

Géochimie (Géochronologie)

Nouveaux éléments de chronologie du volcanisme Pléistocène du bas Vivarais (Ardèche, France) par thermoluminescence

Gilles Guérin ^{a,*}, Pierre-Yves Gillot ^b

^a Direction des sciences de la matière, CEA-Saclay, 91190 Gif-sur-Yvette cedex, France

^b Laboratoire IDES UMR 8148 CNRS, université Paris-Sud-Orsay, 91405 Orsay cedex, France

Reçu le 14 février 2006 ; accepté après révision le 24 octobre 2006

Disponible sur Internet le 30 janvier 2007

Présenté par Georges Pédro

Résumé

La province du bas Vivarais (Ardèche, France) est l'une des plus récentes du Massif central français. Les âges de fonctionnement de cette province restent peu connus, bien que les études paléomagnétiques aient proposé l'existence de seulement trois phases, de courtes durées. De nouvelles datations ont été réalisées par thermoluminescence (TL) sur des plagioclases et des quartz. Ces résultats chronologiques, joints à ceux d'études précédentes (également basées sur des datations par luminescence) renforcent l'hypothèse de trois courtes phases d'activité et fournissent la première estimation pour l'âge de la phase ancienne. Les meilleures estimations de l'âge de ces phases sont $45\,400 \pm 3200$ ans, $78\,800 \pm 5300$ ans et $166\,000 \pm 15\,000$ ans. Cette province présente donc des périodes de repos atteignant 90 000 ans et constitue un exemple de volcanisme intracontinental de faible ampleur dont les manifestations éruptives ont un caractère sporadique très marqué, un style de fonctionnement qui semble fréquent en Europe. **Pour citer cet article :** G. Guérin, P.-Y. Gillot, C. R. Geoscience 339 (2007).

© 2006 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

Abstract

New elements of chronology of 'Bas Vivarais' Pleistocene volcanism (Ardèche, France) by thermoluminescence dating. The 'Bas Vivarais' (Ardèche, France) is one of the most recent volcanic provinces in the French Massif Central. The age of this province is still poorly known and previous palaeomagnetic studies have proposed the existence of only three short periods of activity. New thermoluminescence (TL) dating measurements on plagioclase and quartz were performed. Previous chronological data (also based on luminescence dating) and our results support the hypothesis of three short-duration periods of activity and give the first numerical age of the older phase. Best age estimates are 45.4 ± 3.2 ka, 78.8 ± 5.3 ka, and 166 ± 15 ka for the three phases of activity. With dormancy periods up to 90,000 years, this province is an example of a small-size intra-continental volcanism displaying a very sporadic activity, a way of functioning that seems frequent in western Europe. **To cite this article:** G. Guérin, P.-Y. Gillot, C. R. Geoscience 339 (2007).

© 2006 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

Mots clés : Volcanologie ; Datation ; Feldspath ; Quartz ; Thermoluminescence ; Pléistocène ; Ardèche ; France

Keywords: Vulcanology; Dating; Feldspar; Quartz; Thermoluminescence; Pleistocene; Ardèche; France

* Auteur correspondant.

Adresse e-mail : gilles.guerin@geol.u-psud.fr (G. Guérin).

Abridged English version

In the French Massif Central, the ‘Bas Vivarais’ province is the second largest volcanic field after the ‘Chaîne des Puys’. With almost 15 eruptive centres, it spreads over 500 km² [9]. This volcanism is characterised by phreatomagmatic phases (maar) preceded or followed by Strombolian activity responsible for long alkaline basaltic lava flows containing many mantellic and basement xenoliths.

Geologists have long ago acknowledged that the ‘Bas Vivarais’ volcanism is very recent. Relative chronology is mainly based on palaeomagnetism studies that were newly extended to the northern part of the province [20]. These studies confirmed previous ones and strongly suggested that volcanic activity took place during three short eruptive periods. However, ages are poorly known, because the absolute chronology of activity has to cope with some methodological difficulties. This volcanism is too old to be dated by using ¹⁴C techniques and K–Ar dating measurements cannot be achieved because of the presence of many basement xenoliths (granite for instance) that contribute to a contamination by radiogenic argon. In fact, until now, only luminescence techniques have allowed either direct dating of lava flows by using plagioclase microcrystals [11] or by using quartz extracted from pyroclastic falls attributed to these volcanoes [21].

In order to improve the accuracy of ages of the southern part of the volcanic field and to estimate those, still unknown, of the northern volcanoes, thermoluminescence (TL) dating measurements were carried out. Sampling was done (Fig. 1) in order to get at least one sample for each of the volcanic phases suggested by palaeomagnetic studies.

Each sample was prepared to extract a fraction of plagioclase microcrystals of 80–125 μm in size. A special attention was paid to eliminate potassic feldspar coming from granite xenoliths. A representative aliquot of the whole rock was kept for gamma spectrometry measurements. TL is measured in the ultraviolet domain (326 nm) by using two joined glass filters (H326c from the MTO company). These filters allow measurements of the 650 °C TL emission (HTTL), a temperature domain where there is strong evidence that plagioclase feldspars are not significantly affected by fading [11,12]. TL glow curves are shown in Fig. 2. Three samples display a typical glow curve of volcanic plagioclase. Sample 64D does not emit any significant light and 64E has a glow curve strongly disturbed by potassic feldspars.

The determination of the palaeodose is made by using a standard multiple-aliquot protocol [1]. Radia-

tion doses are delivered by a ¹³⁷Cs (1.24 Gy min⁻¹) gamma source. Before measurement, each aliquot is preheated at 560 °C during 40 s (sufficient to suppress low-temperature TL emissions). For each sample, at least two added doses are delivered to sets of natural TL aliquots (generally six to eight in each set). This allows us to extrapolate (using a linear model of growth of the TL with radiation dose) an apparent dose. A linearity correction is applied to this apparent dose. This correction is evaluated using sets of bleached aliquots of natural TL heated at 750 °C in nitrogen atmosphere for 40 s. These sets are used to determine the growth curve of TL with the radiation dose and to estimate the nonlinearity effects (supralinearity) on apparent dose extrapolation. Samples 64B and 64C have a similar and usual behaviour for volcanic plagioclase. The palaeodose plateau test is satisfied for 64C (Fig. 3), with no major linearity corrections. However, 64B and 64A (at a higher degree) are at the onset of saturation and plateau tests are satisfied when nonlinearity effects of the growth curve are taken into account.

Sample 64E contains granite xenoliths of rather uniform size ranging from 1 to 5 mm. Similar to the inclusion method [10], a light and colourless fraction was first extracted using heavy liquids and magnetic separation (Frantz). Made of quartz and feldspar, this fraction was etched by 40% HF during 40 min. This removed the outer part of quartz grains (suppressing the contribution of alpha radiation to the annual dose rate) and destroyed feldspars. This fraction was subsequently ground to a convenient 80–125 μm size and at last around 150 mg of pure quartz were obtained. The palaeodose was measured using red-TL properties [14,17,18] in the 610 nm spectral domain; measurements made on the 370 °C peak are very reproducible. Each aliquot was preheated at 270 °C for 20 s before TL reading. This quartz sample is not affected by saturation in the range of radiation dose (up to 250 Gy) that we used to determine the palaeodose, and its sensitivity remains approximately the same before and after annealing at 450 °C. The plateau test is satisfied between 320 and 410 °C in the same conditions as described by different authors [17,18].

The annual dose rates were computed [3] using U, Th and K concentrations measured by gamma spectrometry (Table 1). An estimation of the contribution of cosmic rays [19] was taken into account. In the case of plagioclase microcrystals, alpha particles contribute to annual dose rates. As the efficiency of alpha particles to produce TL is different from that of beta or gamma radiations, an equivalence factor is used to compute the annual internal as well as external dose rates [11,12].

This factor is determined for each sample (Table 2). In the case of the quartz sample (64E), the internal dose has been neglected because quartz usually contains very low U and Th concentrations. As the quartz grains come from small xenoliths (granite) having U, Th and K concentrations higher than the host lava, the beta dose rate calculated using U, Th and K concentrations of the lava itself is lower than the true beta dose rate. We have chosen to keep this estimate of the beta dose rate, because a more accurate evaluation would have required to measure precisely the average initial size of quartz in the xenoliths, the type and size of the xenoliths and their U and Th contents, a very complex study in itself, with little improvement of age accuracy. For these reasons, the 64E annual total dose rate quoted in Table 2 is limited to an underestimate of the actual one.

The results of TL dating measurements are summarised in Table 3 and can be compared to those already published. The two ages of samples coming from the northern part of the province are compatible. This is in agreement with the relative chronology based on geomorphology arguments suggesting that these two volcanoes are almost coeval (palaeomagnetism data) and are the oldest in the ‘Bas Vivarais’ (cinder cone morphology and river erosion levels). The new dating of ‘La Gravenne de Montpezat’ confirms previous HTTL plagioclase dating measurements. The study of quartz from the Souilhoul volcano gives a new upper limit of 53.2 ka, which completes the lower limit of the ^{14}C determination, i.e. 35,000 yr BP. This agrees with an estimate of 44.1 ± 9.1 ka for the age of this volcano. This is consistent with previous dating of ‘La Vestide du Pal’, which belongs to the most recent group of volcanoes.

Following the conclusions of palaeomagnetism studies, suggesting three short and distinct volcanic activity periods, the data in Table 3 can be gathered. Measurements being statistically independent, estimates of the age of each volcanic phase can be calculated using the weighted means of individual ages. Thus, best estimates of the ages of these phases are 45.4 ± 3.2 , 78.8 ± 5.3 and 166 ± 15 ka.

The ‘Bas Vivarais’ province is characterised by a continental basaltic volcanism having dormancy periods of long duration (90,000 yr between the older and intermediary phase, 30,000 yr between the two more recent phases, and no volcanic activity since 45,000 yr). Each phase, of small volume, leads to the construction of three to six volcanic centres. This feature is associated with a small time of residence of the magma in the upper crust [5]. These results confirm that the ‘Bas Vivarais’ should not be considered as an extinct

volcanic district, but as a district having a very low probability of eruption, in the order of 10^{-4} to 10^{-5} event per year.

This behaviour could be called ‘sporadic continental volcanism’ and seems to be widely represented in continental western Europe: for instance, on the border of the French Massif Central, at the boundary of the Mont-Dore massif and the Cézallier plateau [13] and in the Limagne graben [18]. The Late Quaternary volcanism of northern Catalonia clearly displays this behaviour as well as the Rhine Valley volcanism (Eifel). The French ‘Chaîne des Puys’ appears to be an exception, but in this case the strong fractional crystallisation of the magma implies the existence of crustal shallow reservoirs that could explain the apparently much more regular eruption rate. Although no direct geodynamic link exists, it must be noted that a recurrence time of volcanic phases around 50,000 yr has been proposed for the Tyrrenian margin’s volcanism [16]. This coincidence is puzzling, but could be interpreted as a consequence of a similar time constant value for cyclic injection of mantle plumes.

1. Introduction

La province du bas Vivarais (Fig. 1) est l’une des zones volcaniques récentes du Massif central français. Constituée d’une quinzaine d’appareils éruptifs, elle s’étend sur près de 500 km² [9]. Province récente la plus importante après la chaîne des Puys, seul un petit nombre d’études lui ont été dédiées [4,5]. Ce volcanisme s’exprime par des phases phréatomagmatiques (maars), précédées ou suivies par des périodes d’activité strombolienne, auxquelles sont associées de longues coulées basaltiques. Les laves présentent une très grande homogénéité de composition. Ce sont des basaltes alcalins contenant des enclaves abondantes : lherzolites à spinelles, pyroxénolites, xénolites de socle de faible profondeur. Les spectres des terres rares sont identiques sur l’ensemble des laves, ce qui suggère une origine commune à partir de magmas identiques. Par ailleurs, l’absence de termes différenciés rend peu probable un temps de résidence notable du magma au sein de la croûte [20]. Ce volcanisme représente ainsi un style spécifique et bien identifiable de volcanisme intracontinental. En Europe, par exemple, le volcanisme du Nord-Est de l’Espagne est, de ce point de vue, assez comparable [8].

Si le volcanisme du bas Vivarais est aujourd’hui relativement bien connu dans ses aspects pétrologique, volcanologique et, dans une moindre mesure, géochimique, cela est moins vrai pour la chronologie des

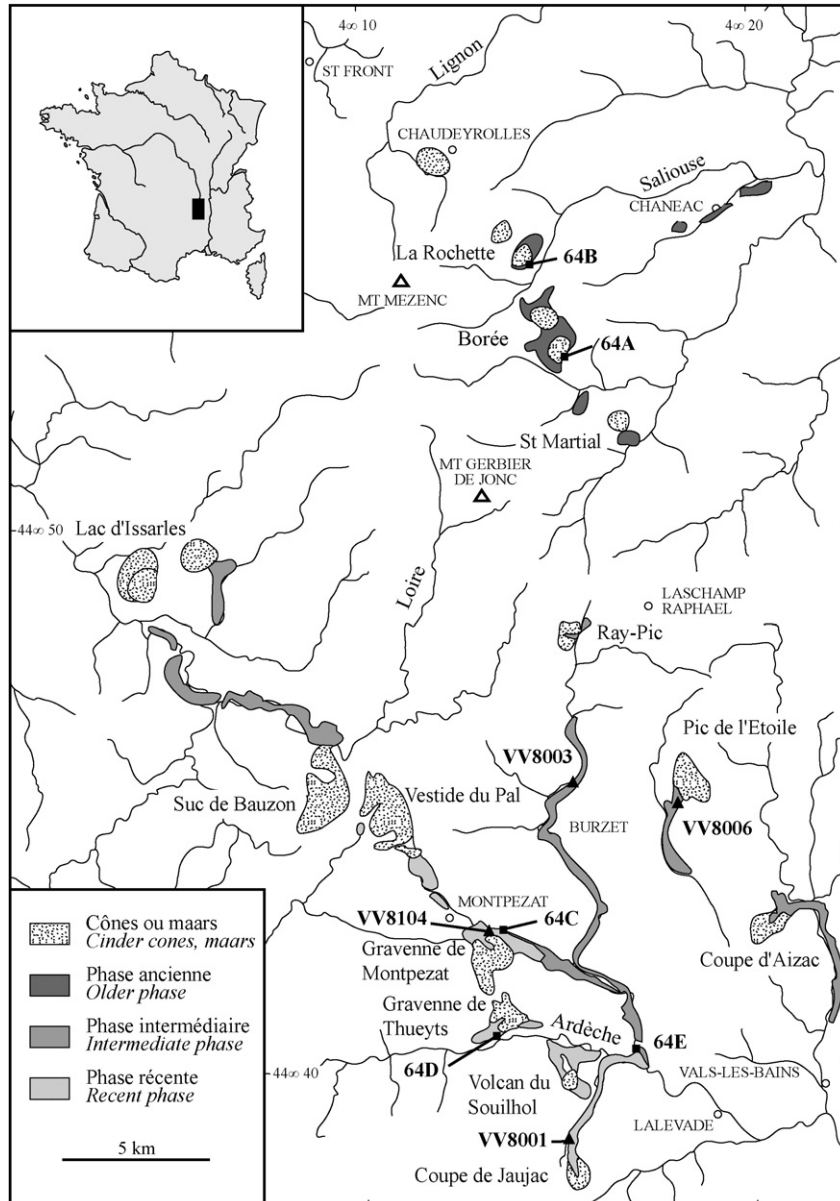


Fig. 1. Carte schématique du volcanisme récent du bas Vivarais. Les trois phases figurées résument les études antérieures [5,6,17]. Carrés : nouveaux sites d'échantillonnage ; triangles : sites déjà étudiés [10]. L'échantillon 64C est situé dans la partie basale des empilements issus de la Gravenne de Montpezat et appartient à la phase intermédiaire.

Fig. 1. Schematic map of the recent volcanism from the 'Bas Vivarais'. The three figured phases synthesize previous studies [5,6,17]. Squares: new sampling sites, triangles: previously studied sites [10]. The sample 64C is located at the base of the lava flows coming from 'La Gravenne de Montpezat' and belongs to the intermediate phase.

éruptions. En particulier, aucune datation n'est disponible pour la partie nord de la province.

2. Problématique chronologique

Le volcanisme du bas Vivarais a été reconnu très tôt comme récent en raison de la fraîcheur des morpho-

logies des appareils et la position des coulées en fond de vallée qui les distinguent nettement des formations villafranchiennes environnantes. La chronologie relative et le paléomagnétisme ont fourni des contraintes fortes. Ces études, peu nombreuses, se sont concentrées dans le Sud de la province [7]. Elles ont été récemment complétées et étendues à la partie nord [20]. Moyennant

l'hypothèse d'une forte dynamique de la variation séculaire du champ magnétique, ces études proposent de regrouper ces éruptions en trois périodes brèves (quelques centaines d'années), âgées de moins de 780 ka.

La chronologie absolue des coulées se heurte, cependant, à des difficultés majeures. Deux des principales méthodes radiométriques ne peuvent être utilisées. En outre, bien que jeune, ce volcanisme est trop ancien pour relever de la méthode du carbone 14. Les mesures qui ont été faites par cette méthode [6] ont fourni un âge de $11\,770 \pm 270$ ans, aux dépens de l'humine d'un sol cuit par la coulée située au Pont-de-Labeaume. On sait depuis que les âges obtenus sur paléosols sont très généralement contaminés par du carbone moderne et sont à rejeter. Par ailleurs, un bois carbonisé prélevé sous les scories du cône du Souilhol a indiqué un âge supérieur à 35 000 ans (limite méthodologique du ^{14}C). Pour d'autres raisons, la datation K–Ar ne peut pas être réalisée dans des conditions satisfaisantes. En effet, les laves contiennent une très grande quantité de xénolites de socle, depuis des tailles submillimétriques à centimétriques. Les tentatives faites dans notre laboratoire pour isoler de ces laves une fraction totalement exempte de ces xénolites ont échoué. Dans ce cas, les mesures des isotopes de l'argon qui pourraient être faites sont contaminées par de l'argon radiogénique « ancien » provenant du dégazage des xénolites. L'interprétation des ratios ^{40}Ar et ^{39}K en termes d'âge n'est dès lors plus possible. Pour cette raison, mais aussi parce que les âges sont jeunes, la méthode $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ n'est pas actuellement envisageable. Les méthodes de thermoluminescence (TL) ont, en revanche, permis quelques avancées : d'une part, grâce à la datation directe des coulées en utilisant les microcristaux de plagioclases [11], d'autre part, de manière indirecte, par la datation de quartz extraits de retombées attribuées à ces volcans [21].

3. Datation par thermoluminescence

3.1. Principes

La thermoluminescence (TL) est la lumière émise par un minéral diélectrique, préalablement irradié, au cours d'une élévation de température. La quantité de lumière émise est une fonction croissante de la quantité d'irradiation reçue. Une nouvelle élévation de température n'engendre aucune émission lumineuse si elle n'est pas précédée d'une irradiation. Ainsi, le chauffage du minéral entraîne une « remise à zéro » de la TL. La mesure de l'intensité lumineuse est le reflet de la quantité

d'irradiation reçue par le minéral étudié depuis son dernier chauffage. Cette irradiation, appelée paléodose, est due à la radioactivité naturelle. L'équation de base d'une datation par TL est: âge (années) = paléodose (Gy)/dose annuelle ($\text{Gy}\cdot\text{an}^{-1}$).

La détermination de la paléodose résulte de l'étude expérimentale de la croissance du signal de TL en fonction de la dose d'irradiation délivrée par une source calibrée. Dans la méthode des doses additives [1], par exemple, les mesures sont faites d'abord pour les minéraux tels qu'extraits de la roche et soumis à des doses calibrées croissantes de rayonnement. Cela permet de tracer, pour chaque température de luminescence, une courbe de croissance en fonction de la dose. Les écarts à la linéarité de cette courbe de croissance sont mesurés, par ailleurs, sur des fractions aliquotes, dont la luminescence a été remise à zéro au laboratoire par chauffage à haute température. Ces deux déterminations permettent d'estimer une paléodose pour chaque température, ce qui constitue un « test du plateau ». Ce test est considéré vérifié lorsque la paléodose est indépendante de la température. Cela assure que la luminescence utilisée n'est plus perturbée par des émissions à basse température qui, dans les cas des plagioclases, sont affectées par le *fading* thermique ou anormal.

Par ailleurs, le débit de dose annuel total reçu par les minéraux dans la roche peut être calculé à partir des doses annuelles induites par les rayonnements alpha, bêta et gamma issus des différents radioéléments (^{40}K , séries de l'uranium et du thorium) présents dans la roche. Ces doses peuvent, quant à elles, être calculées à partir des concentrations en U, Th et K de la roche [3]. À ces doses annuelles s'ajoute celle due au rayonnement cosmique qui dépend de la latitude, de l'altitude et de la profondeur du prélèvement [19].

3.2. Résultats expérimentaux

L'ensemble de la province a fait l'objet d'un échantillonnage (Fig. 1), de manière à ce que les trois phases volcaniques identifiées par paléomagnétisme soient représentées. Chaque échantillon a été préparé dans le but de mesurer la TL des microcristaux de plagioclase. Un soin particulier a été apporté à l'élimination des feldspaths potassiques provenant des enclaves de socle. En effet, ils perturbent les mesures de la luminescence des plagioclases. Ils sont à la fois très lumineux et affectés par du *fading* anormal [22]. Pour cela, après un premier broyage, la fraction 250–500 μm a été fractionnée par liqueur dense, de manière à éliminer le plus possible les enclaves de socle. La fraction ainsi

obtenue, de densité supérieure à 2,7, a de nouveau été broyée et tamisée. Les grains, de dimension 90–125 μm , ont alors été fractionnés par liqueur dense (bromoforme), et seule la partie moins dense que 2,80 et peu ferromagnétique a été conservée. Cette fraction est constituée de microcristaux de plagioclase, avec parfois quelques grains de feldspaths potassiques provenant des petites enclaves de socle non éliminées lors de la première séparation. Ces quelques grains, lorsqu'ils sont reconnaissables visuellement, sont éliminés manuellement. Le rendement de ce type de préparation est très faible : moins de 400 mg pour 5 kg de roche. En effet, les laves du bas Vivarais sont presque aphyriques. Les microlithes de plagioclases de la mésostase ont une taille de l'ordre de 50 μm et les microcristaux de dimensions supérieures à 90 μm sont peu nombreux. Par ailleurs, lors de ces préparations, une aliquote représentative de la roche totale est conservée pour les mesures de spectrométrie gamma.

La luminescence des plagioclases est étudiée dans l'ultraviolet (326 nm) grâce à l'utilisation d'un filtre en verre épais (double filtre H326c, MTO). Ce domaine spectral autorise la mesure jusqu'à de très hautes températures (vers 750 °C). Les courbes de TL naturelle sont reportées sur la Fig. 2. Trois échantillons présentent une courbe typique de plagioclase. L'échantillon 64D n'émet pas de lumière et l'échantillon 64E a un spectre attribuable à la contamination par des feldspaths de socle (qui n'émettent pas à haute température). Les datations des plagioclases utilisent une préchauffe calibrée à 560 °C pendant 40 s, qui élimine la luminescence à basse

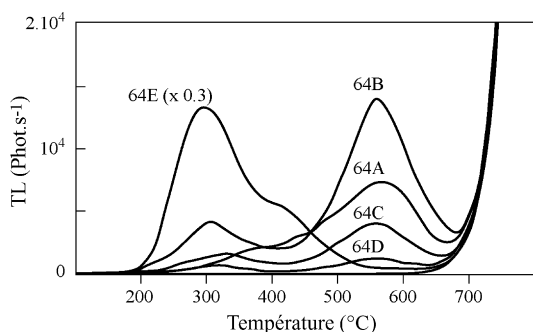


Fig. 2. Courbes de thermoluminescence dans l'ultraviolet (326 nm) des préparations de feldspaths extraits des échantillons (aliquotes de 4 mg, $5\text{ }^\circ\text{C s}^{-1}$). La courbe 64E montre une contribution de feldspaths de socle ; 64D est insuffisamment lumineux pour l'estimation de la paléodose.

Fig. 2. Ultraviolet (326 nm) thermoluminescence glow curves of feldspar samples extracted from the samples (4 mg aliquots, $5\text{ }^\circ\text{C s}^{-1}$). The 64E glow curve displays an alkali feldspar contribution; 64D is not bright enough to allow the determination of the palaeodose.

température et fait migrer le maximum du pic naturel à 550 vers 650 °C. Ce type de protocole isole l'émission à très haute température ; elle n'est alors plus significativement affectée par le *fading* anormal [11,13].

La détermination des paléodoses a été effectuée par la méthode classique des doses ajoutées sur aliquotes multiples [1]. Les doses ont été obtenues par l'utilisation d'une source de ^{137}Cs (rayonnement gamma, débit $1,24\text{ Gy min}^{-1}$). Chaque aliquote est, de plus, soumise avant chaque mesure à un recuit pendant 40 s à 560 °C (suffisant pour éliminer les émissions de luminescence à basse température). Les corrections d'écart à la linéarité sont estimées par la mesure détaillée de la courbe de croissance de la TL en fonction de la dose. Cette courbe est déterminée sur une fraction de l'échantillon dont la TL a été effacée par un recuit à haute température (40 s à 750 °C sous atmosphère d'azote).

Les échantillons 64B et 64C ont un comportement similaire, comparable à celui de n'importe quel plagioclase volcanique [12]. L'intensité des courbes de luminescence croît de façon homothétique en fonction de la dose, et les tests du plateau pour les paléodoses sont satisfaits sur toute la largeur de l'émission (Fig. 3). Toutefois, l'échantillon 64B présente un début de saturation ; ce phénomène est très marqué pour 64A (Fig. 4), ce qui induit pour cet échantillon des incertitudes importantes lors de l'extrapolation de la paléodose.

Pour chacun de ces échantillons, le taux de *fading* a été contrôlé en déterminant le facteur *g* [1]. Celui-ci est

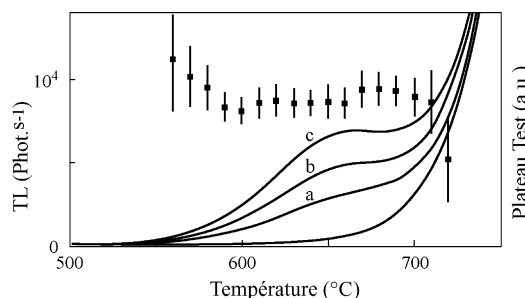


Fig. 3. Échantillon 64C (même conditions que dans la Fig. 2, mais chaque mesure est précédée d'une préchauffe pendant 40 s à 560 °C). Chaque courbe est la moyenne de six mesures : (a) TL naturelle, (b) 570 Gy ajoutés, (c) 1140 Gy ajoutés. La dose apparente extrapolée en utilisant un modèle linéaire est reportée en fonction de la température et montre que le test du plateau est satisfait sur toute la largeur de l'émission.

Fig. 3. TL glow curves of 64C (same conditions as in Fig. 2, but each aliquot is preheated at 560 °C, 40 s). Each curve is the average of six measurements: (a) natural TL; (b) 570 Gy added dose, (c) 1140 Gy added dose. Using a linear model, the extrapolated apparent dose is plotted as a function of temperature, showing that the plateau test is satisfied over the width of the TL peak.

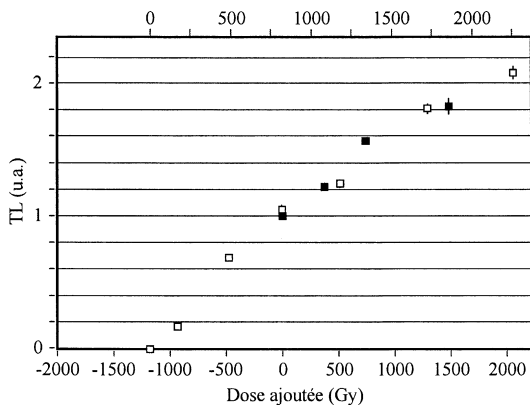


Fig. 4. Courbes de croissance en fonction de la dose pour l'échantillon 64A, qui présente un début de saturation. Chaque point est la moyenne du maximum de la TL de six aliquotes mesurées à 326 nm (5 °C s^{-1} , préchauffe 560 °C , 40 s). En figuré plein, les points sont obtenus en ajoutant des doses calibrées à l'échantillon, en figuré ouvert les points sont ceux obtenus après recuit de l'échantillon. Les échelles de doses ont été ajustées en tenant compte de la valeur extrapolée pour la paléodose.

Fig. 4. TL intensity as a function of the radiation dose for sample 64A, showing the onset of saturation. Each point is the average of the TL peak maximum of six aliquots measured at 326 nm (5 °C s^{-1} , preheat 560 °C , 40 s). Plain squares correspond to points obtained when doses are delivered to natural sample, open squares to points obtained after thermal bleaching of the sample. The offset of the upper dose scale has been adjusted to take into account the value extrapolated for the palaeodose.

défini comme la proportion de décroissance de la luminescence par décennie temporelle. Le protocole mis en œuvre est analogue à ceux utilisés pour les feldspaths potassiques dans les études de luminescence stimulée optiquement [2,15]. Chaque aliquote est préalablement recuite sous atmosphère d'azote à 760 °C , puis soumise successivement à trois cycles, consistant en une irradiation calibrée, une préchauffe et la mesure de la TL. Les paramètres de mesure, en particulier de préchauffe, sont identiques à ceux utilisés pour l'extrapolation des paléodoses. L'aliquote est ensuite soumise à une irradiation, puis à une préchauffe. Elle est alors stockée pendant plusieurs semaines. Après ce stockage, elle est directement mesurée puis soumise à trois cycles d'irradiation, préchauffe et mesure de la TL, qui terminent le protocole. De cette manière, les trois premiers et les trois derniers cycles calibrent l'évolution de la sensibilité à la dose de l'échantillon, ce qui permet d'estimer la différence entre l'intensité de la TL mesurée immédiatement après irradiation et celle après stockage (cycle 4). De plus, après chaque mesure de TL, la stabilité du gain du photomultiplicateur est contrôlée et quantifiée grâce à une source lumineuse d'intensité constante (sulfure de zinc dopé au tritium). L'application de ce

protocole montre que la sensibilité des échantillons 64A, 64B et 64C ne varie pas entre chaque cycle et que le signal n'est pas affaibli après stockage pendant 3,2 à 3,5 décades temporelles. Les variations inter-cycles fournissent une limite au facteur g . Ils sont inférieurs à 0,48, 0,50 et 0,35 (pour cent par décennie) respectivement pour 64A, 64B et 64C. Par ailleurs, lors de l'estimation des paléodoses, les mesures de TL sont faites une ou deux semaines après l'irradiation gamma des aliquotes. Les limites obtenues ci-dessus pour le facteur g confirment qu'une sous-estimation des paléodoses due au *fading*, thermique ou anormal, serait négligeable.

L'échantillon 64E contient, plus encore que les autres échantillons, des xénolites de socle en grand nombre et de taille assez homogène (1 à 5 mm maximum). Cela a empêché d'isoler une fraction de microcristaux de plagioclases utilisables pour la datation par TL. Nous avons cependant cherché à tirer parti de ces xénolites. Après broyage de la roche, les quartz et les feldspaths de la fraction 250–500 μm ont été séparés par densité et tri magnétique. Cette fraction, soumise à l'action de HF 40 % pendant 20 minutes, a permis d'obtenir environ 150 mg de quartz pur. Tous ces quartz proviennent des xénolites, le basalte lui-même n'en contenant évidemment pas. Leur taille initiale a une incidence sur la dosimétrie du rayonnement bêta et a été estimée par l'examen approfondi de sections minces. Celles-ci n'ont pas montré de quartz dépassant 1 mm, ce qui constitue l'ordre de grandeur pour la taille maximale initiale ; la taille minimale est, quant à elle, forcément supérieure à 250 μm . Cette préparation, précédée d'une attaque fluorhydrique dite « méthode des inclusions » [10], permet de s'affranchir de la dose due au rayonnement alpha externe. En première approximation, la dose interne peut également être négligée, en raison de l'incompatibilité de l'uranium et du thorium pour le quartz.

La paléodose des quartz a été déterminée par l'étude de la TL rouge [14,17,18]. Dans ce domaine spectral (610 nm), les mesures qui ont été faites sur l'émission à 370 °C sont très reproductibles. Chaque aliquote est soumise à une préchauffe pendant 20 s à 270 °C . La courbe de croissance de ce quartz est linéaire dans le domaine utilisé pour l'extrapolation (environ 250 Gy). Sa sensibilité à la dose reste, de plus, sensiblement identique après remise à zéro de la luminescence par un recuit à 450 °C . Les courbes de luminescence sont homothétiques entre 325 et 410 °C , en prenant en compte de petits décalages du maximum de l'émission avec les doses croissantes. Ce comportement est conforme à ceux décrits pour divers quartz utilisés à des fins de datation [17,18].

Tableau 1
Concentrations U, Th et K mesurées par spectrométrie gamma

Table 1
U, Th, K concentrations measured by gamma spectrometry

	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)
64A	1,67 ± 0,02	6,67 ± 0,06	1,49 ± 0,02
64B	1,36 ± 0,02	4,60 ± 0,06	1,62 ± 0,02
64C	1,90 ± 0,03	5,94 ± 0,08	1,25 ± 0,02
64E	1,87 ± 0,02	5,25 ± 0,06	1,26 ± 0,02

Les concentrations en U, Th et K des roches ont été mesurées par spectrométrie gamma (Tableau 1), en utilisant les standards AIEA RGU-1, RGTh-1 et AIEA-375 (comptage d'environ 24 h sur un détecteur coaxial HPGe). Ces concentrations permettent le calcul des débits de dose annuels. Dans le cas des microcristaux de plagioclases, le rayonnement alpha intervient en proportion non négligeable dans la dose annuelle totale. Les particules alpha n'ayant pas la même efficacité à produire de la TL que le rayonnement bêta ou gamma, un facteur d'équivalence est déterminé pour chaque échantillon (Tableau 2). Il est exprimé par le rapport de la dose de rayonnement bêta, qui produit la même intensité de TL qu'un flux omnidirectionnel de particules alpha d'énergie 3,25 MeV [12]. Comme pour la détermination des écarts à la linéarité, le facteur d'équivalence est mesuré sur des feldspaths préalablement remis à zéro par un recuit à haute température. Des aliquotes sont alors soumises à l'action d'une source alpha (^{241}Am), calibrée en flux et en énergie, et d'une source bêta (^{90}Sr) calibrée en dose. De plus, un facteur de forme de $1,3 \pm 0,3$ prend en compte la taille des microcristaux et l'existence d'une irradiation alpha interne au feldspath (due, soit à des traces d'uranium et de thorium, soit à des micro-inclusions de minéraux riches en U et en Th). Les différents débits de dose sont résumés dans le Tableau 2. Dans le cas du quartz (64E), la dose interne a été négligée. Par ailleurs, les grains de quartz se trouvent dans la roche, dans des xénolites (granite en général), dont la teneur en U, Th et K est

supérieure à celle du basalte hôte. Conformément au principe de superposition régissant les doses de rayonnement, le débit annuel de dose bêta calculé en utilisant les teneurs en radioéléments de la lave seule est donc inférieur à celui effectivement reçu par les quartz. C'est pour ces deux raisons que le débit de dose annuel calculé dans le Tableau 2 est une limite inférieure.

4. Discussion

Les résultats des mesures de TL et l'évaluation des débits annuels de dose permettent de proposer des âges pour les formations étudiées. Le rapprochement de ces résultats avec les âges déjà connus est résumé dans le Tableau 3. Pour la partie nord de la province, les deux valeurs obtenues sont identiques aux incertitudes de mesure près. Elles renforcent les conclusions de la chronologie relative, qui imposerait à ces deux volcans d'avoir le même âge (données paléomagnétiques) et d'être les plus anciens du bas Vivarais (morphologie). Le nouvel âge obtenu pour la Gravenne de Montpezat est indiscernable de ceux déjà obtenus en utilisant la TL des plagioclases. L'étude des quartz des xénolites du volcan de Souilhoh impose une valeur maximale de 53 200 ans, qui complète la limite inférieure de 35 000 ans obtenue par le ^{14}C . Ces deux limites fournissent une estimation de $44\,100 \pm 9100$ ans pour l'âge de ce volcan. Cet intervalle est compatible avec les âges proposés pour la Vestide du Pal, appartenant au groupe récent.

Les âges obtenus sont compatibles avec les études paléomagnétiques, qui suggèrent l'existence de trois phases éruptives brèves. Nos estimations renforcent donc cette hypothèse ; les mesures étant statistiquement indépendantes, l'âge de chaque phase peut être estimé par la moyenne pondérée des mesures individuelles. Cela conduit aux valeurs de $45\,400 \pm 3200$ ans, $78\,800 \pm 5300$ ans et $166\,000 \pm 15\,000$ ans pour chacun des épisodes volcaniques. Ces déterminations présentent une incertitude assez grande, de l'ordre de

Tableau 2

Paléodoses et débits annuels de dose calculés [2] à partir des concentrations en radioéléments du Tableau 1. Le débit annuel de dose alpha tient compte du facteur d'équivalence expérimental, la contribution du rayonnement cosmique est uniformément de $0,06 \pm 0,02$ mGy·an⁻¹

Table 2

Palaeodoses and annual dose rates calculated [2] using radionuclides concentrations from Table 1. The alpha dose rate takes into account the experimental equivalence factor, the contribution of the cosmic rays is set to 0.06 ± 0.02 mGy·an⁻¹

	Paléodose (Gy)	X α (10 ⁻⁶)	D α (mGy·an ⁻¹)	D β (mGy·an ⁻¹)	D γ (mGy·an ⁻¹)	D totale (mGy·an ⁻¹)
64A (plagioclase)	688 ± 99	16,9 ± 1,2	1,47 ± 0,36	1,68 ± 0,01	0,91 ± 0,01	4,21 ± 0,36
64B (plagioclase)	572 ± 48	12,6 ± 1,8	0,82 ± 0,22	1,67 ± 0,01	0,80 ± 0,01	3,44 ± 0,22
64C (plagioclase)	268 ± 35	9,5 ± 0,8	0,82 ± 0,20	1,49 ± 0,02	0,84 ± 0,01	3,30 ± 0,20
64E (quartz)	121,3 ± 2,3		> 0	> 1,47 ± 0,02	0,80 ± 0,01	> 2,42 ± 0,02

Tableau 3

Synthèse des âges disponibles pour le volcanisme du bas Vivarais. Les données proviennent (a) d'un travail antérieur sur les plagioclases réalisés dans des conditions identiques [10] et (b) de l'étude du niveau de tephra de la Baume-Moula-Guercy et des retombées proches de la Vestide du Pal [18]. Seule la donnée ^{14}C obtenue sur bois carbonisé [5] a été reportée

Table 3

Summary of available ages for the 'Bas Vivarais' volcanism. (a) TL ages from plagioclases using same experimental condition as in this work [10] and (b) TL ages of a tephra level at La Baume-Moula-Guercy and from proximal scoriae of 'La Vestide du Pal' [18]. The reported ^{14}C dating is the only one obtained from a carbonized wood [5]

	Édifice volcanique	Type de datation	Âge (années)
64A	Borée	TL plagioclase	164 000 ± 27 000
64B	La Rochette	TL plagioclase	167 000 ± 18 000
64C	Gravenne de Montpezat	TL plagioclase	81 000 ± 12 000
8003	Volcan du Ray Pic	TL plagioclase (a)	77 000 ± 9900
8006	Pic de l'Etoile	TL plagioclase (a)	83 000 ± 9200
	Retombée attribuée au bas Vivarais :	Quartz (RTL) sur tephra (b)	72 000 ± 12 000
	La Baume Moula-Guercy		
64E	Volcan de Souilhol	Quartz (RTL) sur xénolite	< 53 200
	Volcan de Souilhol	^{14}C sur bois(c)	> 35 000
8001	Coupe de Jaujac	TL plagioclase(a)	> 35 400
8104	Vestide du Pal	TL plagioclase(a)	47 300 ± 5300
	Vestide du Pal	Quartz (RTL) sur tephra (b)	49 000 ± 7000
	Vestide du Pal	Quartz (RTL) sur tephra (b)	41 000 ± 6000

8 %, conséquence des conditions de mesure qui ne sont pas toujours optimales. Ainsi, pour les âges obtenus par TL sur plagioclases, la faible luminosité et la reproductibilité assez moyenne des mesures s'ajoutent à l'incertitude sur la détermination du débit annuel de dose alpha. Concernant les mesures utilisant les quartz, ce sont les hypothèses nécessaires aux calculs de la dosimétrie qui ont une incidence sur la précision de chaque résultat. Néanmoins, pour la phase récente, la convergence des déterminations sur les quartz (retombées de tephres et xénolites) et sur les plagioclases limite la possibilité d'erreurs systématiques importantes, même si elles ne peuvent être totalement exclues.

5. Conclusions

La détermination des âges du fonctionnement de la province volcanique du bas Vivarais est un cas où les méthodes de datation radiométriques usuelles, K–Ar ou ^{14}C n'ont pas pu être mises en œuvre de manière satisfaisante. Les études par TL sont actuellement les seules qui permettent d'attribuer, avec une précision raisonnable, un âge aux périodes d'activité. L'ensemble des âges déterminés par luminescence sont compatibles avec les conclusions des études paléomagnétiques, qui proposent de regrouper ces événements en trois phases de courte durée. Ainsi, il est possible pour chacune de ces phases de proposer un âge de $45\,400 \pm 3200$, $78\,800 \pm 5300$ et $166\,000 \pm 15\,000$ ans.

D'un point de vue géologique, la province du bas Vivarais présente très probablement trois périodes

d'activité distinctes, qui conduisent chacune à la mise en place de trois à six volcans. Elle témoigne d'un volcanisme continental basaltique d'ampleur limitée, avec des récurrences extrêmement longues : 90 000 ans entre la phase ancienne et la phase intermédiaire, 30 000 ans entre les deux phases les plus récentes et aucune activité depuis 45 000 ans. Ce caractère, associé à un faible temps de résidence du magma au sein de la croûte, est original. En termes d'analyse de risque, cela signifie que cette province doit être considérée comme du volcanisme actif dont la probabilité d'éruption est très faible, de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-5} par an.

Ce mode de fonctionnement, que l'on peut appeler « volcanisme continental sporadique », semble prédominant en Europe occidentale. Il est représenté en périphérie du Massif central français, à la limite du massif du Mont-Dore et du plateau du Cézallier [13], en Limagne par exemple [18]. Le volcanisme récent de Catalogne présente clairement ce caractère sporadique, de même pour celui de la vallée du Rhin (Eifel). En fait, la seule exception notable est la chaîne des Puys. Toutefois, dans cette province, les magmas ont subi une importante cristallisation fractionnée, ce qui implique l'existence de réservoirs plus ou moins superficiels, qui expliqueraient le rythme plus régulier des éruptions volcaniques. Par ailleurs, bien qu'il n'y ait aucun lien géodynamique direct, on peut remarquer que la durée de récurrence temporelle proposée pour le volcanisme de la marge Tyrrhénienne est également de l'ordre de 50 000 ans [16]. Cette coïncidence pourrait s'interpréter comme le reflet d'un même ordre de grandeur pour les

constantes de temps régissant les cycles d'injection des plumes mantelliques.

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier Philippe Bonté (LSCE, Gif-sur-Yvette, France) pour les mesures de spectrométrie gamma.

Références

- [1] M.J. Aitken, Thermoluminescence dating, Academic Press Inc., London, 1985.
- [2] M. Auclair, M. Lamothe, S. Huot, Measurement of anomalous fading for feldspar IRSL using SAR, *Radiat. Meas.* 37 (4–5) (2003) 487–492.
- [3] W.T. Bell, Thermoluminescence dating: revised dose-rate data, *Archaeometry* 19 (1977) 99–100.
- [4] E. Berger, Le volcanisme récent de l'Ardèche, thèse, université Paris-11, Orsay, France, 1973 (402p.).
- [5] E. Berger, Enclaves ultramafiques, mégacristaux et leurs basaltes hôtes, thèse d'État, université Paris-11, Orsay, France, 1981 (470p.).
- [6] E. Berger, R. Brousse, R.C. Maury, Âge récent ($11\,770 \pm 270$ ans BP) des dernières éruptions du Vivarais, *C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. D* 280 (1975) 419–422.
- [7] N. Bonhomme, Sur la direction d'aimantation des laves et de la chaîne de Puys et le comportement du champ terrestre en France au cours de l'événement du Laschamp, thèse d'État, université de Strasbourg, France, 1972 (239p.).
- [8] J.-M. Cebriá, J. López-Ruiz, M. Doblas, R. Oyarzun, J. Hertogen, R. Benito, Geochemistry of the Quaternary alkali Basalts of Garrotxa (NE Volcanic Province, Spain): a case of double enrichment of the mantle lithosphere, *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 102 (2000) 217–235.
- [9] A. de Goër de Hervé, J. Mergoïl, Structure et dynamique des édifices volcaniques tertiaires et quaternaires, in : *Symposium J. Jung, Clermont-Ferrand, 1971*, pp. 345–376.
- [10] S.J. Fleming, Refinement of the quartz inclusion method, *Archaeometry* 12 (1970) 133–147.
- [11] G. Guérin, La thermoluminescence des plagioclases, méthode de datation du volcanisme, thèse d'État, université Paris-6, 1983 (258p.).
- [12] G. Guérin, G. Valladas, Thermoluminescence dating of volcanic plagioclases, *Nature* 286 (1980) 697–699.
- [13] G. Guérin, P.-Y. Gillot, R. Brousse, Âge subactuel des dernières manifestations éruptives du Mont-Dore et du Cézallier, *C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. II* 262 (1981) 855–857.
- [14] T. Hashimoto, K. Yokosaka, H. Habuki, Emission properties of thermoluminescence from natural quartz. Blue and red response to absorbed dose, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* 13 (1) (1987).
- [15] M. Lamothe, M. Auclair, A solution to anomalous fading and age shortfalls in optical dating of feldspar minerals, *Earth Planet. Sci. Lett.* 171 (1999) 319–323.
- [16] F. Marra, J. Taddeucci, C. Freda, W. Marzocchi, P. Scarlato, Recurrence of volcanic activity along the Roman Comagmatic Province (Tyrrhenian margin of Italy) and its tectonic significance, *Tectonic* 23 TC4013 (2004), doi:10.1029/2003TC001600.
- [17] D. Miallier, J. Faïn, M. Montret, T. Pilleyre, S. Sanzelle, S. Soumana, Properties of the red TL peak of quartz relevant to thermoluminescence dating, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* 18 (1–2) (1991) 89–94.
- [18] T. Pilleyre, M. Montret, J. Faïn, D. Miallier, S. Sanzelle, Attempts at dating ancient volcanoes using the red TL of Quartz, *Quat. Sci. Rev.* 11 (1992) 13–17.
- [19] J.R. Prescott, J.T. Hutton, Cosmic ray contributions to dose rates for luminescence and ESR dating: large depths and long term time variation, *Radiat. Meas.* 23 (2–3) (1994) 497–500.
- [20] P. Rochette, H. Bertrand, C. Braun, E. Berger, La province volcanique Pléistocène supérieur du bas Vivarais (Ardèche, France) : propagation de fentes crustales en échelons ? *C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. II* 316 (1993) 913–920.
- [21] S. Sanzelle, T. Pilleyre, M. Montret, J. Faïn, D. Miallier, G. Camus, A. de Goër de Hervé, A. Defleur, Datation par thermoluminescence : étude d'une corrélation chronologique possible entre le maar de La Vestide-du-Pal et un niveau de tephra de La Baume-Moula-Guercy (Ardèche, France), *C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. IIA* 330 (2000) 541–546.
- [22] A.G. Wintle, Detailed study of a thermoluminescent mineral exhibiting anomalous fading, *J. Lumin.* 15 (1977) 385–393.