefore, in a second simulated experiment, potassium feldspar grains were also simulated among quartz grains. For the modelling, the potassium content distribution (Fig. 2) was simplified: the grains having a potassium content lower than 6% were considered as pure quartz grains (i.e. with no potassium), whereas the grains showing $[\text{K}] > 6\%$ were simulated as pure potassium feldspars ($[\text{K}] = 14\%$, formula: KAlSi_3O_8 , density: 2.60 g cm^{-3}). These grains represented 7% of the total number of grains, which corresponded to a potassium content equal to 0.96%, in mass percentage of the sample. This percentage was considered to be representative of typical sediments. Beta particles were emitted inside the potassium feldspars. In this case, not only the attenuation factors were at issue, but a second effect had to be considered: potassium feldspars were self-irradiated, leading to a fraction of the emitted energy not available for quartz. It should be noted that potassium feldspars did not exhibit a grain size significantly different from the global grain size distribution of the sample. The mass-weighted distribution was centred on approx. $300 \mu\text{m}$, which according to self-dose values from Table 4, gives average self-dose to potassium feldspars as equal to 11%. Therefore only 89% of the infinite matrix dose rate was available for quartz. Fig. 4 shows the fraction of infinite matrix dose rate received by the quartz grains, as a function of their size, compared to results using attenuation factors derived from Table 4. For these simulations, since beta particles were emitted in ‘hotspots’, the dose rate to each quartz grain size class was extremely dependent on the simulated LSD packing files. In particular, the random close packing of the grains resulted in variable dose rates received by the grain size classes containing a low number of grains. In some cases these grains were close to hotspots, whereas in other cases they were distant to these beta radioactivity sources. As a consequence, to minimize stochastic artefacts in dose rates to quartz due to a single simulated geometry, it was decided to perform the simulations for 10 different geometry configurations and calculate average values. As a result, the uncertainties on the simulated dose rates (Fig. 4) were of the order of several percent – whereas uncertainties on these dose rates for each particular configuration did not exceed 1%.

As can be seen (Fig. 4), the irrelevance of attenuation factors (which underestimate dose rate to quartz by approx. 15%) is roughly compensated by the auto-irradiation to feldspars (only 89% of the infinite matrix dose rate is available for quartz). We find that

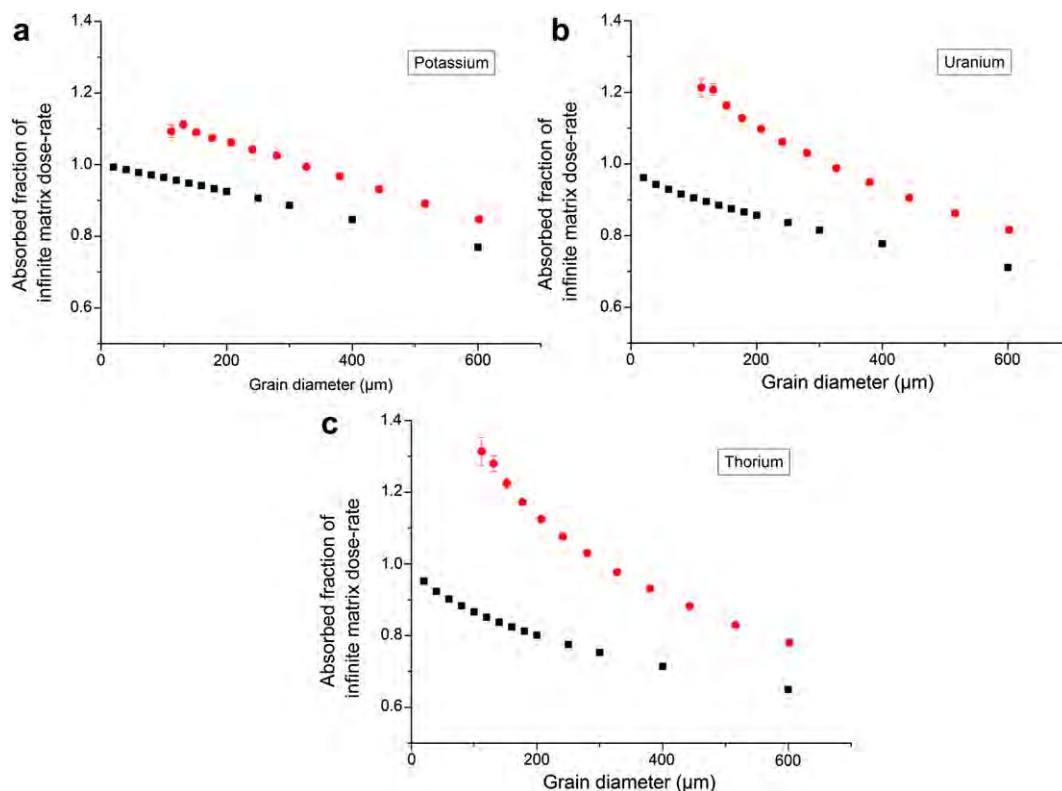


Fig. 3. Monte Carlo simulated Fraction of infinite matrix beta dose rate received by quartz grains as a function of their size (red circles), compared to data calculated using attenuation factors (black squares: $1 - \varphi$, see Table 4). The grain size distribution was taken from Fig. 1 (inter-laboratory comparison sample) using the PackLSD software and the compactness value was equal to 0.635. The grains were surrounded by air and beta particles were emitted close to the surface of grains, in a 2 μm thick coating. In the 180–250 μm range, the classical approach, based on attenuation factors, underestimates dose rates to quartz by: 15% for K (a), 25–30% for U (b) and 40–45% for Th (c). (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

modelled dose rates were 1% higher than classically calculated dose rates for the 180–250 grain size fraction. The fact that these two effects compensate for each other can be explained as follows: whereas the attenuation factors do not apply because of the absence of surrounding infinite homogeneous matrix, the dose rate received by quartz grains is affected by the self-dose to feldspars. Because the grain size distributions for quartz and feldspars are the same, the relevant factors also have the same value. In other words, in such a case the attenuation factors commonly used can still be

applied, but for another reason (self-dose to feldspars) than the classical one (attenuation of radiation).

3.3. Monte Carlo modelling of beta radioactivity: moist sediments

Air was replaced by water in the interstitial spaces between grains, in order to compare beta dose rates in the dry medium to those in the moist medium, and derive x values from Eq. (1). The studied sample had a moisture content of 12% (value at sampling time), expressed as the ratio of weight of water over dry weight (factor WF in Eq. (1)). To match this experimental value, the density of water in the pore space was set equal to 0.55 g cm^{-3} and water was distributed uniformly throughout the sediment. In reality, such a water content value is probably the result of only part of the pore space being filled by water, presumably directly around the grains due to surface tension effects. However whether photons or electrons go through 1 mm of water, with a density equal to 0.55 g cm^{-3} , or through 0.55 mm of water with a density equal to 1 g cm^{-3} , does not make any difference in terms of interaction probability and energy loss.

The obtained x values turned out to be greatly dependent on the simulated packing configurations. For the simulations where beta particles were emitted close to the surface of grains, the x factor was equal to: 1.31 ± 0.01 for potassium, 1.46 ± 0.02 for the uranium series and 1.59 ± 0.02 for the thorium series. Such differences are mainly explained by the mean energy of these beta particles: deviations from the infinite matrix assumption values (1.19–1.20 according to Nathan and Mauz, 2008; which corresponds to the “pottery” case – cf. SD2) are all the more important than the energy of beta particles is decreased, for a given grain/pore size distribution (for a discussion of these effects, see Guérin and Mercier,

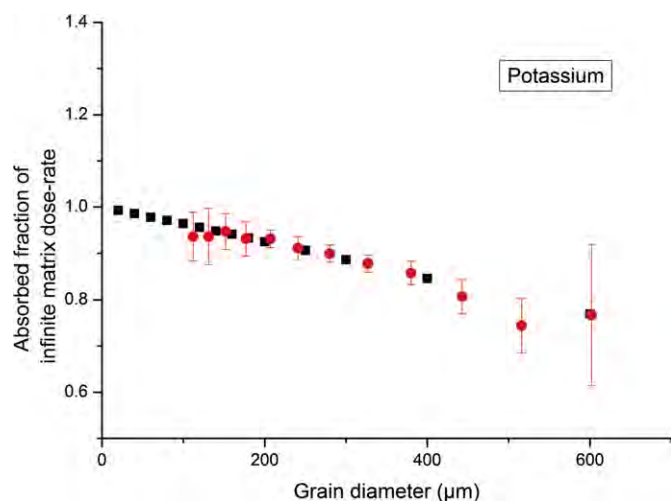


Fig. 4. Same as in Fig. 3a, but beta particles were emitted in potassium feldspars. The effect of self-dose to feldspars compensates for the irrelevance of attenuation factors.

accepted for publication). For beta particles emitted in potassium feldspars, $x = 1.41 \pm 0.02$. It seems that the difference in x values for potassium between the two different configurations (emission in feldspars or in the grain coating) can be explained by the self-dose to feldspars: most of the electrons emitted in potassium feldspars will have lost a significant fraction of their energy in the feldspars; hence their mean energy outside the emitting grains is lower, which results in an increase of the x value.

For the studied sample, beta dose rate was clearly dominated by the contribution from potassium. In summary, the classical approach overestimates infinite matrix dose rates by not taking account of the radioactive inclusions size, but underestimates dose rates to quartz grains both by using attenuation factors and classical x values to account for moisture in the sediments. Due to these compensated effects, the classically calculated dose rates overestimated the modelled dose rates by 2% in the 180–250 grain size fraction of this sample.

3.4. Monte Carlo simulated single grain dose rates

Single grain equivalent dose measurements have become a valuable tool in the field of Quaternary geochronology. However the equivalent dose distributions present important dispersion values, and most samples exhibit an over-dispersion, i.e. many grains have equivalent doses incompatible with statistically modelled parameters. Two kinds of factors are responsible for such over-dispersions: intrinsic factors including statistical errors, instrument reproducibility, etc. (for a comprehensive study, see Thomsen et al., 2005) whereas extrinsic factors comprise potential partial resetting of luminescence signals, complex spatial distribution of radioelements, post-depositional processes such as sediment migration. However, so far very few quantitative studies have been focused on these extrinsic factors (Mayya et al., 2006; Brennan, 2006; Cunningham et al., in this issue).

Using the GEANT4 codes described in Supplementary data SD1, single grain dose rate data were simulated. For the grain size class having a radius equal to 207 μm – which represents 20% of the total number of grains, and which would be studied in standard single grain OSL measurements – every quartz grain was defined as a particular detector. Two configurations were simulated: the pottery case (SD2), in which the grains were surrounded by a homogeneous, moist, siliceous infinite matrix, and the sand case (Sections 3.2 and 3.3) – corresponding to the real case for the studied sample, with water between grains. For the latter, beta particles were emitted in potassium feldspars, i.e. in hotspots. The corresponding simulated single grain dose rates to quartz, resulting from 0.96% in potassium (mass%), are plotted in Fig. 5. Several features are of interest: first, the shape of the distribution is symmetric in the pottery case, whereas it is asymmetric in the sand case. Second, the dispersion is much greater in the sand case than in the pottery case. These features had already been foreseen by Brennan (2006) for alpha radioactivity hotspots and by Mayya et al. (2006) for beta emissions from potassium feldspars. It can be explained in terms of probability for a quartz grain to be close to a hotspot. Few grains were actually close to hotspots (high dose rate component), whereas a majority of them were at some distance compared to the range of beta particles (mode of the distribution).

This study on single grain dose rates has been limited to beta dose rates from potassium. However such results show that the choice of logged or unlogged age models for the interpretation of single grain equivalent dose distributions may be determined on physical grounds, based on a relevant characterization of the studied samples. Thus far, a common approach to calculate an age is to use statistical models for equivalent dose determination, such as the Central Age Model (Galbraith et al., 1999) assuming

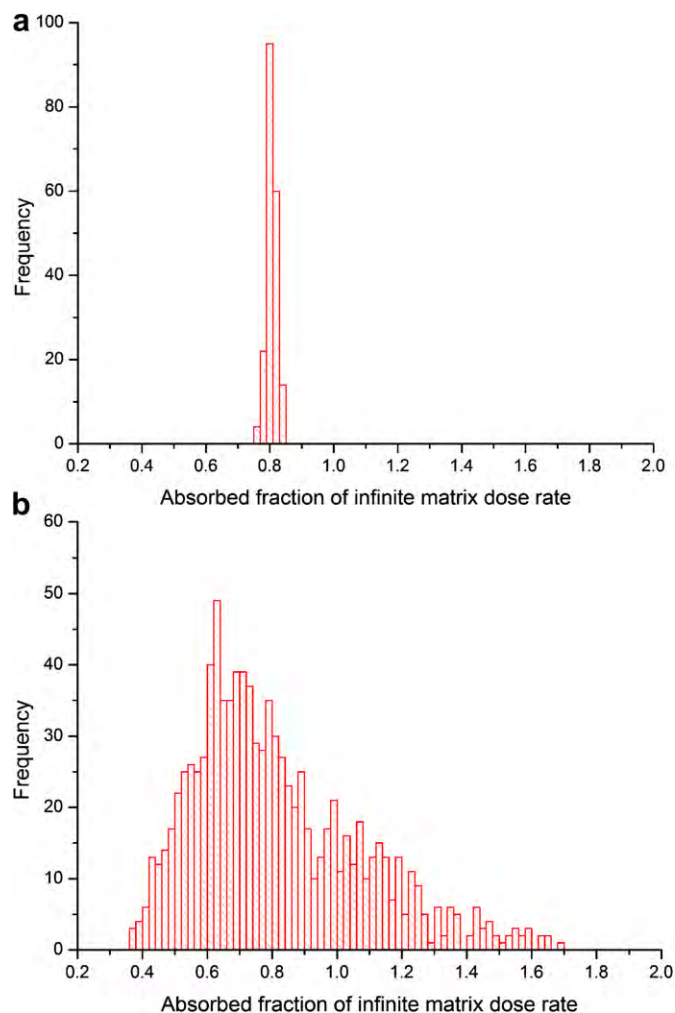


Fig. 5. Simulated single grain beta dose rates from potassium to quartz grains (diameter: 207 μm). a) Pottery case: compactness value is equal to 0.005, quartz grains are surrounded by a homogeneous siliceous matrix in which potassium is uniformly distributed. b) Sand case: compactness value is equal to 0.635, 7% of the grains were potassium feldspars, which were the only source of radioelements.

a log-normal equivalent dose distribution. By contrast, dose rates are derived from K, U and Th and therefore correspond to mean dose rates potentially leading to erroneous ages.

Another application of such single grain dose rate distributions is the determination of different components in equivalent dose distributions. Either dose rate variations can explain the observed equivalent dose distribution – taking intrinsic factors into account (see e.g. Thomsen et al., in this issue) – or this distribution must involve other dispersion factors. In the latter case it would become possible to identify e.g. poorly bleached grains, or sediment mixing, inside a population. Moreover appropriate over-dispersion values – at least for the extrinsic factors affecting the dispersion – could be determined for the use of the Minimum Age Model (Galbraith et al., 1999) or of the Finite Mixture Model (Roberts et al., 2000).

3.5. Discussion of the models

Future research should include a refinement of the models presented here; in particular the potassium distribution was oversimplified in the modelling study presented here. It should also be noted that a few grains of the inter-laboratory comparison

sample appeared to be very rich in zirconium. In general, zircons exhibit very high contents in uranium and thorium and may be the main source of uranium and thorium contributions. Simulation tools have been described, which would allow simulations of beta radioactivity in particular samples. A case by case approach would then allow identifying the most pertinent parameters of interest when studying single grain equivalent dose distributions. Beta dosimetry cartography, as proposed by Rufer and Preusser (2009), would certainly improve the experimental characterization of the sediment samples: a combination of such beta dose rate mapping and Monte Carlo modelling, though challenging, seems to be a future possibility. In particular the modelling presented here assumed no micromorphological structure in the simulated sample, since random close packing was applied to describe the geometry; such features should be accounted for in Monte Carlo modelling for an accurate determination of dose rates to quartz grains in sedimentary media. In practice this would add complexity to the simulated geometries, but GEANT4 is well designed to simulate complex geometries.

Beyond beta radiations, given the range of alpha particles in matter – several tens of microns in typical media – it is obvious that departure from the infinite matrix assumption will be most often greater for this type of radiations. Monte Carlo modelling could also be applied on alpha dosimetry questions, but experimental characterization of sediment samples on the scale of the range of alpha particles is a considerable challenge.

4. Conclusions

The infinite matrix assumption is commonly assumed in the field of paleodosimetric dating methods. This assumption allows converting radioisotopic contents in infinite matrix dose rates; it is also the basis for calculation of attenuation factors, and for taking the effect of moisture on dose rates into account. Updated dose rate conversion factors and attenuation factors have been presented, and since they correspond to up-to-date nuclear data, we suggest these values should be used in replacement of those published by Adamiec and Aitken (1998) for dose rate conversion factors, and by Brennan (2003), Fain et al. (1999), or Mejdahl (1979) for attenuation factors.

However this assumption is only valid in particular cases and, given the range of dating applications, most often it is not verified. The effects of departure from this assumption have been shown to be very important for the particular sample studied here. Monte Carlo modelling is proposed as a way of quantifying these dosimetry effects for beta radiations, and the specifically designed codes have been described and validated in well-known cases. Determination of radioisotopic contents is not sufficient to derive dose rates to quartz grains as knowledge of the radioelements location, as well as sediment characterization – in particular analysis of geometrical features – becomes necessary. For the studied sample the different effects discussed in this paper turned out to compensate for each other within a few percent; however it might not always be the case and in general, the infinite matrix dose rate is a concept whose use might need to be justified.

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data related to this article can be found online at doi:10.1016/j.radmeas.2012.04.004.

References

- Adamiec, G., Aitken, M., 1998. Dose rate conversion factors: update. *Ancient TL* 16 (2), 37–50.
- Aitken, M.J., Xie, J., 1990. Moisture correction for annual gamma dose. *Ancient TL* 8 (2), 6–9.
- Aitken, M.J., 1985. *Thermoluminescence Dating*. Academic Press, London, 378 pp.
- Behrens, H., Szybisz, L., 1976. Shapes of Beta Spectra, Physics Data 6-1. Zentralstelle für Atomkernenergie-Dokumentation (ZAED), Germany.
- Brennan, B.J., 2003. Beta doses to spherical grains. *Radiation Measurements* 37, 299–303.
- Brennan, B.J., 2006. Variation of the alpha dose rate to grains in heterogeneous sediments. *Radiation Measurements* 41, 1026–1031.
- Buylaert, J.-P., Ankjaergaard, C., Murray, A.S., Nielsen, A., 2006. A proposed laboratory intercomparison sample based on a beach-ridge sand from Skagen (Denmark), poster. In: UK-LED Meeting, Liverpool.
- Cunningham, A.C., DeVries D.J., Schaart, D.R. Experimental simulation of beta-dose heterogeneity in sediment, using artificial radionuclides, in this issue.
- Donev, A., Stillinger, F.H., Torquato, S., 2005. Neighbor list collision-driven molecular dynamics simulation for nonspherical particles. I. Algorithmic details II. Applications to ellipses and ellipsoids. *Journal of Computational Physics* 202 (2), 737–764 (part I) and 765–793 (part II).
- Fain, J., Soumana, S., Montret, M., Miallier, D., Pilleyre, T., Sanzelle, S., 1999. Luminescence and ESR dating: beta-dose attenuation for various grain shapes calculated by a Monte-Carlo method. *Quaternary Geochronology* 18, 231–234.
- Fano, U., 1954. A note on the Bragg-Gray cavity principle for measuring energy dissipation. *Radiation Research* 1, 237–240.
- Galbraith, R.F., Roberts, R.G., Laslett, G.M., Yoshida, H., Olley, J.M., 1999. Optical dating of single and multiple grains of quartz from Jinnium rock shelter, northern Australia: part I, experimental design and statistical models. *Archaeometry* 41, 339–364.
- Guérin, G., Mercier, N., Adamiec, G., 2011. Dose rate conversion factors: update. *Ancient TL* 29 (1), 5–8.
- Guérin, G., Mercier, N. Preliminary insight into dose deposition processes in sedimentary media on a grain scale: Monte Carlo modelling of the effect of water on gamma dose rates. *Radiation Measurements*, accepted for publication.
- Mayya, Y.S., Morthekai, P., Murari, M.K., Singhvi, A.K., 2006. Towards quantifying beta microdosimetric effects in single-grain quartz dose distribution. *Radiation Measurements* 41, 1032–1039.
- Mejdahl, V., 1979. Thermoluminescence dating: beta-dose attenuation in quartz grains. *Archaeometry* 21, 61–72.
- Nathan, R.P., 2011. Numerical Modelling of the Environmental Dose Rate for Trapped Charge Dating, D. Phil. Thesis, Archaeology, University of Oxford.
- Nathan, R.P., Mauz, B., 2008. On the dose rate estimate of carbonate-rich sediments for trapped charge dating. *Radiation Measurements* 43, 14–25.
- Nielsen, A., Murray, A.S., Pejrup, M., Elberling, B., 2006. Optically stimulated luminescence dating of a Holocene beach ridge plain in northern Jutland, Denmark. *Quaternary Geochronology* 1 (4), 305–312.
- Roberts, R.G., Galbraith, R.F., Yoshida, H., Laslett, G.M., Olley, J.M., 2000. Distinguishing dose populations in sediment mixtures: a test of single grain optical dating procedures using mixtures of laboratory-dosed quartz. *Radiation Measurements* 32, 459–465.
- Roesch, W.C., Attix, F.H., 1968. In: Attix, F.H., Roesch, W.C. (Eds.), *Basic Concepts of Dosimetry, Radiation Dosimetry, Volume I: Fundamentals*. Academic Press, New York and London.
- Rufer, D., Preusser, F., 2009. Potential of autoradiography to detect spatially resolved radiation patterns in the context of trapped charge dating. *Geochronometria* 34, 1–13.
- Thomsen, K.J., Murray, A.S., Bøtter-Jensen, L., 2005. Sources of variability in OSL dose measurements using single grains of quartz. *Radiation Measurements* 39, 47–61.
- Thomsen, K.J., Murray, A.S., Jain, M., The dose dependency of the over-dispersion of quartz OSL single grain dose distributions. *Radiation Measurements*, in this issue.
- Zimmerman, D.W., 1971. Thermoluminescence dating using fine grains from pottery. *Archaeometry* 13, 29–52.

Table SD1: Self-dose values (ϕ) used to derive attenuation factors ($1 - \phi$) following the approach of Mejdahl (1979). Values were calculated with dose point kernels for potassium, uranium and thorium, for three different minerals: quartz, potassium feldspar and sodium feldspar.

Grain size (diameter, μm)	Dose point kernels								
	Potassium Quartz ($d=2.65$ g.cm^{-3})			Uranium Quartz ($d=2.65$ g.cm^{-3})			Thorium Quartz ($d=2.65$ g.cm^{-3})		
	KAlSi ₃ O ₈ ($d=2.55$ g.cm^{-3})	NaAlSi ₃ O ₈ ($d=2.61$ g.cm^{-3})		KAlSi ₃ O ₈ ($d=2.55$ g.cm^{-3})	NaAlSi ₃ O ₈ ($d=2.61$ g.cm^{-3})		KAlSi ₃ O ₈ ($d=2.55$ g.cm^{-3})	NaAlSi ₃ O ₈ ($d=2.61$ g.cm^{-3})	
20	0.008	0.008	0.008	0.04	0.04	0.04	0.055	0.054	0.054
40	0.015	0.014	0.015	0.059	0.058	0.059	0.083	0.082	0.082
60	0.022	0.021	0.022	0.073	0.072	0.073	0.104	0.103	0.103
80	0.029	0.028	0.029	0.085	0.084	0.084	0.122	0.12	0.121
100	0.036	0.035	0.036	0.096	0.094	0.095	0.139	0.137	0.137
140	0.051	0.049	0.05	0.116	0.114	0.115	0.168	0.165	0.166
180	0.066	0.064	0.065	0.134	0.132	0.133	0.192	0.189	0.19
200	0.074	0.071	0.072	0.143	0.14	0.141	0.203	0.200	0.201
250	0.093	0.089	0.091	0.164	0.161	0.162	0.228	0.225	0.226
300	0.112	0.108	0.109	0.184	0.181	0.182	0.25	0.247	0.248
1000	0.368	0.358	0.36	0.392	0.385	0.387	0.449	0.443	0.445

Supplementary Data

SD 1: Description of the simulation tools

The Experimental characterization of the inter-laboratory comparison sample was used to simulate beta dose rates received by quartz grains. Donev *et al.* (2005) have made available a software called PackLSD that generates random close packing with ellipsoids – in this study spheres – of different sizes in specified proportions, using the Lubachevsky-Stillinger-Doner (LSD) algorithm. The input data to run the PackLSD software consists of the number of grain species (twelve in the present study), their sizes, in relative units, and their proportions. Given these parameters, 1000 grains are randomly placed in a cubic box, with a compactness value equal to 0.005, defined as the volume fraction occupied by spheres. Then the radius of each grain is increased, keeping constant the ratios of diameters between the different size species, and the grains move isotropically, until two grains enter in collision. An elastic treatment of the collisions allows computing new directions and velocities for the two grains, and the algorithm is repeated until either the desired compactness value or the limit number of collisions is reached. The output of the PackLSD software consists of a text file containing the number of species, their diameter in relative units - knowing that the cubic box in which they are packed has a size by default equal to one - and the positions of the 1000 grains. The compactness of the achieved packing is also provided. In this study the grain size data (Fig. 1) for the inter-laboratory comparison sample was the input data for the PackLSD software. The user can choose either periodic boundaries, or specify that all the spheres must be fully inside the cubic box. For this study, periodic boundaries were chosen so that several cubes could be placed next to each other.

The output file of the PackLSD software was then used as the input for simulations of beta radioactivity with Geant4 (version 9.4). The specifically designed Geant4 codes will now be described, followed by the validation of the simulation tools. Geant4 is a Monte Carlo particle matter written in c++, which allows an object-oriented programming. For the purpose of this study, six classes were used – the three first being mandatory in any Geant4 code: *DetectorConstruction* is the class responsible for the geometry definition, including materials; *PhysicsList* is used to define the simulated particles, the physics processes, and to specify the corresponding data sets used for the tracking of particles; *PrimaryGeneratorAction* allows the emission of primary particles with specified positions, directions and energies; in addition to these mandatory classes, three user classes were implemented: *RunAction* allows the user to define specific actions at the beginning and end of a simulation run; *EventAction* and *SteppingAction* are similar, but actions are performed at the beginning and end of, respectively, each event (an event corresponds to the emission of a primary particle and ends when all secondaries either have been “killed” by absorption, or

have exited the geometry) or each step (a step is the smallest transport unit in Geant4).

In the *DetectorConstruction* class, the different materials were defined: *SiO₂* (density: 2.65 g.cm^{-3}) for quartz, *sed_SiO2* for dry siliceous sediment (same composition but density of 1.8 g.cm^{-3}), *H₂O* for water (with a dubious density of 0.55 g.cm^{-3} , see section 3.3 for explanations), *sed_SiO2_H2O* for wet siliceous sediment (SiO₂: 89.3 %, H₂O: 10.7 % in mass for WF = 12 %, cf. Eq (1); density: 2.02 g.cm^{-3}), KAlSi₃O₈ (density: 2.60 g.cm^{-3}) for potassium feldspars, and air (N: 77 %, O: 23% in mass fractions, density: 1.28 mg.cm^{-3}). It should be noted that for each of the twelve grain sizes, one “SiO₂-x” material was defined, with the same composition but with a number specific for each study. Then the PackLSD output file was read, and all the dimensions from this file were scaled so that the diameter of the smallest grains of the PackLSD output file was equal to $112 \mu\text{m}$ (it corresponded to the smallest grains of the inter-laboratory sample having a proportion greater than 0.2 %). The twelve different grain sizes simulated had diameters ranging from 112 to $602 \mu\text{m}$; the total fraction of grains with sizes below $112 \mu\text{m}$ accounted for 1.6 % in grains number, and the mass fraction that was neglected in this approximation was $\sim 1 \cdot 10^{-6}$. 125 identical cubes, each containing 1000 grains, were placed next to each other in a $5 \times 5 \times 5$ array – hence the choice of periodic boundaries in the PackLSD program. Between the grains, air, water or siliceous sediments were simulated, according to the desired configuration.

Electrons, positrons and gammas were defined in the *PhysicsList* class. Given the size of volume elements it was of paramount importance to have precise tracking of the particles on the scale of tens of microns. Several physics packages are available for such purposes; however for the tracking of charged particles on such scales, mixed algorithms such as Penelope are known for being very robust (e.g. Nathan, 2011). Therefore the following processes were simulated with the Penelope physics data sets - for gamma rays: photoelectric effect, Compton scattering, pair production and Rayleigh scattering; for electrons and positrons: multiple scattering, ionisation, bremsstrahlung; for positrons: annihilation. The production cut, to avoid infrared divergence, was set equal to $5 \mu\text{m}$ for the range of secondary particles. For the tracking to be precise, the simulation steps were limited to $20 \mu\text{m}$ – which means that physics data sets were updated every $20 \mu\text{m}$ to account for the energy dependence of the simulated physics processes.

In the *PrimaryGeneratorAction* class, particles – in this study electrons – were emitted with energies sampled among the spectra calculated with the Fermi model, modified after Behrens and Szybisz (1953); these spectra are provided in supplementary data (SD XXX). Directions were isotropically sampled, and positions depended on the simulated configurations. For the pottery case (cf. SD section 2), where grains represented only 0.5 % of the volume, positions were homogeneously sampled in the box containing the grains and the homogeneous, siliceous matrix; events were discarded at their start – by the *SteppingAction* class, cf. *infra* – whenever primary positions fell inside a grain. Otherwise positions were either sampled inside the potassium feldspars or in the outer shell of the quartz grains

(thickness: 2 μm) when simulating radioelements located in a coating surrounding the grains.

The *RunAction* class allows the user to act at the beginning and end of each run. In our study it was responsible for defining the generator of random numbers and setting its seeds. It was decided to work with the *RanecuEngine*, which is part of the CLHEP (a Class Library for High Energy Physics); it presents the advantage of letting the user set the seeds of the generator. In our case these seeds were sampled using the */dev/urandom* file, serving as a pseudo-random number generator. Finally the *RunAction* class allowed saving data files at the end of each simulation run.

The *EventAction* class was responsible for dividing a simulation run in several slices, each corresponding to a fixed number of events. This way data files comprised a number of independent – or pseudo-independent, the way Monte Carlo simulations involve pseudo-random numbers – simulated energy deposition values. This was the basis for statistical analysis in the assessment of uncertainties.

The *SteppingAction* class plays a number of different roles since the user can define actions at the smallest particle tracking unit. First, in the simulations of the pottery case, the location of the primary vertices was obtained; whenever the uniform, random position sampling resulted in primary beta particles emitted inside a quartz grain, the event was aborted. Then this is where the energy deposited in the volume elements of interest were obtained and recorded. For that purpose, a test was performed on the volume in which the step had occurred; different options were implemented, according to the level of details; each 207 μm quartz grain was considered individually for the single grain dose rate distributions presented in section 3.4. On the opposite, a test on the material name was performed for the dose rates simulated as a function of grain size – hence the definition of identical SiO_2 materials, but with different names, for each grain size fraction (cf. *supra*, *DetectorConstruction* class). The *SteppingAction* class also allowed overcoming a technical problem caused by the limitation in the number of grains that can be simulated with typical computers. If desktop computers can typically simulate a few hundred thousands of grains, it corresponds to a cube, containing the grains, being a few millimetres wide. The aim being to simulate infinite media, it was necessary to avoid particles exiting the geometry. For that matter a test was performed on the position of the tracked particles: whenever about to exit the geometry, the particles were artificially reflected by inverting their direction. Strictly speaking, a better solution would consist of forcing the particle to enter the cube by the opposite edge, keeping its direction constant so that the simulation would correspond to periodic boundaries. However this implementation would require modifying several base classes of Geant4, whose rules would be violated by such a user action.

SD 2: Validation of the simulation tools: the pottery case

To check the validity of the simulation tools, combining PackLSD and Geant4, a case well described by theory was simulated. For a compactness value equal to 0.005, the volume between grains was filled with a homogeneous matrix (composition: SiO_2 , density: 1.8 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$). The typical distance between close neighbours was 1 mm so one could consider that the grains were surrounded by an infinite, uniform matrix. The simulated case corresponded to the geometry where the sand of the beach-ridge would be used as a temper in a ceramics, and it will therefore be referred to as the ‘pottery case’. The infinite matrix assumption being verified, beta particles were emitted isotropically outside the grains. Fig. SD1 shows the fraction of infinite matrix dose rate received by the quartz grains, as a function of their size. For comparison the attenuation values calculated with the self-dose values (Table 4) are also shown. As can be seen, the two data sets were in very good agreement and this validated the simulation tool – the combination of Geant4 and PackLSD – in this simple case. It should be noted here that uncertainties were calculated as the standard deviation of 60 to 100 independent runs and were important since the mass fraction of the smallest grains represented less than $1 \cdot 10^{-3} \%$ of

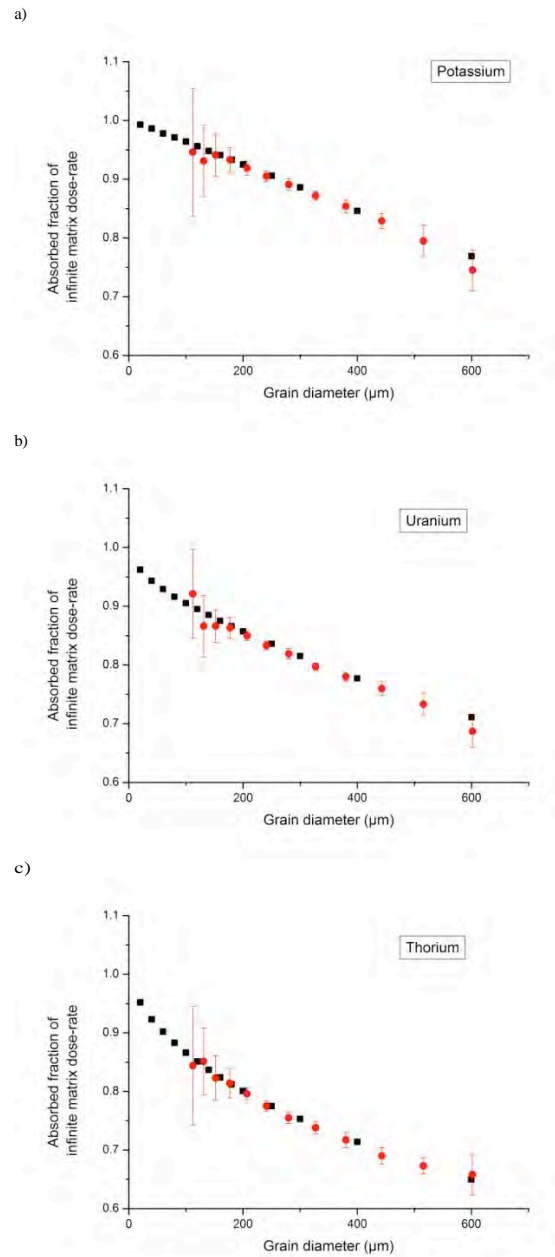


Fig. SD1: Fraction of infinite matrix beta dose rate received by quartz grains as a function of their size, compared to data calculated the self-dose approach and the superposition theorem. The grain size distribution was taken from Fig. 1 (inter-laboratory comparison sample) using the PackLSD software and the compactness value was equal to 0.005. The grains were surrounded by a homogeneous siliceous matrix, dry, containing the radioelements.

the matrix mass, hence the energy deposited in these grains was very small.

Another verification case consisted of simulating the same pottery case, but with a homogeneous matrix between grains that was made of silicon dioxide and water. The WF factor (Aitken, 1985), corresponding to the mass of water over dry weight of matrix, was set to 12 %, to match the moisture content of the inter-laboratory comparison sample (section 3.3). The comparison between the dry and

the moist cases allowed calculating the χ value defined in Eq. (1): $\chi=1.18 \pm 0.05$ for beta emissions from potassium, 1.22 ± 0.04 for uranium and 1.21 ± 0.05 for thorium. These values were found to be in very good agreement with the values proposed by Nathan and Mauz (2008): 1.19-1.20.

As a conclusion of these two series of simulations performed in the infinite matrix assumption, the agreement between simulated values for attenuation factors and moisture content χ values was considered as a validation of the simulation tools, combining the Geant4 code and the random close packing software PackLSD.

Quatrième partie

Contribution à la chronologie du Paléolithique moyen aquitain

Chapitre 9. Les méthodes de datation par luminescence appliquées au site moustérien du Roc de Marsal, ou les facultés d'adaptation de l'Homme de Neandertal aux variations climatiques

*Introduction à l'article : Guérin G., Discamps E., Lahaye C., Mercier N., Guibert P., Turq A., Dibble H, McPherron S, Sandgathe D., Goldberg P, Jain M., Thomsen K., Patou-Mathis M, Castel J.-C., Soulier M.-C. Multi-method (TL and OSL), multi-material (quartz and flint) dating of the Mousterian site of the Roc de Marsal (Dordogne, France): correlating Neanderthals occupations with the climatic variability of MIS 5-3. *Soumis, Journal of Archaeological Science.**

L'étude chronologique du Roc de Marsal s'inscrit dans une campagne de fouilles dirigée par Harold Dibble, Alain Turq, Shannon McPherron, Paul Goldberg et Dennis Sandgathe. Les objectifs avoués de la reprise des fouilles de ce gisement moustérien – fouillé par un amateur, J. Lafille, entre 1953 et 1971 – étaient les suivants : réévaluer la stratigraphie du site afin de comprendre le remplissage sédimentaire de la cavité karstique ; en particulier, essayer d'apporter de nouveaux éléments quant aux conditions d'enfouissement du squelette d'enfant néandertalien mis au jour en 1962 afin d'évaluer les preuves d'un enterrement volontaire de cet enfant – les conséquences d'une telle pratique funéraire étant fondamentales quant à sa portée symbolique chez un homme non anatomiquement moderne ; analyser les collections lithiques et les restes osseux de la cavité avec les méthodes de l'archéologie moderne ; enfin, fournir un cadre chronologique pour les différents niveaux d'occupation. L'étude du Roc de Marsal a donc été pensée avec le souci de multiplier et surtout de comparer, combiner les résultats d'approches disciplinaires variées et complémentaires.

En ce qui nous concerne, l'article suivant est le fruit d'une étude géochronologique – ce qui délimite le champ des données, que nous nous proposons de préciser ici. Les géochronologues que nous sommes n'avons pas vocation à étudier les vestiges lithiques, du moins dans leur conception technique, ni typologique. En revanche les vestiges trouvés fournissent des indications quant aux conditions climatiques durant les occupations humaines de cette cavité : les sédiments, par exemple, ont révélé dans certains niveaux l'action marquée du gel ; de même, l'étude des vestiges osseux nous renseigne, non seulement sur le régime alimentaire des occupants, mais aussi sur l'environnement de la grotte aux époques d'occupation. Le renne, en particulier, a disparu depuis longtemps de la Dordogne : les températures, mais aussi la végétation, étaient donc nécessairement très différentes d'aujourd'hui. L'étude chronologique du Roc de Marsal a donc plusieurs visées : d'une part, placer les industries lithiques sur l'axe du temps afin de permettre des comparaisons à l'échelle régionale, voire supra-régionale ; d'autre part, si la sépulture était avérée (voir à ce sujet les travaux de Lafille et Bordes, 1962 ; Turq, 1989 ; Sandgathe *et al.*, sous presse), fournir un encadrement temporel pour cette pratique hautement symbolique ; enfin, dater également certaines périodes climatiques ayant prévalu à la présence de certains biotopes – en l'occurrence, la possible concomitance de biotopes très différents - dans la région.

Cette étude chronologique a été initiée en 2003 par Pierre Guibert et Christelle Lahaye, qui ont organisé une campagne spécifique de prélèvement d'échantillons en vue de

datations par luminescence. Ainsi les échantillons de sédiments Bdx 9054, 9090 et 9092, ainsi que les silex Bdx 9072 et 9102 ont été datés par thermoluminescence avant le début de cette thèse et intégrés aux travaux réalisés depuis. Notons que ces échantillons ont bénéficié d'un échantillonnage particulier, ayant permis de reconstruire l'environnement radioactif des échantillons à l'échelle de la dizaine de centimètres. En ce qui nous concerne, un certain nombre d'échantillons de silex ont été prélevés par les archéologues, puis par nos soins durant la campagne de fouilles 2009. 15 dosimètres ont été placés dans les sédiments, à l'endroit de prélèvements d'échantillons de sédiments dans les sections stratigraphiques laissées intactes par les fouilles dirigées par H. Dibble. Enfin, plusieurs échantillons de sédiments ont été prélevés dans les zones de combustion. Notons que tous les sédiments ont été datés par OSL – qu'il s'agisse de sédiments chauffés ou non.

Les résultats obtenus ont posé un certain nombre de questions quant à leur signification. La combinaison de la TL et de l'OSL sur des matériaux différents a permis de proposer un scénario chronologique pour les occupations du site – les âges obtenus ne permettant pas une interprétation immédiate du fait d'incohérences observées en stratigraphie. Une analyse critique des données et de la nature des erreurs potentielles sur les âges nous a ainsi permis d'identifier trois cas de figures, selon que les échantillons sont chauffés ou non, sont homogènes ou hétérogènes à l'échelle millimétrique, et enfin localisés avant la fouille ou non. Une discussion de ces effets a donc été proposée, en particulier en ce qui concerne les conséquences de ces caractéristiques sur les âges obtenus. Malheureusement, notre intervention sur le site pendant la fouille, à la fin de la première année de cette thèse, ne nous a pas permis de mettre en application les méthodes de cartographie dosimétrique par spectrométrie gamma (chapitre 6), ni les outils de microdosimétrie présentés précédemment (chapitre 8). Cependant la caractérisation des hétérogénéités des débits de dose beta à l'échelle millimétrique, effectuée suivant la méthodologie de Rufer et Preusser (2009), nous a permis de discuter les conséquences de ces hétérogénéités sur les âges obtenus par OSL. A l'avenir, nous espérons dépasser ces discussions qualitatives et obtenir, à partir de telles informations, des données numériques qui nous permettraient, au moyen de simulations numériques (cf. chapitre 8), d'interpréter plus justement les distributions de doses équivalentes obtenues sur grains uniques.

En tout état de cause, les âges obtenus ont été discutés en regard des données paléoenvironnementales disponibles, à l'échelle du site grâce aux données archéozoologiques et micromorphologiques et à l'échelle régionale grâce aux données palynologiques obtenues sur des carottes de sédiments marins. Dans ce but, une

collaboration avec E. Discamps – en thèse de doctorat au laboratoire PACEA – nous a semblé très bénéfique. De telles confrontations des données nous semblent par conséquent largement souhaitables à l'avenir.

Contents lists available at [SciVerse ScienceDirect](http://www.elsevier.com/locate/jas)

Journal of Archaeological Science

journal homepage: <http://www.elsevier.com/locate/jas>

Multi-method (TL and OSL), multi-material (quartz and flint) dating of the Mousterian site of Roc de Marsal (Dordogne, France): correlating Neanderthal occupations with the climatic variability of MIS 5–3

Guillaume Guérin^{a,i,*}, Emmanuel Discamps^b, Christelle Lahaye^a, Norbert Mercier^a, Pierre Guibert^a, Alain Turq^c, Harold L. Dibble^{d,e,f}, Shannon P. McPherron^e, Dennis Sandgathe^{d,g}, Paul Goldberg^h, Mayank Jainⁱ, Kristina Thomsenⁱ, Marylène Patou-Mathis^j, Jean-Christophe Castel^k, Marie-Cécile Soulier^l

^a UMR 5060 CNRS-IRAMAT-CRP2A, Université Bordeaux 3, Maison de l'archéologie, 33607 Pessac Cedex, France

^b UMR 5199-PACEA, CNRS/Université Bordeaux 1, Avenue des Facultés, 33405 Talence Cedex, France

^c Musée National de Préhistoire, Les Eyzies, PACEA, UMR 5199 du CNRS, France

^d Department of Anthropology, University of Pennsylvania, Philadelphia, USA

^e Department of Human Evolution, Max Planck Institute for Evolutionary Anthropology, Leipzig, Germany

^f Institute for Human Origins, Arizona State University, USA

^g Human Evolution Studies Program and Department of Archaeology, Simon Fraser University, Burnaby, Canada

^h Department of Archaeology, Boston University, Boston, USA

ⁱ Technical University of Denmark, Center for Nuclear Technologies, Risø Campus, Frederiksborgvej 399, 4000 Roskilde, Denmark

^j UMR 5198 du CNRS, Département de Préhistoire – Museum National d'Histoire Naturelle, Institut de Paléontologie Humaine, 1 rue René Panhard, 75013 Paris, France

^k Museum d'Histoire naturelle, route de Malagnon, CP 6434, 1211 Genève 6, Switzerland

^l Université Toulouse-Le Mirail, TRACES-UMR 5608, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 9 December 2011

Received in revised form

10 April 2012

Accepted 11 April 2012

Keywords:

TL

OSL

Middle Palaeolithic

Climate variability

Palaeoenvironments

ABSTRACT

Roc de Marsal has yielded numerous remains of Mousterian occupations, including lithics, fauna and combustion features. It was made famous by the discovery of the skeleton of a Neanderthal child. Given the need to date the sequence, TL and OSL were applied on heated flints and quartz, and OSL on unheated quartz. Chronological results combined with palaeoenvironmental data – faunal remains and micro-morphological features in the sediments from the cave, pollen proxies and faunal remains from the region – allowed us to place climate variations in southwest France on a numerical time scale. Denticulate Mousterian occupations were dated to the middle of MIS 4 (65–70 ka) and Quina layers either to the very end of MIS 4 or to MIS 3. Interestingly, a faunal pattern showing a mix of red deer, roe deer and reindeer was found to have occurred during MIS 4, which was shown to be consistent with data from other similar sites in southwest France.

© 2012 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

During the Marine Isotope Stages (MIS) 5–3, Neanderthals had to face dramatic changes in climatic and environmental conditions, well documented in ice-core ¹⁸O variations and marine-core pollen data, faunal remains from archaeological sites and geological signatures in sedimentary deposits. Lithic production also varied during the period spanning MIS 5–3 as seen in

variations in the technology of blank production and in changes in the emphasis of certain retouched tool categories. These variations have led to the creation of the Mousterian techno-complexes including Denticulate Mousterian, Typical Mousterian, Quina Mousterian, and Mousterian of Acheulian tradition, among others. Interplay between cultural and environmental changes has been at the centre of many debates in archaeology, including how environmental changes might have triggered innovations in cultural productions through demographic changes (e.g. Chase, 1986; Henrich, 2004; Stiner et al., 2006; Richerson et al., 2009) and how they impacted the selection of hunted prey by past hominins (e.g. Grayson et al., 2001; Grayson and Delpech, 2002; Discamps et al., 2011; Delagnes and Rendu, 2011). However, the scarcity of

* Corresponding author. Radiation Research Division, Risø National Laboratory for Sustainable Energy, Technical University of Denmark, Frederiksborgvej 399, Building 201, DK-4000 Roskilde, Denmark.

E-mail address: guillaumeguerin@gmail.com (G. Guérin).

chronological data related to human occupations, essential for robust correlations between independent environmental and archaeological records, renders the interpretation of these variations difficult, if not mainly limited to hypotheses.

The Roc de Marsal sequence is one of the richest Mousterian sequences in southwest France and was made famous by the discovery of the skeleton of a Neanderthal child (Bordes and Lafille, 1962). This site documents changes in lithic production (Denticulate, Typical with a high Levallois index, and Quina Mousterian techno-complexes) associated with important climatic changes, as attested to by analyses of faunal remains and sedimentary deposits. Thus far, in terms of chronology, only qualitative interpretations relating fauna to MIS have been proposed – hence the need for numerical chronological data. The aim of this paper is to a) combine TL and OSL dating methods to determine a chronological scenario for the successive occupations of the cave; and b) discuss this scenario in the context of two different environmental proxies as provided by faunal remains from the cave and independent regional reconstructions based on palynological studies of marine sediment cores. A comparison with other Mousterian sites showing similarities in the region is also presented.

2. Presentation of the site

Roc de Marsal is a small cave located in southwest France (Campagne, Dordogne). It is situated in a south-facing karstic cliff approximately 80 m above a tributary valley of the Vézère River (Fig. 1). Infilling sediments, lying on top of karstic bedrock, have yielded remains of human activity corresponding to Middle Palaeolithic, Upper Palaeolithic and finally medieval periods. A roof fall involving a number of massive calcareous blocks occurred at some point, presumably during an intense cold period, separating recent from Palaeolithic artefacts (Couchoud, 2003). This collapse of the roof seems to have occurred during the Middle Palaeolithic,

since Mousterian artefacts have been found above the blocks. A plan view of the site is shown in Fig. 2.

Excavations were carried out by an amateur, J. Lafille, from 1953 until 1971 (Bordes and Lafille, 1962). Later a new series of campaigns were undertaken by some of the present authors, between 2004 and 2009, to re-explore the stratigraphy of the site and to re-assess the archaeological features of the Middle Palaeolithic occupations (Turq et al., 2008). A reappraisal of the stratigraphy led to the distinction of seven major lithostratigraphic units and 13 archaeological layers, over a total thickness of between 1 and 2 m (Fig. 3). Excavations revealed a great number of flint tools, cores and flakes, as well as bones from a number of species including micro-fauna and large mammals. The site is particularly rich in combustion features (Goldberg et al., 2012; Aldeias et al., 2012), often found in a very good state of preservation. What has made the Roc de Marsal cave most famous is the discovery of a sub-complete skeleton of Neanderthal child (Bordes and Lafille, 1962; Turq, 1989). The interpretation as a burial reflecting symbolism among Neanderthals, is, however, still discussed (Sandgathe et al., 2011a).

The nature of the sediments and micromorphological features were studied by Couchoud (2003) and more recently by Goldberg (2007). Layers 13–10, which yielded almost no anthropic remains – except for rubefied lenses attesting to temporary human occupations (Couchoud, 2003) – are mainly composed of clayey silts and altered bedrock. Layers 9–5 constitute one lithostratigraphic unit made of interbedded ashy deposits and clayey silts and are very rich in anthropic remains. The anthropic deposits contain a number of combustion features, flints and bones attesting to an important contribution to the deposits. Layers 4 and 3 also show a strong anthropic influence, but without combustion features; they exhibit clayey silts, aeolian deposition and limestone blocks from the cave walls and roof. Layer 2 is made of metric to pluri-metric calcareous blocks corresponding to a massive collapse of

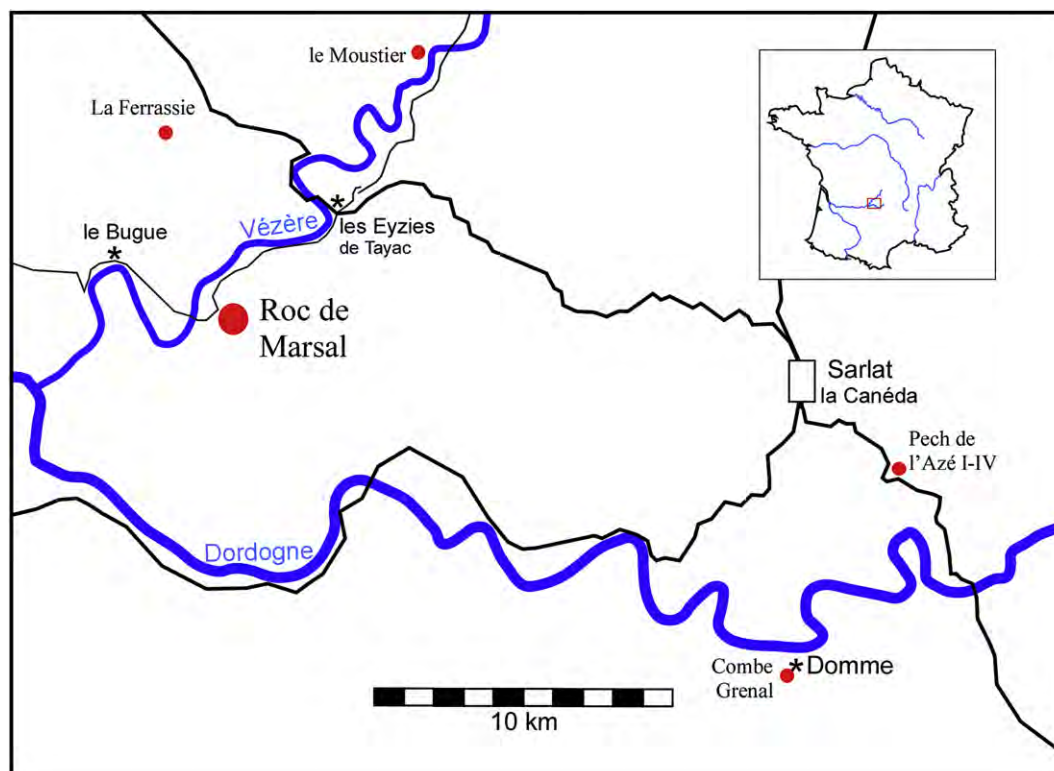


Fig. 1. Regional map showing the location of the Roc de Marsal and other important Mousterian sites in Dordogne.

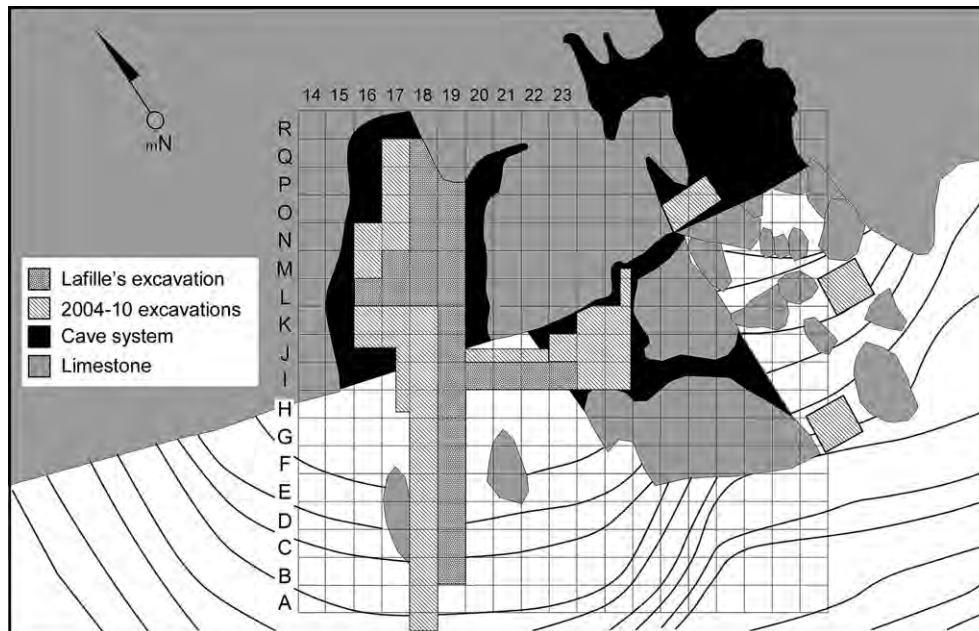


Fig. 2. Map of the Roc de Marsal cave showing excavation grid, Lafille's excavated squares and the squares excavated during the current project.

the roof. Ice segregation is particularly important in Layers 4–2, attesting to particularly cold climate conditions during or after deposition of these sediments (Couchoud, 2003; Golberg, 2007).

Lithic production has been attributed to: Denticulate Mousterian (Layers 9, 8 and 7) with a high Levallois index and an emphasis on small flake production similar to the so-called Asinipodian (Bordes, 1975; Dibble and McPherron, 2006) at Pech de l'Azé IV;

Typical Mousterian (Layers 6 and 5) with a high percentage of scrapers and Levallois blank production; Quina Mousterian (Layers 4, 3 and 2), based on the high percentage of scrapers, many of which are transverse scrapers with a heavy, Quina-type, invasive retouch. Layers 7 and 9 yielded numerous combustion features and a high percentage of burnt lithics (Sandgathe et al., 2011b). Finally, Layer 10 revealed very few lithics and faunal remains, whereas

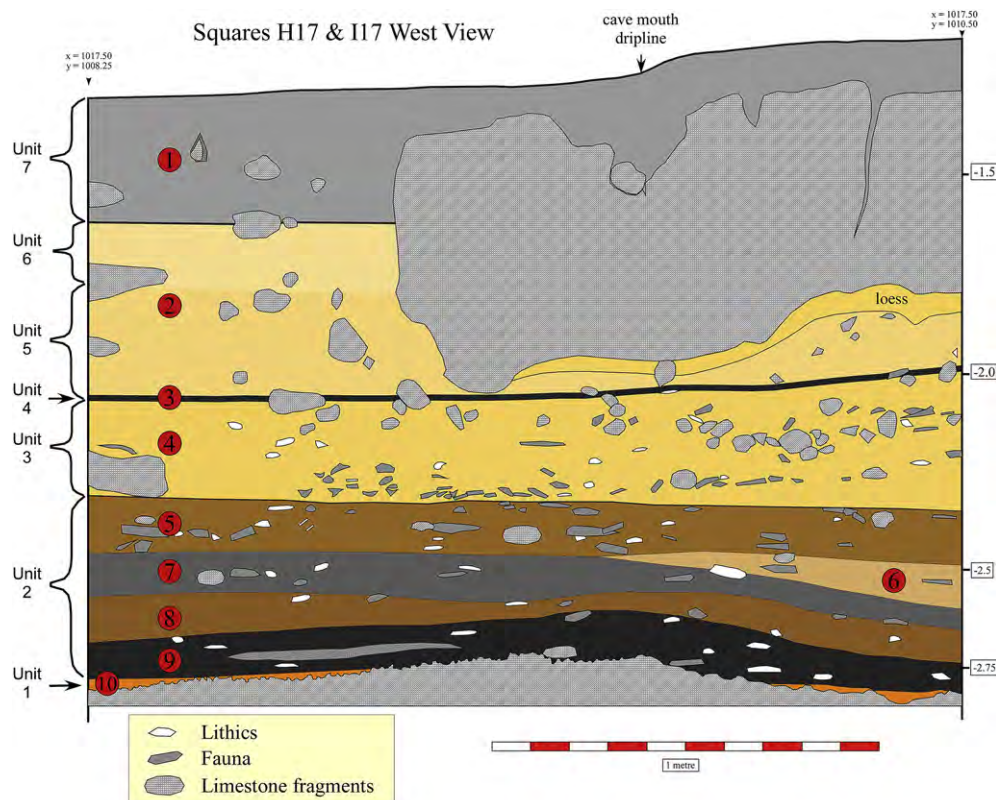


Fig. 3. Stratigraphic view of the Roc de Marsal sequence.

Layers 11–13 contained no trace of human occupations – except for a few small lenses of rubefied sediments.

Zooarchaeological analyses point to a nearly exclusive human accumulation of the macrofaunal remains, with an abundance of cut marks and burnt bones coupled with a scarcity of traces of carnivore activity (Castel et al., 2007, in Sandgathe et al., 2007). For Layers 9–5 the ungulate remains pattern is complex, since *Rangifer tarandus* remains are found in association with abundant *Cervus elaphus* (red deer) and *Capreolus capreolus* (roe deer) remains – taxa that are generally indicative of more temperate conditions. In Layers 4, 3 and 2, ungulate remains potentially indicate a cold climate with the predominance of *R. tarandus* (reindeer), as is often the case in faunal assemblages associated with Quina industries (see Discamps et al., 2011, for a regional study). This climatic change is also perceptible in microfaunal analyses: *Microtus arvalis* (common vole), *Arvicola terrestris* (water vole), *Microtus gregalis* (narrow-headed vole), *Chionomys nivalis* (snow vole), *Microtus malei* (similar tundra vole) dominate Layers 4–2, whereas in the lower layers these species are associated with *Microtus agrestis* (field vole), *Eliomys quercinus* (garden dormouse) and *Microtus subterraneus* (European pine vole). The fact that both macrofaunal and microfaunal analyses identify the same patterns strengthens the view that the changes in the hunted prey can indeed be correlated with climate changes and is not only due to deliberate changes in prey selection.

The combination of faunal analysis and micromorphological studies at Roc de Marsal clearly indicate that the climate changed during the deposition of sediments with a change from more temperate climates at the base to colder conditions at the top of the sequence. As a consequence, thus far it has been hypothesised that the base of the sequence (Layers 9–5) corresponds to MIS 5, and the top of the sequence (Layers 4–2) to MIS 4. Whereas ESR dating of teeth is in progress (see Blackwell et al., 2007, in Sandgathe et al., 2007, for preliminary results), this paper is meant to test this hypothesis in the light of numerical chronology results, using TL and OSL dating methods.

3. Luminescence dating: samples and methods

3.1. Sampling strategy and sample treatment

Given the importance of the archaeological record, it was decided to carry out TL and OSL dating studies on different materials. TL has been extensively used for the dating of burnt stones found in archaeological sites (e.g. Mercier et al., 1991, 1995a, 1995b, 2007a; Mercier and Valladas, 2003; Tribolo et al., 2009). OSL has allowed indirect dating of human occupations by the dating of sediment deposition (e.g. Jacobs et al., 2008; Jacobs, 2010). In some sites the combination of both methods led to a detailed understanding of chronology (e.g. Mercier et al., 2003, 2007b). At Roc de Marsal the use of fire in the cave resulted in well-preserved combustion features: for dating purposes heated sediments and heated flints are directly related to human activities; indirect dating was undertaken by dating sediment deposition in the cave.

The first sampling took place in 2003, prior to the new excavations. A portion of the site was specifically excavated for luminescence dating purposes: two heated flints (samples Bdx 9072 and 9102) and three samples of heated sediments (Bdx 9054, 9090, 9092) were found and a detailed gamma radioactivity reconstruction of their environment was performed (for details, see Section 3.3.2). TL dating was performed on these samples. Later, 34 flints showing signs of heating were collected during the new excavations for TL dating. Combustion features (n° 5, 23, 24) from Layer 9 were sampled and heated sediments (respectively Bdx 13397, 13394, 13396) were studied by OSL to determine the age of combustion. Finally two stratigraphic sections, left intact at the end

of the campaign in squares J16–J17 (Bdx 13401–13407) and H17 (Bdx 13408–13413, cf. Fig. 2), were sampled and sediments were studied by OSL to determine their age of deposition.

The external part of the flints was removed using a low speed water-cooled diamond saw in order to eliminate the part that was irradiated by alpha and beta particles from their environment. The inner part was then gently crushed to a grain size less than 160 μm . Sieving allowed isolating the 100–160 μm fraction that was treated with hydrochloric acid and rinsed with water, ethanol and acetone.

Laser grain size analysis was performed on the sediment samples, and after sieving the dominant fraction (20–40 μm) was selected. Chemical treatments consisted of cleaning with HCl to remove carbonates, with H_2O_2 to eliminate organic materials and finally H_2SiF_6 for 3 days to remove feldspars. After rinsing with HCl to remove any precipitated fluorides and sieving to eliminate the remaining feldspars partially etched by H_2SiF_6 , the remaining quartz was mounted on stainless steel discs using silicone oil. Each quartz sample was checked for purity by an IRSL-test on three discs, and the samples exhibiting IRSL signals were treated again with H_2SiF_6 for 3 days.

3.2. Equivalent dose determination

3.2.1. TL

The TL glow curves were obtained using a specially constructed TL apparatus and heating in N_2 at a rate of 4 $^{\circ}\text{C s}^{-1}$. The photomultiplier tube (EMI 9213 QKA) used for photon counting and a set composed of two Schott BG12 and one MTO Ta3 optical filters lead to a spectral window in the blue and UV region of TL. Beta irradiations were performed with a $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta source. Preliminary tests were performed to evaluate the past heating state of the flints by checking whether the TL signal was saturated (Valladas, 1985): a comparison between natural and additive TL glow curves led to 20 flints being rejected, leaving 16 flints for the dating study.

Fig. 4 shows TL glow curves of sample Bdx 13281, as well as natural and regenerated (after resetting at 350 $^{\circ}\text{C}$ for 90 min) growth curves of TL signal as a function of dose. A multiple aliquot additive/regenerative dose protocol was applied, 4 aliquots being measured for each additive/regenerative point (e.g. Mercier et al., 2007a); the regenerated curves were used to evaluate the supra-linearity of growth curves at low doses.

3.2.2. OSL, single aliquots

OSL measurements were performed with a Risø TL-Da 20 automated reader (Bøtter-Jensen et al., 2000) equipped with blue LEDs and 7.5 mm of Hoya U-340 filter for the detection window, as well as a $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta source. A multi-grain single-aliquot and regenerative dose (SAR) protocol (Murray and Wintle, 2000, 2003; Wintle and Murray, 2006) was used. In addition to internal tests (recycling ratio and thermal transfer), dose recovery tests were performed for each sample. The ratios of obtained to expected dose were consistent with unity, at 2σ . Linearly-Modulated OSL signals showed that for all the samples, the signal was dominated by the fast component (Bailey et al., 1997; Jain et al., 2003).

For each sample, 30 aliquots (diameter: 1 mm) containing several thousand grains were measured. Fig. 5 shows the growth curve for sample Bdx 13396 and the radial plots of Equivalent Doses (ED). Recuperation ratios were all less than 5%, and aliquots that did not recycle within unity at 2σ were rejected. Considering the number of grains on each disc, the expected distribution of EDs was Gaussian. Therefore, the weighted mean of all measured EDs was used to obtain an ED value for each sample.

3.2.3. OSL, single grains

One sediment sample (Bdx 13402) was studied using a Risø automated reader (Duller et al., 1999; Bøtter-Jensen et al., 2003)

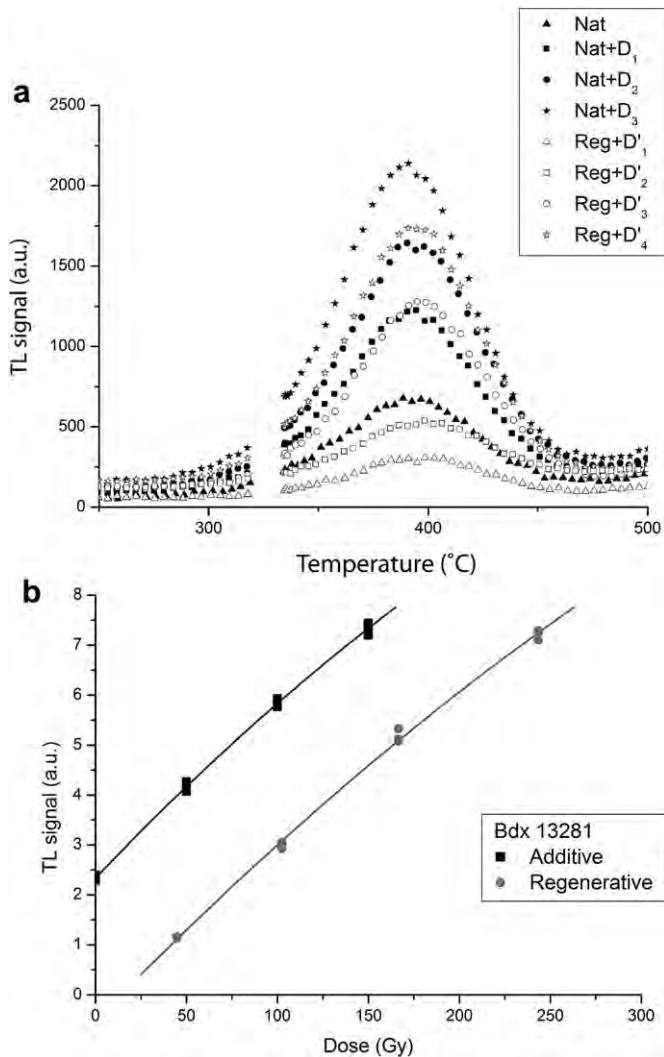


Fig. 4. Heated flint sample Bdx 13281: (a) TL natural, additive (full symbols) and regenerated (empty symbols) glow curves; (b) growth curve of TL signal intensity as a function of dose (first curve: black symbols; second curve: grey symbols). A preheat temperature of 320 °C was maintained for 10 s, and the signal was not recorded during this time interval.

equipped with a 10 mW Nd:YVO4 solid-state diode-pumped laser emitting at 532 nm, with 7.5 mm of Hoya U-340 filter for the detection window, and a ⁹⁰Sr/⁹⁰Y beta source. Fig. 6 shows the radial plot of the ED distribution, determined on 113 grains (size: 180–220 μm) out of 2400, after application of the aforementioned rejection criteria. A supplementary criterion was applied: all grains showing a statistical uncertainty on their test dose signal lower than 20% were rejected. For this sample the Central Age Model (Galbraith et al., 1999) was used to determine the ED.

3.3. Dose rate determination

3.3.1. Alpha and beta dose rates

High resolution gamma spectrometry measurements were performed on the sediment samples, using HP-Ge spectrometers (Guibert and Schvoerer, 1991). Potassium, uranium and thorium contents were determined, and a detailed study of disequilibrium in the ²³⁸U series – involving alpha spectrometry – has already been published by some of the present authors (Guibert et al., 2009). The single-event enrichment model described in this

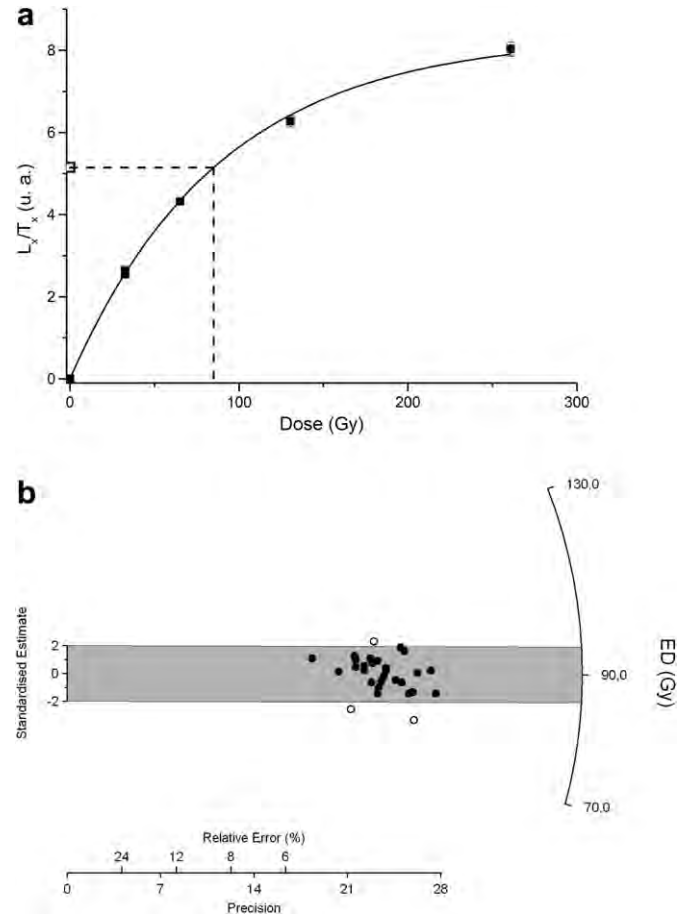


Fig. 5. Sediment sample 13396, 20–40 μm quartz grains: (a) dose response curve of one aliquot; the empty symbol corresponds to the natural signal and is interpolated on the regenerated growth curve (full symbols); (b) radial plot of the single aliquot equivalent doses. Overdispersion is equal to 3%.

study was used to derive effective uranium contents for all samples.

The radioisotopic contents being significantly lower in flints, a fraction of each sample was sent to the *Centre d'Analyse des Roches*

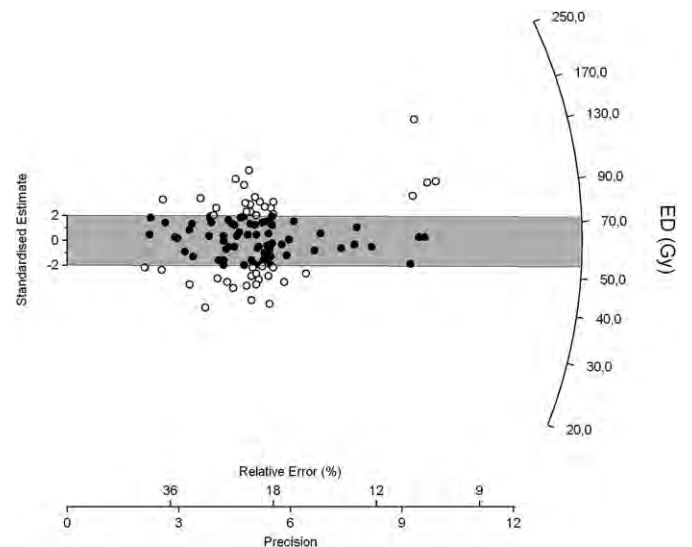


Fig. 6. Radial plot of 113 single grain equivalent doses for sample Bdx 13402, after rejection of poorly suited grains (see criteria in the text). Overdispersion is equal to 44%.

et Minéraux (Nancy, France). Potassium content was determined by Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrometry, and uranium and thorium contents by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry.

These radioisotopic contents were then converted in dose rates using the conversion factors from Guérin et al. (2011). Alpha sensitivity of burnt flints was measured for each sample, using a ^{241}Am source. For quartz, an alpha sensitivity of $5 \mu\text{Gy}/10^3 \text{ alpha}/\text{cm}^2$ was assumed (Tribolo et al., 2001). Attenuation factors of Mejdahl (1979) and Brennan et al. (1991) were used for the calculation of the beta and alpha dose rates, respectively. The water content was measured at the time of sampling, and it was assumed that this value ($\pm 12.5\%$) prevailed during the burial time.

3.3.2. Gamma and cosmic dose rates

Radioisotopic contents for the sediments samples exhibited a high variability (cf. Table 1): relative standard deviations are respectively 36%, 25% and 30% for potassium, uranium and thorium. Sediment samples situated 20 cm from each other sometimes show variations in radioisotopic contents by a factor between 2 and 3. The range of gamma rays being of several tens of centimetres, conversion of K, U and Th in gamma dose rates seemed fraught with hazard.

As a consequence, direct measurements of gamma dose rates were performed by inserting 25 dosimeters in the sediments. Ten were placed in the sediments in 2003, before the start of the excavation process. Then in 2009, 15 additional dosimeters were placed at the location of the sediment samples taken from squares H17 and J16–J17. Fig. 7 shows the corresponding gamma dose rate values. Variations can be explained by the profile of the sections in which the dosimeters were inserted: sediments are sandwiched between the bedrock and a layer of blocks that fell from the roof. Gamma dose rates are, therefore, particularly variable close to the interfaces between sediments and calcareous rocks.

These variations were anticipated at the time of the sampling campaign in 2003. To overcome this source of potentially important uncertainties, an excavation was undertaken to record, localize and weigh every piece of rock of dimensions greater than 5 cm, whose radioisotopic contents were determined by high resolution gamma spectrometry. Sediment samples were also regularly collected around the dated objects (flints Bdx 9072 and 9102, sediments samples Bdx 9054, 9090 and 9092) for a reconstruction of their gamma dose rate environment, according to the methodology published by Guibert et al. (1998). Details regarding this specific reconstruction process have been described by Guibert et al., 2007, in Sandgathe et al. (2007).

Finally cosmic dose rates were measured by *in-situ* gamma spectrometry, by recording the total dose rate deposited in the 3–11 MeV energy range of a NaI (2 inches by 2 inches) portable gamma spectrometer, with a similar approach as what was described by Løvborg et al. (1979) and Prescott and Hutton (1988).

4. Discussion of the ages

For each sample, K, effective U (i.e. taking the disequilibrium state into account) and Th contents, as well as the different contributions to dose rates, equivalent doses and corresponding ages, are given in Table 1 (OSL ages) and Table 2 (TL ages). Fig. 8 shows these ages as a function of archaeological layers. The first observation is that the interpretation of the results is not straightforward: TL and OSL chronological sequences do not seem compatible. A critical discussion of the ages is, therefore, necessary to evaluate the relevance of these ages to the chronology of Neanderthal occupations at Roc de Marsal.

Table 1
OSL ages determined for sediments samples from the Roc de Marsal. Unheated sediments were taken from stratigraphic sections in squares H17 and J16–J17; heated sediments were taken from combustion features.

Sample	Layer	K (%)	σ	Effective U (ppm) ^a	σ	Th (ppm)	σ	Gamma dose rate (Gy ka ⁻¹)	σ	Cosmic dose rate (Gy ka ⁻¹)	σ	Beta dose rate (Gy ka ⁻¹)	σ	Alpha dose rate (Gy ka ⁻¹)	σ	Total dose rate (Gy ka ⁻¹)	σ	ED (Gy)	σ	Age (ka)	σ
Square J16–J17																					
13401	2	0.628	0.013	1.62	0.03	7.19	0.10	0.334	0.018	0.11	0.743	0.009	0.122	0.001	1.309	0.020	97.7	3.0	74.7	4.6	
13402	4	0.347	0.010	0.98	0.01	3.89	0.07	0.343	0.022	0.11	0.418	0.007	0.069	0.005	0.940	0.024	82.4	1.3	87.6	4.5	
13402, SG ^b	4	0.347	0.010	0.98	0.01	3.89	0.07	0.343	0.022	0.11	0.373	0.007	0	0	0.826	0.023	62.6	3.2	75.8	5.6	
13403	4	0.634	0.020	1.96	0.04	7.65	0.01	0.392	0.022	0.11	0.795	0.014	0.137	0.002	1.434	0.026	97.3	1.1	67.8	3.9	
13404	5	0.677	0.013	1.68	0.03	8.96	0.01	0.264	0.044	0.11	0.818	0.009	0.142	0.001	1.334	0.045	102.9	1.0	77.1	5.1	
13405	6	0.413	0.015	1.19	0.03	5.89	0.12	0.176	0.044	0.11	0.527	0.011	0.096	0.002	0.909	0.045	93.5	0.8	102.8	7.7	
13406	7	0.352	0.015	1.40	0.04	6.19	0.12	0.154	0.026	0.11	0.518	0.011	0.106	0.002	0.888	0.028	93.4	0.8	105.2	6.8	
13407	8	0.454	0.017	1.77	0.03	8.04	0.09	0.154	0.022	0.11	0.665	0.012	0.136	0.001	1.065	0.025	95.6	0.9	89.8	5.9	
Square H17																					
13408	3	0.364	0.010	1.19	0.02	4.62	0.08	0.45	0.022	0.16	0.469	0.007	0.083	0.001	1.162	0.023	90.1	1.0	77.6	4.1	
13409	4	0.780	0.015	1.93	0.03	9.42	0.11	0.434	0.013	0.16	0.923	0.011	0.155	0.001	1.672	0.017	122.7	1.2	73.4	4.2	
13410	5	0.551	0.012	1.62	0.03	7.75	0.10	0.458	0.026	0.16	0.705	0.009	0.128	0.001	1.451	0.028	108.5	0.8	74.8	4.2	
13411	7	0.410	0.013	1.74	0.03	7.40	0.11	0.408	0.022	0.16	0.620	0.009	0.128	0.001	1.316	0.024	81.0	0.8	61.5	3.4	
13412	8	0.361	0.015	1.23	0.03	6.11	0.08	0.299	0.030	0.16	0.503	0.010	0.100	0.001	1.062	0.032	97.0	1.1	91.4	5.7	
13413	9	0.154	0.008	0.82	0.02	2.79	0.07	0.185	0.009	0.16	0.252	0.006	0.053	0.001	0.650	0.011	58.5	0.6	89.9	4.9	
Combustion features																					
13394 (CF #23)	9	0.401	0.018	1.70	0.03	9.64	0.11	0.264	0.044	0.11	0.656	0.012	0.150	0.001	1.180	0.046	84.6	0.7	71.7	4.8	
13396 (CF #24)	9	0.279	0.010	1.38	0.03	7.15	0.11	0.352	0.070	0.11	0.489	0.008	0.115	0.001	1.066	0.070	89.4	0.7	83.9	7	
13397 (CF #5)	9	0.360	0.016	1.12	0.03	6.28	0.08	0.308	0.035	0.16	0.493	0.008	0.098	0.001	1.059	0.036	75.2	0.6	71	4	

^a Disequilibrium in U series is taken into account.

^b SG: Single Grain.

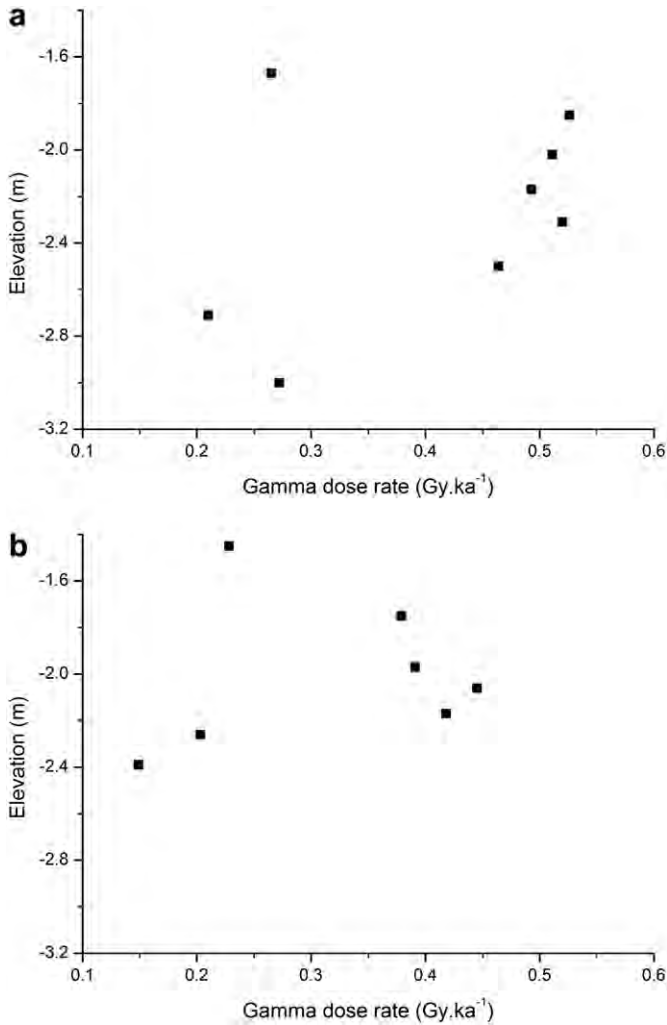


Fig. 7. Gamma dose rates measured *in-situ*, using aluminium oxide dosimeters inserted in the sections of the site: a) square H17 and b) square J16–J17.

4.1. Resetting of luminescence signals

Depending on the nature of the dating objects, two mechanisms are to be considered: for heated sediments and flints, luminescence signals (TL and OSL) are reset by the heating itself, whereas in the case of unheated sediments exposure to sunlight is responsible for zeroing the OSL signal. In the first case, TL plateau tests were performed to check whether the heating was sufficient for a total resetting of the signal; only the samples passing this test were dated. In the second case, no such test exists and one cannot rule out the possibility of partial bleaching of the OSL signal for unheated sediments. At Roc de Marsal sediments are in general poorly sorted, and the majority are not of aeolian origin. A hypothesis for the infilling mechanisms is that sediments would have been deposited through mudflows, in which case exposure to sunlight may have been insufficient to fully reset the OSL signal at deposition time. Even more problematic is the *in-situ* alteration of the bedrock, which contains quartz meaning that quartz grains in the sediments might never have been exposed to sunlight.

4.2. Heterogeneities in dosimetry

Two scales of heterogeneities are to be considered in this study: the range of gamma rays is of several tens of cm, whereas the range of beta particles is of a few mm.

Table 2
TL ages determined for samples from the Roc de Marsal. Burnt flints were taken during the excavation; heated sediments were taken from a rubefied layer of sediment from Lafille's Layer B (here noted Layer 11, although it could be Layer 12).

Sample	Layer	K (%)	σ	Effective U (ppm)	σ	Th (ppm)	σ	Gamma dose rate (Gy ka ⁻¹)	σ	Cosmic dose rate (Gy ka ⁻¹)	Beta dose rate (Gy ka ⁻¹)	σ	Alpha dose rate (Gy ka ⁻¹)	σ	Total dose rate (Gy ka ⁻¹)	σ	ED (Gy)	σ	Age (ka)	σ
Flints																				
13269	4	0.058	0.012	0.56	0.03	0.46	0.05	0.507	0.025	0.11	0.141	0.010	0.094	0.004	0.852	0.027	38.7	2.6	45.4	3.5
13272	4	0.075	0.015	1.21	0.06	0.50	0.05	0.527	0.033	0.11	0.250	0.015	0.127	0.006	1.014	0.037	61.9	6.8	61	6.8
13281	7	0.066	0.013	1.40	0.07	0.33	0.03	0.411	0.050	0.11	0.267	0.015	0.125	0.006	0.913	0.053	68.2	3.1	74.8	6.2
13283	7	0.066	0.013	1.07	0.05	0.53	0.05	0.409	0.050	0.11	0.224	0.013	0.099	0.005	0.842	0.052	52.9	2.1	62.8	5.2
13286	8	0.050	0.010	0.87	0.04	0.29	0.03	0.424	0.051	0.11	0.174	0.010	0.068	0.003	0.776	0.052	50.5	2.1	65	6.1
13288	8	0.091	0.018	0.91	0.05	0.27	0.03	0.408	0.033	0.11	0.214	0.016	0.103	0.005	0.835	0.037	56.9	3.0	68.2	5.2
13295	9	0.058	0.012	1.16	0.06	0.45	0.05	0.376	0.033	0.11	0.228	0.013	0.105	0.005	0.819	0.036	48.9	5.4	59.7	6.9
13297	9	0.075	0.015	0.52	0.03	0.60	0.06	0.373	0.042	0.11	0.152	0.012	0.109	0.003	0.744	0.044	41.1	3.0	55.2	4.2
13414	9	0.066	0.013	0.81	0.04	0.29	0.03	0.341	0.067	0.11	0.179	0.012	0.083	0.004	0.713	0.068	51.9	2.6	72.9	8.3
13415	9	0.050	0.010	0.83	0.04	0.25	0.03	0.34	0.067	0.11	0.167	0.010	0.053	0.002	0.670	0.068	46.0	2.4	59.6	7.3
13418	9	0.033	0.007	1.09	0.05	0.13	0.01	0.341	0.067	0.11	0.189	0.010	0.075	0.004	0.715	0.068	52.8	4.4	73.8	9.4
13421	9	0.058	0.012	1.50	0.08	0.44	0.04	0.386	0.067	0.11	0.277	0.015	0.192	0.009	0.965	0.069	60.8	4.0	63	6.4
13430	9	0.033	0.007	0.79	0.04	0.25	0.03	0.348	0.042	0.11	0.168	0.008	0.079	0.004	0.685	0.043	36.9	4.5	53.8	7.0
9072	9	0.062	0.006	1.26	0.03	0.33	0.07	0.387	0.011	0.11	0.266	0.007	0.258	0.022	1.021	0.026	65.3	5.4	66.1	5.9
9102	9	0.040	0.007	1.11	0.03	0.21	0.07	0.297	0.013	0.11	0.209	0.008	0.164	0.01	0.780	0.018	51.4	2.2	68	3.8
Heated sediments																				
9054	11	0.284	0.007	1.06	0.15	8.37	0.09	0.321	0.013	0.11	0.464	0.020	0.028	0.003	0.923	0.024	70.9	3.3	77.4	4.8
9090	11	0.282	0.007	1.12	0.17	7.62	0.08	0.317	0.013	0.11	0.458	0.020	0.037	0.004	0.922	0.024	80.2	3.4	86.7	5.2
9092	11	0.283	0.007	1.29	0.19	6.86	0.08	0.321	0.013	0.11	0.456	0.019	0.033	0.004	0.920	0.023	74.2	3.7	81.4	5

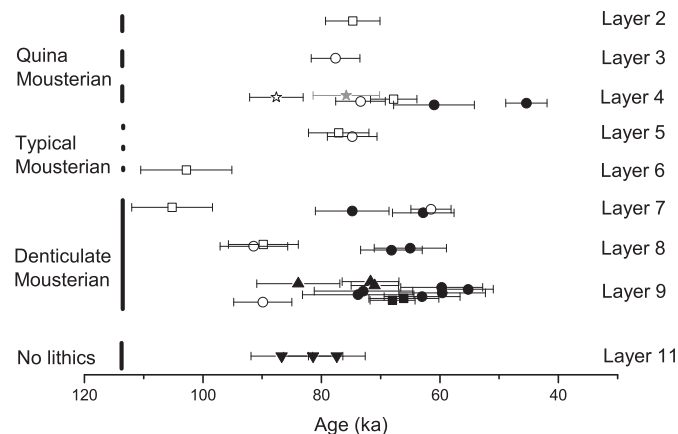


Fig. 8. Summary of luminescence ages from the Roc de Marsal. Full black symbols: heated materials; full squares: TL on heated flints for which gamma reconstruction was performed; full circles: TL on other heated flints; full downward-pointing triangles: TL on heated quartz for which gamma environments were reconstructed; full upward-pointing triangles: OSL on heated sediments. Empty symbols: OSL on sediments taken from stratigraphic sections, more precisely circles: section from square H17; squares: section from square J16–J17; stars correspond to ages determined for sample Bdx 13402, section J16–J17 (empty: single aliquots; full grey: single grain).

4.2.1. Gamma dose rates to heated samples

According to the nature of the dated samples, two different situations occurred regarding gamma dose rate determination. The location of objects related to human activity, such as heated flints or combustion features, is unknown before excavations. Hence for these samples gamma dose rate measurements could not be performed at their burial location. Given the high variability of gamma dose rates at Roc de Marsal, especially for top and bottom Layers – which are close to uneven surfaces such as calcareous bedrock or blocks from the roof fall – one can expect relatively high uncertainties on gamma dose rates received by dated samples. Indeed for burnt flints and sediments from combustion features, gamma dose rates were estimated using distant measurements. Notable exceptions are the flints Bdx 9072 and 9102, as well as heated sediments Bdx 9054, 9090 and 9092 for which the environment radioactivity was reconstructed (Section 3.3.2). Alternatively, for the sediment samples from the sections in squares H17 and J16–J17, dosimeters were inserted at the location of sampling.

4.2.2. Beta dose rates to sedimentary quartz grains

In the case of sediment samples, beta dose rates have been deduced from the radioisotopic contents of the samples themselves. Sediment composition is locally variable and consists of calcium carbonate (both limestone, ashes and some secondary carbonates), phosphates, quartz silt, clay, sand, bones, and lithics in variable quantities; radioisotopic contents are highly variable in such different materials. As a consequence beta dose rate to quartz is difficult to measure. During sample preparation for gamma spectrometry, large elements (>1 cm) were removed before the fine fractions were crushed to homogenize the samples, since the 20–40 μm quartz grains are part of the fine sediments. However, this precaution may not be sufficient, since even removing the large elements does not solve the mm scale heterogeneity problem.

To tackle such heterogeneities at the mm scale, three slices of impregnated sediment samples were analysed with imaging plates showing the distribution of radioelements (Fig. 9) – following the approach of Rufer and Preusser (2009). These imaging plates mostly characterize beta radiations, which account for between 45 and 65% of the total dose rate received by sedimentary quartz grains. At this stage, only qualitative statements can be made: Monte Carlo simulations of particle–matter interactions might

allow quantifying microdosimetry effects, but this goes beyond the scope of this study. Sample PG-401 (Fig. 9a) encompasses Layers 7 and 8 in square H 18. On the top part of this sample one can see a dark layer, very rich in charcoal, which is associated with combustion feature 16. The autoradiograph of this sample shows several features: low radioactivity layers are noted for a calcareous block (on the right) and a bean shaped brown loose patch in the centre of the sample. Moreover the part rich in charcoal (top of the photos) appears in lighter grey than the rest of the autoradiograph – which reveals lower radioisotopic contents. More generally, one can identify a great number of radioactive hotspots – possibly potassium feldspars or heavy minerals such as zircons, monazites, etc. The effect of these hotspots is that dose rate distributions for single quartz grains are very complex, and that determination of beta dose rates to quartz grains by conversion of radioisotopic contents may induce errors. Indeed whether the quartz grains are close or distant to hotspots – the range of beta particles being 1–2 mm, i.e. lower than typical distances between hotspots – will greatly affect the dose rate they received during burial. Sample PG-413 (Fig. 9b) comes from Layer 9 (and 10 at the bottom) and shows an ash layer from combustion feature 18. It exhibits even more complex patterns: sub-horizontal layers of different radioactivity layers are visible; moreover hotspots also appear clearly, and the distance between them is greater than for sample PG-401. This means that quartz grains have a lower probability of having been buried close to one of them – beta dose rate seems, therefore, even more hazardous. Finally, sample PG-414 (Fig. 9c) comes from square N16 (Layers F-3 and F-4) and shows a distribution of hotspots: most grains on the exposed surface are at least 2 mm away from closest hotspots – therefore, the radioisotopic contents, measured in the samples using gamma spectrometry, might not be the relevant physical quantities to derive beta dose rates to quartz grains.

Unfortunately, these samples for beta dose rate mapping were not the same as dated sediments – hence the conclusions of this study only have a qualitative, general significance. Nonetheless, all samples exhibit hotspots, and one may assume that the combustion features, since they all present the same kind of features throughout the site, have similar characteristics as sample PG-413, taken from combustion feature 18. Further studies should associate OSL studies and microdosimetry characterization to exploit the full advantages of such analysis combinations.

4.3. Hypothesis for the chronology

4.3.1. Different materials, different stories

If one tries to summarize the potential problems affecting the different ages shown in Fig. 8, three situations occur, based on different parameters/effects that could affect the dating study, namely microdosimetry heterogeneities, luminescence signal resetting and gamma dose rate determination.

First, OSL ages determined on unheated sediment samples (empty symbols in Fig. 8) may be affected by:

- Possible partial luminescence signal resetting – or even inexistent resetting if quartz grains are the result of *in-situ* bedrock decomposition.
- Microdosimetry effects, which are a consequence of the complex, heterogeneous radioelement distributions as shown in Fig. 9. Important over-dispersion in equivalent dose distributions are, therefore, expected because of both signal resetting problems and microdosimetry effects.
- However, for these samples, gamma dose rates were measured at sampling location, and it was assumed that these dose rates were representative of those during burial.

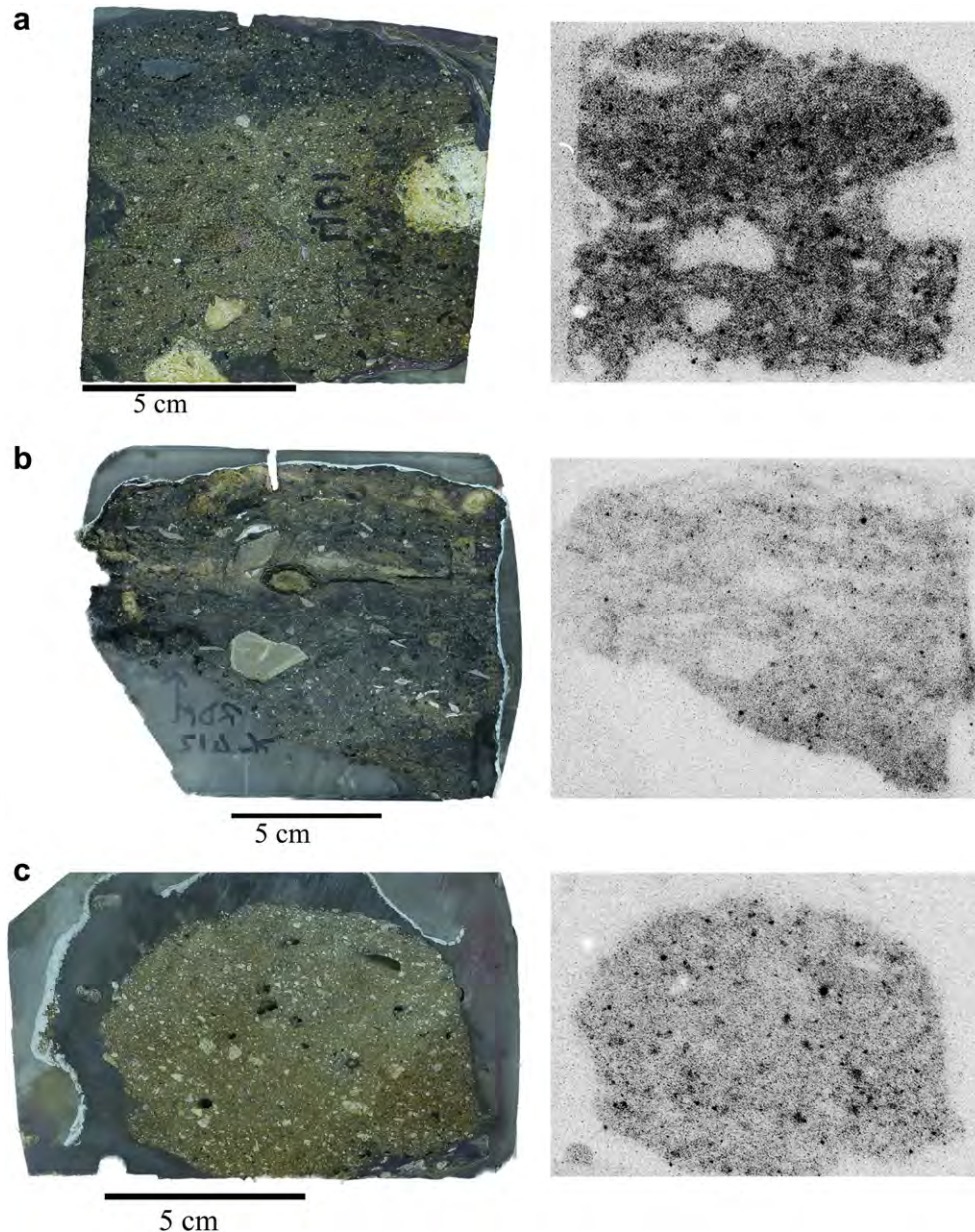


Fig. 9. Scan of beta emissions (on the right) of corresponding impregnated sediments samples (a: sample PG-401; b: PG-413; c: PG-414) from the Roc de Marsal (photographs in natural light on the left). A great number of hotspots can be identified, as well as distinct layers in the case of the sample PG-413 (b).

It should be noted that single grain analysis provides a way of looking into the two first problems. For this reason the sample Bdx 13402 (quartz grains in the 180–250 μm fraction) was studied with a single grain reader (grey star symbol, Fig. 8). Two different components, such as those observed by Tribolo et al. (2010) and that were interpreted as the sign of post-depositional mixing of grains, could not be isolated. Application of the Central Age Model on single grain data for sample Bdx 13402 gave an age of 75.8 ± 5.8 ka, whereas for the same sample the age determined on single aliquots was 87.6 ± 4.5 ka. This important difference and the over-dispersion of single grain EDs (44%) confirm that this sample has a complex dosimetry history; however, at this stage one cannot determine if this over-dispersion is due to partial bleaching at the time of deposition, to microdosimetry heterogeneities, to different sedimentary histories of the fine and coarse grains fractions, or to a combination of these effects – and in the latter case, what fraction

of the over-dispersion is due to which cause. Since the effects of these potential effects could not be quantified at this stage, no further modelling was performed, all the more since Thomsen et al. (in press) recently reported a dose dependency of the over-dispersion of quartz OSL equivalent doses in gamma dosed samples.

For OSL and TL ages on heated sediments (respectively upwards-pointing full triangles, Layer 9, and downwards-pointing full triangles, Layer 11, in Figs. 8 and 10):

- Luminescence signal resetting is assumed, since careful excavation of the combustion features was performed under subdued light laboratory conditions.
- Microdosimetry effects seem even worse in this case, as attested by the autoradiographs obtained in such cases (Fig. 9a and b). Despite the precautions taken for small scale sampling

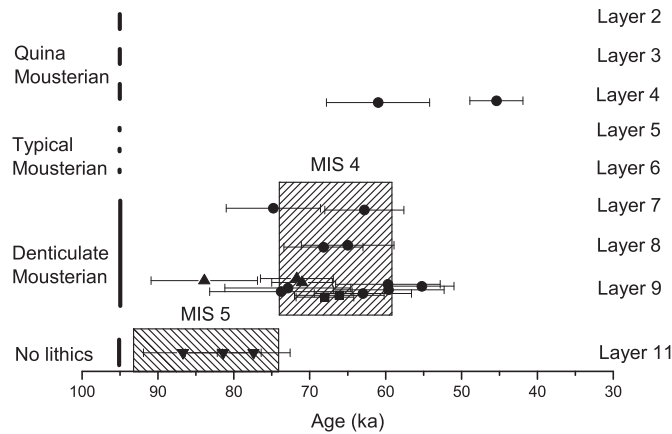


Fig. 10. Interpretative summary of luminescence ages determined on heated samples. 12 of the 15 ages for the part of the sequence composed of Layers 7, 8 and 9 fall within MIS 4. Previous occupations, not related to lithics but attested by heated sediments, are attributed to MIS 5. The chronological position of the Quina layers is less documented and could be attributed to the end of MIS 4 (Heinrich event 6?) or to MIS 3. For the symbols significance, see Fig. 7.

of the combustion features, one cannot rule out the possibility that layers of different radioisotopic contents were sampled for gamma spectrometry – which requires approx. 10 g of sediments.

- For these samples, whose location was unknown before excavation, there is potential inadequacy between measured gamma dose rates and gamma dose rates actually received by the samples.

Finally for the burnt flints dated by TL (other full symbols in Figs. 8 and 9):

- Luminescence signal resetting was tested using the plateau test – samples failing this test were rejected.
- Flints are homogeneous in terms of radioelement distribution on a mm scale (e.g. Selo et al., 2009).
- There is potential inadequacy between measured gamma dose rates and gamma dose rates actually received by the samples, as for heated sediments.

This latter point probably explains the important dispersion on ages measured for artefacts from Layer 9. Even though these 11 samples (heated sediments and flints) are far from being statistically sufficient for a satisfactory detailed analysis, one can assume that average gamma dose rates are well estimated, and that the spread of ages is due to statistical errors. Going further, given the limited thickness of this layer (approx. 10 cm) and its homogeneity in terms of materials, one can formulate the hypothesis that the material deposition corresponding to these occupations occurred during a time period that is small compared to the uncertainties of individual ages (6 ka in average for individual σ). If this hypothesis was verified – which unfortunately cannot be proven or disproven – then the average of ages would allow the statistical errors on gamma dose rates to be accounted for. In such a case, 67 ± 2 ka (uncertainty is given as the standard error on mean) corresponds to the age of Layer 9, at the base of the sequence, when considering ages for heated flints and quartz from combustion features. This average would become 64 ± 2 ka when considering only burnt flints, which are not affected by microdosimetry effects.

Despite a potential inadequate gamma dose rate for these samples, the 25 dosimeters – which were inserted in the sediments – provide a range for possible gamma dose rates. One can, therefore,

calculate a mean maximum age for the heated samples from Layer 9. If one assumes a gamma dose rate of 0.25 Gy ka^{-1} for all these samples (which is the lowest possible value for gamma dose rates in the sediments directly atop the bedrock), the average of age for Layer 9 is 74 ka, which means that this layer cannot be attributed to MIS 5.

4.3.2. Interpretative summary of the ages

Now that three subsets of ages can be distinguished based on their physical properties (heated quartz, heated flints, and unheated quartz), one can try and look at these three subsets on a wider scale. Ages on unheated material exhibit stratigraphic inversions: the determined ages for Layers 8 and 9 (Bdx 13407: 89.8 ± 5.9 ka, 13412: 91.4 ± 5.7 ka, 13413: 89.9 ± 4.9) are younger than for Layers 6 and 7 (Bdx 13405: 102.8 ± 7.7 ka and 13406: 105.2 ± 6.8 ka). The age determined for the sediment sample Bdx 13411 (Layer 7, age: 61.5 ± 3.4 ka) is clearly incompatible with all these ages. Therefore, it seems that unheated material does not provide a set of coherent ages at Roc de Marsal. Even single grain analysis does not provide a means of overcoming these stratigraphic inversions: the age of Bdx 13402 (Layer 4, age: 75.8 ± 5.8 ka), determined on single grains, is still inconsistent at 1σ (and barely consistent at 2σ) with the single aliquots age of sample Bdx 13411 (Layer 7, age: 61.5 ± 3.4 ka).

When considering the heated samples – dated either by TL or OSL – the sequence, despite the blurring effect owing to gamma dose rate inaccurate measurements, is coherent. Layers 7, 8 and 9 correspond to the same period, i.e. 65–69 ka (one sigma interval). 12 of the 15 ages determined on heated samples from these layers are in MIS 4. Upper layers yielded much less heated material, only Layer 4 provided two ages: 45.4 ± 3.5 for Bdx 13269 and 61.0 ± 6.8 for Bdx 13272.

Finally, five samples are particular in this study: the heated flints from Layer 9 (full squares in Figs. 8 and 10) Bdx 9072 (66.1 ± 5.9 ka) and 9102 (68 ± 3.8 ka) do not suffer from a potentially problematic gamma dose rate determination, since their radiation field environment was reconstructed. These samples, therefore, constitute the only examples for which there is no question regarding either signal resetting, microdosimetry effects or potentially problematic gamma dose rate determination. It is striking to see that these ages lie at the centre of the distribution of ages for Layer 9, which supports the interpretation of the spread in ages, for heated materials from Layer 9, as the result of statistical errors on gamma dose rates. We, therefore, consider these ages as the marker for this chronological study, all the more since the ages for the rest of heated materials are intrinsically coherent. The other three samples for which gamma reconstruction was performed are the heated sediments (full downwards-pointing triangles in Figs. 8 and 10) from Lafille's Layer B – the samples were taken before the recent excavations, so no clear correlation could be made but it most probably corresponds to the new Layer 11 (it could also be Layer 12). Even though this layer did not yield any lithics, fire was made at Roc de Marsal and is dated back to 77–87 ka, i.e. at the end of MIS 5.

5. Roc de Marsal chronology in a regional perspective

The determined ages can now be viewed in relation to the environmental data, both on a site and regional scales. For clarity, in Fig. 10 only the ages determined on heated samples – which are the most reliable chronological data according to the preceding section – are plotted as a function of stratigraphic layers.

Luminescence dating results indicate that Layers 7, 8 and 9 correspond to occupations during the MIS 4. Fig. 11 shows macrofaunal remains for the different layers of Roc de Marsal. The abundance of red deer and roe deer in the layers at the base of the sequence tend to indicate a wooded environment, even when the

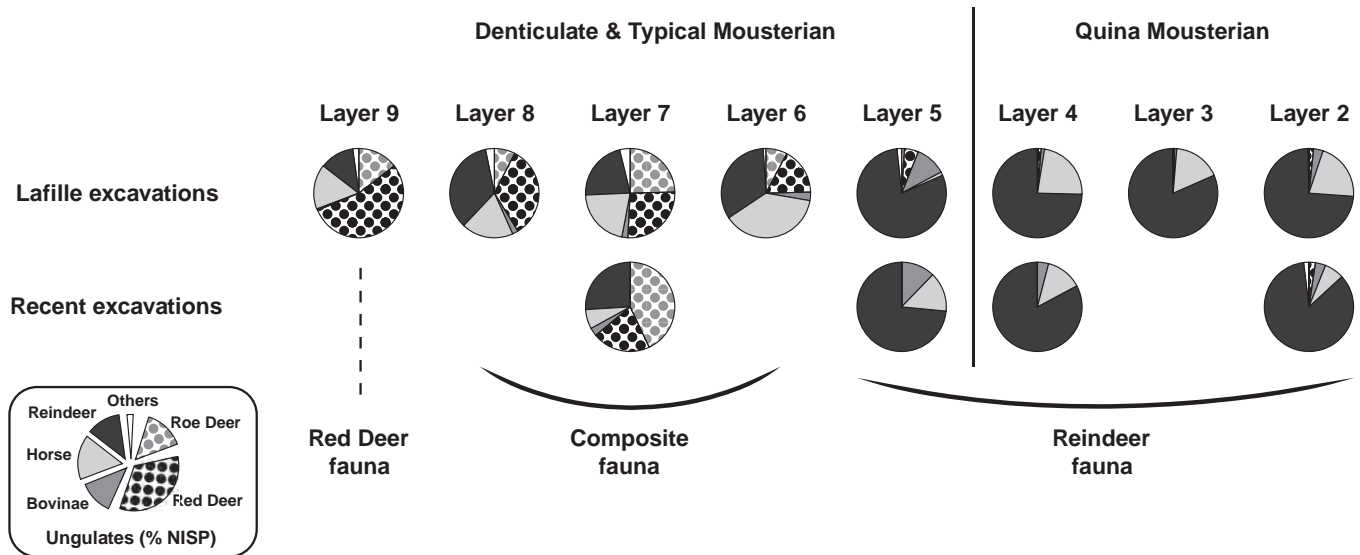


Fig. 11. NISP percentages of macrofaunal remains of the different ungulate taxa found at the Roc de Marsal site by archaeological Layer. Data was compiled from previous analyses of the Lafille collection by M. Patou-Mathis (in Sandgathe et al., 2007) and of the recent excavations by J.-C. Castel (in Sandgathe et al., 2007; Castel and Dibble, in prep.) for Layers 4, 5, 7 and M.C. Soulier (2007) for Layer 2. Only Layers with a total NISP exceeding 100 are included.

ecological plasticity of ungulates is considered (Discamps et al., 2011). This had led, up to now, to the suggestion that the corresponding layers correspond to MIS 5 (Sandgathe et al., 2011a; Goldberg et al., 2012), because this period is generally believed to be more temperate than the MIS 4.

However, palaeoclimatic and palynologic analyses carried out on a deep-sea core drilled in the Bay of Biscay (Sanchez Gofñi et al., 2008), a few hundred km west of Roc de Marsal, have shown that the MIS 4 palaeoenvironments were more variable than one might expect. The sediments analysed in this core represent three main fluvial sources: the Adour River, the Garonne River and the Loire River and, therefore, palaeoenvironmental reconstructions based on this core correspond to a broad southwest France. This wide regional scale limits the information that can be drawn for the Roc de Marsal environments, but it is worth noting that between 65 and 70 ka, the vegetation in southwestern France consisted of approximately 50–60% of steppe species and 40–50% of forest – mainly boreal (Fletcher et al., 2010) species. Interestingly, the fauna at Roc de Marsal exhibit a singular pattern: for Layers 7, 8 and, to a lesser degree, 9, forest-adapted taxa (red deer, roe deer) dominate the spectrum but reindeer, which is often associated with dry, cold open-air environments, also contributes to a significant fraction of the remains (respectively 22, 33 and 11% of NISP for Layers 7, 8 and 9).

This rather strange association could correspond to: 1) a mosaic landscape with, for example, simultaneous development of forests in valleys, and grasslands on plateaus or 2) a palimpsest of multiple occupations that occurred in different environments changing on a short time scale, following Dansgaard–Oeschger events, for example. However, if these three ungulates are preferentially adapted to different environments, they are also known for their ecological plasticity: red deer ranges from mixed forests to open forests with grassland and can even tolerate steppe environments; roe deer, if they preferentially inhabit wooded environments, may live in open country (field roe deer ecotype); reindeer, if they are well adapted to open treeless spaces, can also live in taiga and forested mountainous regions (detailed discussion and references in Discamps et al., 2011). In fact, red deer, roe deer, and reindeer can live in boreal forests.

In southwest France, Roc de Marsal Layers 7–9 are not an exception, as similar faunal patterns have been observed in other

archaeological sites. It is striking to see that for sequences that span both Quina and Typical Mousterian, a number of similar features have been observed: first, Quina Mousterian layers are always on top of Typical Mousterian layers (Jaubert, 2010); second, Quina Mousterian is, in Dordogne, always associated with faunal remains dominated by reindeer; third, in the layers underlying Quina industries, fauna exhibits singular patterns combining “forest-adapted” (red deer and/or roe deer) and “cold open-air” species (reindeer). Fig. 12 shows the evolution in the patterns of faunal remains in the following sites of the Dordogne region of France: Pech de l’Azé II, Pech de l’Azé IV, Combe-Grenal (Laquay, 1981), Regourdou, Vaufray (Delpéch, 1996) and Roc de Marsal. Faunal data from Pech de l’Azé IV do not come from the recent excavations of this site but from the analysis of the Bordes excavation’s faunal collection (Laquay, 1981); for correspondence between Bordes layers and the new excavation layers, please refer to Turq et al., 2008. At the top of Fig. 12 dominant species are given as a function of the layers of these different sites, and at the bottom one can see that the percentage of reindeer progressively increases from “Antequina” (various Mousterian techno-complexes underlying Quina Mousterian) to Quina Mousterian layers. In terms of chronology, Layer 2E from Pech de l’Azé II was dated by ESR on teeth to approx. 57–60 ± 6 ka (Grün et al., 1991) and these ages were part of a coherent, comprehensive study of 29 samples from this site; Combe-Grenal layers were bracketed between 44 ± 4 and 68 ± 7 ka by TL on heated flints (Bowman and Sieveking, 1983) but the studied grain size fraction (1–8 µm in diameter) is prone to triboluminescence, which makes these ages rather uncertain; layer II from Vaufray gave a U/Th age of 74 ± 18 ka (Blackwell and Schwarcz, in Rigaud (dir.), 1988) but the important uncertainty and the nature of the sample (calcite fragments) render the interpretation of this age difficult. One can, nonetheless, formulate the hypothesis that this faunal pattern corresponds to particular climatic conditions in this region of France, at a particular time. At Roc de Marsal this period of transition from temperate to cold conditions seems to have occurred in the middle of MIS 4, which is consistent with chronological information from the above-mentioned sites. Analysis of the faunal assemblages at a regional scale suggests that the most probable time interval corresponding to the change from composite reindeer/red deer/roe deer faunas at

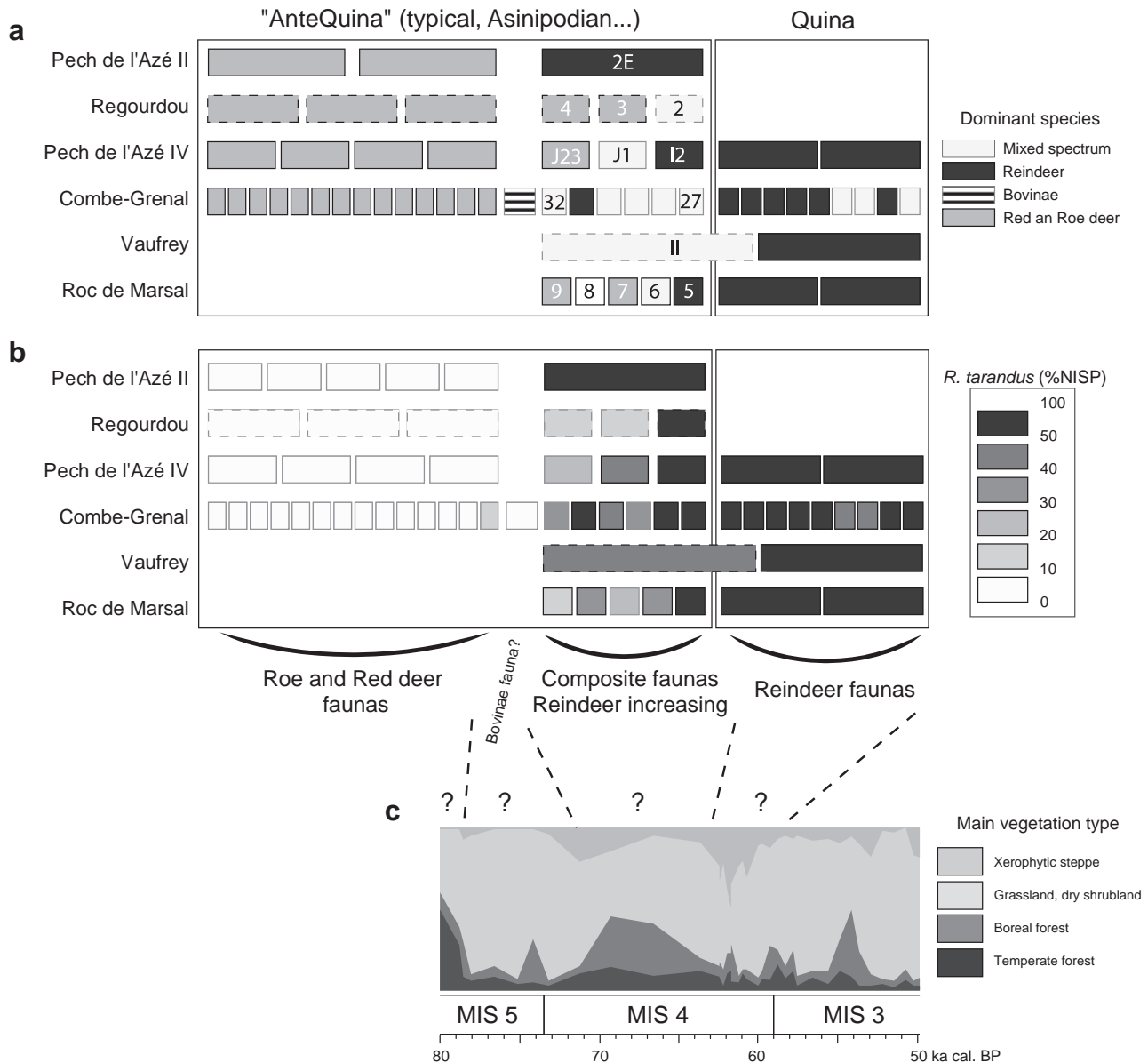


Fig. 12. Top: stratigraphic distribution of hunted prey in "AnteQuina" and Quina assemblages from the Dordogne region, by dominant taxa (a) and evolution in the percentage of Reindeer remains (b). Each line is a sequence and each block is an assemblage represented according to its stratigraphic position; dashed blocks are assemblages with doubts on their technotypological attribution or stratigraphic integrity. Bottom: evolution in main pollen types from independent paleoenvironmental data (modified after Fletcher et al., 2010) and proposed correlations with main faunal changes (dashed lines).

the end of the "AnteQuina" to reindeer dominated faunas in the Quina might be the middle of MIS 4 (Fig. 12; Discamps et al., 2011), when southwest France was for a great part covered with boreal forest (Sanchez-Goni et al., 2008; Fletcher et al., 2010).

For the rest of the stratigraphic sequence at Roc de Marsal, chronological information is unfortunately much poorer, owing to the lower fraction of heated material. A summary of ages determined for Quina Mousterian occupations in the region can be found in Guibert et al. (2008) and the corresponding ages refer to the following sites: Chapelle aux Saints (Corrèze, France: ESR by Grün and Stringer, 1991), Regourdou (Dordogne, France: radiocarbon by Vogel and Waterbolk, 1967), Espagnac (Lot, France: ESR by Falguères, in Jaubert (dir.), 2001), Sous les Vignes (Lot-et-Garonne, France: ESR by Valladas et al., 1999) and Combe-Grenal (Dordogne, France: TL by Bowman and Sieveking, 1983). The ages determined for this industry are all between 39 and 54 ka – i.e. during MIS 3, which is consistent with one of the two ages of Layer 4 at Roc de

Marsal (Bdx 13269, age: 45.4 ± 3.5 ka), the other one being consistent with MIS 3 or the very end of MIS 4 (Bdx 13272: 61.0 ± 5.8 ka). The latter is consistent with recent data from Les Pradelles (Charente, France), where Quina deposits were dated by TL to 57.6 ± 4.8 ka (Vieilleigne and Guibert, 2007).

Chronological data suggest that the Quina corresponds either to the very end of MIS 4 or to the MIS 3. Fauna associated with the Quina Mousterian industry is clearly dominated by reindeer, both at Roc de Marsal and in other Quina sites of this region, suggesting cold steppe conditions more consistent with the very end of MIS 4 (Discamps et al., 2011), but further data will be needed to discuss possible correlations with particular climatic events.

6. Conclusion

Given the complex stratigraphy of Roc de Marsal in terms of radioactivity heterogeneities at different scales, the coupling of TL

and OSL on different materials was necessary to determine a chronological scenario for the human occupations at this site. Accurate reconstruction of radioactive environments, for some of the heated samples, played a significant role in the dating study. Data suggest an occupation characterized by Denticulate Mousterian during the middle of MIS 4 (Layers 7, 8 and 9: 65–70 ka). Quina Mousterian layers, based on ages for Layer 4, are dated to between 45.4 ± 3.5 ka and 61 ± 6.8 ka which is consistent with other chronological data in the region for the same industry that place it at the end of MIS 4 or in MIS 3. Consequently, our results, when combined with other ongoing research in the area (Guibert et al., 2008; Discamps et al., 2011; Sanchez-Gofiñi et al., 2008) paint a more complex picture that imply the two following *a priori* unexpected considerations: first, that MIS 4 was probably not uniformly extremely cold in southwest France, since red deer and roe deer would have been present during the first half of this period; second, that the maximum cold, as measured by the almost exclusive presence of reindeer, occurred most probably at the very end of MIS 4 – or during MIS 3. This is consistent with palaeoenvironmental reconstructions based on palynological studies in this region of France, since forest environments and steppes were simultaneously covering similar fractions of landscapes between 65 and 70 ka, the minimum forest covering occurring at the end of MIS 4 (60–62 ka, meaning a possible correlation with Heinrich event 6) and during MIS 3. Moreover, the deposition of the skeleton of the Neanderthal infant is now bracketed; according to its stratigraphic position – probably below the Quina layers (Sandgathe et al., 2011a) – it can now be assigned most probably to MIS 4, between 60 and 70 ka.

Acknowledgements

The research at Roc de Marsal had the financial support of the US National Science Foundation (Grants #0917739 and #0551927), the Leakey Foundation, and the University of Pennsylvania Research Foundation, the Service Régional de l'Archéologie, and the Conseil Général de la Dordogne. The Région Aquitaine is also thanked for financial support through the program entitled "Chronologie, Préhistoire et Paléoenvironnements". GG was supported by a PhD allocation from the French Ministry of Research and Higher Education. The authors are grateful to two anonymous reviewers for their helpful comments on an earlier version of this article, and to V. Aldeias, E. Hallett and S. Schwartz for help during sampling at Roc de Marsal.

References

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.

Bailey, R.M., Smith, B.W., Rhodes, E.J., 1997. Partial bleaching and the decay form characteristics of quartz OSL. *Radiation Measurements* 27, 123–136.

Blackwell, B., Schwarcz, H.P., 1988. Datation des spéléothèmes de la grotte Vaufray par la famille de l'Uranium. In: Rigaud, J.-Ph. (Ed.), *La Grotte Vaufray: paléoenvironnement, chronologie, activités humaines*. Mémoires de la Société Préhistorique Française, XIX, pp. 365–380.

Blackwell, B., Skinner, A., Blickstein, J., 2007. Résultats des datations ESR 2006. In: Sandgathe, D., Turq, A., Dibble, H., McPherron, S., Goldberg, P. (Eds.), *Roc de Marsal (Campagne-de-Bugue, Dordogne): Rapport de fouille programmée triennale 2005–2007*. DRAC, Bordeaux.

Bordes, F., 1975. Le gisement du Pech de l'Azé IV. Note préliminaire. *Bulletins de la Société Préhistorique Française* 72, 293–308.

Bordes, F., Lafille, J., 1962. Paléontologie humaine: découverte d'un squelette d'enfant mousterien dans le gisement du Roc de Marsal, commune de Campagne du Bugue (Dordogne). *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences*. Paris 254, 714–715 pp.

Bøtter-Jensen, L., Bulur, E., Duller, G.A.T., Murray, A.S., 2000. Advances in luminescence instrument systems. *Radiation Measurements* 32, 523–528.

Bøtter-Jensen, L., Andersen, C.E., Duller, G.A.T., Murray, A.S., 2003. Developments in radiation, stimulation and observation facilities in luminescence measurements. *Radiation Measurements* 37, 535–541.

Bowman, S.E.G., Sieveking, G. de G., 1983. Thermoluminescence dating of burnt flint from Combe-Grenal. *PACT* 9, 253–268.

Brennan, B.J., Lyons, R.G., Phillips, S.W., 1991. Attenuation of alpha particle track dose for spherical grains. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements* 18, 249–253.

Couchoud, Isabelle, 2003. Processus géologiques de formation du site mousterien du Roc de Marsal (Dordogne, France). *PALEO* 15, 51–68.

Castel, J.-Ch., Soulier, M.-C., Hodgkins, J., 2007. Paléontologie animale. In: Sandgathe, D., Turq, A., Dibble, H., McPherron, S., Goldberg, P. (Eds.), *Roc de Marsal (Campagne-de-Bugue, Dordogne): Rapport de fouille programmée triennale 2005–2007*. DRAC, Bordeaux.

Castel, J.-Ch., Dibble, H.L., in prep. What the Quina-mousterians did at Roc-de-Marsal (Campagne-du-Bugue, Dordogne, France), a zooarchaeological perspective.

Chase, P.G., 1986. Relationships between Mousterian lithic and faunal assemblages at Combe Grenal. *Current Anthropology* 27 (1), 69–71.

Delagnes, A., Rendu, W., 2011. Shifts in Neandertal mobility, technology and subsistence strategies in western France. *Journal of Archaeological Science* 38 (8), 1771–1783.

Delpech, F., 1996. L'environnement animal des Moustériens Quina du Périgord. *Paleo* 8, 31–46.

Dibble, H.L., McPherron, S.P., 2006. The missing Mousterian. *Current Anthropology* 47, 777–803.

Discamps, E., Jaubert, J., Bachelier, F., 2011. Human choices and environmental constraints: deciphering the variability of large game procurement from Mousterian to Aurignacian times (MIS 5–3) in southwestern France. *Quaternary Science Reviews*. doi:10.1016/j.quascirev.2011.06.009.

Duller, G.A.T., Bøtter-Jensen, L., Murray, A.S., Truscott, A.J., 1999. Single grain laser luminescence (SGLL) measurements using a novel automated reader. *Nuclear Instruments and Methods B* 155, 506–514.

Falguères, 2001. Datation radiométriques. In: Jaubert, J. (Ed.), *Un site mousterien de type Quina dans la vallée du Célé, Pailhès à Espagnac-Sainte-Eulalie (Lot)*. Gallia Préhistoire, 43, pp. 1–99.

Fletcher, W.J., Sánchez-Gofiñi, M.F., Allen, J.R.M., Cheddadi, R., Combourieu Nebout, N., Huntley, B., Lawson, I., Londeix, L., Magri, D., Margari, V., Müller, U.C., Naughton, F., Novenko, E., Roucoux, K., Tzedakis, P.C., 2010. Millennial-scale variability during the last glacial in vegetation records from Europe. *Quaternary Science Reviews* 29, 2839–2864.

Galbraith, R.F., Roberts, R.G., Laslett, G.M., Yoshida, H., Olley, J.M., 1999. Optical dating of the single and multiple grains of quartz from Jinnium Rock Shelter, northern Australia: part I, experimental design and statistical models. *Archaeometry* 41, 339–364.

Golberg, P., 2007. Rapport géologique. In: Sandgathe, D., Turq, A., Dibble, H., McPherron, S., Goldberg, P. (Eds.), *Roc de Marsal (Campagne-de-Bugue, Dordogne): Rapport de fouille programmée triennale 2005–2007*. DRAC, Bordeaux.

Goldberg, P., Dibble, H., Berna, F., Sandgathe, D., McPherron, S., Turq, A., 2012. New evidence on Neandertal use of fire: examples from Roc de Marsal and Pech de l'Azé IV. *Quaternary International* 247, 325–340.

Grayson, D.K., Delpech, F., Rigaud, J.-P., Simek, J.F., 2001. Explaining the development of dietary dominance by a single ungulate taxon at grotte XVI, Dordogne, France. *Journal of Archaeological Science* 28 (2), 115–125.

Grayson, D.K., Delpech, F., 2002. Specialized early Upper Palaeolithic hunters in Southwestern France? *Journal of Archaeological Science* 29 (12), 1439–1449.

Grün, R., Stringer, Ch.B., 1991. Electron spin resonance dating and the evolution of modern humans. *Archaeometry* 33, 153–199.

Grün, R., Mellars, P., Laville, H., 1991. ESR chronology of a 100,000 year archaeological sequence at Pech-de-l'Azé II, France. *Antiquity* 65, 544–551.

Guérin, G., Mercier, N., Adamiec, G., 2011. Dose-rate conversion factors: update. *Ancient TL* 29, 5–8.

Guibert, P., Schvoerer, M., 1991. TL dating: low background gamma spectrometry as a tool for the determination of the annual dose. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements* 18, 231–238.

Guibert, P., Bechtel, F., Schvoerer, M., Muller, P., et Balescu, S., 1998. A new method for gamma dose-rate estimation of heterogeneous media in TL dating. *Radiation Measurements* 29, 561–572.

Guibert, P., Lahaye, C., Vieilleveigne, E., 2007. Datations numériques. In: Sandgathe, D., Turq, A., Dibble, H., McPherron, S., Goldberg, P. (Eds.), *Roc de Marsal (Campagne-de-Bugue, Dordogne): Rapport de fouille programmée triennale 2005–2007*. DRAC, Bordeaux.

Guibert, P., Bechtel, F., Bourguignon, L., Brenet, M., Couchoud, I., Delagnes, A., Delpech, F., Detrain, L., Duttine, M., Folgado, M., Jaubert, J., Lahaye, C., Lenoir, M., Maureille, B., Texier, J.-P., Turq, A., Vieilleveigne, E., Villeneuve, G., 2008. Une base de données pour la chronologie du Paléolithique moyen dans le Sud-Ouest de la France. *Mémoire XLVII de la Société Préhistorique Française*, 19–40 pp.

Guibert, P., Lahaye, C., Bechtel, F., 2009. The importance of U-series disequilibrium of sediments in luminescence dating: a case study at the Roc de Marsal Cave (Dordogne, France). *Radiation Measurements* 44, 223–231.

Henrich, J., 2004. Demography and cultural evolution: how adaptive cultural processes can produce maladaptive losses: the Tasmanian case. *American Antiquity* 69 (2), 197–214.

Jacobs, Z., 2010. An OSL chronology for the sedimentary deposits from Pinnacle Point Cave 13B—a punctuated presence. *Journal of Human Evolution* 59, 289–305.

Jacobs, Z., Wintle, A.G., Duller, G.A.T., Roberts, R.G., Wadley, L., 2008. New ages for the post-Howiesons Poort, late and final Middle Stone Age at Sibudu, South Africa. *Journal of Archaeological Science* 35, 1790–1807.

- Jain, M., Murray, A.S., Bøtter-Jensen, L., 2003. Characterisation of blue-light stimulated luminescence components in different quartz samples: implications for dose measurement. *Radiation Measurements* 37, 441–449.
- Jaubert, J., 2010. Les archéoséquences du Paléolithique moyen en Poitou-Charentes. In: Buisson-Cattil, J., Primault, J. (Eds.), *Préhistoire entre Vienne et Charente. Hommes et sociétés du Paléolithique, 25 ans d'archéologie préhistorique en Poitou-Charentes*. Ministère de la Culture et de la Communication. Mémoire XXXVIII. Association des Publications Chauvinoises, pp. 51–55.
- Laquay, G., 1981. Recherches sur les faunes du Würm I en Périgord. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux 1, 429 p.
- Løvborg, L., Bøtter-Jensen, L., Kirkegaard, P., Christiansen, E.M., 1979. Monitoring of soil natural radioactivity with portable gamma-ray spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods* 167, 341–348.
- Mejdahl, V., 1979. Thermoluminescence dating: beta-dose attenuation in quartz grains. *Archaeometry* 21, 61–72.
- Mercier, N., Valladas, H., Joron, J.-L., Reyss, J.-L., Lévêque, F., Vandermeersch, B., 1991. Thermoluminescence dating of the late Neanderthal remains from Saint-Césaire (France). *Nature* 351, 737–739.
- Mercier, N., Valladas, H., 1995a. Flint thermoluminescence dates from the CFR Laboratory at Gif: contributions to the study of the chronology of the Middle Palaeolithic. *Quaternary Science Reviews (Quaternary Geochronology)* 14, 351–364.
- Mercier, N., Valladas, H., Valladas, G., Reyss, J.-L., Jelinek, A., Meignen, L., Joron, J.-L., 1995b. TL dates of burnt flints from Jelinek's excavations at Tabun and their implications. *Journal of Archaeological Science* 22, 495–509.
- Mercier, N., Valladas, H., 2003. Reassessment of TL age-estimates of burnt flints from the Palaeolithic site of Tabun Cave, Israel. *Journal of Human Evolution* 45, 401–409.
- Mercier, N., Valladas, H., Froget, L., Joron, J.-L., Reyss, J.-L., Balescu, S., Escutenaire, C., Kozłowski, J., Sitlivy, V., Sobczyk, K., Zieba, A., 2003. Luminescence dates for the palaeolithic site of Piekary II a (Poland): comparison between TL of burnt flints and OSL of a loess-like deposit. *Quaternary Geochronology* 22, 1245–1249.
- Mercier, N., Valladas, H., Froget, L., Joron, J.-L., Reyss, J.-L., Weiner, S., Goldberg, P., Meignen, L., Bar-Yosef, O., Belfer-Cohen, A., Chech, M., Kuhn, S.L., Stiner, M.C., Tillier, A.-M., Arensburg, B., Vandermeersch, B., 2007a. Hayonim Cave: a TL-based chronology for this Levantine Mousterian sequence. *Journal of Archaeological Science* 34, 1064–1077.
- Mercier, N., Wengler, L., Valladas, H., Joron, J.-L., Froget, L., Reyss, J.-L., 2007b. The Rhafas Cave (Morocco): chronology of the mousterian and atherian archaeological occupations and their implications for Quaternary geochronology based on luminescence (TL/OSL) age determinations. *Quaternary Geochronology* 2, 309–313.
- Murray, A.S., Wintle, A.G., 2000. Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol. *Radiation Measurements* 32, 57–73.
- Murray, A.S., Wintle, A.G., 2003. The single aliquot regenerative dose protocol: potential for improvements in reliability. *Radiation Measurements* 37, 377–381.
- Prescott, J.R., Hutton, J.T., 1988. Cosmic ray and gamma ray dosimetry for TL and ESR. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements* 14, 223–227.
- Richerson, P., Boyd, R., Bettinger, R., 2009. Cultural innovations and demographic change. *Human Biology* 81 (2–3), 211–235.
- Rufer, D., Preusser, F., 2009. Potential of autoradiography to detect spatially resolved radiation patterns in the context of trapped charge dating. *Geochronometria* 34, 1–13.
- Sanchez Gofii, M.F., Landais, A., Fletcher, W.J., Naughton, F., Desprat, S., Duprat, J., 2008. Contrasting impacts of Dansgaard–Oeschger events over a western European latitudinal transect modulated by orbital parameters. *Quaternary Science Reviews* 27 (11–12), 1136–1151.
- Sandgathe, D., Turq, A., Dibble, H., McPherron, S., Goldberg, P., 2007. Roc de Marsal (Campagne-de-Bugue, Dordogne): Rapport de fouille programmée triennale 2005–2007. DRAC, Bordeaux.
- Sandgathe, D., Dibble, H., Goldberg, P., McPherron, S., 2011a. The Roc de Marsal Neandertal child: a reassessment of its status as a deliberate burial. *Journal of Human Evolution* 61 (3), 243–253.
- Sandgathe, D.M., Dibble, H.L., Goldberg, P., McPherron, S.P., Turq, A., Niven, L., Hodgkins, J., 2011b. On the role of fire in Neandertal adaptations in Western Europe: evidence from Pech de l'Azé IV and Roc de Marsal, France. *PaleoAnthropology*, 216–242.
- Selo, M., Valladas, H., Mercier, N., Joron, J.-L., Bassinot, F., Parson, A., Nouet, J., 2009. Investigations on uranium distributions in flints. *Radiation Measurements* 44, 615–619.
- Soulier, M.-C., 2007. Etude archéozoologique du carré M16 de la couche II du gisement moustérien du Roc de Marsal (Dordogne). Master 1 thesis, Université Toulouse II Le Mirail.
- Stiner, M.C., Kuhn, S.L., 2006. Changes in the connectedness and resilience of Paleolithic societies in Mediterranean ecosystems. *Human Ecology* 34 (5), 693–712.
- Thomsen, K.J., Murray, A.S., Jain, M., The dose dependency of the over-dispersion of quartz OSL single grain dose distributions. *Radiation Measurements*, in press.
- Tribolo, C., Mercier, N., Valladas, H., 2001. Alpha sensitivity determination in quartzite using an OSL single aliquot procedure. *Ancient TL* 19, 47–50.
- Tribolo, C., Mercier, N., Valladas, H., Joron, J.L., Guibert, P., Lefrais, Y., Selo, M., Texier, P.-J., Rigaud, J.-Ph., Porraz, G., Poggenpoel, C., Parkington, J., Texier, J.-P., Lenoble, A., 2009. Thermoluminescence dating of a Stillbay–Howiesons Poort sequence at Diepkloof Rock Shelter (Western Cape, South Africa). *Journal of Archaeological Science* 36, 730–739.
- Tribolo, C., Mercier, N., Rasse, M., Soriano, S., Huysecom, E., 2010. Kobo 1 and L'Abri aux Vaches (Mali, West Africa): two case studies for the optical dating of bioturbated sediments. *Quaternary Geochronology* 5, 317–323.
- Turq, A., 1989. Le squelette de l'enfant néandertalien du Roc de Marsal: les données de fouilles. *Paléo* 1, 47–54.
- Turq, A., Dibble, H.L., Faivre, J.-P., Goldberg, P., McPherron, S.P., Sandgathe, D., 2008. Le Moustérien du Périgord Noir: quoi de neuf ? In: Jaubert, J., Bordes, J.-G., Ortega, I. (Eds.), *Les sociétés du Paléolithique dans un Grand Sud-Ouest de la France: nouveaux gisements, nouveaux résultats, nouvelles méthodes* Mémoire XLVII de la Société Préhistorique Française, Paris.
- Valladas, H., 1985. Some TL properties of burnt prehistoric flints. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements* 10, 785–788.
- Valladas, H., Mercier, N., Falguères, Ch., Bahain, J.-J., 1999. Contribution des méthodes nucléaires à la chronologie des cultures paléolithiques entre 300 000 et 35 000 ans BP. *Gallia Préhistoire* 41, 153–166.
- Vieilleuvigne, E., Guibert, P., 2007. Datation par thermoluminescence d'un silex du Paléolithique moyen des Pradelles. Rapport de recherche.
- Vogel, J.C., Waterbolk, H.T., 1967. Groningen radiocarbon dates VII. *Radiocarbon* 9, 107–155.
- Wintle, A.G., Murray, A.S., 2006. A review of quartz optically stimulated luminescence characteristics and their relevance in single-aliquot regeneration dating protocols. *Radiation Measurements* 41, 369–391.

Bilan et perspectives

Les méthodes de datation par luminescence sont devenues, au cours des dernières décennies, incontournables pour l'étude du Quaternaire. La portée chronologique de ces méthodes – de l'actuel à au moins quelques centaines de milliers d'années, et en expansion constante - ainsi que l'abondance des matériaux pouvant servir de chronomètres en ont fait des méthodes de choix qui complètent avantageusement la méthode du radiocarbone. L'application de la thermoluminescence sur les roches chauffées, et plus encore, de la luminescence optique sur des minéraux cristallins ubiquistes tels que les quartz et les feldspaths, ont en effet permis de réaliser des progrès considérables dans l'étude des processus dynamiques à la surface de la Terre, mais aussi des populations du passé. A une époque où les sociétés humaines sont de plus en plus préoccupées par les interactions de l'Homme avec son milieu et le climat, les études sur le passé incluent, presque systématiquement, la reconstitution des conditions environnementales ayant coïncidé avec les vestiges d'occupations humaines livrées par les fouilles archéologiques. En ce qui concerne le Pléistocène supérieur, les occupations humaines - celles des Néandertaliens, puis de l'Homme moderne - sont largement documentées en Europe occidentale. Qu'il s'agisse de grottes, d'abris, de sites de plein air, les sociétés du passé sont caractérisées par un outillage lithique diversifié, témoin d'évolutions techniques, plus rarement par des vestiges osseux humains ; associées à ces vestiges anthropiques, la présence quasi-systématique, quand les conditions le permettent, d'ossements animaux présentant parfois des traces de découpes, voire des marques d'utilisation comme outillage, atteste de l'alimentation de nos lointains ancêtres, directs et indirects. Ces vestiges d'origine animale sont un premier marqueur paléo-environnemental, au même titre que les végétaux étudiés en palynologie ou anthracologie, les phytolites, etc. Les sédiments contenant ces vestiges sont également une source d'informations précieuses : outre la compréhension de la formation des sites archéologiques, ils permettent également parfois d'obtenir des informations d'ordre climatique ; ainsi, par exemple, les périodes de gel impriment leur marque sur les séquences stratigraphiques.

Ces informations locales fournissent un ensemble de données sur l'environnement des sociétés humaines du passé. En parallèle, l'étude des variations climatiques à l'échelle planétaire a également fait d'énormes progrès ces dernières années. Les glaces du Groenland, mais aussi de l'Antarctique, se sont révélées être de précieuses archives, enregistrant, entre autres, les variations de la quantité de l'isotope ^{18}O de l'oxygène, un excellent indicateur des températures du passé. Ces variations ont permis de découper les dernières centaines de milliers d'années en Stades Isotopiques Marins, qui forment une succession de phases froides et tempérées. En termes de chronologie, les trois derniers

stades, en plus de l'interglaciaire actuel, sont parfaitement calés dans le temps grâce au radiocarbone - ce qui nous fait remonter jusqu'à 60 milliers d'années. Pour les périodes antérieures, les spécialistes travaillent sur des modèles d'accumulation des glaces permettant de conjecturer l'ancienneté des différentes phases climatiques observées lors de l'étude des carottes de glace. Les spéléothèmes, qui peuvent être datés par uranium/thorium, mais aussi les éruptions volcaniques, grâce à la datation par potassium/argon ou argon/argon, fournissent également de précieux jalons chronologiques.

D'un côté, les sites archéologiques fournissent des renseignements sur les hommes du passé et l'environnement dans lequel ils évoluaient, avec différents niveaux de détail suivant l'abondance des marqueurs environnementaux associés aux vestiges anthropiques. De l'autre côté, les variations climatiques planétaires sont également connues grâce aux enregistrements dans les glaces arctiques et du Groenland. La tentation est donc grande de vouloir faire correspondre ces deux domaines. Cependant, la découverte d'ossements de rennes ou de chevreuil ne permet pas de déterminer la période d'occupation d'un site - bien que les analyses archéostratigraphiques et biostratigraphiques à l'échelle de régions aient fait d'immenses progrès dernièrement (par exemple Discamps *et al.*, 2011 ; Jaubert *et al.*, 2011 ; Jaubert, sous presse). La corrélation d'une occupation humaine et d'une phase climatique particulière fait donc nécessairement appel aux méthodes de chronologie numérique. Si pour les périodes récentes, le radiocarbone est très majoritairement utilisé, sa portée chronologique est limitée à quelques dizaines de milliers d'années - les courbes de calibration actuelles permettent de remonter à 50 milliers années (INTCAL09). En particulier, dès que l'on s'intéresse au Paléolithique moyen (environ de 300 à 35 milliers d'années dans le passé) et à l'Homme de Neandertal, qui peuplait l'Europe durant cette période, les méthodes de datation par luminescence permettent de caler les événements dans le temps, au même titre par exemple que la Résonance Paramagnétique Electronique.



C'est avec cette volonté de considérer les occupations humaines dans leur contexte environnemental et climatique qu'a été effectuée l'étude géochronologique du Roc de Marsal (Dordogne). Ce site a été attribué au Paléolithique moyen de par l'outillage lithique mis au jour, mais également par le squelette d'enfant néandertalien qu'il a livré. Découvert en 1962 par J. Lafille, le premier fouilleur du site, ce squelette a rapidement fait connaître le gisement : interprété comme une sépulture - bien que certains auteurs jugent les preuves d'un enterrement volontaire insuffisantes (Sandgathe *et al.*, sous presse) - il s'agit d'un des arguments en faveur de l'existence d'une pensée symbolique non exclusive à l'Homme moderne. Quoiqu'il en soit, ce site présente nombre de faits archéologiques intéressants : la



Figure 14 : vue de l'entrée du Roc de Marsal.

richesse des dépôts sédimentaires en éléments lithiques, osseux ainsi qu'en vestiges d'aires de combustions trouvées dans un état de conservation remarquable en font un site (Fig. 14) important dans l'étude du Moustérien en Aquitaine. En particulier, ce site a livré une importante série d'outils de type Quina, identifiés par la présence de retouches scalariformes invasives sur des racloirs massifs, souvent à dos naturel.

La fouille en stratigraphie du Roc de Marsal a livré 13 niveaux archéologiques distincts, parmi lesquels trois techno-complexes ont été identifiés : en partant de la base vers le sommet de la séquence, on trouve dans les niveaux 9 à 7 une industrie à denticulés (ou à pseudo-denticulés, comme cela a été suggéré par Thiébaud, 2003) ; les niveaux 6 et 5 sont caractérisés par un débitage à fort indice Levallois, avec la présence de nombreux éclats asinipodiens ; enfin les niveaux 4 à 2 ont livré des séries d'outillage de type Quina.

Les données paléoenvironnementales sont également très riches au Roc de Marsal, deux phases climatiques ayant été clairement identifiées à la fois par l'étude micromorphologique des sédiments et par l'analyse archéozoologique des ossements animaux. Les niveaux 2 à 4 sont ainsi marqués par l'abondance de lentilles de gel, témoignant de conditions climatiques particulièrement froides ; qui plus est, l'effondrement de la voûte de la grotte, qui semble être survenu durant le Paléolithique moyen puisque les blocs d'effondrement sont recouverts par quelques artefacts moustériens, aurait été causé par l'action du gel sur la roche encaissante (Couchoud, 2003 ; Goldberg in Sandgathe et al.,

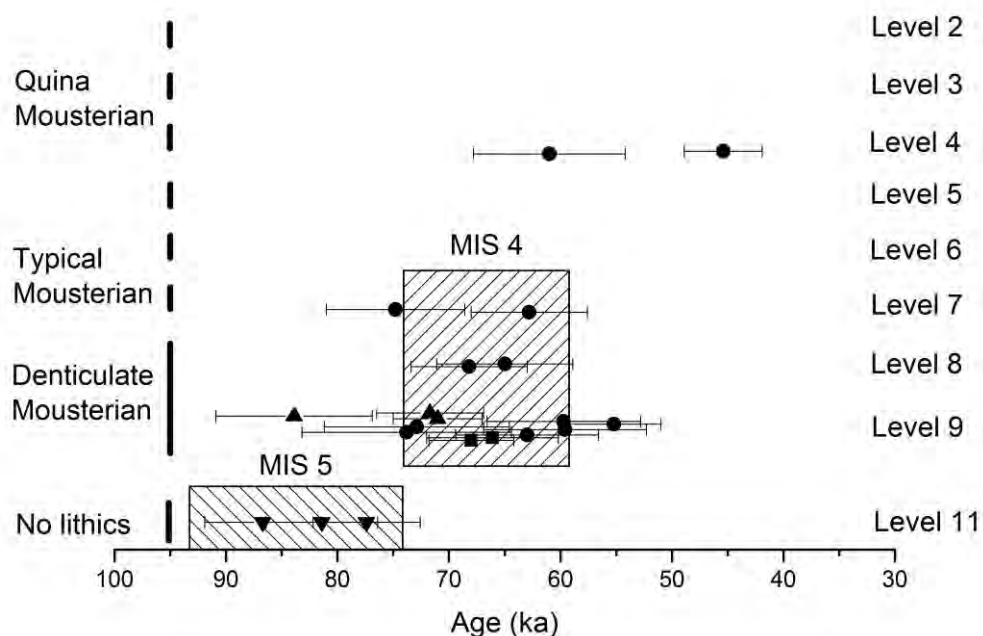


Figure 15 : Résumé interprétatif des différentes phases d'occupation du Roc de Marsal. Les âges présentés ont été obtenus sur des échantillons chauffés : silex datés par thermoluminescence (cercles, carrés : dans ce second cas, une reconstruction de l'environnement radioactif a été effectuée) ; quartz chauffés provenant de zones de combustion datés par luminescence optique (triangles, pointe vers le haut) et par thermoluminescence (pointe vers le bas).

2007). De même, les analyses archéozoologiques indiquent un refroidissement du climat : les restes de rennes sont très largement majoritaires dans la partie supérieure de la séquence (niveaux 2 à 4), alors qu'ils sont associés à des ossements de cerfs et de chevreuils dans les niveaux 5 à 9. Si cette association faunique n'est pas une exception dans la région, elle n'en demeure pas moins difficile à placer sur l'axe du temps.

C'est ici qu'interviennent les méthodes de datation par luminescence : comment associer ces vestiges anthropiques - l'accumulation des vestiges osseux dans la grotte étant principalement due à l'activité humaine - aux données paléoclimatiques ? Afin de répondre à cette question, deux méthodes de datation ont été mises en œuvre durant ce travail : la thermoluminescence a été appliquée à des silex chauffés retrouvés pendant la fouille, et la luminescence optique à des grains de quartz présents dans les dépôts sédimentaires. Seule la combinaison de ces deux méthodes, sur des matériaux de nature, mais aussi de rapport à l'homme différent puisque seuls les objets chauffés sont directement reliés à l'activité humaine, a permis de proposer une chronologie pour les différentes phases d'occupation du site. Un résumé interprétatif est proposé (Fig. 15). Les niveaux d'occupation 5 à 9,

caractérisés par un débitage à fort indice Levallois, ont été placés au milieu du stade isotopique 4. Ce stade isotopique est caractérisé par des températures très froides au Groenland : ces résultats ont donc paru surprenant dans un premier temps puisque, d'une part, ces niveaux n'ont pas révélé de traces d'action du gel sur les sédiments ; d'autre part, la présence importante de restes de cerfs et de chevreuils indique, presque à coup sur, la présence de milieux boisés dans les environs du site. Cette apparente contradiction peut,

semble-t-il, être levée par les études palynologiques menées sur des carottes de sédiments marins (Sanchez-Goñi *et al.*, 2008 ; Fletcher *et al.*, 2010) prélevées dans le Golfe de Gascogne. Caractérisant un grand quart sud-ouest de la France, les pollens étudiés montrent que la couverture végétale de ce territoire, il y a entre 65 et 70 milliers d'années, correspondait à deux milieux d'importances à peu près équivalentes : d'une part, des steppes, de l'autre des forêts, principalement boréales. La plasticité écologique du cerf et du chevreuil rend leur présence possible dans ce deuxième type d'environnement, la contradiction n'est donc plus qu'apparente.

En ce qui concerne les niveaux d'occupation 2 à 4, caractérisés par une industrie moustérienne de type Quina, les données chronologiques sont beaucoup moins riches et les conclusions de notre étude ont une portée limitée. Tout au plus peut-on suggérer une occupation du gisement soit à la fin du stade isotopique 4, soit pendant le stade isotopique 3. Les données paléoclimatiques sont en tout cas très claires : les analyses micromorphologiques et archéozoologiques indiquent des conditions très rudes. Dans la région, cette industrie très caractéristique et toujours associée, en Périgord, à des restes animaux constitués en quasi-exclusivité de renne, a été datée dans le stade isotopique 3. Certains auteurs (voir Discamps *et al.*, sous presse) ont formulé l'hypothèse d'une association avec l'événement Heinrich 6, daté à environ 60 mille ans dans le passé. Ces deux hypothèses sont compatibles avec les données chronologiques obtenues, mais nous n'avons pas à l'heure actuelle les moyens de prouver, ni de falsifier, l'une ou l'autre de ces hypothèses.



En tout état de cause, les matériaux étudiés par luminescence ont mis en lumière un certain nombre de problèmes physiques spécifiques à l'histoire de ces minéraux et à leur nature. Ces problèmes ont été les éléments moteurs des recherches méthodologiques effectués durant cette thèse. Le logiciel GEANT4, permettant de simuler des interactions particules-matière, a largement été utilisé pour tenter de définir des solutions aux différents

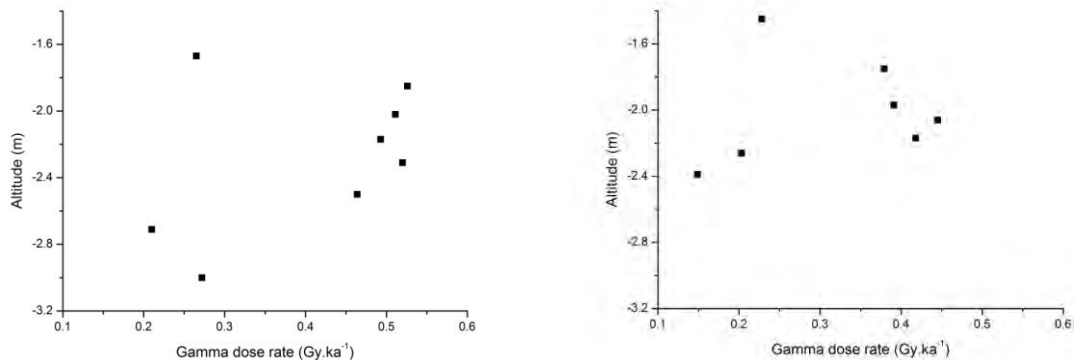


Figure 16 : Débits de dose γ mesurés dans la stratigraphie du Roc de Marsal. Les variations sont très marquées aux interfaces entre le substratum calcaire et les sédiments (base de la séquence), et entre les blocs d'effondrement et les sédiments (haut de la séquence).

problèmes dosimétriques rencontrés, tout en palliant la difficulté à effectuer des études expérimentales systématiques.

En premier lieu, les artefacts - dans cette catégorie nous considérons les silex et sédiments chauffés, provenant des zones de combustion - sont, par essence, de localisation inconnue avant les fouilles. Lors de leur découverte, la moitié supérieure de leur environnement d'enfouissement est manquante : il est alors impossible de mesurer les débits de dose gamma qu'ils ont reçu durant leur enfouissement. Au Roc de Marsal, ce problème s'est avéré d'autant plus gênant que le substratum est calcaire : le calcaire étant généralement très pauvre en radioéléments, en tout cas comparé aux sédiments typiquement rencontrés, il en résulte de fortes hétérogénéités de débits de dose gamma (Fig. 16). C'est pourquoi une partie de cette thèse a eu pour objectif d'améliorer les méthodes de spectrométrie gamma *in situ*.

Deux solutions ont été proposées : la première consiste en une amélioration de l'exploitation des spectres enregistrés à l'aide d'un spectromètre de terrain inséré dans les sédiments. Une première phase, fondée sur des simulations numériques - ou expériences virtuelles - a permis de rechercher et de proposer des techniques à la fois plus rapides, plus précises que les techniques utilisées jusqu'à présent. Une étude systématique de l'influence des différents paramètres caractérisant les sédiments, à savoir leur composition chimique, leurs teneurs en radioéléments, leur humidité, les déséquilibres éventuels des séries de l'uranium, a ainsi abouti à la définition de deux techniques dites « du seuil » : la technique du seuil en nombre de coups, et la technique du seuil en énergie.

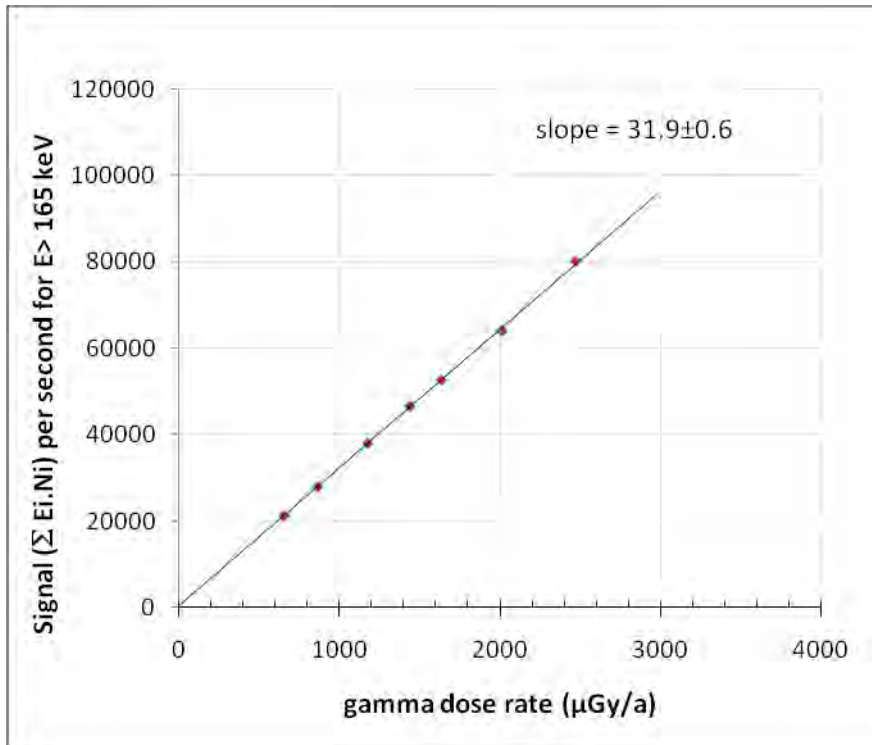


Figure 17 : Courbe d'étalonnage du spectromètre, à cellule en LaBr₃, du CRPAA. Cette courbe correspond au protocole dit de seuil en énergie, mis au point à l'aide de simulations numériques effectuées avec GEANT4.

Les simulations numériques ne pouvant se substituer aux données expérimentales, l'étalonnage d'un spectromètre de terrain a été entrepris. Les résultats très concluants de cette étude (Fig. 17) ont conduit l'équipe de datation du CRPAA à adopter ces techniques de spectrométrie gamma *in situ* : il s'agit à l'heure actuelle de la technique la plus rapide et la plus précise de mesure des débits de dose gamma dont nous disposons. Cependant, ces techniques souffrent de deux inconvénients : tout d'abord, si elles permettent de multiplier les points de mesure *in situ*, et donc de mieux caractériser les milieux étudiés, elles ne permettent pas de remédier à l'ignorance *a priori* de la localisation des artefacts que l'on peut dater par les méthodes de datation par luminescence ; de plus, ces mesures nécessitent l'insertion du spectromètre utilisé dans les sédiments d'intérêt, ce qui en fait une méthode invasive et de ce fait, potentiellement destructrice de vestiges archéologiques.

Une approche alternative a donc été proposée : il s'agit d'effectuer des mesures en plaçant le spectromètre à la surface des sédiments durant la fouille, en multipliant les points de mesures. Le résultat est alors une cartographie des débits de dose gamma des sédiments fouillés, si bien que lorsqu'un artefact est mis au jour, il est possible de déterminer *a posteriori* le débit de dose γ qu'il a reçu pendant son enfouissement. Cette méthode de

cartographie a été définie à l'aide de simulations numériques effectuées au moyen de GEANT4, ce qui a notamment permis de mettre au point un protocole pour s'affranchir des signaux parasites inhérents aux mesures de surface. Malheureusement, la phase de validation expérimentale de ce protocole n'a pu être mise en œuvre au cours de la thèse, faute de temps. Il serait ainsi intéressant de tester cette méthode de cartographie en l'appliquant à l'étude de sites archéologiques présentant des profils dosimétriques complexes.

En ce qui concerne les datations par luminescence optique des dépôts sédimentaires du Roc de Marsal, la situation est très différente d'un point de vue géochronologique : en effet, la dosimétrie gamma n'est pas dans ce cas problématique puisqu'on peut choisir le lieu des prélèvements et effectuer les mesures au même endroit. En revanche, l'histoire de ces objets est plus compliquée et malgré le développement des techniques de mesure de luminescence sur grains uniques, deux problèmes sont généralement cités comme pouvant affecter les âges déterminés : la remise à zéro du signal de luminescence, avant l'enfouissement des sédiments, est due à l'exposition à la lumière et celle-ci peut être insuffisante. Dans le cas du Roc de Marsal, cette question est d'autant plus gênante qu'une partie du quartz sédimentaire résulte de l'altération *in situ* des blocs de calcaire de la roche encaissante : il est dans ce cas fort possible que certains de ces derniers n'aient ainsi pas été éclairés avant leur enfouissement.

Le second problème est d'ordre microdosimétrique et met en jeu les interactions particules-matière à l'échelle des grains et pores des sédiments. En effet, les concepts utilisés en dosimétrie reposent largement sur l'hypothèse de matrice infinie, selon laquelle les grains de quartz datés sont entourés par un milieu homogène, infini. Au cours de la réflexion menée à ce sujet, il nous est apparu que les concepts développés dans le cadre de cette approximation, si ils étaient certainement valables pour étudier les inclusions de quartz dans les céramiques - l'objet d'étude en datation par luminescence lors de la naissance de ces concepts - ne le sont plus systématiquement dès lors que l'on travaille dans des milieux sédimentaires variés tels que des loess, des argiles, des sables, etc. Une partie de cette thèse a donc été consacrée à la définition d'un nouvel ensemble de facteurs affectant les débits de dose en milieu sédimentaire : il s'agit des facteurs de géométrie.

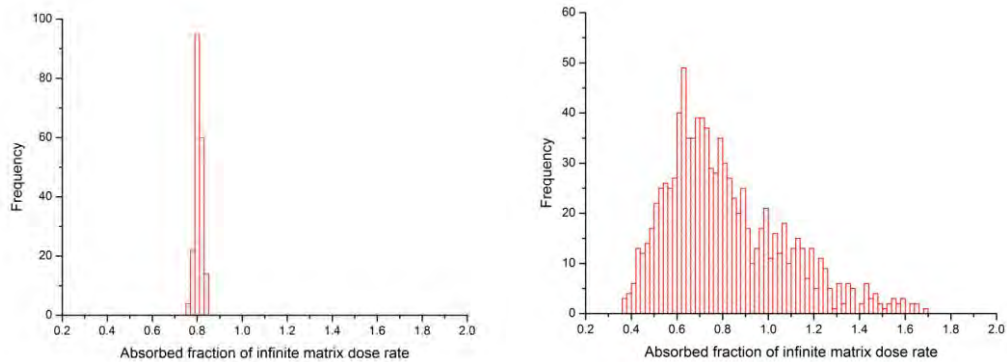


Figure 18 : Débits de dose β mono-grain, dus au potassium, simulés pour deux sédiments différents : une poterie, dans laquelle les grains de quartz sont entourés par une matrice homogène, infinie contenant le potassium (à gauche) ; une dune de sable (à droite), dans laquelle tout le potassium est localisé dans des feldspaths potassiques (points chauds). Le concept de matrice infinie s'applique bien au cas poterie puisque tous les grains reçoivent la même dose, mais n'est pas adapté au cas de grains de quartz extraits d'une dune.

Ces facteurs ont d'abord été mis en évidence par l'étude de l'effet de l'humidité sur les débits de dose gamma : une série de simulations numériques a permis de mettre en évidence l'existence de tels effets et surtout, d'identifier l'influence d'un certain nombre de facteurs sur les processus de dépôt d'énergie dans les milieux granulaires. Il est ainsi apparu que l'énergie des particules ionisantes, la dimension des grains, la compacité des assemblages influençaient les débits de dose reçus par les grains de sédiment. La description des différentes tendances observées en étudiant les variations de l'effet de l'humidité sur les débits de dose a permis de comprendre les mécanismes en jeu et ainsi de jeter les fondements d'une étude plus approfondie des problèmes de dosimétrie à l'échelle des grains.

Ainsi, nous avons pu proposer une discussion critique, sur le plan théorique, des concepts utilisés en dosimétrie, de façon quasi-systématique, depuis l'ouvrage de référence d'Aitken (1985). Une mise à jour des facteurs de référence utilisés pour convertir les teneurs en radioéléments en débits de dose, ainsi que des facteurs d'atténuation des débits de dose β a été proposée, suivie d'une discussion sur leur validité : il s'est avéré que l'utilisation de ces facteurs n'est pas toujours justifiée et qu'une meilleure évaluation des débits de dose reçus par une population de grains de quartz est parfois nécessaire pour améliorer la justesse des âges obtenus par les méthodes de datation paléodosimétriques. Une fois les fondements théoriques établis, il restait à proposer des méthodes permettant d'évaluer, voire de mesurer les débits de dose reçus par les grains utilisés comme chronomètres. Une fois de plus, GEANT4 s'est révélé être un substitut possible aux expériences : la caractérisation d'un échantillon a ainsi permis de simuler la radioactivité β dans ce milieu et de quantifier les

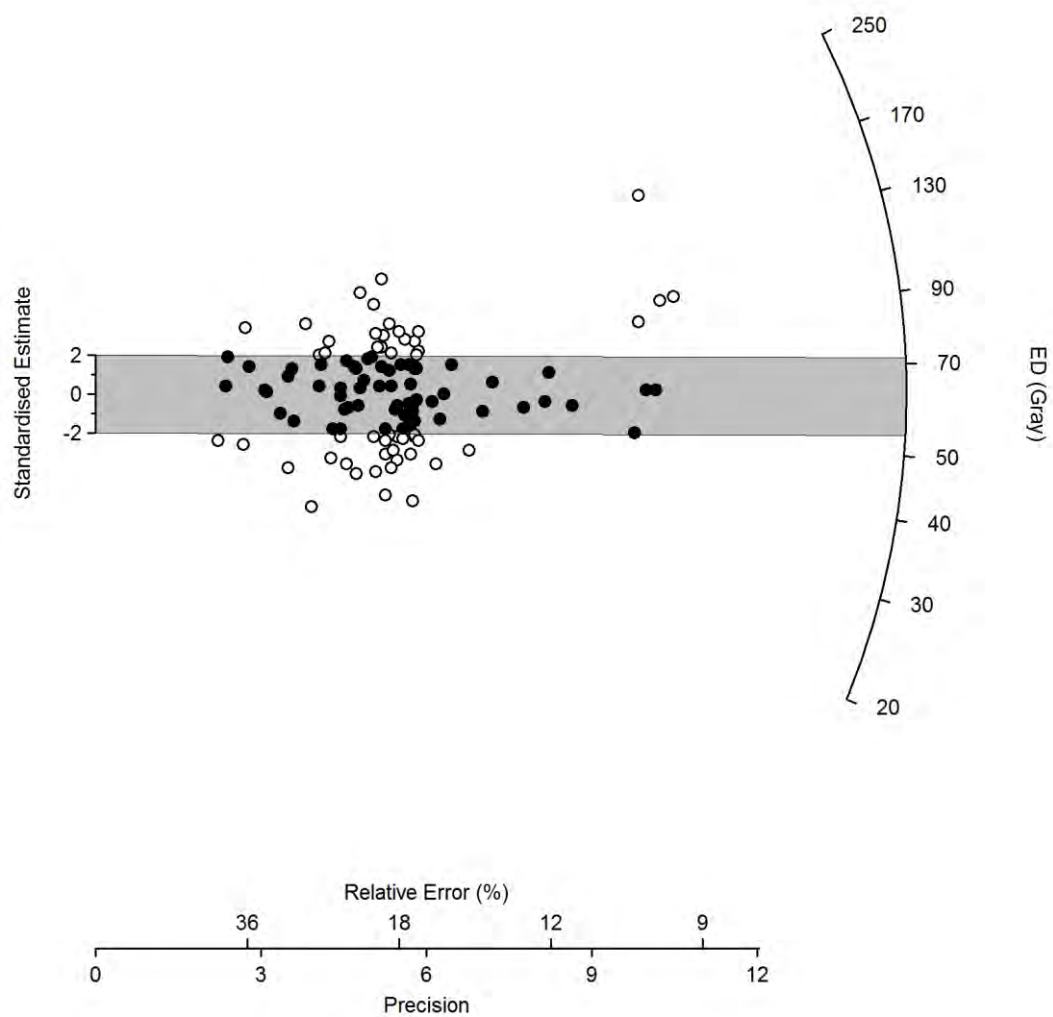


Figure 19 : Diagramme radial des doses équivalentes mono-grain mesurées sur un échantillon de sédiment du Roc de Marsal.

erreurs commises en appliquant les concepts classiques de dosimétrie. Nous avons également démontré la possibilité de travailler sur les distributions des débits de dose sur grains uniques (Fig. 18), ouvrant ainsi de nouvelles perspectives : le champ des datations sur grains unique (Fig. 19) souffre à l'heure actuelle d'un manque d'information criant sur les débits de dose, qui constituent la moitié de l'information nécessaire pour déterminer l'âge d'un dépôt sédimentaire. La comparaison des distributions de doses équivalentes avec celles des débits de dose permettrait ainsi de répondre à plusieurs questions : le premier cas de figure correspond au cas où les deux distributions présentent les mêmes caractéristiques. Dans ce cas, tout phénomène post-dépositionnel ou de blanchiment partiel du signal pourra

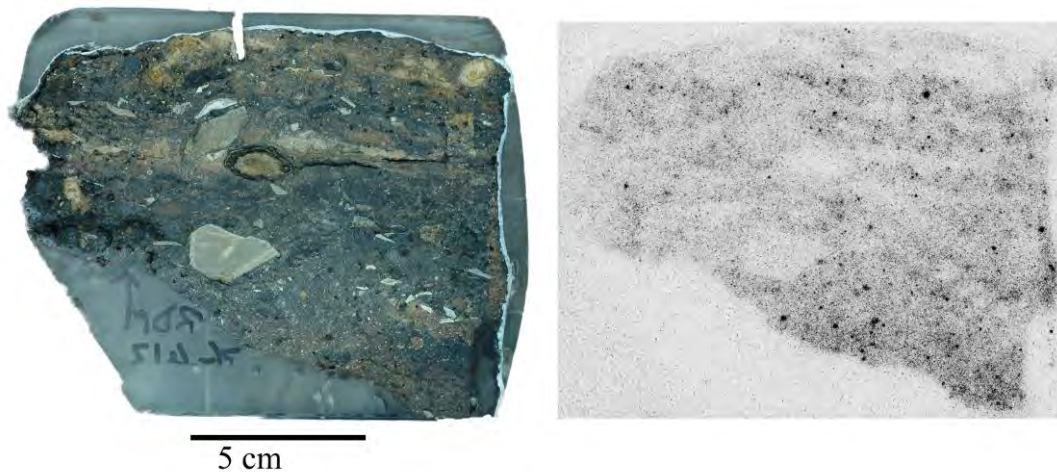


Figure. 20 : Cartographie des radioéléments émetteurs de rayons β sur un échantillon de sédiments du Roc de Marsal. Sont clairement visibles sur l'image de droite : des zones peu radioactives telles que le silex (en bas à gauche), la passée cendreuse correspondant à la zone de combustion n°18 (horizontale, au centre), mais aussi la présence de points chauds (série de points noirs).

être considéré comme négligeable. De manière générale, tout écart entre les deux types de distributions pourra ainsi être quantifié, permettant alors de mettre au point des traitements statistiques plus riches pour exploiter les données géochronologiques. Dans ce but, l'association de données sur la cartographie des radioéléments émetteurs de rayonnement β (Fig. 20) avec les outils de simulation numérique mis au point durant cette thèse, devraient permettre d'aller encore plus loin sur ces questions de microdosimétrie.

Notons cependant que les techniques de luminescence sur grains uniques devront préalablement régler certains problèmes de mesure : à l'heure actuelle, malgré un certain nombre d'études systématiques (par exemple Thomsen *et al.*, 2005), on ne comprend toujours pas ce que l'on a coutume d'appeler une extra-dispersion, observée même dans le cas d'expériences contrôlées en laboratoire. Un certain nombre de pistes doivent

donc encore être explorées dans le domaine des études sur grains uniques, l'une d'elle concernant de possibles effets de densité locale d'ionisation dans les minéraux, en fonction de la nature et de l'énergie des particules ionisantes.



Cette thèse avait un objectif principal, d'ordre méthodologique : une meilleure évaluation des débits de dose dans les milieux sédimentaires complexes, dans le but d'améliorer la précision et la justesse des méthodes de datation par luminescence. On ne saurait que trop souligner l'importance de cette grandeur physique en géochronologie par les méthodes paléodosimétriques : il s'agit de la moitié de l'équation d'âge. Adossée à cet

objectif, se posait la question du potentiel du logiciel de simulation GEANT4, utilisé comme un laboratoire virtuel pour pallier les difficultés à obtenir des données expérimentales. En effet, si le nombre de travaux consacrés à cette grandeur physique sont si rares dans la littérature spécifique de ces trente dernières années, c'est en grande partie dû aux difficultés pratiques rencontrées dans le domaine expérimental. A travers l'étude chronologique, au sens large puisque les données paléoenvironnementales et climatiques ont été intégrées à l'étude des occupations humaines du site moustérien du Roc de Marsal, plusieurs effets dosimétriques sont apparus.

L'utilisation de GEANT4 a ainsi permis de mettre au point différentes méthodes de spectrométrie γ qui ont permis d'améliorer la précision des mesures, tout en permettant une meilleure couverture des sites grâce à des temps d'acquisition des spectres réduits. Une méthode de cartographie de la radioactivité γ des sédiments a été définie : elle mériterait d'être testée expérimentalement, sur des sites présentant des profils dosimétriques complexes tels que ceux rencontrés, par exemple, en milieu karstique.

De plus, grâce à cet outil de simulations numériques, il a été possible de remettre en question les principes classiques de la dosimétrie en milieu sédimentaire. Les facteurs de géométrie, identifiés comme une source importante d'effets dosimétriques, ont été définis ; des outils spécifiques ont été mis au point pour répondre aux problèmes théoriques formulés ; nous considérons donc que les bases sont posées pour de futures études, en particulier dans le domaine des datations par luminescence optique sur grains uniques.

Conclusion

Les méthodes de datation par luminescence sont un outil précieux pour l'étude des sociétés humaines du passé. Elles ont permis, dans le cadre de cette thèse, de fournir des âges pour les occupations humaines du site moustérien du Roc de Marsal (chapitre 9), en Dordogne. La connaissance de l'environnement dans lequel évoluaient ces hommes, grâce à l'apport de la géologie et de l'archéozoologie, permettra sans doute de mieux comprendre les successions, évolutions et contemporanéités de nos prédécesseurs en Europe occidentale. L'application classique des méthodes de datation par luminescence aux vestiges du Roc de Marsal, associée aux disciplines connexes que sont l'archéologie, l'archéozoologie et la géologie constituent un apport aux sciences préhistoriques, témoignant de l'intérêt des approches interdisciplinaires dans ce domaine de recherche.

Cependant des problèmes méthodologiques sont clairement apparus durant cette étude géochronologique, qui apparaissent clairement lorsque l'on considère l'ensemble des données chronologiques obtenues pour le Roc de Marsal : outre un certain nombre d'inversions stratigraphiques, la dispersion des âges obtenus ne nous a pas semblé très satisfaisante. Plus gênant encore, cela signifie qu'une étude chronologique, sans comparaisons entre différentes méthodes appliquées à différents matériaux, aurait pu nous induire en erreur.

En termes méthodologiques, cette étude a révélé deux limites du concept de matrice homogène infinie, qui est au centre de cette thèse. Ce concept permet de convertir les teneurs en radioéléments en débits de dose et un nouveau jeu de facteurs de conversion a été proposé (chapitre 3).

En premier lieu sont apparues les hétérogénéités radiochimiques à l'échelle de la dizaine de centimètres, qui expliquent les importantes variations de débits de dose gamma dans les sédiments du Roc de Marsal. Ce sont ces hétérogénéités qui, mal évaluées, sont responsables de la dispersion des âges obtenus pour les objets chauffés de la base de la séquence stratigraphique. Afin de remédier aux difficultés de mesure des débits de dose gamma, une partie de cette thèse a consisté à améliorer les protocoles de détermination de cette grandeur physique. La technique du seuil, permettant des mesures à la fois plus rapides et plus précises à l'aide de spectromètres de terrain, a ainsi été améliorée (chapitre 4) et mise en pratique au CRPAA (chapitre 5). De plus, une technique de cartographie des radioéléments émetteurs gamma a été proposée (chapitre 6).

En second lieu, les incohérences des âges déterminés par luminescence optique appliquée à des échantillons de sédiments nous ont conduits à travailler sur les hétérogénéités des milieux sédimentaires à l'échelle millimétrique, voire sub-millimétrique. Une première étude a été consacrée à appréhender les phénomènes en jeu, et à développer

des outils permettant de définir les problèmes et d'identifier les variables pertinentes (chapitre 7). Une fois ces outils mis au point, nous avons ainsi pu remettre en question l'utilisation du concept de matrice homogène infinie à cette échelle et quantifier les effets dosimétriques correspondant (chapitre 8).

Malheureusement, les trois ans de thèse ne nous ont pas permis de profiter pleinement des réflexions méthodologiques menées en les appliquant à une étude chronologique. Néanmoins, essayons d'esquisser les apports que nous aurions pu en tirer. La technique de cartographie des radioéléments émetteurs gamma permettrait sans doute de réduire la dispersion des âges déterminés pour des objets de localisation inconnue avant les fouilles archéologiques, tels que les silex chauffés ou les sédiments provenant de zones de combustion. En outre, les outils de simulation numérique des débits de dose reçus par des grains de quartz, considérés individuellement, fourniraient de précieuses données pour l'interprétation de données de luminescence sur grains uniques. Ainsi, nous pensons qu'une étude micromorphologique - incluant la cartographie des radioéléments à l'échelle millimétrique telle que présentée dans le chapitre 9 sur les échantillons de sédiments indurés - nous permettrait de résoudre les inversions stratigraphiques observées sur les âges déterminés par OSL au Roc de Marsal.

En tout état de cause, le logiciel de simulation des interactions rayonnement-matière GEANT4 s'est révélé être un outil précieux dans le domaine des recherches sur les débits de dose en milieux sédimentaires. Il a en effet été mis à profit pour la plupart des travaux méthodologiques présentés dans cette thèse (chapitres 4, 6, 7 et 8) et il semble qu'il s'agisse d'un outil complémentaire des développements instrumentaux actuels dans le domaine de la géochronologie par luminescence, tels que les dispositifs de luminescence spatialement résolue et de cartographie des radioéléments dans les sédiments.

Références bibliographiques

- ADAMIEC G., AITKEN M. J., 1998. Dose-rate conversion factors: update. *Ancient TL* **16**, 37-50.
- ADAMIEC G., BAILEY R.M., WANG X.L., WINTLE, A.G., 2008. The mechanism of thermally transferred optically stimulated luminescence in quartz. *Journal of Physics D: Applied Physics* **41**, 135503.
- ADAMIEC G., DULLER G.A.T., ROBERTS H.M., WINTLE A.G., 2010. Improving the TT-OSL SAR protocol through source trap characterisation. *Radiation Measurements* **45**, 768-777.
- AGOSTINELLI S., ET AL.(GEANT4 COLLABORATION), 2003. GEANT4 - a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods A*, **506**, 250-303.
- AITKEN M. J., 1985a. Thermoluminescence dating. Academic Press, London.
- AITKEN M. J., 1985b. Alpha particle effectiveness: numerical relationship between systems. *Ancient TL* **3**, 22-25.
- AITKEN M. J., MOOREY P. R. S., UCKO P. J., 1971. The authenticity of vessels and figurines in the Hacilar style. *Archaeometry* **13**, 89-141.
- AITKEN M.J., BOWMAN S.G.E., 1975. Thermoluminescence dating: assessment of alpha particle contribution. *Archaeometry* **17**, 132-138.
- AITKEN M. J., CLARK P. A., GAFFNEY C. F., 1985. Beta and gamma gradients. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements* **10**, 4-6, 647-653.
- AITKEN M.J., XIE J., 1990. Moisture correction for annual gamma dose, *Ancient TL* **8**, 6-9.
- ALLISON J., ET AL. (GEANT4 COLLABORATION), 2006. GEANT4 developments and applications. *IEEE Transactions on Nuclear Sciences*, **53**, 270-278.
- ALLYSON J. D., SANDERSON D. C. W., 1998. Monte Carlo simulations of environmental airborne gamma-spectrometry. *Journal of Environmental Radioactivity*, **38**, 3, 259-282.
- ALLYSON J. D., SANDERSON D. C. W., 2001. Spectral deconvolution and operational use of stripping ratios in airborne radiometrics. *Journal of Environmental Radioactivity*, **53**, 351-363.
- ANKJAERGAARD C., JAIN M., WALLINGA J., sous presse. Extending the quartz OSL age range using violet (403nm) stimulation, *Radiation Measurements*.
- APOSTOLAKIS J., GIANI S., MAIRE M., NIEMINEN P., PIA M.G., URBAN L., 1999. GEANT4 low energy electromagnetic models for electrons and photons, preprint CERN-OPEN-99-034.
- APOSTOLAKIS J., BAGULYA A., ELLES S., IVANCHENKO V.N., KADRI O., MAIRE M., URBAN L., 2008. The performance of the Geant4 standard EM package for LHC and other applications, *Journal of Physics: Conference Series*, **119**, 032004.
- APOSTOLAKIS J., ASAI M., BOGDANOV A.G., BURKHARDT H., COSMO G., ELLES S., FOLGER G., GRICHINE V.M., GUMPLINGER P., HEIKKINEN A., HRIVNACOVA I., IVANCHENKO V.N., JACQUEMIER J., KOI T.,

KOKOULIN R.P., KOSOV M., KURASHIGE H., McLAREN I., LINK O., MAIRE M., POKORSKI W., SASAKI T., STARKOV N., URBAN L., WRIGHT D.H., 2009. Geometry and physics of the Geant4 toolkit for high and medium energy applications, *Radiation Physics and Chemistry* **78**, 859-873.

AZNAR, M.C., NATHAN, R.P., MURRAY, A.S., BOTTER-JENSEN, L., 2003. Determination of differential dose rates in a mixed beta and gamma field using shielded $Al_2O_3 : C$ results of Monte Carlo modelling. *Radiation Measurements*, **37**, 329-334.

BAILEY R.M., 2001. Towards a general kinetic model for optically and thermally stimulated luminescence of quartz. *Radiation Measurements* **33**, 17-45.

BAILIFF I.K., 1982. Beta-TLD apparatus for small samples. *PACT* **6**, 72-76.

BAILIFF I.K., SLIM H.A., 2008. Development of reference database for gamma dose assessment in retrospective luminescence dosimetry. *Radiation Measurements* **43**, 859-863.

BANERJEE D., DEWANGAN A., 2008. Simulation of the cosmic-ray induced dose-rate within a Martian soil profile. *Radiation Measurements* **43**, 797-801.

BARGHOLZ K., KORSBECH U., 1997. Conversion of Airborne Gamma Ray Spectra to Ground Level Air Kerma Rates. *Radiation Protection Dosimetry* **73**, 1-4, 127-130.

BASSINET C., 2007. Datation par luminescence : recherches méthodologiques et applications au volcanisme dans l'environnement de Laschamp. Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal (Clermont-Ferrand), non publiée.

BEHRENS H., SZYBISZ L., 1976. Shapes of Beta Spectra, Physics Data 6-1. Germany, Zentralstelle für Atomkernenergie-Dokumentation (ZAED).

BELL, W.T., 1979. Attenuation factors for the absorbed radiation dose in quartz grains for thermoluminescence dating. *Ancient TL* **8**, 2-13.

BELL W. T., ZIMMERMAN D. W., 1978. The effect of HF etching on the morphology of quartz inclusions for thermoluminescence dating. *Archaeometry* **20**, 63.

BENKE, R.R., KEARFOOT, K.J., 2001. An improved in situ method for determining depth distributions of gamma-ray emitting radionuclides. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, **463**, 393-412.

BERGER M. J., 1963. Monte Carlo calculation of the penetration and diffusion of fast charged particles. In *Methods in computational Physics Vol. 1*. B. Alder, S. Fernbach and M. Rotenberg (éditeurs). New York, Academic Press.

BERGER, M.J., HUBBELL, J.H., SELTZER, S.M., CHANG, J., COURSEY, J.S., SUKUMAR, R., ZUCKER, D.S., OLSEN, K., 2009. Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients (version 3.1). En ligne : <http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm> . National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.

BLACKWELL B., SCHWARCZ H.P., 1988. Datation des spéléothèmes de la grotte Vaufrey par la famille de l'Uranium. In J-Ph. Rigaud (dir.), La Grotte Vaufrey : paléoenvironnement, chronologie, activités humaines. *Mémoires de la Société Préhistorique Française*, XIX, p. 365-380.

BLACKWELL B., SKINNER A., BLICKSTEIN, J., 2007. Résultats des datations ESR 2006. In SANDGATHE, D., TURQ, A., DIBBLE, H., MCPHERRON, S., GOLDBERG, P., 2007. Roc de Marsal

(Campagne-de-Bugue, Dordogne): Rapport de fouille programmée triennale 2005-2007. DRAC, Bordeaux.

BLAIN S., BAILIFF I. K., GUIBERT P., BOUVIER A., BAYLE M., 2010. An intercomparison study of luminescence dating protocols and techniques applied to medieval brick samples from Normandy (France). *Quaternary Geochronology*, **5**, 311-316.

BORDES, F., 1975. Le gisement du Pech de l'Azé IV. Note préliminaire. *Bulletins de la Société Préhistorique Française* **72**, 293-308.

BORDES, F., LAFILLE, J., 1962. Paléontologie humains: découverte d'un squelette d'enfant moustérien dans le gisement du Roc de Marsal, commune de Campagne du Bugue (Dordogne). *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences*. Paris **254**, 714-715.

BOS A.J.J., WALLINGA J., JOHNS C., ABELLON R.D., BROUWER J.C., SCHAART D.R., MURRAY A.S., 2006. Accurate calibration of a laboratory beta particle dose rate for dating purposes. *Radiation Measurements* **41**, 1020-1025.

BØTTER-JENSEN L., JUNGNER H., POOLTON N.R.J., 1995. A continuous OSL scanning method for analysis of radiation depth-dose profiles in bricks. *Radiation Measurements* **24**, 525-529.

BØTTER-JENSEN L., SOLONGO S., MURRAY A.S., BANERJEE D., JUNGNER H., 2000. Using the OSL single-aliquot regenerative-dose protocol with quartz extracted from building materials in retrospective dosimetry. *Radiation Measurements* **32**, 841-845.

BØTTER-JENSEN, L., ANDERSEN, C.E., DULLER, G.A.T., MURRAY, A.S., 2003. Developments in radiation, stimulation and observation facilities in luminescence measurements. *Radiation Measurements* **37**, 535-541.

BOWMAN S.G.E., 1976. *Thermoluminescent dating: the evaluation of the radiation dosage*. Thèse de doctorat, University of Oxford, non publiée.

BOWMAN S.E.G., SIEVEKING G. DE G., 1983. Thermoluminescence dating of burnt flint from Combe-Grenal. *PACT*, **9**, p. 253-268.

BRENNAN, B. J. 2003. Beta doses to spherical grains. *Radiation Measurements* **37**, 299-303.

BRENNAN, B. J. 2006. Variation of the alpha dose rate to grains in heterogeneous sediments. *Radiation Measurements* **41**, 1026-1031.

BRENNAN, B.J., LYONS, R.G., PHILLIPS, S.W., 1991. Attenuation of alpha particle track dose for spherical grains. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **18**, 249-253.

BRENNAN, B. J., SCHWARCZ H. P., RINK J., 1997. Simulation of the gamma radiation field in lumpy environments. *Radiation Measurements* **27**, 2, 299-305.

BRIESMEISTER, J. F., 2000. MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code Version 4C. Report LA-13709-M. USA, Los Alamos National Laboratory.

BRIESMEISTER, J.F. (Ed.), 2003. MCNP-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5. LA-UR-03-1987, LANL X-5 MONTE CARLO TEAM.

BROWNE E., 2001. Nuclear Data Sheets for A = 215,219,223,227,231. *Nuclear Data Sheets*, **93**, 763-1061.

- BUCHER B., RYBACH L., SCHWARZ G., 2008. Search for long-term radiation trends in the environs of Swiss nuclear power plants. *Journal of Environmental Radioactivity*, **99**, 8, 1311-1318.
- BURBIDGE C. I., DULLER G. A. T., 2003. Combined gamma and beta dosimetry, using Al₂O₃:C, for in situ measurements on a sequence of archaeological deposits. *Radiation Measurements* **37**, 285-291.
- BURKHARDT H., GRICHINE V.M., GUMPLINGER P., IVANCHENKO V.N., KOKOULIN R.P., MAIRE M., URBAN L., 2004. Geant4 standard electromagnetic package for HEP applications, *Nuclear Science Symposium Conference Record, IEEE 3*, 16-22 Oct. 2004, 1907 - 1910.
- BUYLAERT J.-P., ANKJAERGAARD C., MURRAY A. S., NIELSEN A., 2006. A Proposed Laboratory Intercomparison Sample based on a Beach-ridge Sand from Skagen (Denmark), poster, UK-LED Meeting, Liverpool.
- BUYLAERT J.-P., MURRAY A.S., THOMSEN K.J., JAIN M., 2009. Testing the potential of an elevated temperature IRSL signal from K-feldspar. *Radiation Measurements* **44**, 560-565.
- CASTEL, J.-CH., SOULIER M.-C., HODGKINS J., 2007. Paléontologie animale. In Sandgathe, D., Turq, A., Dibble, H., McPherron, S., Goldberg, P., 2007. Roc de Marsal (Campagne-de-Bugue, Dordogne): Rapport de fouille programmée triennale 2005-2007. DRAC, Bordeaux.
- CHASE, P.G., 1986. Relationships between Mousterian lithic and faunal assemblages at Combe Grenal. *Current Anthropology* **27** (1): 69-71.
- CHAVIE S., DEPAOLA G., IVANCHENKO V., LONGO F., NIEMINEN P., PIA M.G., 2001. Geant4 Low Energy Electromagnetic Physics, *Proceedings of Computing in High Energy Physics 2001, Beijing*.
- CHAVIE S., GUATELLI S., IVANCHENKO V., LONGO F., MANTERO A., MASCIALINO B., NIEMINEN P., PANDOLA L., PARLATI S., PERALTA L., PIA M.G., PIERGENTILI M., RODRIGUES P., SALICETI S., TRINDADE A., 2004. Geant4 low energy electromagnetic physics. *IEEE Nuclear Science Symposium 2004 Conference Record, Rome*.
- CHEN S., LIU X., ZHANG C., TANG Q., 2009. The Monte Carlo simulation of the absorbed dose in quartz. *Radiation Measurements*, **44**, 626-628.
- CHOI, J.H., MURRAY, A.S., CHEONG, C.S., HONG, D.W., CHANG, H.W., 2006. Estimation of equivalent dose using quartz isothermal TL and the SAR procedure. *Quaternary Geochronology* **1**, 101-108.
- CIRRONE G.A.P., CUTTONE G., DI ROSA F., PANDOLA L., ROMANO F., ZHANG Q., 2010. Validation of the Geant4 electromagnetic photon cross-sections for elements and compounds. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **618**, 315-322.
- COUCHOUD, I., 2003. Processus géologiques de formation du site moustérien du Roc de Marsal (Dordogne, France), *PALEO* **15**, 51-68.
- CULLEN D.E., PERKINS S.T., SELTZER S.M., 1991. Tables and Graphs of Electron Interaction Cross 10 eV to 100 GeV Derived from the LLNL Evaluated Electron Data Library (EEDL), Z = 1 - 100. *Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-50400*, **31**. Livermore, CA, Lawrence Livermore National Laboratory.

- CULLEN D. E., HUBBELL J. H., KISSEL L., 1997. EPDL97 The evaluated data library, '97 version. *Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-50400*. Livermore, CA, Lawrence Livermore National Laboratory.
- CUNHA P.P., BUYLAERT J.P., MURRAY A.S., ANDRADE C., FREITAS M.C., FATELA F., JMUNHÁ. M., MARTINS A.A., SUGISAKI S., 2010. Optical dating of clastic deposits generated by an extreme marine coastal flood: The 1755 tsunami deposits in the Algarve (Portugal). *Quaternary Geochronology*, **5**, 329-335.
- CUNNINGHAM, A. C., DEVRIES D. J., SCHAART, D. R., sous presse. Experimental simulation of beta-dose heterogeneity in sediment, using artificial radionuclide, *Radiation Measurements*.
- DANIELS F., BOYD C. A., SAUNDER D. F., 1953. Thermoluminescence as a research tool, *Science* **117**, 343-349.
- DAVIDS F., DULLER G.A.T., ROBERTS H.M., 2010. Testing the use of feldspars for optical dating of hurricane overwash deposits. *Quaternary Geochronology*, **5**, 125-130.
- DELPECH, F., 1996. L'environnement animal des Moustériens Quina du Périgord. *Paleo*, **8**, 31-46.
- DETSCHER M.J., LEPPER K., 2009. Optically stimulated luminescence dating properties of Martian sediment analogue materials exposed to a simulated Martian solar spectral environment. *Journal of luminescence*, **129**, 393-400.
- DIBBLE, H.L., MCPHERRON, S.P., 2006. The missing Mousterian. *Current Anthropology* **47**, 777-803.
- DISCAMPS, E., JAUBERT, J., BACHELLERIE, F., 2011. Human choices and environmental constraints: deciphering the variability of large game procurement from Mousterian to Aurignacian times (MIS 5-3) in southwestern France, *Quaternary Science reviews*, sous presse.
- DONEV A., STILLINGER F. H., TORQUATO S., 2005. Neighbor List Collision-Driven Molecular Dynamics Simulation for Nonspherical Particles. I. Algorithmic Details II. Applications to Ellipses and Ellipsoids, *Journal of Computational Physics*, **202**, 737-764 (part I) et 765-793 (part II).
- DULLER, G.A.T., BØTTER-JENSEN, L., MURRAY, A.S., TRUSCOTT, A.J., 1999. Single grain laser luminescence (SGLL) measurements using a novel automated reader. *Nuclear Instruments and Methods B* **155**, 506-514.
- DULLER, G.A.T., BØTTER-JENSEN, L., MURRAY, A.S., 2000. Optical dating of single sand-sized grains of quartz: sources of variability. *Radiation Measurements* **32**, 453-457.
- 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.
- EVANS R.D., 1955. *The Atomic Nucleus*. McGraw-Hill, New York.
- FADDEGON B.A., KAWRAKOW I., KUBYSIN Y., PERL J., SEMPANU J., URBAN L., 2009. Accuracy of EGSnrc, Geant4 and PENELOPE Monte Carlo systems for simulation of electron scatter in external beam radiotherapy. *Physics in Medicine and Biology*, **54**, 6151-6163.

FAÏN, J., ERRAMLI, H., MIALLIER, D., MONTRET, M., SANZELLE, S., 1985. Environmental Gamma Dosimetry using TL dosimeters: efficiency and absorption calculations. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **10**, 639-649 .

FAÏN, J., MIALLIER D., MONTRET, M., PILLEYRE, T., SANZELLE, S., SOUMANA ,S., BECHTEL, F., GUIBERT, P., SCHVOERER, M., VARTANIAN, E., MERCIER, N., VALLADAS ,H., BAHAIN, J.J., FALGUERES, C., TRIPIER, J., JORON, J.L., 1997. Inter-comparaisons dosimétriques dans le cadre de la datation par thermoluminescence et par résonance paramagnétique électronique: validation de milieux naturels témoins de la région de Clermont-Ferrand, Puy-de-Dôme, France. *Revue d'Archéométrie*, **21**, 29-34.

FAÏN, J., SOUMANA, S., MONTRET, M., MIALLIER, D., PILLEYRE, T. & SANZELLE, S. 1999. Luminescence and ESR dating: Beta-dose attenuation for various grain shapes calculated by a Monte-Carlo method. *Quaternary Geochronology* **18**, 231-234.

FALGUERES, 1991. Datation radiométriques. In Jaubert J. (dir.), Un site moustérien de type Quina dans la vallée du Célé, Pailhès à Espagnac-Sainte-Eulalie (Lot). *Gallia Préhistoire*, **43**, 1-99.

FLETCHER, W.J., SÁNCHEZ-GOÑI, M.F., ALLEN, J.R.M., CHEDDADI, R., COMBOURIEU NEBOUT, N., HUNTLEY, B., LAWSON, I., LONDEIX, L., MAGRI, D., MARGARI, V., MÜLLER, U.C., NAUGHTON, F., NOVENKO, E., ROUCOUX, K., TZEDAKIS, P.C., 2010. Millennial-scale variability during the last glacial in vegetation records from Europe. *Quaternary Science Reviews*, **29**, 2839-2864.

GALBRAITH R.F., ROBERTS R.G., LASLETT G.M., YOSHIDA H., OLLEY J.M., 1999. Optical dating of single and multiple grains of quartz from Jinmium rock shelter, northern Australia: Part I, experimental design and statistical models. *Archaeometry* **41**, 339–364.

GOLBERG, P., 2007. Rapport géologique. In SANDGATHE, D., TURQ, A., DIBBLE, H., MCPHERRON, S., GOLDBERG, P., 2007. Roc de Marsal (Campagne-de-Bugue, Dordogne): Rapport de fouille programmée triennale 2005-2007. DRAC, Bordeaux.

GOLDBERG, P., DIBBLE, H., BERNA, F., SANDGATHE, D., MCPHERRON, S., TURQ, A., sous presse. New evidence on Neandertal use of fire: examples from Roc de Marsal and Pech de l'Azé IV. *Quaternary International*.

GRAU MALONDA A., GRAU CARLES A., 2002. Half-life determination of ⁴⁰K by LSC Measurements. *Applied Radiation and Isotopes*, **56**, 153-156.

GRAYSON, D.K., DELPECH, F., RIGAUD, J.-P., SIMEK, J.F., 2001. Explaining the Development of Dietary Dominance by a Single Ungulate Taxon at Grotte XVI, Dordogne, France, *Journal of Archaeological Science*, **28** (2), 115-125.

GRAYSON D.K., DELPECH F., 2002. Specialized Early Upper Palaeolithic Hunters in Southwestern France, *Journal of Archaeological Science*, **29** (12), 1439-1449.

GREILICH S., MURRAY A. S., BØTTER-JENSEN L., 2008. Simulation of electron transport during beta irradiation. *Radiation Measurements*, **43**, 748-751.

GRÜN R., STRINGER CH. B., 1991. Electron spin resonance dating and the evolution of modern humans. *Archaeometry*, **33**, 153-199.

GRÜN R., MELLARS P., LAVILLE H., 1991. ESR chronology of a 100,000 year archaeological sequence at Pech-de-l'Azé II, France. *Antiquity*, **65**, 544-551.

GUIBERT P., SCHVOERER M., 1991. TL dating: Low background gamma spectrometry as a tool for the determination of the annual dose. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part D. Nuclear Tracks and Radiation Measurements* **18**, 231-238.

GUIBERT P., BECHTEL F., SCHVOERER M., MULLER P., BALESU S., 1998. A new method for gamma dose-rate estimation of heterogeneous media in TL dating. *Radiation Measurements* **29**, 561-572.

GUIBERT, P., LAHAYE, C., VIELLEVIGNE, E., 2007. Datations numériques. In SANDGATHE, D., TURQ, A., DIBBLE, H., MCPHERRON, S., GOLDBERG, P., 2007. Roc de Marsal (Campagne-de-Bugue, Dordogne): Rapport de fouille programmée triennale 2005-2007. DRAC, Bordeaux.

GUIBERT, P., BECHTEL, F., BOURGUIGNON, L., BRENET, M., COUCHOUD, I., DELAGNES, A., DELPECH, F., DETRAIN, L., DUTTINE, M., FOLGADO, M., JAUBERT, J., LAHAYE, C., LENOIR, M., MAUREILLE, B., TEXIER, J.-P., TURQ, A., VIELLEVIGNE, E., VILLENEUVE, G., 2008. Une base de données pour la chronologie du Paléolithique moyen dans le Sud-Ouest de la France. *Mémoire XLVII de la Société Préhistorique Française*, 19-40.

GUIBERT P., LAHAYE C., BECHTEL F., 2009a. The importance of U-series disequilibrium of sediments in luminescence dating: A case study at the Roc de Marsal Cave (Dordogne, France). *Radiation Measurements* **44**, 223-231.

GUIBERT P., BAILIFF I.K., BLAIN S., GUELI A.M., MARTINI M., SIBILIA E., STELLA G., TROJA S.O., 2009b. Luminescence dating of architectural ceramics from an early medieval abbey: The St Philbert Intercomparison (Loire Atlantique, France). *Radiation Measurements* **44**, 488-493.

GUIMARÃES, C.C., MORALLES, MAURÍCIO, OKUNO, EMICO, 2008. Performance of GEANT4 in dosimetry applications: calculation of X-ray spectra and kerma-to-dose equivalent conversion coefficients. *Radiation Measurements* **43**, 1525-1531.

HENRICH, J., 2004. Demography and cultural evolution: how adaptive cultural processes can produce maladaptive losses: the Tasmanian case, *American Antiquity*, **69** (2), 197-214.

HERNANDEZ, M., MERCIER, N., MAUZ, B., SHEN, Z., sous presse. TT-OSL: an attempt to overcome SAR problems. *Radiation Measurements*.

HUNTLEY D.J., LAMOTHE M., 2001. Ubiquity of anomalous fading in K-feldspars and the measurement and correction for it in optical dating. *Canadian Journal of Earth Sciences* **38**, 1093-1106.

ICRU, 1994. *In situ* Gamma-ray Spectrometry in the environment. Report by the International Committee for Radiological Units, No. 53.

IKEYA, M., 1975. Dating a Stalactite by Electron-Paramagnetic Resonance. *Nature* **255**, 48-50.

JACOBS Z., 2010. An OSL chronology for the sedimentary deposits from Pinnacle Point Cave 13B—A punctuated presence. *Journal of Human Evolution* **59**, 289-305.

JACOBS, Z., DULLER, G.A.T., WINTLE, A.G., 2006. Interpretation of single grain De distributions and calculation of De. *Radiation Measurements* **41**, 264-277.

JACOBS Z., WINTLE A. G., DULLER G. A.T., ROBERTS R. G., WADLEY L., 2008a. New ages for the post-Howiesons Poort, late and final Middle Stone Age at Sibudu, South Africa. *Journal of Archaeological Science* **35**, 1790-1807.

JACOBS Z., WINTLE A.G., ROBERTS R.G., DULLER G.A.T., 2008b. Equivalent dose distributions from single grains of quartz at Sibudu, South Africa: context, causes and consequences for optical dating of archaeological deposits. *Journal of Archaeological Science* **35**, 1808-1820.

JAIN M., ANDERSEN C.E., BØTTER-JENSEN L., MURRAY A.S., BRIDGES J.C. AND HAACK H., 2006. Luminescence dating on Mars: OSL characteristics of Martian analogue materials and GCR dosimetry. *Radiation Measurements*, **41**, 755-761.

JAIN M., DULLER G.A.T., WINTLE A.G., 2007a. Dose response, thermal stability and optical bleaching of the 310 °C isothermal TL signal in quartz. *Radiation Measurements* **42**, 1285-1293.

JAIN M., ANDERSEN C.E., HAJDAS W., EDMUND J.M., BØTTER-JENSEN L., 2007b. OSL response to proton irradiation in some natural dosimeters: implications for Martian sediment dating. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **580**, 652-655.

JAIN M., 2009. Extending the dose range: Probing deep traps in quartz with 3.06 eV photons. *Radiation Measurements* **44**, 445-452.

JAIN M., ANKJÆRGAARD C., 2011. Towards a non-fading signal in feldspar: Insight into charge transport and tunnelling from time-resolved optically stimulated luminescence. *Radiation Measurements* **46**, 292-309.

JAUBERT J., BORDES J.-G., DISCAMPS E., GRAVINA B., 2011. A New Look at the End of the Middle Palaeolithic Sequence in Southwestern France, in Actes du colloque "International Symposium Characteristic features of the Middle to Upper Paleolithic transition in Eurasia: development of culture and evolution of Homo species", Denisova, 4-10 juillet 2011.

JAUBERT, J., sous presse. Les archéoséquences du Paléolithique moyen du Sud-Ouest de la France: quel bilan un quart de siècle après François Bordes ? In: Jaubert, J., Delpech, F. (eds), Actes du colloque international François Bordes, CTHS.

KALCHGRUBER R., FUCHS M., MURRAY A.S., WAGNER G.A., 2003. Evaluating dose-rate distributions in natural sediments using Al₂O₃:C grains. *Radiation Measurements* **37**, 293-297.

KALCHGRUBER R., WAGNER G.A., 2006. Separate assessment of natural beta and gamma dose-rates with TL from α -Al₂O₃:C single-crystal chips. *Radiation Measurements* **41**, 154-162.

KALCHGRUBER R., BLAIR M.W., MCKEEVER S.W.S., BENTON E.R., REUST D.K., 2007. Progress towards robotic in-situ dating of Martian sediments using optically stimulated luminescence, *Planetary and Space Science*, **55**, 2203-2217.

KASTLANDER, J., BARGHOLTZ, C., 2005. Efficient *in situ* method to determine radionuclide concentration in soil. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, **547**, 400-410.

KAWRAKOW I., ROGERS D. W. O., 2001. The EGSnrc code system: Monte Carlo simulation of electron and photon transport. Report PIRS-701. Ottawa, National Research Council of Canada.

KORUN, M., LIKAR, A., LIPOGLAVSEK, M., MARTINCIC, R., PUCELJ, B., 1994. *In situ* measurement of Cs distribution in soil. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **93**, 4, 485-491.

- KOSSERT K., GUNTHER E., 2004. LSC Measurements of Half-life of ^{40}K . *Applied Radiation and Isotopes* **60**, 459-464.
- KRBETSCHKE, M.R., RIESER, U., ZOLLER, L., HEINICKE, J., 1994. Radioactive disequilibria in paleodosimetric dating of sediments. *Radiation Measurements*, **23**, 485–489.
- LAMOTHE M., AUCLAIR M., HAMZAOUI C., HUOT S., 2003. Towards a prediction of longterm anomalous fading of feldspar IRSL. *Radiation Measurements* **37**, 493-498.
- LAQUAY, G., 1981. Recherches sur les faunes du Würm I en Périgord. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux 1, 429 p.
- LIRITZIS Y., GALLOWAY R. B., 1980. A new technique for calibrating a NaI(Tl) scintillometer used to measure gamma dose rates in archaeological sites. *Nuclear Instruments and Methods* **174**, 593-597.
- LØVBORG L., KIRKEGAARD P., 1974. Response of 3" x 3" NaI(Tl) detectors to terrestrial gamma radiation. *Nuclear Instruments and Methods*, **121**, 239-251.
- LØVBORG L., BØTTER-JENSEN L., KIRKEGAARD P., CHRISTIANSEN E. M., 1979. Monitoring of soil natural radioactivity with portable gamma-ray spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods*, **167**, 341-348.
- LYONS R.G., BRENNAN B.J., 1989. Alpha effectiveness in ESR dating: energy dependence and implications for dose rate calculations. *Applied Radiation Isotopes* **40**, 1053–1059.
- MAYYA Y.S., MORTHEKAI P., MURARI M.K. SINGHVI, A.K., 2006. Towards quantifying beta microdosimetric effects in single-grain quartz dose distribution. *Radiation Measurements* **41**, 1032-1039.
- McKEEVER S.W.S., KALCHGRUBER, R., BLAIR M.W., DEO S, 2006. Development of methods for in situ dating of Martian sediments. *Radiation Measurements*, **41**, 750-754.
- MEJDAHL V. 1979. Thermoluminescence dating: beta-dose attenuation in quartz grains. *Archaeometry* **21**, 61-72.
- MERCIER, N., VALLADAS, H., JORON, J.-L., REYSS, J.-L., LÉVÊQUE, F., VANDERMEERSCH, B., 1991. Thermoluminescence dating of the late Neanderthal remains from Saint-Césaire (France). *Nature* **351**, 737-739.
- MERCIER N., VALLADAS H., VALLADAS G., 1992, Observations on palaeodose determination with burnt flints, *Ancient TL* **10**, 28-32.
- MERCIER, N., VALLADAS, H., JORON, J.-L., SCHIEGL, S., BAR-YOSEF, O., WEINER, S., 1995a. Thermoluminescence dating and the problem of geochemical evolution of sediments. A case study: the Mousterian levels at Hayonim. *Israel Journal of Chemistry* **35**, 137–141.
- MERCIER, N., VALLADAS, H., VALLADAS, G., 1995b. Flint thermoluminescence dates from the CFR Laboratory at Gif: contributions to the study of the chronology of the Middle Palaeolithic. *Quaternary Science Reviews (Quaternary Geochronology)* **14**, 351-364.
- MERCIER, N., VALLADAS, H., VALLADAS, G., REYSS, J.-L., JELINEK, A., MEIGNEN, L., JORON, J.-L., 1995c. TL dates of burnt flints from Jelinek's excavations at Tabun and their implications. *Journal of Archaeological Science* **22**, 495-509.

- MERCIER, N., VALLADAS, H., 2003a. Reassessment of TL age-estimates of burnt flints from the Paleolithic site of Tabun Cave, Israel. *Journal of Human Evolution* **45**, 401-409.
- MERCIER, N., VALLADAS, H., FROGET, L., JORON, J-L., REYSS, J-L., BALESCU, S., ESCUTENAIRE, ., KOZLOWSKI, J., SITLIVY, V., SOBCZYK, K., ZIEBA, A., 2003b. Luminescence dates for the palaeolithic site of Piekary II a (Poland): comparison between TL of burnt flints and OSL of a loess-like deposit. *Quaternary Geochronology* **22**, 1245-1249.
- MERCIER N., VALLADAS H., FROGET L., JORON J-L., REYSS J-L., WEINER S., GOLDBERG P., MEIGNEN L., BAR-YOSEF O., BELFER-COHEN A., CHECH M., KUHN S.L., STINER M.C., TILLIER A.-M., ARENSBURG B., VANDERMEERSCH B., 2007a. Hayonim Cave: a TL-based chronology for this Levantine Mousterian sequence. *Journal of Archaeological Science*, **34**, 1064-1077.
- MERCIER N., WENGLER L., VALLADAS H., JORON J-L., FROGET L., REYSS J-L., 2007b. The Rhafas Cave (Morocco): Chronology of the mousterian and atherian archaeological occupations and their implications for Quaternary geochronology based on luminescence (TL/OSL) age determinations, *Quaternary Geochronology*, **2**, 309-313.
- MERCIER N., FALGUÈRES C., 2007. Field gamma dose-rate measurement with a NaI(Tl) detector: re-evaluation of the "threshold" technique. *Ancient TL* **25**, 1-4.
- MERCIER N., HATTÉ C., FONTUGNE M., REYSS J-L., VALLADAS H., WENGLER L., BRUGAL J.-P., OUAMMOU A., WEISROCK A., 2009. Chronology of Upper Pleistocene sequences at Sidi Messaoud (wadi Noun, southwestern Morocco) based on ¹⁴C, optical and U-series dating. *Quaternary Geochronology*, **4**, 326-334.
- MIALLIER, D. ERRAMLI, H., FAÏN, J., SANZELLE, S., 1988. Doserate measurement by the enclosure method using Al₂O₃ TL dosimeters. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **14**, 193-197.
- MIALLIER D., CONDOMINES M., PILLEYRE T., SANZELLE S., GUITTET J., 2004. Concordant thermoluminescence and ²³⁸U-²³⁰Th ages for a trachytic dome (Grand Sarcoui) from the Chaîne des Puys (French Massif Central). *Quaternary Science Reviews* **23**, 709-715.
- MILLER, K.M., SHEBELL, P., KLEMIC, G.A., 1994. *In situ* gamma ray spectrometry for the measurement of uranium in surface soils. *Health Physics* **67**, 2, 140-150.
- MORTHEKAI P., JAIN M., DARTNELL L., MURRAY A.S., BOTTER-JENSEN L., DESORGHIER L., 2007. Modelling of the dose-rate variations with depth in the Martian regolith using Geant4. *Nuclear Instruments and Methods A*, **580**, 667-670.
- MURRAY, A.S., 1982. *Environmental radiation studies relevant to thermoluminescence dating*. Thèse de doctorat, Faculty of Physical Sciences, Oxford University, non publiée.
- MURRAY A. S., BOWMAN S. G. E., AITKEN M. J., 1978. Evaluation of the gamma dose-rate contribution. *PACT* **2**, 84-96.
- MURRAY A.S., ROBERTS R.G., 1997. Determining the burial time of single grains of quartz using optically stimulated luminescence. *Earth Planetary Science Letters* **152**, 163-180.
- MURRAY A.S., ROBERTS R.G., 1998. Measurement of the equivalent dose in quartz using a regenerative-dose single-aliquot protocol. *Radiation Measurements* **29**, 503-515.
- MURRAY, A. S., WINTLE, A. G., 2000. Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol. *Radiation Measurements* **32**, 57-73.

- MURRAY A.S., OLLEY, J.M., 2002. Precision and Accuracy in the Optically Stimulated Luminescence Dating of Sedimentary Quartz: A Status Review. *Geochronometrica* **21**, 1-16.
- MURRAY, A. S., WINTLE, A. G., 2003. The single aliquot regenerative dose protocol: potential for improvements in reliability. *Radiation Measurements* **37**, 377-381.
- NAMBI K. S. V., AITKEN, M.J., 1986. Annual dose conversion factors for TL and ESR dating. *Archaeometry* **28**, 202-205.
- NATHAN R. P., 2011. Numerical modelling of the environmental dose rate for trapped charge dating. Thèse de doctorat. Archaeology, University of Oxford, non publiée.
- NATHAN R., GRÜN R., 2003. Gamma dosing and shielding of a human tooth by a mandible and skull cap. *Ancient TL* **21**, 79-84.
- NATHAN R., THOMAS P.J., MURRAY A.S., RHODES E.J., 2003. Environmental dose rate heterogeneity of beta radiation and its implications for luminescence dating: Monte Carlo modelling and experimental validation. *Radiation Measurements* **37**, 305-313.
- NATHAN R.P, MAUZ B., 2008. On the dose-rate estimate of carbonate-rich sediments for trapped charge dating. *Radiation Measurements* **43**, 14-25.
- NIELSEN, A., MURRAY, A.S., PEJRUP, M., ELBERLING B., 2006. Optically stimulated luminescence dating of a Holocene beach ridge plain in Northern Jutland, Denmark. *Quaternary Geochronology* **1** (4), 305-312.
- OLLEY J. M., 1994. The Use of ^{238}U and ^{232}Th Decay Series Radionuclides in Sediment Tracing. Thèse de doctorat, Université de New South Wales, Australie.
- OLLEY J. M., MURRAY A. S., ROBERTS R. G., 1996. The effects of disequilibria in the uranium and thorium decay chains on burial dose rates in fluvial sediments. *Quaternary Science Reviews* **15**, 751-760.
- OLLEY, J. M., ROBERTS R. G., MURRAY, A. S. 1997. Disequilibria in the uranium decay series in sedimentary deposits at Allen's Cave, Nullarbor Plain, Australia: Implications for dose rate determinations. *Radiation Measurements* **27**, 433-443.
- OLLEY, J.M., CAITCHEON, G.G., ROBERTS, R.G., 1999. The origin of dose distributions in fluvial sediments, and the prospect of dating single grains from fluvial deposits using optically stimulated luminescence. *Radiation Measurements* **30**, 207-217.
- PERKINS S.T., CULLEN D.E., 1994. ENDL Type Formats for the LLNL Evaluated Atomic Data Library, EADL, for the Evaluated Electron Data Library, EEDL, and for the Evaluated Photon Data Library, EPDL. LLNL, California, UCRL-ID-117796.
- PILLEYRE T., SANZELLE S., MIALLIER D., FAÏN J., COURTINE F., 2006. Theoretical and experimental estimation of self-attenuation corrections in determination of ^{210}Pb by γ -spectrometry with well Ge detector. *Radiation Measurements* **41**, 323-329.
- PRESCOTT, J.R., HUTTON, J.T., 1988. Cosmic ray and gamma ray dosimetry for TL and ESR. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **14**, 223-227.
- PRESCOTT J.R., HUNTLEY D.J., HUTTON J.T., 1993. Estimation of equivalent dose in thermoluminescence dating - the Australian slide method. *Ancient TL* **11**, 1-5.

- PRESCOTT J. R., HUTTON J. T., 1994. Cosmic-Ray Contributions to Dose-Rates for Luminescence and ESR Dating - Large Depths and Long-Term Time Variations. *Radiation Measurements* **23**, 497-500.
- PRESCOTT J. R., HUTTON J. T., 1995. Environmental dose rates and radioactive disequilibrium from some Australian luminescence dating sites. *Quaternary Science Reviews* **14**, 439-448.
- PRESCOTT, J.R., CLAY, R.W., 2000. Cosmic ray dose rates for luminescence and ESR dating: measured with a scintillation counter. *Ancient TL*, **18**, 11-14.
- PREUSSER F., CHITHAMBO M. L., GÖTTE T., MARTINI M., RAMSEYER K., SENDEZERA E. J., SUSINO G. J., WINTLE A.G., 2009. Quartz as a natural luminescence dosimeter, *Earth-Science Reviews* **97**, 184-214.
- READHEAD M.L., 1987. Thermoluminescence dose rate data and dating equations for the case of disequilibrium in the decay series. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **13**, 197-207.
- RHODES E., SCHWENNINGER J-L., 2007. Dose rates and radioisotope concentrations in the concrete calibration blocks at Oxford. *Ancient TL*, **25**, 5-8.
- RICHERSON P., BOYD R., BETTINGER R., 2009. Cultural innovations and demographic change, *Human Biology*, **81** (2-3), 211-235.
- ROBERTS R.G., GALBRAITH R.F., OLLEY J.M., YOSHIDA H., LASLETT G.M., 1999. Optical dating of single and multiple grains of quartz from Jinmium rock shelter, Northern Australia: part II, results and implications. *Archaeometry* **41**, 365-395.
- ROBERTS, R.G., GALBRAITH, R.F., YOSHIDA, H., LASLETT, G.M., OLLEY, J.M., 2000. Distinguishing dose populations in sediment mixtures: a test of single-grain optical dating procedures using mixtures of laboratory-dosed quartz. *Radiation Measurements* **32**, 459-465.
- ROESCH W. C., ATTIX F. H., 1968. Basic concepts of dosimetry. *Radiation dosimetry, Volume I: Fundamentals*. F. H. Attix and W. C. Roesch. New York and London, Academic Press.
- ROQUE C., GUIBERT P., VARTANIAN E., VIEILLEVIGNE E., BECHTEL F., 2004. Changes in luminescence properties induced by thermal treatments; a case study at Sipan and Trujillo Moche sites (Peru), *Radiation Measurements*, **38**, 119-126.
- RUFER, D. AND PREUSSER, F., 2009. Potential of autoradiography to detect spatially resolved radiation patterns in the context of trapped charge dating. *Geochronometria* **34**, 1-13.
- SALVAT F., FERNÁNDEZ-VAREA J. M., Sempaú J., 2006. Penelope-2006: A code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport. Barcelona, NEA.
- SANCHEZ GOÑI, M.F., LANDAIS, A., FLETCHER, W.J., NAUGHTON, F., DESPRAT, S., DUPRAT, J., 2008. Contrasting impacts of Dansgaard-Oeschger events over a western European latitudinal transect modulated by orbital parameters. *Quaternary Science Reviews* **27** (11-12), 1136-1151.
- SANDERSON D. C. W., PLACIDO F., 1985. Scottish vitrified forts: background and potential for TL dating. *Nuclear Tracks*, **10**, 4-6, 799-809.

- SANDGATHE, D., TURQ, A., DIBBLE, H., MCPHERRON, S., GOLDBERG, P., 2007. Roc de Marsal (Campagne-de-Bugue, Dordogne): Rapport de fouille programmée triennale 2005-2007. DRAC, Bordeaux.
- SANDGATHE, D., DIBBLE, H., GOLDBERG, P., MCPHERRON, S., 2011. The Roc de Marsal Neandertal child: a reassessment of its status as a deliberate burial. *Journal of Human Evolution*, **61** (3), 243-253.
- SANZELLE, S., ERRAMLI, H., FAÏN, J., MIALLIER, D., 1988. The assessment of gamma dose rate by gamma ray field spectrometer. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **14**, 209-213.
- SELO, M., VALLADAS, H., MERCIER, N., JORON, J.-L., BASSINOT, F., PARSON, A., NOUET, J., 2009. Investigations on uranium distributions in flints. *Radiation Measurements*, **44**, 615-619.
- SEMPAU J., FERNÁNDEZ-VAREA J. M., ACOSTA E., SALVAT F., 2003. Experimental benchmarks of the Monte Carlo code PENELOPE. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **207**, 107-123.
- SOULIER, M.-C., 2007. Etude archéozoologique du carré M16 de la couche II du gisement moustérien du Roc de Marsal (Dordogne). Mémoire de Master 1, Université Toulouse II Le Mirail.
- SOUMANA, S., 1993. *Amélioration des techniques de dosimétrie appliquées à la datation par thermoluminescence*. Thèse non publiée, Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand, France.
- SOUMANA, S., FAÏN, J., MIALLIER, D., MONTRET, M., PILLEYRE, T., SANZELLE, S., AND AKSELROD, M., 1994. Gamma and enclosure dosimetry for TL/ESR dating with the new AL2O3:C TL dosimeter. *Radiation Measurements*, **23**, 501-505.
- STEVENS T., BUYLAERT J.P., MURRAY A.S., 2009. Towards development of a broadly-applicable SAR TT-OSL dating protocol for quartz. *Radiation Measurements* **44**, 639-645.
- STINER, M.C., KUHN, S.L., 2006. Changes in the connectedness and resilience of Paleolithic societies in Mediterranean ecosystems. *Human Ecology* **34** (5), 693-712.
- THIEBAUD, C., 2003. L'industrie lithique de la couche III du Roc de Marsal (Dordogne) : le problème de l'attribution d'une série lithique au Moustérien à denticulés. *Paleo* **15**, 141-168.
- THOMSEN K. J., JAIN M., BØTTER-JENSEN L., MURRAY A. S., JUNGNER H., 2003. Variation with depth of dose distributions in single grains of quartz extracted from an irradiated concrete block. *Radiation Measurements* **37**, 315-321.
- THOMSEN K. J., MURRAY A. S., BØTTER-JENSEN L., 2005. Sources of variability in OSL dose measurements using single grains of quartz. *Radiation Measurements*, **39**, 47-61.
- THOMSEN K.J., MURRAY A.S., BØTTER-JENSEN L., KINAHAN J., 2007. Determination of burial dose in incompletely bleached fluvial samples using single grains of quartz. *Radiation Measurements* **42**, 370-379.
- THOMSEN K.J., MURRAY A.S., JAIN M., BØTTER-JENSEN L., 2008. Laboratory fading rates of various luminescence signals from feldspar-rich sediment extracts. *Radiation Measurements* **43**, 1474-1486.

- THUMMERER, S., JACOB, P., 1998. Determination of depth distributions of natural radionuclides with in situ gamma ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, **416**, 161-178.
- TRIBOLO, C., MERCIER, N., VALLADAS, H., 2001. Alpha sensitivity determination in quartzite using an OSL single aliquot procedure. *Ancient TL* **19**, 47-50.
- TRIBOLO C., MERCIER N., VALLADAS H., JORON J.L., GUIBERT P., LEFRAIS Y., SELO M., TEXIER P.-J., RIGAUD J.-PH., PORRAZ G., POGGENPOEL C., PARKINGTON J., TEXIER J.-P., LENOBLE A., 2009. Thermoluminescence dating of a Stillbay-Howiesons Poort sequence at Diepkloof Rock Shelter (Western Cape, South Africa). *Journal of Archaeological Science* **36**, 730-739.
- TRIBOLO C., MERCIER N., RASSE M., SORIANO S., HUYSECOM E., 2010. Kobo 1 and L'Abri aux Vaches (Mali, West Africa): Two case studies for the optical dating of bioturbated sediments. *Quaternary Geochronology* **5**, 317-323.
- TURQ, A., 1989. Le squelette de l'enfant néandertalien du Roc de Marsal: les données de fouilles. *Paléo* **1**, 47-54.
- TURQ, A., DIBBLE, H.L., FAIVRE, J.-P., GOLDBERG, P., MCPHERRON, S.P., SANDGATHE, D., 2008. Le Moustérien du Périgord Noir : quoi de neuf ?, In: JAUBERT, J., BORDES, J.-G., ORTEGA, I. (Eds.), Les sociétés du Paléolithique dans un Grand Sud-Ouest de la France : nouveaux gisements, nouveaux résultats, nouvelles méthodes. Mémoire XLVII de la Société Préhistorique Française, Paris.
- TYLER, A.N., 1999. Monitoring anthropogenic radioactivity in salt marsh environments through in situ gamma ray spectrometry. *Journal of Environmental Radioactivity* **45**, 3, 235-252.
- TYLER, A.N., 2004. High accuracy *in situ* radiometric mapping. *Journal of Environmental Radioactivity* **72**, 195-202.
- TYLER, A.N., SANDERSON, D.C.W., SCOTT, E.M., 1996. Estimating and accounting for ¹³⁷Cs source burial through in situ gamma spectrometry in salt marsh environments. *Journal of Environmental Radioactivity*, **33**, 3, 195-212.
- TYLER A. N., COPPLESTONE D., 2007. Preliminary results from the first national in situ gamma spectrometry survey of the United Kingdom. *Journal of Environmental Radioactivity* **17**, 97-106.
- VALLADAS, G., 1982. Measure de la dose γ annuelle de l'environnement d'un site archéologique par un dosimètre TL, *PACT* **6**, 77-85.
- VALLADAS H., MERCIER N., FALGUERES CH., BAHAIN J.-J., 1999. Contribution des méthodes nucléaires à la chronologie des cultures paléolithiques entre 300 000 et 35 000 ans BP. *Gallia Préhistoire*, **41**, 153-166.
- VANDENBERGHE D.A.G., JAIN M., MURRAY A.S., 2009. Equivalent dose determination using a quartz isothermal TL signal. *Radiation Measurements* **44**, 439-444.
- VERONESE I., SHVED V., SHISHKINA E.A., GIUSSANI A., GÖKSU H.Y., 2007. Study of dose rate profile at sample disks in a RisZ OSL single-grain attachment system. *Radiation Measurements*, **42**, 138-143

VIEILLEVIGNE, E., GUIBERT, P., 2007. Datation par thermoluminescence d'un silex du Paléolithique moyen des Pradelles. Rapport de recherche.

VOGEL J.C., WATERBOLK H.T., 1967. Groningen radiocarbon dates VII. *Radiocarbon*, **9**, 107-155.

WANG X.L., WINTLE A.G., LU Y.C., 2006. Thermally transferred luminescence in fine-grained quartz from Chinese loess: basic observations. *Radiation Measurements* **41**, 649-658.

WINTLE A., 2009. Fifty years of luminescence dating. *Archaeometry* **50**, 276-312.

WINTLE, A.G., MURRAY, A.S., 2006. A review of quartz optically stimulated luminescence characteristics and their relevance in single-aliquot regeneration dating protocols. *Radiation Measurements* **41**, 369-391.

ZIMMERMAN, D.W. 1971. Thermoluminescence dating using fine grains from pottery, *Archaeometry* **13**, 29-52.

ZOMBORI, P., ANDRRASI, A., NEMETH, I., 1992. In situ gamma spectrometric measurements of the contamination in some selected settlements of Byelorussia (BSSR), Ukraine (UkrSSR) and the Russian Federation (RSFSR). *Journal of Environmental Radioactivity* **96**, 94-102.

Annexes

Annexe 1 : applications ponctuelles de GEANT4

GEANT4 a été principalement utilisé durant cette thèse pour traiter de questions fondamentales, qu'il s'agisse de mettre au point ou améliorer des techniques de spectrométrie gamma, ou de s'intéresser aux effets des hétérogénéités des sédiments à l'échelle granulaire. Cependant, la flexibilité de GEANT4 autorise également de reconstruire des environnements très divers et ainsi de simuler les interactions particules-matières afin de répondre à des besoins très variés dans un laboratoire de datation par luminescence. Cette annexe présente ainsi un certain nombre d'applications ponctuelles de GEANT4 : nous l'avons ainsi utilisé dans le cadre d'études sur la radioprotection afin d'estimer le débit de dose auquel sont exposés les utilisateurs des sources radioactives du laboratoire ; l'effet d'atténuation des enveloppes métalliques des dosimètres utilisés sur le terrain afin de mesurer les débits de dose gamma a également été étudié, en fonction des milieux d'enfouissement et du type de dosimètres ; GEANT4 a également permis de reconstruire l'environnement radioactif d'échantillons de briques mais aussi de sédiments pour lesquels des mesures de débits de dose gamma n'avaient pas pu être effectués, ou s'étaient avérés problématiques ; les résultats surprenants de la campagne de calibration des sources radioactives du CRPAA nous ont amenés à étudier en détail les irradiations artificielles servant de référence, afin de déterminer si la géométrie des irradiations pouvait être la source des variations observées sur certains échantillons ; enfin nous avons simulé le débit de dose beta externe reçu par un silex chauffé provenant de Duclos (Pyrénées Atlantiques), qui était de dimensions trop réduites pour permettre d'éliminer son enveloppe externe.

Radioprotection au CRPAA : l'irradiateur alpha externe

Il est courant de déterminer la sensibilité des silex datés par thermoluminescence aux irradiations alpha : en effet les particules alpha, de par leur masse importante, sont beaucoup plus ionisantes que les électrons. Il est donc nécessaire, dans un souci de justesse des résultats de datation, de quantifier la production de luminescence induite par ce type de rayonnement. Une source alpha d'²⁴¹Am a donc récemment été acquise par le CRPAA et un dossier de radioprotection a été déposé auprès des autorités compétentes en la matière

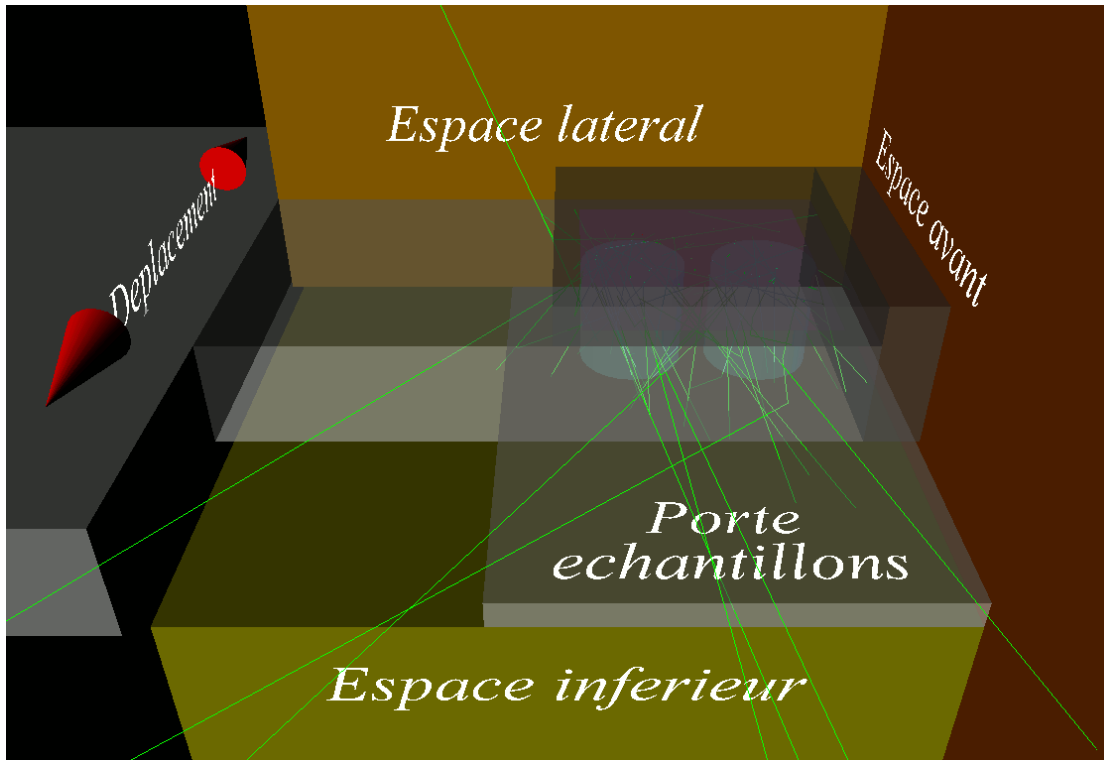


Figure A1.1 : géométrie simulée afin de quantifier les doses potentiellement reçues par les utilisateurs de la source alpha $d^{241}\text{Am}$ acquise par le CRPAA. En vert figurent les trajectoires de rayons X émis par la source.

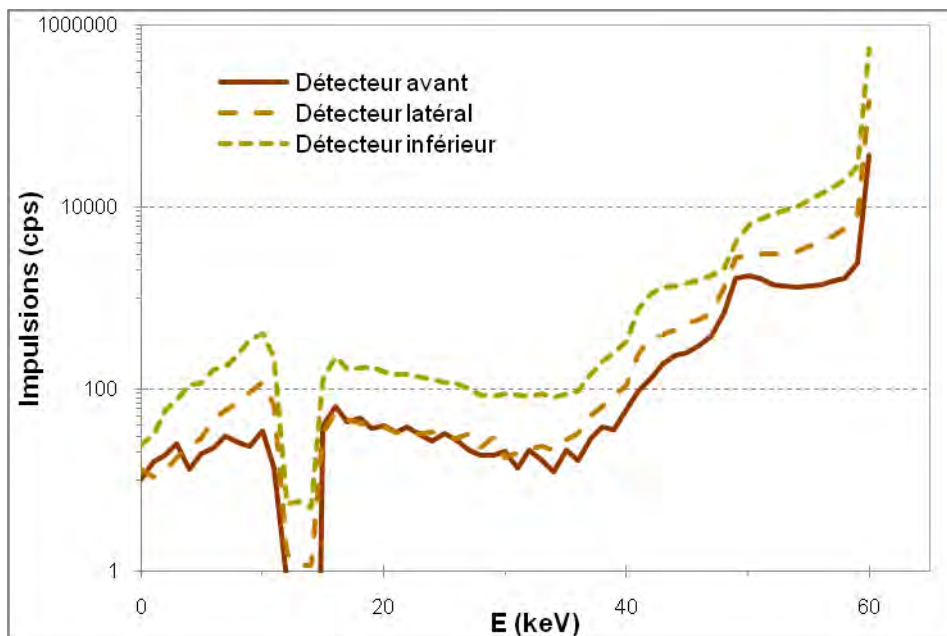


Figure A1.2 : Nombre de photons par seconde entrant dans les demi-espaces indiqués sur la figure A1.1.

(IRSN, ASN). Si les rayonnements alpha sont arrêtés par une feuille de papier et donc peu dangereux pour les utilisateurs, un des risques liés aux sources d'²⁴¹Am réside dans l'émission de rayons X d'énergies 14 et 60 keV. La figure AI.1 représente la géométrie simulée à l'aide de GEANT4 et les lignes vertes correspondent aux trajectoires simulées de ces rayons X. Plusieurs éléments de volume ont été définis, en plus de la source elle-même, afin de quantifier l'énergie qui serait reçue par un utilisateur suivant qu'il est placé devant, derrière ou sous cette source. Les résultats ont ainsi été inclus dans le dossier, et sont présentés sur la figure AI.2.

Dosimètres artificiels : effet d'atténuation des enveloppes métalliques

Afin de mesurer les débits de dose en milieux sédimentaires, certains laboratoires – dont le CRPAA – disposent de dosimètres très sensibles aux irradiations. En les insérant dans les milieux d'intérêt pendant quelques mois, leur signal de luminescence devient exploitable et il est alors possible de mesurer directement les débits de dose à l'endroit des prélèvements de sédiments. Au CRPAA, de même qu'au Laboratoire de Physique Corpusculaire de l'Université Blaise-Pascal, à Clermont-Ferrand, les dosimètres sont constitués d'alumine contenue dans des tubes métalliques. Ces tubes permettent d'insérer les dosimètres environ 30 centimètres à l'intérieur des sédiments, mais également d'arrêter les composantes alpha et beta des irradiations provenant du sédiment : on mesure ainsi directement les débits de dose gamma. Cependant, malgré leur faible épaisseur - 1.05 mm d'acier inox pour Clermont-Ferrand, 2.5 mm de Dural au CRPAA – ces enveloppes atténuent les rayonnements gamma. Il est donc nécessaire de corriger les débits de dose gamma mesurés pour tenir compte de cet effet. Le tableau AI.1 les rapports entre le débit de dose mesuré par les dosimètres et un volume identique de quartz, soumis aux mêmes irradiations ; le tableau AI.2 présente les caractéristiques des dosimètres de ces deux laboratoires. La géométrie simulée avec GEANT4 pour obtenir ces résultats est présentée sur la figure AI. 3.

Il est intéressant de noter une forte variabilité des facteurs d'atténuation des enveloppes métalliques en fonction des radioéléments et des milieux d'enfouissement. Si les variations en fonction des radioéléments sont facilement explicables par l'énergie moyenne des rayons gamma correspondant – cette énergie moyenne augmente en passant du thorium à l'uranium puis au potassium – en revanche aucune explication simple (c'est-à-dire en considérant les variables densité et numéro atomique moyen) n'est apparue pour les variations en fonction du milieu d'enfouissement.

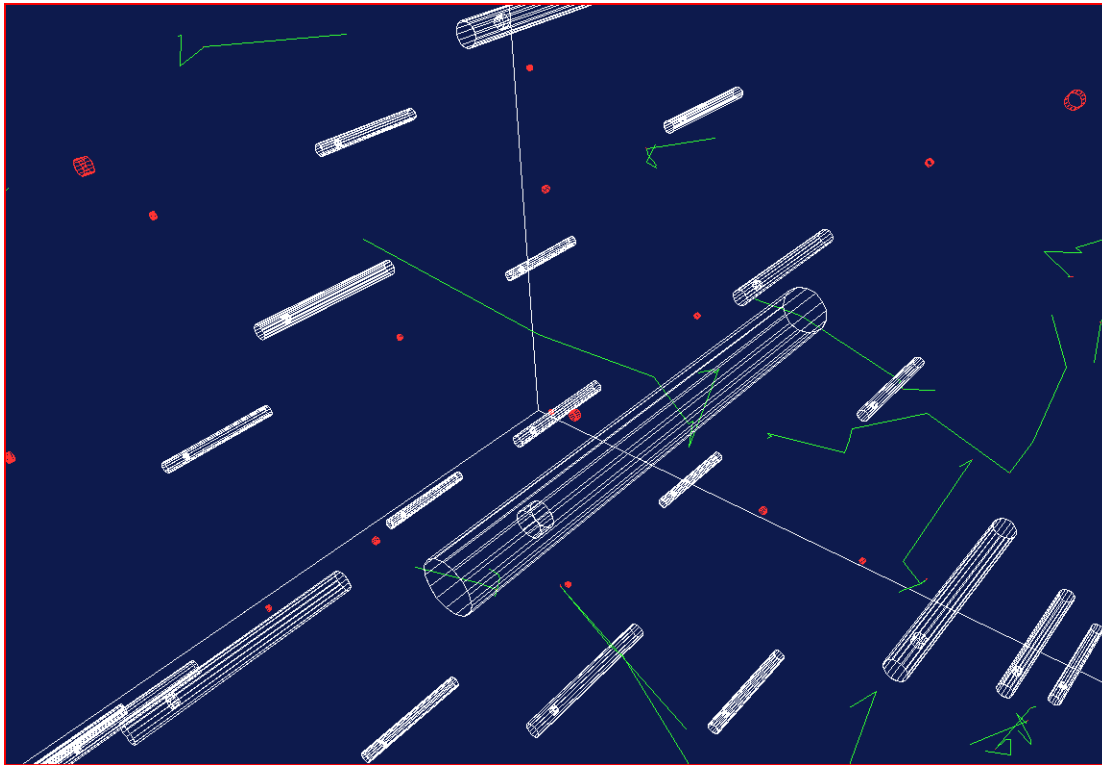


Figure AI.3 : géométrie simulée pour quantifier l'effet d'atténuation de l'enveloppe métallique des dosimètres utilisés au CRPAA. En blanc figurent les petits cylindres d'alumine contenus dans les tubes métalliques en Dural. En rouge sont représentés les cylindres de quartz utilisés comme dosimètres naturels de référence.

Milieux d'enfouissement	K	σ	U	σ	Th	σ	Cas [K]=1%, [U]=1ppm, [Th]=6ppm
Clermont							
347 C	0.95	0.03	0.87	0.03	0.95	0.02	0.94
LMP	0.94	0.03	0.97	0.03	0.92	0.03	0.94
MPX	0.96	0.02	0.94	0.03	0.94	0.03	0.95
PEP	0.96	0.02	0.94	0.03	0.98	0.03	0.97
C 341	0.96	0.02	0.99	0.02	0.94	0.03	0.96
Moyenne	0.95		0.94		0.95		0.95
CRPAA							
Croix de Canard	0.98	0.03	0.94	0.04	1.01	0.04	0.99
Diepkloof	0.92	0.03	0.9	0.03	0.96	0.04	0.93
Lave (basalte, Sicile)	0.93	0.03	0.91	0.05	1.07	0.05	0.99
Roc de Marsal	0.94	0.03	0.95	0.04	0.97	0.04	0.96
Moyenne	0.94		0.93		1		0.96

Tableau AI.1 : rapport des débits de dose reçus par les doimètres en alumine insérés dans les tubes métalliques, en fonction des radioéléments émetteurs et des milieux d'enfouissement.

	Clermont	CRPAA
Al₂O₃		
r (mm)	2.95	2.5
h (mm)	9.5	3
densité (g.cm ⁻³)	1.85	3.66
enveloppe		
matériau	Acier inox	Dural
épaisseur (mm)	1.05	2.5
densité (g.cm ⁻³)	8	2.8

Tableau AI.2 : caractéristiques des dosimètres du CRPAA et de Clermont-Ferrand. La différence de densité de l'alumine entre les deux laboratoires est due au fait que l'alumine est sous forme de poudre au laboratoire de Clermont-Ferrand, sous forme de pastilles au CRPAA.

Reconstruction virtuelle de milieux hétérogènes pour la dosimétrie gamma

Dans le cas de milieux complexes, pour lesquels les mesures de débits de dose gamma n'ont pas pu être réalisées sur le terrain, il est possible d'utiliser GEANT4 afin de reconstruire l'environnement des échantillons datés.

Au cours de cette thèse, deux cas d'étude ont ainsi été simulés : le premier concernait une brique provenant de la crypte de l'église Saint-Seurin, à Bordeaux, et le deuxième était celui d'échantillons de sédiments prélevés à Mussig, en Alsace. Dans ces deux cas les milieux étaient hétérogènes, et différents prélèvements effectués autour des échantillons datés ont été caractérisés : à partir de la composition chimique des différents éléments de volume, ainsi que de leurs teneurs en radioéléments, il a été possible de définir les zones d'intérêt et de simuler les débits de dose gamma reçus par ces zones.

Dans le cas de l'église Saint-Seurin, la brique échantillonnée à des fins de datation faisait partie d'un sol dallé. Elle était posée face à un mur de composition très différente et sur une épaisse couche argileuse. Les simulations numériques effectuées à l'aide de Geant4 ont permis, moyennant une simplification de la géométrie d'irradiation, d'estimer les composantes interne et externe du débit de dose gamma reçu par deux échantillons prélevés à deux endroits différents de cette brique (Fig. A1.4). Les données n'étant à ce jour pas publiées, nous ne mentionnerons pas de données quantitatives (voir pour cela la thèse de doctorat d'Armel Bouvier, CRPAA).

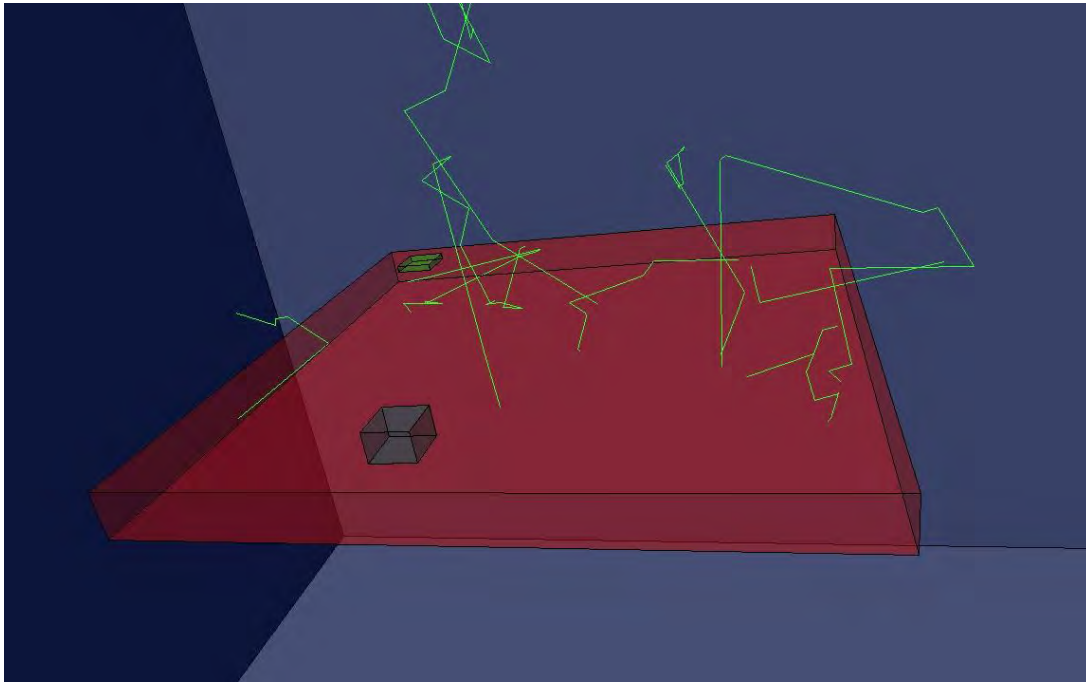


Figure A1.4 : géométrie simulée afin de déterminée les débits de dose gamma reçus par deux échantillons (parallélépipèdes vert et bleu) prélevés dans une brique (en rouge) de l'église Saint-Seurin, à Bordeaux.

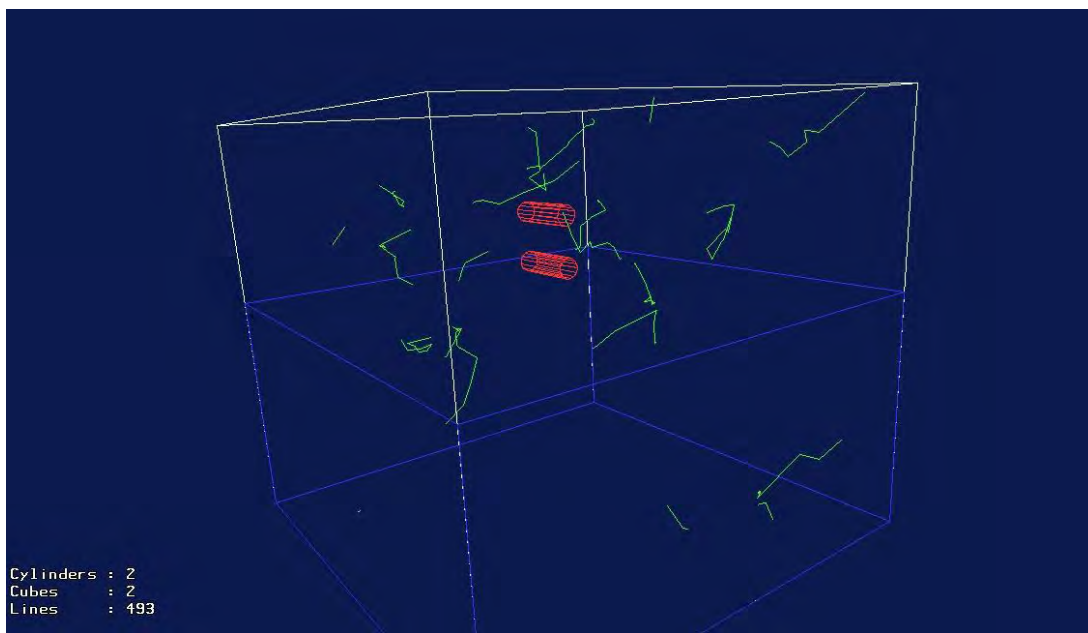


Figure A1.5 : géométrie simulée afin de déterminée les débits de dose gamma reçus par deux échantillons (cylindres rouges) prélevés dans une dépression tourbeuse de la plaine alluviale du Rhin (Mussig, Alsace). Deux milieux différents par leur composition (blanc, bleu) sont simulés.

Dans le cas des échantillons de sédiments prélevés à Mussig, la reconstruction numérique de leur environnement a été nécessaire, du fait que ces échantillons ont été prélevés à moins de 30 cm de la surface du sol ou d'une unité stratigraphique très différente de par sa composition et ses teneurs en radioéléments (Fig. A1.5). Les simulations

constituent donc ici un cas particulier des simulations présentées dans le chapitre 6 : plutôt que de s'intéresser à l'influence de tel ou tel paramètre sur un protocole de mesure, il s'agit ici de déterminer les débits de dose gamma reçus par une série d'échantillons dans un contexte donné. Les données sont, ici aussi, en cours de publication.

Calibration des sources radioactives du CRPAA

Dans le cadre d'une campagne de calibration des sources radioactives du CRPAA utilisées pour la datation par luminescence, un certain nombre d'échantillons ont été irradiés à l'aide d'un faisceau gamma de référence de ^{60}Co , à Gif-sur-Yvette. Les fortes variations observées sur les débits de dose des sources beta du CRPAA en fonction des différents échantillons irradiés nous amenés à nous demander si chaque échantillon avait bien reçu la même dose lors des irradiations ; entre autres questions, il s'agissait de déterminer si le débit de dose reçu par les échantillons dépendait de leur position par rapport au faisceau (Fig. A1.6).

Il est apparu que ces variations ne pouvaient pas être imputées à la géométrie d'irradiation, et nous savons depuis qu'elles sont probablement dues à des caractéristiques propres à chaque quartz. Il semblerait en effet que l'efficacité des particules ionisantes à produire de la luminescence dépende de leur énergie, et que cette dépendance soit différente pour chaque quartz.

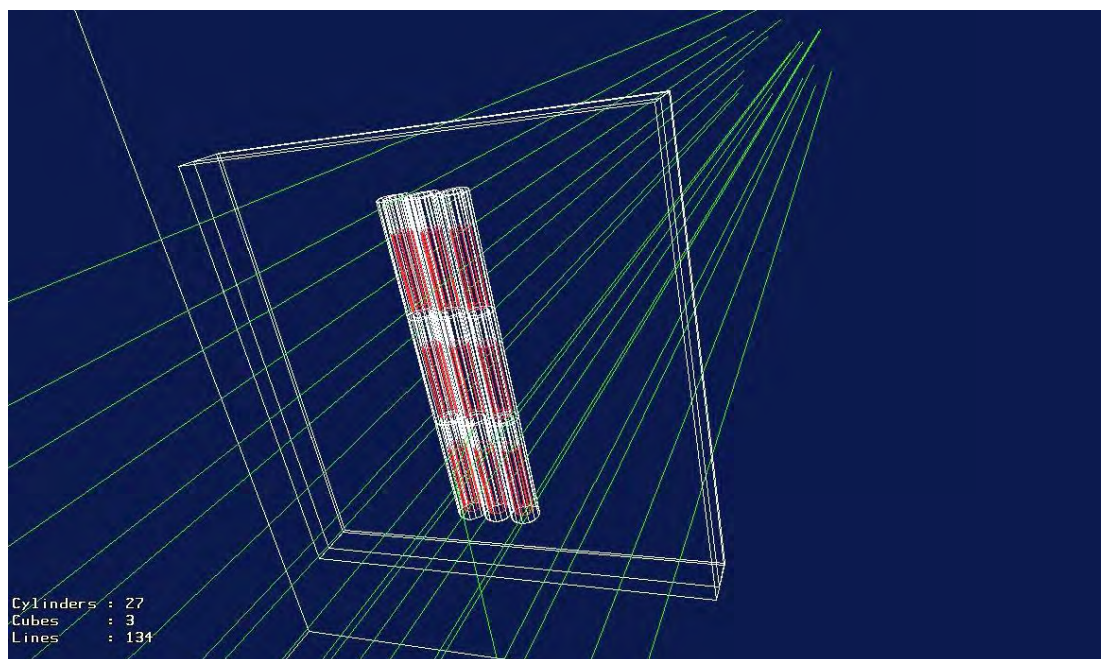


Figure A1.6 : simulation des irradiations gamma, à l'aide d'une source de ^{60}Co , d'échantillons de quartz en vue de la calibration des sources radioactives beta du CRPAA. Les lignes vertes représentent les rayons gamma. Les cylindres rouges représentent le quartz et sont inclus dans les cylindres blancs, en plastique. L'ensemble de ces cylindres est lui-même contenu dans un parallélépipède en plexiglas.

A partir du kerma dans l'air donné pour ce faisceau d'irradiations gamma, nous avons également pu déterminer le débit de dose reçu par les échantillons de quartz en tenant compte de leur contenant. L'effet d'atténuation des cylindres en plastique, ainsi que d'une plaque en plexiglas, ont ainsi été pris en compte pour une meilleure justesse des débits de dose utilisés pour la calibration des sources du CRPAA.

Débit de dose beta externe reçu par un silex

La datation des silex chauffés par thermoluminescence implique habituellement l'élimination de l'enveloppe externe des silex – sur une épaisseur d'environ 2 mm – à la scie diamantée. Ainsi, on s'affranchit du débit de dose beta externe reçu par l'échantillon, du fait de la radioactivité des sédiments encaissants. Cependant il arrive que les silex soient trop minces pour cela, comme cela a été le cas pour le site de Duclos (Auriac, Pyrénées Atlantiques) dans le cadre de la thèse de Marion Hernandez (épaisseur du silex : 0.5 cm). Compte tenu du faible nombre de pièces chauffées, nous avons simulé la radioactivité des sédiments afin de déterminer le débit de dose beta reçu par le silex (Fig. A1.7). Le tableau A1.3 présente les données numériques concernant la datation de ce silex et sont issues de la thèse de Marion Hernandez (CRPAA).

Ech.	débit de dose interne						débit de dose externe						
	K (%)	U (ppm)	Th (ppm)	Alpha ($\mu\text{Gy a}^{-1}$)	beta ($\mu\text{Gy a}^{-1}$)	total ($\mu\text{Gy a}^{-1}$)	beta ($\mu\text{Gy a}^{-1}$)	gamma ($\mu\text{Gy a}^{-1}$)	cosmique ($\mu\text{Gy a}^{-1}$)	total ($\mu\text{Gy a}^{-1}$)	débit de dose total ($\mu\text{Gy a}^{-1}$)	DE (Gy)	age (ka)
BDX1 2762	0.06 ± 0.02	1.97 ± 0.05	7.25 ± 0.2	301 ± 64	66 ±1	367 ± 64	65 ± 3	856 ± 7	213	1134 ± 7	1501 ± 64	254 ± 19	169 ± 19
Séd.	0.66 ± 0.02	3.17 ± 0.04	9.93 ± 0.12										

Tableau A1. 3 : données dosimétriques pour la datation de l'échantillon de silex Bdx 12762, prélevé à Duclos (Auriac, Pyrénées Atlantiques). Les simulations numériques ont permis de déterminer le débit de dose beta externe reçu par ce silex (cf. Fig. A1.7).

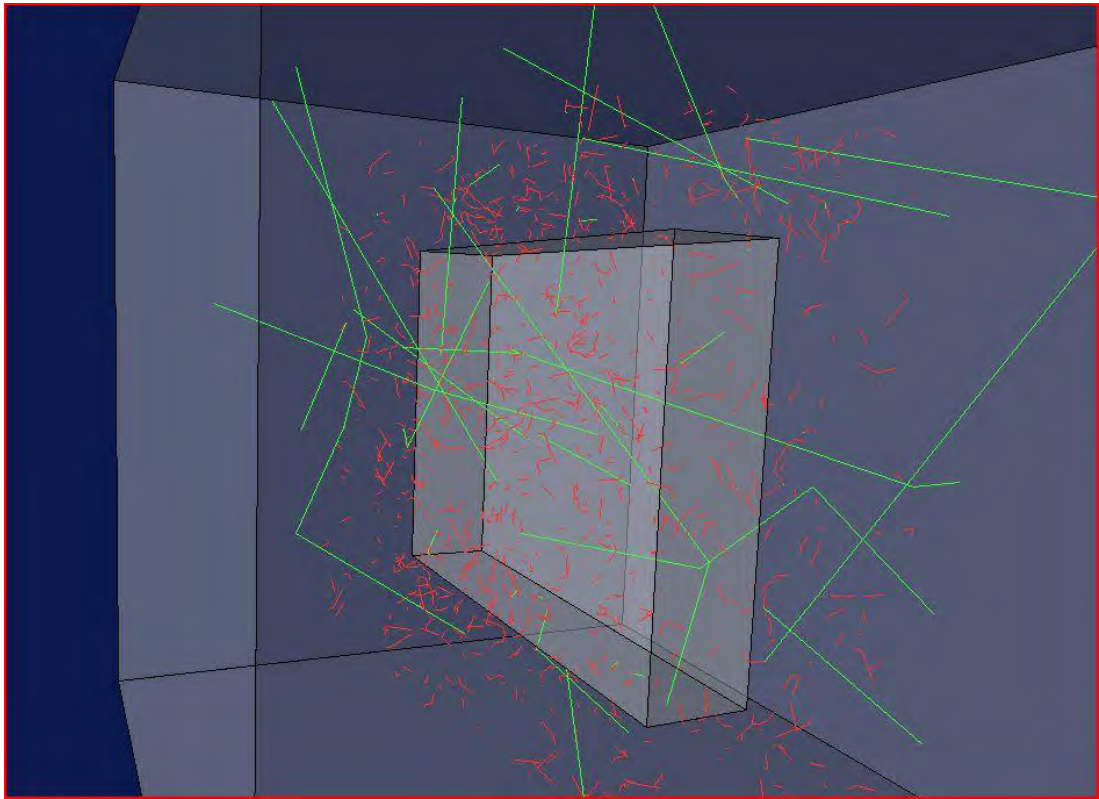


Figure A1.7 : irradiation beta d'un silex enfoui en milieu sédimentaire. Le silex est modélisé par un parallélépipède, de dimensions $a=0.5$ cm, $b=2$ cm et $c=3$ cm.

Annexe 2 : quatre codes développés avec GEANT4

Quatre programmes écrits en langage c++ et utilisant la boîte à outils GEANT4 sont fournis, au format numérique sur le CD accompagnant ce manuscrit, à l'attention d'éventuels utilisateurs : *K_gamma_detNaI*, *K_LaBrSurface*, *K_cube_poreux* et *LSD-R440-pottery-K-SG*. Ils ont respectivement permis de travailler sur : la technique du seuil en spectrométrie gamma (chapitre 4) ; la cartographie des débits de dose gamma au moyen de mesures non invasives (chapitre 6) ; l'effet de l'humidité des sédiments sur les débits de dose gamma (chapitre 7) et enfin la modélisation de la radioactivité gamma dans les milieux sédimentaires. Chaque programme est également fourni au format utilisé en pratique en annexe de la version numérique de cette thèse.

Pour chaque programme, les fichiers de code suivants sont fournis : le fichier principal ou *main* (*nom_programme.cc*), les fichiers de déclarations (*class.hh*) et les fichiers de définitions (*class.cc*). Le fichier principal doit être placé dans le répertoire principal, qui doit lui-même contenir deux dossiers : le premier est appelé *include* et contient les fichiers *.hh*, le second est appelé *src* et contient le fichier *.cc*.

Dans les fichiers correspondant, certains paramètres sont fixés – par exemple, comme leur nom l'indique, les programmes contenant la lettre K sont dédiés à la simulation de la radioactivité du potassium. Cela signifie que leurs pendants, avec les lettres U et Th, ont aussi été écrits ; si cela a induit une multiplication des programmes écrits, cela a permis d'exécuter les programmes en même temps au centre de calcul de l'IN2P3. Par ailleurs certains programmes nécessitent des fichiers de données supplémentaires, sont également fournis.

Les pages suivantes présentent les fichiers constituant le programme *K_gamma_detNaI*, accompagnés de commentaires permettant de faire le lien avec le chapitre 2.

Main

Ici sont définies les différentes classes implémentées dans le programme : *DetectorConstruction*, *EventAction*, *PhysicsList*, *PrimaryGeneratorAction*, *RunAction* et enfin *SteppingAction*, en plus du *Run Manager*, qui est initialisé. L'interface utilisateur et les outils de visualisation sont définis, et il est possible de travailler soit en mode interactif, soit en mode *batch*.

```
// -----  
//      K_gamma-detNaI  
// -----  
  
#include "G4RunManager.hh"  
#include "G4UImanager.hh"  
#include "G4UITerminal.hh"  
#include "G4UITcsh.hh"  
  
#include "DetectorConstruction.hh"  
#include "PhysicsList.hh"  
#include "PrimaryGeneratorAction.hh"  
#include "SteppingAction.hh"  
#include "RunAction.hh"  
#include "EventAction.hh"  
  
#ifdef G4VIS_USE  
#include "G4VisExecutive.hh"  
#endif  
  
int main(int argc, char** argv)  
{  
    // Construct the default run manager  
    //  
    G4RunManager* runManager = new G4RunManager;  
  
    // set mandatory initialization classes  
    //  
    G4VUserDetectorConstruction* detector = new DetectorConstruction;  
    runManager->SetUserInitialization(detector);  
    //  
    G4VUserPhysicsList* physics = new PhysicsList;  
    runManager->SetUserInitialization(physics);  
  
    // set mandatory user action class  
    //  
    G4VUserPrimaryGeneratorAction* gen_action = new PrimaryGeneratorAction;  
    runManager->SetUserAction(gen_action);  
  
    //  
    RunAction* run_action = new RunAction;  
    runManager->SetUserAction(run_action);  
  
    // la classe dérivée dispose du pointeur sur le run  
    SteppingAction* stepping_action = new SteppingAction (run_action);  
    runManager->SetUserAction(stepping_action);  
}
```



```

// la classe dérivée dispose du pointeur sur les actions pas à pas
EventAction* event_action = new EventAction (stepping_action, run_action);
runManager->SetUserAction(event_action);

// Initialize G4 kernel
//
runManager->Initialize();

//
system ("rm -rf donnees.dat");
system ("rm -rf EPerEvent.txt");

G4UImanager * UI = G4UImanager::GetUIpointer();
if (argc!=1) // batch mode
{
    G4String command = "/control/execute ";
    G4String fileName = argv[1];
    UI->ApplyCommand(command+fileName);
}

else // interactive mode : define visualization and UI terminal
{
#ifdef G4VIS_USE
    G4VisManager* visManager = new G4VisExecutive;
    visManager->Initialize();
#endif

    G4UISession * session = 0;
#ifdef G4UI_USE_TCSH
    session = new G4UITerminal(new G4UITcsh);
#else
    session = new G4UITerminal();
#endif
    UI->ApplyCommand("/control/execute vis.mac");
    session->SessionStart();
    delete session;

#ifdef G4VIS_USE
    delete visManager;
#endif
}

delete runManager;

return 0;
}

```

K_gamma-detNaI - DetectorConstruction.hh

Ce fichier permet de déclarer le constructeur et le destructeur de la classe *DetectorConstruction*, ainsi que les pointeurs vers les volumes logiques et physiques. Notons que dans chaque fichier de déclaration, le constructeur et le destructeur de la classe correspondante sont déclarés - cela ne sera plus précisé par la suite.

```
// $Id: DetectorConstruction.hh

#ifndef DetectorConstruction_H
#define DetectorConstruction_H 1

class G4LogicalVolume;
class G4VPhysicalVolume;
class G4Box;
class G4Material;

#include "G4VUserDetectorConstruction.hh"
#include "globals.hh"

class DetectorConstruction : public G4VUserDetectorConstruction
{
public:

    DetectorConstruction();
    ~DetectorConstruction();

    G4VPhysicalVolume* Construct();

private:

    // Logical volumes
    //
    G4LogicalVolume* sediment_log;
    G4LogicalVolume* detecteur_log;
    G4LogicalVolume* enveloppe_dural_log;

    // Physical volumes
    //
    G4VPhysicalVolume* sediment_phys;
    G4VPhysicalVolume* detecteur_phys;
    G4VPhysicalVolume* enveloppe_dural_phys;

};

#endif
```

K_gamma-detNaI - DetectorConstruction.cc

Dans ce fichier sont tout d'abord définis les éléments chimiques ainsi que les différents matériaux simulés. Dans le cas de ce programme, utilisé pour étudier les effets de variations dans la composition chimique des milieux sur la technique du seuil, en spectrométrie gamma de terrain, ces définitions sont particulièrement importantes, et nombreuses. Ensuite, les trois éléments de volume sont définis : les sédiments sont simulés par un cube (volume solide : *G4box*), dont la composition est choisie parmi les différents sédiments définis (volume logique), qui constitue le volume monde (volume physique). L'enveloppe de la sonde spectrométrique est un cylindre (volume solide : *G4tub*), constitué de Dural (volume logique), placé au centre du cube de sédiments (volume physique). Enfin la sonde à proprement parler est également un cylindre, constitué d'iodure de sodium, placé au centre de l'enveloppe.

```
// $Id: DetectorConstruction.cc,

#include "DetectorConstruction.hh"

#include "G4Material.hh"
#include "G4Box.hh"
#include "G4Tubs.hh"
#include "G4LogicalVolume.hh"
#include "G4ThreeVector.hh"
#include "G4PVPlacement.hh"
#include "G4SDManager.hh"
#include "globals.hh"

DetectorConstruction::DetectorConstruction()
: sediment_log(0), detecteur_log(0), enveloppe_dural_log(0),
  sediment_phys(0), detecteur_phys(0), enveloppe_dural_phys(0)
{;}

DetectorConstruction::~DetectorConstruction()
{
}

G4VPhysicalVolume* DetectorConstruction::Construct()
{
  //----- materials

  G4double a; // atomic mass
  G4double z; // atomic number
  G4double density, fractionmass;
  G4String name, symbol;
  G4int ncomponents, natoms;

  G4Element* H = new G4Element(name="Hydrogen", symbol="H", z= 1., a=
1.008*g/mole);
  G4Element* C = new G4Element(name="Carbon", symbol="C", z= 6, a=
12.01*g/mole);
  G4Element* N = new G4Element(name="Nitrogen", symbol="N", z= 7, a=
14.01*g/mole);
```

```

G4Element* O = new G4Element(name="Oxygen" ,symbol="O" , z= 8.,
a=16.00*g/mole);
G4Element* F = new G4Element(name="Fluorine" ,symbol="F" , z= 9.,
a=19.00*g/mole);
G4Element* Na = new G4Element(name="Sodium", symbol="Na", z= 11, a=
22.99*g/mole);
G4Element* Mg = new G4Element(name="Magnesium", symbol="Mg", z= 12, a=
24.31*g/mole);
G4Element* Al_element = new G4Element(name="Aluminum_element",
symbol="Al_element", z= 13, a= 27.0*g/mole);
G4Element* Si = new G4Element(name="Silicium", symbol="Si",z= 14., a=
28.09*g/mole);
G4Element* P = new G4Element(name="Phosphor", symbol="P", z= 15, a=
30.97*g/mole);
G4Element* S = new G4Element(name="Sulfur", symbol="S", z= 16, a=
32.07*g/mole);
G4Element* Cl = new G4Element(name="Chlorine", symbol="Cl", z= 17, a=
35.45*g/mole);
G4Element* K = new G4Element(name="Potassium", symbol="K", z= 19, a=
39.10*g/mole);
G4Element* Ca = new G4Element(name="Calcium", symbol="Ca", z= 20, a=
40.08*g/mole);
G4Element* Ti = new G4Element(name="Titane", symbol="Ti", z= 22, a=
47.87*g/mole);
G4Element* Mn = new G4Element(name="Manganese", symbol="Mn", z= 25, a=
54.94*g/mole);
G4Element* Fe = new G4Element(name="Iron", symbol="Fe", z= 26, a=
55.85*g/mole);
G4Element* Cu = new G4Element(name="Copper", symbol="Cu", z= 29, a=
63.55*g/mole);
G4Element* Br = new G4Element(name="Iodine", symbol="Br", z= 35, a=
79.904*g/mole);
G4Element* I = new G4Element(name="Iodine", symbol="I", z= 53, a=
126.90*g/mole);
G4Element* La = new G4Element(name="Lanthanum", symbol="La", z= 57, a=
138.91*g/mole);

G4Material* sediment_roc_de_marsal =
new G4Material("sediment_roc_de_marsal", density= 1.8*g/cm3,
ncomponents=14);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(C, fractionmass = 0.0837);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(O, fractionmass = 0.5211);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(Na, fractionmass = 0.0015);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(Mg, fractionmass = 0.0016);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(Al_element, fractionmass = 0.0198);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(Si, fractionmass = 0.0648);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(P, fractionmass = 0.0158);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(S, fractionmass = 0.0006);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(Cl, fractionmass = 0.0006);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(K, fractionmass = 0.0035);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(Ca, fractionmass = 0.2515);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(Ti, fractionmass = 0.0008);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(Mn, fractionmass = 0.0008);
sediment_roc_de_marsal->AddElement(Fe, fractionmass = 0.0339);

G4Material* sediment_roc_de_marsal_H2O =
//eau : 80 % du niveau de sat
new G4Material("sediment_roc_de_marsal_H2O", density= 2.069*g/cm3,
ncomponents=15);

```

```

sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(H, fractionmass = 0.0145);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(C, fractionmass = 0.0728);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(O, fractionmass = 0.5689);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(Na, fractionmass = 0.0013);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(Mg, fractionmass = 0.0014);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(Al_element, fractionmass = 0.0172);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(Si, fractionmass = 0.0564);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(P, fractionmass = 0.0137);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(Cl, fractionmass = 0.0005);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(S, fractionmass = 0.0005);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(K, fractionmass = 0.0030);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(Ca, fractionmass = 0.2189);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(Ti, fractionmass = 0.0007);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(Mn, fractionmass = 0.0007);
sediment_roc_de_marsal_H2O->AddElement(Fe, fractionmass = 0.0295);

G4Material* sediment_croix_de_canard =
  new G4Material("sediment_croix_de_canard", density= 1.8*g/cm3,
ncomponents=13);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(O, fractionmass = 0.5291);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(Na, fractionmass = 0.0020);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(Mg, fractionmass = 0.0046);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(Al_element, fractionmass = 0.0881);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(Si, fractionmass = 0.2771);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(P, fractionmass = 0.0011);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(S, fractionmass = 0.0005);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(Cl, fractionmass = 0.0001);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(K, fractionmass = 0.0155);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(Ca, fractionmass = 0.0048);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(Ti, fractionmass = 0.0061);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(Mn, fractionmass = 0.0010);
  sediment_croix_de_canard->AddElement(Fe, fractionmass = 0.0700);

G4Material* sediment_croix_de_canard_H2O =
//eau : 80 % du niveau de sat
  new G4Material("sediment_croix_de_canard_H2O", density= 2.05*g/cm3,
ncomponents=14);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(H, fractionmass = 0.0137);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(O, fractionmass = 0.5729);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(Na, fractionmass = 0.0017);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(Mg, fractionmass = 0.0040);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(Al_element, fractionmass =
0.0774);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(Si, fractionmass = 0.2433);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(P, fractionmass = 0.0010);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(S, fractionmass = 0.0004);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(Cl, fractionmass = 0.0001);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(K, fractionmass = 0.0136);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(Ca, fractionmass = 0.0042);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(Ti, fractionmass = 0.0054);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(Mn, fractionmass = 0.0009);
  sediment_croix_de_canard_H2O->AddElement(Fe, fractionmass = 0.0614);

G4Material* lave =
  new G4Material("lave", density= 1.8*g/cm3, ncomponents=11);
lave->AddElement(O, fractionmass = 0.4400);
lave->AddElement(Na, fractionmass = 0.0297);
lave->AddElement(Mg, fractionmass = 0.0392);
lave->AddElement(Al_element, fractionmass = 0.0847);

```

```

lave->AddElement(Si, fractionmass = 0.2187);
lave->AddElement(P, fractionmass = 0.0022);
lave->AddElement(K, fractionmass = 0.0166);
lave->AddElement(Ca, fractionmass = 0.0715);
lave->AddElement(Ti, fractionmass = 0.0120);
lave->AddElement(Mn, fractionmass = 0.0015);
lave->AddElement(Fe, fractionmass = 0.0839);

G4Material* lave_H2O = //eau : 80 %
du niveau de sat
  new G4Material("lave_H2O", density= 2.067*g/cm3, ncomponents=12);

lave_H2O->AddElement(H, fractionmass = 0.0144);
lave_H2O->AddElement(O, fractionmass = 0.4978);
lave_H2O->AddElement(Na, fractionmass = 0.0259);
lave_H2O->AddElement(Mg, fractionmass = 0.0341);
lave_H2O->AddElement(Al_element, fractionmass = 0.0738);
lave_H2O->AddElement(Si, fractionmass = 0.1905);
lave_H2O->AddElement(P, fractionmass = 0.0019);
lave_H2O->AddElement(K, fractionmass = 0.0144);
lave_H2O->AddElement(Ca, fractionmass = 0.0623);
lave_H2O->AddElement(Ti, fractionmass = 0.0105);
lave_H2O->AddElement(Mn, fractionmass = 0.0013);
lave_H2O->AddElement(Fe, fractionmass = 0.0731);

G4Material* sediment_diepkloof =
  new G4Material("sediment_diepkloof", density= 1.6*g/cm3,
ncomponents=15);
  sediment_diepkloof->AddElement(C, fractionmass = 0.2900);
  sediment_diepkloof->AddElement(N, fractionmass = 0.0120);
  sediment_diepkloof->AddElement(O, fractionmass = 0.3830);
  sediment_diepkloof->AddElement(F, fractionmass = 0.0050);
  sediment_diepkloof->AddElement(Na, fractionmass = 0.0190);
  sediment_diepkloof->AddElement(Mg, fractionmass = 0.0220);
  sediment_diepkloof->AddElement(Al_element, fractionmass = 0.0100);
  sediment_diepkloof->AddElement(Si, fractionmass = 0.0540);
  sediment_diepkloof->AddElement(P, fractionmass = 0.033);
  sediment_diepkloof->AddElement(S, fractionmass = 0.0070);
  sediment_diepkloof->AddElement(Cl, fractionmass = 0.041);
  sediment_diepkloof->AddElement(K, fractionmass = 0.019);
  sediment_diepkloof->AddElement(Ca, fractionmass = 0.097);
  sediment_diepkloof->AddElement(Ti, fractionmass = 0.0010);
  sediment_diepkloof->AddElement(Fe, fractionmass = 0.0070);

G4Material* sediment_diepkloof_H2O =
//eau : 80 % du niveau de sat
  new G4Material("sediment_diepkloof_H2O", density= 1.867*g/cm3,
ncomponents=16);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(H, fractionmass = 0.0160);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(C, fractionmass = 0.2485);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(N, fractionmass = 0.0103);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(O, fractionmass = 0.4551);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(F, fractionmass = 0.0043);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(Na, fractionmass = 0.0163);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(Mg, fractionmass = 0.0189);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(Al_element, fractionmass = 0.0086);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(Si, fractionmass = 0.0463);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(P, fractionmass = 0.0283);
  sediment_diepkloof_H2O->AddElement(S, fractionmass = 0.0060);

```

```

sediment_diepkloof_H2O->AddElement(Cl, fractionmass = 0.0351);
sediment_diepkloof_H2O->AddElement(K, fractionmass = 0.0163);
sediment_diepkloof_H2O->AddElement(Ca, fractionmass = 0.0831);
sediment_diepkloof_H2O->AddElement(Ti, fractionmass = 0.0009);
sediment_diepkloof_H2O->AddElement(Fe, fractionmass = 0.0060);

G4Material* LaBr =
new G4Material("LaBr", density= 5.29*g/cm3, ncomponents=2);
LaBr->AddElement(La, natoms=1);
LaBr->AddElement(Br, natoms=3);

G4Material* NaI =
new G4Material("NaI", density= 3.67*g/cm3, ncomponents=2);
NaI->AddElement(Na, natoms=1);
NaI->AddElement(I, natoms=1);

G4Material* Ge =
new G4Material("Germanium", z=32., a= 72.64*g/mole, density= 5.323*g/cm3);

G4Material* Al =
new G4Material("Aluminium", z=13., a= 27.*g/mole, density= 2.7*g/cm3);

G4Material* SiO2 =
  new G4Material("Quartz", density= 2.62*g/cm3, ncomponents=2);
SiO2->AddElement(Si, natoms=1);
SiO2->AddElement(O, natoms=2);

G4Material* Al2O3 =
  new G4Material("Alumine", density= 3.40*g/cm3, ncomponents=2);
Al2O3->AddElement(Al_element, natoms=2);
Al2O3->AddElement(O, natoms=3);

G4Material* sediment =
  new G4Material("Sediment", density= 2.00*g/cm3, ncomponents=13);
sediment->AddElement(Al_element, natoms=1);
sediment->AddElement(O, natoms=1);
sediment->AddElement(Si, natoms=1);
sediment->AddElement(Fe, natoms=1);
sediment->AddElement(K, natoms=1);
sediment->AddElement(Na, natoms=1);
sediment->AddElement(Mg, natoms=1);
sediment->AddElement(P, natoms=1);
sediment->AddElement(Ca, natoms=1);
sediment->AddElement(S, natoms=1);
sediment->AddElement(Ti, natoms=1);
sediment->AddElement(Mn, natoms=1);
sediment->AddElement(C, natoms=1);

G4Material* Dural =
  new G4Material("Dural", density= 2.8*g/cm3, ncomponents=3);
Dural->AddElement(Al_element, fractionmass = 0.95);
Dural->AddElement(Cu, fractionmass = 0.04);
Dural->AddElement(Mg, fractionmass = 0.01);

//----- volumes
//----- sediment (world volume)

```

```

    G4double sediment_x = 2.0*m;           // !!! il s'agit de la demi-arrete
du cube
    G4double sediment_y = 2.0*m;
    G4double sediment_z = 2.0*m;
    G4Box* sediment_box
      = new G4Box("sediment_box",sediment_x,sediment_y,sediment_z);
    sediment_log = new G4LogicalVolume(sediment_box,

sediment_roc_de_marsal_H2O,"sediment_log",0,0,0);
    sediment_phys = new G4PVPlacement(0,G4ThreeVector(),
                                      sediment_log,"sediment",0,false,0);

//----- enveloppe dural

    G4double innerRadiusOfTheTube = 0.*cm;
    G4double outerRadiusOfTheTube = 2.005*cm;
    G4double hightOfTheTube = 2.005*cm;           // !!! Il s'agit de la demi-
hauteur du cylindre
    G4double startAngleOfTheTube = 0.*deg;
    G4double spanningAngleOfTheTube = 360.*deg;
    G4Tubs* enveloppe_dural_tube = new
G4Tubs("enveloppe_detecteur",innerRadiusOfTheTube,
      outerRadiusOfTheTube,hightOfTheTube,

startAngleOfTheTube,spanningAngleOfTheTube);
    enveloppe_dural_log = new
G4LogicalVolume(enveloppe_dural_tube,Dural,"enveloppe_dural_log",0,0,0);
    G4double enveloppe_duralPos_x = 0.*m;           // le cylindre est place au
centre du cube
    G4double enveloppe_duralPos_y = 0.*m;
    G4double enveloppe_duralPos_z = 0.*m;
    enveloppe_dural_phys = new G4PVPlacement(0,

G4ThreeVector(enveloppe_duralPos_x,enveloppe_duralPos_y,enveloppe_duralPos_z
),
      enveloppe_dural_log,"enveloppe_dural",sediment_log,false,0);

//----- detecteur

    G4double innerRadiusOfTheTube_det = 0.*cm;
    G4double outerRadiusOfTheTube_det = 1.905*cm;
    G4double hightOfTheTube_det = 1.905*cm;           // !!! Il s'agit de la
demi-hauteur du cylindre
    G4double startAngleOfTheTube_det = 0.*deg;
    G4double spanningAngleOfTheTube_det = 360.*deg;
    G4Tubs* detecteur_tube = new
G4Tubs("detecteur_tube",innerRadiusOfTheTube_det,

outerRadiusOfTheTube_det,hightOfTheTube_det,

startAngleOfTheTube_det,spanningAngleOfTheTube_det);
    detecteur_log = new
G4LogicalVolume(detecteur_tube,NaI,"detecteur_log",0,0,0);
    G4double detecteurPos_x = 0.*m;           // le cylindre est place au
centre du cube
    G4double detecteurPos_y = 0.*m;
    G4double detecteurPos_z = 0.*m;
    detecteur_phys = new G4PVPlacement(0,
      G4ThreeVector(detecteurPos_x,detecteurPos_y,detecteurPos_z),

```



```
    detecteur_log,"detecteur",enveloppe_dural_log,false,0);  
return sediment_phys;  
}
```

K_gamma-detNaI - EventAction.hh

Ici sont déclarés des pointeurs vers les classes *SteppingAction* et *RunAction*, ainsi que les fonctions *BeginOfEventAction* et *EndOfEventAction*, permettant à l'utilisateur d'intervenir en début et en fin d'événement.

```
// $Id: EventAction.hh

#ifndef EventAction_h
#define EventAction_h 1

#include "G4UserEventAction.hh"

class G4Event;
class SteppingAction;
class RunAction;

//....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo..
....

class EventAction : public G4UserEventAction
{
protected:
    SteppingAction *step_action;
    RunAction      *run_action;

public:
    EventAction(SteppingAction *, RunAction *);
    ~EventAction();

public:
    void BeginOfEventAction(const G4Event*);
    void EndOfEventAction(const G4Event*);
};

#endif
```

K_gamma-detNaI - EventAction.cc

Ici sont définies les actions à effectuer en début et fin d'événement. Au début de chaque événement, les variables E et $EEvent$ sont remises à zéro ; en fin d'événement, les spectres de dépôt d'énergie sont incrémentés, ainsi que les variables `nbPhotEsup300keV` et `E_sup215keV` qui sont intéressantes afin d'étudier les techniques du seuil. De plus, tous les 100 millions d'événements, sont enregistrées l'énergie totale déposée, le nombre d'événements au cours desquels une énergie supérieure à 300 keV a été déposée dans le détecteur, et enfin l'énergie totale déposée lors d'événements au cours desquels une énergie supérieure à 215 keV a été déposée (pour plus d'explications, voir le chapitre 4).

```
// $Id: EventAction.cc,

#include "EventAction.hh"
#include "G4Event.hh"
#include "G4EventManager.hh"
#include "G4TrajectoryContainer.hh"
#include "G4Trajectory.hh"
#include "G4ios.hh"
#include <fstream>
#include <CLHEP/Random/Randomize.h>
#include "Randomize.hh"

#include "SteppingAction.hh"
#include "RunAction.hh"

using namespace std;

//.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo..

EventAction::EventAction( SteppingAction *step,
                          RunAction      *run )
{
    step_action = step;
    run_action  = run;
}

//.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo..
....

EventAction::~EventAction()
{}

//.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo..

void EventAction::BeginOfEventAction(const G4Event*)
{
    // RAZ des énergies déposées dans le détecteur (spectre)
    step_action->ResetE ( );
    run_action->SetEEvent(0.);
}

```

```

//.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo..
....

void EventAction::EndOfEventAction(const G4Event* evt)
{ ofstream fichier;
  ofstream fichier2;
  G4int event_id = evt->GetEventID();

  G4TrajectoryContainer* trajectoryContainer = evt-
>GetTrajectoryContainer();
  G4int n_trajectories = 0;
  if (trajectoryContainer) n_trajectories = trajectoryContainer->entries();
  {}

//Suivi de l'avancement de la simulation lorsque je lance bcp d'evts
//j'ecris tous les 100000000 evts le numero de l'evt dans le fichier
suivi.txt

if ((event_id+1)%100000000 == 0)
{
  G4double E_int = run_action->GetE_totale()/1000.;
  G4double E_int2 = run_action->GetE_sup215keV()/1000.;
  fichier.open("suivi.txt",ios::out | ios::app);
  fichier << event_id << "      " << E_int << "      " << E_int2 << G4endl;
  fichier.close();

  G4int nbPhot = run_action->GetnbPhotEsup300keV();
  fichier2.open("nbPhotEsup300keV.txt",ios::out | ios::app);
  fichier2 << nbPhot << G4endl;
  fichier2.close();

}

// incrémentation des spectres
run_action->SpecIncr ( step_action->GetE () );

if(run_action->GetEEEvent() !=0.)
{
  G4int canal = (G4int) run_action->GetEEEvent() ;
  run_action->EPerEvent[canal] += 1; //on augmente la valeur de 1
dans le canal voulu

  if(run_action->GetEEEvent()>=300.)
  {run_action->nbPhotEsup300keV +=1; //on compte le nombre
de photons déposant une énergie //supérieure à 300 keV
  }

  if(canal>=215.)
  {run_action->IncrE_sup215keV(canal); //on compte le nombre
de coups à E>= 215 keV
  }
}
}

```

```
run_action->SetEEEvent(0.);  
}
```

K_gamma-detNaI - PhysicsList.hh

Les fonctions permettant de construire les particules, les processus d'interactions, les valeurs seuil pour le suivi des particules, sont ici déclarées.

```
// $Id: PhysicsList.hh
// Construct/define particles and physics processes

#ifndef PhysicsList_h
#define PhysicsList_h 1

#include "G4VUserPhysicsList.hh"
#include "globals.hh"

class PhysicsList: public G4VUserPhysicsList
{
public:
    PhysicsList();
    ~PhysicsList();

protected:
    // Construct particle and physics process
    void ConstructParticle();
    void ConstructProcess();
    void SetCuts();

protected:
    // Construct particles and physics process
    void ConstructBosons();
    void ConstructLeptons();

    void ConstructGeneral();
    void ConstructEM();
};

#endif
```

K_gamma-detNaI - PhysicsList.cc

Les particules sont définies ici, ainsi que leurs processus d'interactions. Il s'agit des photons, qui interagissent par création de paires, effet Compton et effet photoélectrique (notons que la diffusion Rayleigh n'est pas simulée ici, contrairement aux programmes traitant des hétérogénéités sub-millimétriques - cf. chapitres 7 et 8) ; des électrons, qui interagissent par diffusion multiple, ionisation, bremsstrahlung ; enfin des positrons, qui interagissent comme les électrons, mais qui peuvent aussi s'annihiler avec un électron du milieu pour donner naissance à deux rayons gamma.

```
// $Id: PhysicsList.cc

#include "PhysicsList.hh"
#include "G4ParticleTypes.hh"
#include "G4ProcessManager.hh"
#include "globals.hh"

PhysicsList::PhysicsList()
{;}

PhysicsList::~PhysicsList()
{;}

void PhysicsList::ConstructParticle()
{
    ConstructBosons();
    ConstructLeptons();
}

void PhysicsList::ConstructBosons()
{
    G4Gamma::GammaDefinition();
}

void PhysicsList::ConstructLeptons()
{
    // leptons
    // e+/-
    G4Electron::ElectronDefinition();
    G4Positron::PositronDefinition();
}

void PhysicsList::ConstructProcess()
{
    // Define transportation process
    AddTransportation();
    ConstructEM();
}

#include "G4ComptonScattering.hh"
#include "G4GammaConversion.hh"
#include "G4PhotoElectricEffect.hh"

#include "G4MultipleScattering.hh"

#include "G4eIonisation.hh"
#include "G4eBremsstrahlung.hh"
#include "G4eplusAnnihilation.hh"
```

```

#include "G4StepLimiter.hh"
#include "G4UserSpecialCuts.hh"

void PhysicsList::ConstructEM()
{
  theParticleIterator->reset();
  while( (*theParticleIterator)() ){
    G4ParticleDefinition* particle = theParticleIterator->value();
    G4ProcessManager* pmanager = particle->GetProcessManager();
    G4String particleName = particle->GetParticleName();

    if (particleName == "gamma") {
      // gamma
      pmanager->AddDiscreteProcess(new G4PhotoElectricEffect);
      pmanager->AddDiscreteProcess(new G4ComptonScattering);
      pmanager->AddDiscreteProcess(new G4GammaConversion);

    }else if (particleName == "e-") {
      //electron
      pmanager->AddProcess(new G4MultipleScattering,-1, 1,1);
      //les chiffres correspondent a la priorite des interactions
      pmanager->AddProcess(new G4eIonisation,      -1, 2,2);
      pmanager->AddProcess(new G4eBremsstrahlung,  -1, 3,3);

    } else if (particleName == "e+") {
      //positron
      pmanager->AddProcess(new G4MultipleScattering,-1, 1,1);
      pmanager->AddProcess(new G4eIonisation,      -1, 2,2);
      pmanager->AddProcess(new G4eBremsstrahlung,  -1, 3,3);
      pmanager->AddProcess(new G4eplusAnnihilation,  0,-1,4);

    }
  }
}

void PhysicsList::SetCuts()
{
  SetCutsWithDefault(); //par default, la valeur du cut est fixee a 1 mm

  // Retrieve verbose level
  SetVerboseLevel(temp);
}

```


K_gamma-detNaI - PrimaryGeneratorAction.hh

La fonction permettant d'émettre les particules est déclarée : `GeneratePrimaries`, ainsi que le pointeur vers le `particleGun`.

```
// $Id: PrimaryGeneratorAction.hh

#ifndef PrimaryGeneratorAction_h
#define PrimaryGeneratorAction_h 1

#include "G4VUserPrimaryGeneratorAction.hh"
#include "globals.hh"

class G4ParticleGun;
class G4Event;
class G4RunManager;
class RunAction;

//class RunAction;

class PrimaryGeneratorAction : public G4VUserPrimaryGeneratorAction
{
    //enregistrement du rayon d'emission

public:
    PrimaryGeneratorAction();
    ~PrimaryGeneratorAction();

public:
    void GeneratePrimaries(G4Event* anEvent);
    // void RaySave();
    void EndOfPrimaryGeneratorAction();

    // G4int* GetRay_sp ();
    // G4int* GetTheta_sp ();

private:
    G4ParticleGun* particleGun;
};

#endif
```

K_gamma-detNaI - PrimaryGeneratorAction.cc

Dans le constructeur de cette classe ont été définis le type de particule à émettre (gamma) ainsi que leur énergie, unique dans le cas du potassium (1460.822 keV). Par la suite le tirage de la position d'émission et de la direction initiales des photons gamma est effectué de manière homogène - à l'intérieur d'une sphère de 70 cm - et isotrope, en utilisant les coordonnées sphériques et en suivant la méthode de rejet de von Neumann (1951). Une condition est imposée sur la position d'émission : l'événement n'est pas généré si la position initiale du photon gamma est à l'intérieur du spectromètre - incluant son enveloppe en Dural.

```
// $Id: PrimaryGeneratorAction.cc

#include "PrimaryGeneratorAction.hh"

#include "G4Event.hh"
#include "G4ParticleGun.hh"
#include "G4ParticleTable.hh"
#include "G4ParticleDefinition.hh"
#include "globals.hh"
#include "Randomize.hh"
#include "G4RunManager.hh"

#include "RunAction.hh"

#include <iostream>
#include <fstream>
using namespace std;

PrimaryGeneratorAction::PrimaryGeneratorAction()
{
    G4int n_particle = 1;
    particleGun = new G4ParticleGun(n_particle);

    G4ParticleTable* particleTable = G4ParticleTable::GetParticleTable();
    G4String particleName;
    particleGun->SetParticleDefinition(particleTable-
>FindParticle(particleName="gamma")); //on émet un gamma
    particleGun->SetParticleEnergy(1460.822*keV); //energie

    //elements premettant d'enregistrer le rayon et l'angle theta
    d'emission des particules primaires
}

PrimaryGeneratorAction::~~PrimaryGeneratorAction()
{
    delete particleGun;
}

void PrimaryGeneratorAction::GeneratePrimaries(G4Event* anEvent)
{
    // tirage aléatoire de la position et la direction d'émission
    G4int i = anEvent->GetEventID();
    G4double Pi = 3.14159;

    // direction
    G4double theta ;
```

```

G4bool test0 = false;
while (test0 == false)
{
    G4double rand_theta = Pi*G4UniformRand()*rad;
    G4double rand_sin_theta = G4UniformRand();
    if (rand_sin_theta < sin(rand_theta))
        {theta = rand_theta;
         test0 = true;}
}

G4double phi = 2*Pi*G4UniformRand()*rad;

G4double p_x = 1.0*sin(theta)*cos(phi);
G4double p_y = 1.0*sin(theta)*sin(phi);
G4double p_z = 1.0*cos(theta);

    // tirage aléatoire de la position d'émission
G4double theta_pos ;
G4double rayon;
G4double r_em = 70.0*cm;
G4double phi_pos;
G4double x0;
G4double y0;
G4double z0;

G4bool test_pos = false;
while (test_pos == false)
{

    G4bool test1 = false;
    while (test1 == false)
    {
        G4double rand_theta_pos = Pi*G4UniformRand()*rad;
        G4double rand_sin_theta_pos = G4UniformRand();
        if (rand_sin_theta_pos < sin(rand_theta_pos))
            {theta_pos = rand_theta_pos;
             test1 = true;}
    }

    phi_pos = 2*Pi*G4UniformRand()*rad;

    // tirage du rayon d'emission (le rayon de la sphere dans laquelle on
effectue le tirage est fixe
    // au debut du run)
    G4bool test = false ;
    while (test == false)
    {
        G4double Rand_X = G4UniformRand();
        G4double Rand_Y = G4UniformRand();
        if (Rand_Y < (Rand_X)*(Rand_X))
            {rayon = r_em*Rand_X;
             test = true;}
    }

    G4double x = rayon*sin(theta_pos)*cos(phi_pos);
    G4double y = rayon*sin(theta_pos)*sin(phi_pos);
    G4double z = rayon*cos(theta_pos);

    if ((x*x+y*y)>362.9) || (abs(z)>19.05)) //tirage en dehors du
détecteur (ici un NaI de 1.5"*1.5")
    {test_pos = true;
     x0 = x;
     y0 = y;
     z0 = z;
}

```

```
        }  
    }  
  
    //position  
    //x0 = rayon*sin(theta_pos)*cos(phi_pos);  
    //y0 = rayon*sin(theta_pos)*sin(phi_pos);  
    //z0 = rayon*cos(theta_pos);  
  
    // émission de la particule  
    particleGun->SetParticlePosition(G4ThreeVector(x0, y0, z0));  
    particleGun->SetParticleMomentumDirection(G4ThreeVector(p_x,p_y,p_z));  
    particleGun->GeneratePrimaryVertex(anEvent);  
}
```

K_gamma-detNaI - RunAction.hh

Ici sont déclarées un grand nombre de variables utilisées lors de l'exécution des programmes, en particulier les variables permettant d'enregistrer les spectres de dépôts d'énergie, l'énergie totale déposée, de fixer et récupérer le rayon d'émission des particules primaires. De plus, les fonctions permettant de réinitialiser, incrémenter et sauvegarder les spectres sont également déclarées, et pour certaines, définies dans ce fichier. Notons que plusieurs versions de l'enregistrement des spectres ont été utilisées dans le cadre de ce travail, d'où certaines définitions pouvant paraître redondantes.

```
// $Id: RunAction.hh

#ifndef RunAction_h
#define RunAction_h 1

#include "G4UserRunAction.hh"
#include "globals.hh"
#include <string.h>

//....ooo0000ooo.....ooo0000ooo.....ooo0000ooo.....ooo0000ooo..
....

class G4Run;

class RunAction : public G4UserRunAction
{
    //spectre de l'energie deposee
protected:
    G4int      sp_dim;
    G4double   sp_max;
    G4int      sp_coef;
    G4int      *sp_e;

    // énergie totale déposée dans le détecteur
    G4double   E_totale;
    G4double   E_nonionisante;
    G4double   E_sup215keV;

    //rayon de la sphere d'emission
public :
    G4double   rayon_em;
    G4double   GetRayon_em(){return rayon_em;}

public:
    RunAction ();
    ~RunAction ();

public:
    void BeginOfRunAction(const G4Run*);
    void EndOfRunAction(const G4Run*);

    //spectre de l'energie deposee
    void SpecClear ( );
    void SpecIncr  ( G4double ener );
    void SpecSave  ( const char *filename );

    void RaySave   ( const char *filename );
    void ThetaSave ( const char *filename );
};
```

```

    // remise à zéro de l'énergie totale et sup 215 keV (en début de run)
void ResetE_totale ( );
void ResetE_sup215keV ( );

// incrémente l'énergie totale
void IncrE_totale (const G4double val );
void IncrE_sup215keV (const G4double val );

// retourne l'énergie totale
G4double GetE_totale ();
G4double GetE_sup215keV ();

G4float* GetEPerEvent();
void SetEEvent(G4float myE) {EEvent = myE;}
void AddEEvent(G4float myE) {EEvent += myE;}
G4float GetEEvent() {return (EEvent);}
void SaveEPerEvent ( const char *filename );
G4float *EPerEvent;
G4float EEvent;
G4int      EPerEvent_dim;

G4int nbPhotEsup300keV;
G4int GetnbPhotEsup300keV() {return (nbPhotEsup300keV);}

};

//.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo..
....

// remise à zéro de l'énergie totale (en début de run)
inline void RunAction::ResetE_totale ( )
    { E_totale = 0.; }

// incrémente l'énergie totale
// val: énergie à sommer
inline void RunAction::IncrE_totale (const G4double val )
    {E_totale += val;}

// retourne l'énergie totale emmagasinée
inline G4double RunAction::GetE_totale ()
    { return (E_totale) ; }

// remise à zéro de l'énergie sup 215 keV (en début de run)
inline void RunAction::ResetE_sup215keV ( )
    { E_sup215keV = 0.; }

// incrémente l'énergie totale
// val: énergie à sommer
inline void RunAction::IncrE_sup215keV (const G4double val )
    {E_sup215keV += val;}

// retourne l'énergie totale emmagasinée
inline G4double RunAction::GetE_sup215keV ()
    { return (E_sup215keV) ; }

#endif

```

K_gamma-detNaI - RunAction.cc

Le constructeur de cette classe permet d'initialiser un certain nombre de paramètres, tels que la dimension des spectres et le nombre d'événements au cours desquels une énergie supérieure à 300 keV a été déposée. Le générateur de nombre aléatoire *RanecuEngine* (de la distribution CLHEP) est initialisé en début d'exécution, dans ce programme - qui n'a jamais été exécuté au centre de calcul - à partir de l'heure à laquelle le programme est lancé. A la fin de l'exécution des programmes, les spectres sont sauvegardés dans un fichier externe. Enfin des fonctions permettant d'accéder aux spectres et de les modifier sont définies ici. Notons que les fonctions `SpecClear`, `SpecIncr` et `SpecSave`, associées à la variable `sp_e`, qui ne sont pas utilisées dans la version actuelle de ce programme, n'ont pas été supprimées.

```
// $Id: RunAction.cc

#include "RunAction.hh"
#include "PrimaryGeneratorAction.hh"
#include "SteppingAction.hh"
#include "G4Run.hh"
#include "Randomize.hh"
#include "G4UnitsTable.hh"
#include <time.h>
#include "G4RunManager.hh"
#include "G4VUserPrimaryGeneratorAction.hh"
#include <iostream>
#include <fstream>
using namespace std;

RunAction::RunAction()
{
    sp_dim = 2000;
    sp_max = 2000.;
    sp_coef = (G4int) (sp_dim/sp_max);
    sp_e = new G4int [sp_dim];

    EPerEvent_dim = 4000;
    EPerEvent = new G4float [EPerEvent_dim];

    nbPhotEsup300keV = 0;
}

RunAction::~RunAction()
{
    delete [] EPerEvent;
}

void RunAction::BeginOfRunAction(const G4Run* aRun)
{
    // initialisation des spectres
    ResetE_totale ( );
    ResetE_sup215keV ( );

    CLHEP::HepRandom::setTheEngine(new CLHEP::RanecuEngine);
    std::fstream randomFile;
    randomFile.open("/dev/urandom", std::ios::in | std::ios::binary);
```

```

//unsigned int seed1;
long mySeed;
randomFile.read(reinterpret_cast<char *>(&mySeed), sizeof(unsigned int));
randomFile.close();
//G4cout << "Random seed is " << seed << G4endl;
CLHEP::HepRandom::setTheSeed(mySeed);
CLHEP::HepRandom::showEngineStatus();
}

void RunAction::EndOfRunAction(const G4Run*)
{
    SaveEPerEvent ( "EPerEvent.txt" );
}

//.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo..
....

void RunAction::SpecClear( ) //remise à zéro
{
    for (G4int i = 0; i < sp_dim; ++i)
    {
        sp_e[i] = 0;
    }
}

void RunAction::SpecIncr(G4double ener )
{
    G4int canal = (G4int) ener * sp_coef ;

    if (canal >= sp_dim) canal = sp_dim-1;
    if (canal < 0) canal = sp_dim-2;

    sp_e[canal] += 1; //on augmente la valeur de 1 dans le canal
voulu
}

void RunAction::SpecSave( const char *filename )
{
    ofstream fichier;
    G4cout << "Sauvegarde dans le fichier " << "donnees.dat" << G4endl;
    fichier.open("donnees.dat",ios::out | ios::app);

//Ecriture dans le fichier de sortie

    for (G4int i = 0; i < sp_dim; ++i)
    {
        fichier << G4float(i)*1.0 << " " << G4float(sp_e[i])*1.0 << G4endl;
    }
    fichier.close();

    G4int prec = G4cout.precision(4);
    G4cout << "l'energie deposee dans le detecteur vaut " <<
G4BestUnit((GetE_totale()/1000.), "Energy") << G4endl ; //énergie totale
déposée dans le détecteur
    G4cout << GetnbPhotEsup300keV() << " photons ont depose une energie
superieure a 300 keV dans le detecteur"
<< G4endl;
    G4cout << "l'energie deposee au-dela de 215 keV vaut " <<
G4BestUnit((GetE_sup215keV()/1000.), "Energy") << G4endl ;
}

void RunAction::SaveEPerEvent( const char *filename )
{
    G4cout << "Sauvegarde dans le fichier " << "EPerEvent.txt" << G4endl;
    ofstream file;
    file.open("EPerEvent.txt",ios::out | ios::app);
    for (G4int i=0; i < 4000; ++i)
    {
        file << EPerEvent[i] << G4endl;
    }
}

```



```
    }  
    file.close();  
}
```

K_gamma-detNaI - SteppingAction.hh

Ici sont déclarées, outre des pointeurs vers les autres classes, différentes variables permettant d'initialiser, incrémenter et obtenir les valeurs d'énergies d'énergie déposée dans les zones d'intérêt de la géométrie simulée.

```
// $Id: SteppingAction.hh

#ifndef SteppingAction_h
#define SteppingAction_h 1
#include "G4SteppingVerbose.hh"
#include "G4UserSteppingAction.hh"

class RunAction;

//.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo.....ooo00000ooo..
....

class SteppingAction : public G4UserSteppingAction
{
protected:
    RunAction      *run_action;

    // énergie déposée par événement dans le détecteur (spectre)
    G4double      Ege;

public:
    SteppingAction(RunAction *);
    ~SteppingAction(){};

    void UserSteppingAction(const G4Step* /*, const G4VProcess**/);
    void TrackingStarted();

    // remise à zéro de l'énergie stockée par le détecteur (en début
d'événement) (spectre)
    void ResetE ( );

    // incrémente l'énergie pour le détecteur(spectre)
    void IncrE (const G4double val );

    // retourne l'énergie pour le détecteur(spectre)
    G4double GetE ( );
};

// remise à zéro de l'énergie stockée par le détecteur (en début
d'événement) (spectre)
inline void SteppingAction::ResetE ( )
{ Ege = 0.;}

// incrémente l'énergie (spectre)
// val: énergie à sommer
inline void SteppingAction::IncrE (const G4double val )
{Ege += val;}

// retourne l'énergie (spectre)

inline G4double SteppingAction::GetE ( )
{ return (Ege) ; }

#endif
```

K_gamma-detNaI - SteppingAction.cc

Cette classe permet de suivre les particules, dont les interactions avec la matière sont simulées, à l'échelle la plus fine. C'est donc ici que l'on regarde si la particule est dans le détecteur ou pas : si c'est le cas, on incrémente les spectres de dépôt d'énergie ainsi que l'énergie totale déposée. Pour cela, on accède à la trace de la particule, récupère le nom du volume dans lequel elle se trouve, et en récupérant la valeur de l'énergie déposée au cours du pas considérée, on peut incrémenter les spectres. Notons que dans cette version du fichier, on accède également au processus d'interaction simulé au cours de ce pas, bien que dans ce programme cette information ne soit pas utilisée. Enfin, soulignons le fait que dans ce cas, c'est le nom du volume physique du détecteur qui est utilisé pour définir les dépôts d'énergie intéressants.

```
// $Id: SteppingAction.cc

#include "G4SteppingVerbose.hh"
#include "SteppingAction.hh"
#include "RunAction.hh"
#include "G4SteppingManager.hh"
#include <fstream>
#include "G4ParticleDefinition.hh"
#include "G4VPhysicalVolume.hh"
#include "Randomize.hh"
#include "G4Track.hh"
#include "G4VProcess.hh"
#include <CLHEP/Random/Randomize.h>
using namespace std;

//.....ooo0000ooo.....ooo0000ooo.....ooo0000ooo.....ooo0000ooo..
....

SteppingAction::SteppingAction(RunAction *run):run_action(run)
{
    G4cout << "*** SteppingAction CREATION" << G4endl;

    // à priori, ça ne devrait pas être nécessaire, puisque la RAZ
    // doit de toute façon se faire au début de chaque événement
    ResetE();
}

//.....ooo0000ooo.....ooo0000ooo.....ooo0000ooo.....ooo0000ooo..
....

void SteppingAction::UserSteppingAction(const G4Step* aStep)
{
    ofstream fichier;

    G4Track* track = aStep->GetTrack();
    G4String det_name = track->GetVolume()->GetName();
    G4StepPoint* point = aStep->GetPostStepPoint();
    const G4VProcess* aProcess = point->GetProcessDefinedStep();
    G4String process_name = aProcess->GetProcessName();

    //ici je récupère l'énergie des particules chargée perdue dans le
    détecteur.
    if (det_name == "détecteur")
    {
```

```
IncrE (aStep->GetTotalEnergyDeposit()/keV );  
run_action->IncrE_totale (aStep->GetTotalEnergyDeposit()/keV  
);  
run_action->AddEEEvent (aStep->GetTotalEnergyDeposit()/keV );  
}  
}
```


Modélisation et simulations numériques des effets dosimétriques dans les sédiments quaternaires : application aux méthodes de datation par luminescence.

GUILLAUME GUERIN

Résumé

Si les recherches sur la détermination des doses équivalentes ont fait d'énormes progrès en datation par luminescence durant ces dernières années, on ne peut pas en dire autant des travaux sur les débits de dose. Dans ce travail, l'outil de simulation numérique des interactions particules-matière GEANT4 a été mis à profit afin d'étudier les hétérogénéités des milieux sédimentaires.

Une série d'expériences virtuelles a permis d'affiner une technique de spectrométrie gamma de terrain, pour laquelle la précision et la justesse des mesures ont été améliorées tout en réduisant les temps de mesure. Ces résultats ont été validés par la calibration expérimentale d'un spectromètre gamma portable. Une technique de cartographie des débits de dose gamma dans les sols, non invasive et compatible avec les fouilles archéologiques, a été proposée.

A l'échelle des grains, les simulations numériques des effets dosimétriques ont révélé la validité limitée du concept de matrice infinie, largement utilisé en datation paléodosimétrique. Un ensemble de facteurs influençant les débits de dose reçus par des grains de sédiment a été identifié : il s'agit des facteurs de géométrie. Des outils ont été développés afin de quantifier les effets microdosimétriques associés.

Enfin, la thermoluminescence et la luminescence optique ont été appliquées à l'étude du gisement Paléolithique du Roc de Marsal. Les résultats chronologiques ont permis de replacer les occupations humaines et leur contexte environnemental, climatique, sur l'axe du temps et en regard des variations climatiques terrestres.

***Mots-clés :** dosimétrie ; thermoluminescence ; luminescence optique ; radioactivité des sols ; simulations Monte Carlo des interactions particules-matière ; GEANT4 ; Paléolithique moyen ; paléoenvironnements.*

Abstract

Whereas research on the determination of equivalent doses has made significant progress in the field of luminescence dating during the last decade, research on dose rates has severely lagged behind. The particle-matter simulation toolkit GEANT4 was here been used to study the effects of heterogeneities in sedimentary media.

A series of virtual experiments was designed to refine a field gamma spectrometry technique, improving accuracy and precision while reducing counting times. These results were used for the experimental calibration of a gamma ray probe. A technique, which is non invasive and compatible with archaeological excavations, was proposed for mapping gamma dose rate in soils.

On a grain scale, numerical simulations of dosimetric effects revealed the limited validity of the widely used concept of infinite matrix in palaeodosimetric dating. A new set of factors influencing dose rates to sedimentary grains were identified, and called geometry factors. Adequate tools for quantifying the corresponding microdosimetry effects were developed.

Finally, thermoluminescence and optically stimulated luminescence were applied to the chronology of the Paleolithic site of the Roc de Marsal. The results were used to provide a chronological frame for the human occupations and their climatic and environmental contexts, in regard of past global climate variations.

***Key-words:** dosimetry; optically stimulated luminescence; thermoluminescence ; radioactivity of soils; Monte Carlo simulations of particle-matter interactions; GEANT4 ; Middle Paleolithic; palaeoenvironments.*