

Datation du travertin de Banyoles à Gérone, Espagne

YUJI YOKOYAMA (*), GUANJUN SHEN (*) (**), HUU-VAN NGUYEN (*) et CHRISTOPHE FALGUERES (*)

RÉSUMÉ

Dans le but de dater la mandibule humaine de Banyoles, un échantillon de calcite a été prélevé dans une terrasse de travertin de Banyoles, non loin du lieu de sa découverte. Un âge de 73.000 ± 4.000 a été obtenu par la méthode de l'uranium-thorium, dans l'hypothèse que ce travertin se comporte comme un système fermé. Cependant, l'âge C-14 de ce travertin est trop jeune, 17.600 ± 1.000 ans, et s'oppose à cette hypothèse. Par conséquent, nous avons proposé un modèle de système ouvert, et obtenu un âge d'environ 110.000 ans. Cet âge montre que cette terrasse appartient à l'interglacière Riss-Würm, en bon accord avec les estimations des géologues.

ABSTRACT

In order to date the human mandible of Banyoles, a calcite sample was taken in a travertine terrace of Banyoles, not far from its discovery position. The age obtained by the uranium-thorium method, under the closed system hypothesis, was 73.000 ± 4.000 years. However, the C-14 age of this travertine, 17.600 ± 1.000 years BP is too young, and opposed to this hypothesis. We have therefore proposed an open system model and obtained an age of about 110.000 years. This age shows that this terrace was formed at Riss-Würm interglacial period, in good agreement with the geological estimations.

1. INTRODUCTION

La cuvette lacustre de Banyoles est située à 17 Km. au nord-ouest de Gérone en Espagne. D'importants dépôts de travertins témoignent de l'extension ancienne du lac de Banyoles dans le Quaternaire, et constituent deux terrasses principales, l'une plus ancienne à 65 m. au-dessus du niveau actuel du lac, et l'autre plus récente à 3-7 m. au-dessus du niveau actuel (fig. 1).

C'est dans cette deuxième terrasse qu'une mandibule humaine a été découverte en 1887 par Pere Alsius parmi des ossements de *Cervus elaphus* et quelques gastéropodes d'eau douce et terrestres. Cette mandibule a fait l'objet de plusieurs études, et en particulier une étude très complète a été effectuée

par M. A. de Lumley (1973). Ces études ont montré que cette mandibule devait appartenir à un individu âgé d'un peu plus d'une cinquantaine d'années et vraisemblablement de sexe féminin. Toutefois sa position phylogénique est difficile à déterminer, car cette mandibule présente toute une gamme de caractères, à la fois archaïques et plus ou moins évolués. Elle peut être rapprochée des Anténéanderthaliens d'Europe Occidentale, Montmaurin et Arago II. Elle présente cependant quelques caractères archaïques observés sur la mandibule la plus ancienne d'Europe, Mauer. Elle présente aussi de nombreux caractères relevés chez les Néanderthaliens (Lumley de, 1973). C'est pour cette raison que l'étude stratigraphique et la datation de la terrasse de travertins deviennent importantes.

La terrasse supérieure (niveau de 65 m.) à *Hippopotamus amphibius major* a été attribuée aux différentes époques, Mindel-Riss, Mindel ou Günz-Mindel (Ripoll et Lumley, 1965, Bech, 1971). L'existence d'une troisième terrasse intermédiaire du Riss a été proposée (Bech, 1971).

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

(**) Division de Radioprotection, Station antiépidémique de Province Ghizhou, Chine.

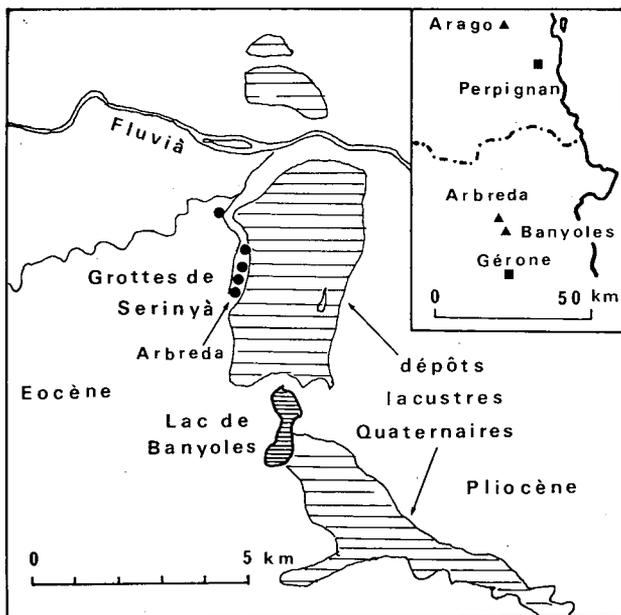


Fig. 1. - Cuvette du lac de Banyoles à Gérone, Espagne. Le lac actuel et l'extension des dépôts lacustres quaternaires (partie hachurée).

Quant à la terrasse inférieure qui renferme cette fameuse mandibule, elle a été quelquefois attribuée au Würm, mais des études récentes s'accordent à l'attribuer au Riss-Würm (Ripoll et Lumley, 1965; Bech, 1971). Par contre, la datation absolue de ce travertin par Berger et Libby (1966) en utilisant la méthode de C-14 a donné un âge de 17.600 ± 1.000 ans. Cet âge est trop jeune et tout à fait contradictoire avec la stratigraphie de cette terrasse et la morphologie de la mandibule. C'est pour cette raison que nous avons entrepris la datation de ce travertin par d'autres méthodes.

2. MÉTHODES

Nous avons appliqué trois méthodes: la méthode de l'uranium-thorium utilisant la spectrométrie gamma, cette même méthode utilisant la spectrométrie alpha et la méthode de la résonance de spin électronique (ESR). Nous donnons ici une brève explication de chaque méthode.

L'eau de lac contient une trace de l'uranium. Cet uranium peut être incorporé dans le travertin au moment de sa formation. Par contre, le Th-230, descendant de l'U-234 n'est pas soluble dans l'eau, et par conséquent le travertin nouvellement formé ne contient pas de Th-230. Au fur et à mesure que le temps passe, le Th-230 se reforme par la désintégration de l'U-234. La mesure du rapport Th-230/U-234 permet donc de dater l'échantillon. Ce rapport peut être déterminé par la spectrométrie alpha après la séparation chimique de l'uranium et du thorium.

Une nouvelle méthode inventée par deux des auteurs présents (Yokoyama et Nguyen, 1980, 1981) consiste à déterminer ce même rapport par la spectrométrie gamma non destructive. Cette dernière méthode présente l'avantage capital de ne pas détruire l'échantillon à dater, et est particulièrement adaptée

aux échantillons très précieux comme les ossements humains. Le crâne de l'Homme de Tautavel, l'os iliaque de la grotte du Prince, les mandibules de la grotte de Fate et la mandibule de la grotte d'Atapuerca ont été datés par cette méthode (Yokoyama et Nguyen, 1981, 1982; Giacobini et al., 1984). Nous espérons donc, dans un avenir proche, dater directement la mandibule de Banyoles. Pour cette étude préliminaire, nous avons essayé de dater par cette même méthode un ossement d'animal (une diaphyse humérus gauche de bovins) prélevé en 1949 dans la carrière F. Frigola, non loin du lieu de découverte de la mandibule humaine.

La spectrométrie gamma non destructive peut être aussi appliquée à la datation de calcite. Cependant, cette application est quelquefois limitée, si la teneur en uranium est faible.

La troisième méthode par laquelle nous avons tenté de dater ce travertin est la méthode de la résonance de spin électronique (ESR). Cette méthode, comme celle de la thermoluminescence, mesure l'accumulation des électrons piégés dans la calcite. Cependant le travertin de Banyoles n'était pas suffisamment pur et nous n'avons pu détecter le signal ESR dû aux électrons piégés dans cet échantillon. Par conséquent, la méthode de l'ESR n'a pas donné d'âge.

3. RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

Des résultats obtenus par les méthodes des familles de l'uranium sont reportés dans le tableau I. Pour l'ossement de bovins, les âges obtenus par la méthode de Th-230/U-234 et celle de Pa-230/U-235 semblent trop jeunes: 16.200 ± 3.200 ans et 17.100 ± 900 ans respectivement. Quoique ces deux âges soient en accord entre eux-mêmes et aussi avec l'âge C-14 du travertin, 17.600 ± 1.000 ans, il nous semble que ces âges ne correspondent pas à la date de la formation de cette terrasse. Cet accord d'âges serait plutôt fortuit ou tout au plus il serait dû à un événement d'altération qui se serait produit à cette date.

Les âges Th-230/U-234 du travertin (tableau I) semblent moins influencés par cette altération. Les résultats obtenus par les deux méthodes sont en bon accord: l'activité de U-238, celle de Th-238 et celle de Rn-222, déterminées indépendamment par la spectrométrie gamma et par la spectrométrie alpha, sont cohérentes. L'activité du Rn-222 est en équilibre avec celle de son ascendant, le Th-230. Cet équilibre indique une certaine assurance sur la qualité de l'échantillon, quoiqu'il ne le garantisse pas totalement contre la possibilité de l'altération dans le passé sur ce travertin.

Si l'on suppose que ce travertin est un système fermé, on obtient, à partir du rapport Th-230/U-234, un âge de 73.000 ± 4.000 ans. Cet âge peut être considéré comme l'âge minimum de ce travertin, car s'il y avait l'altération dans le passé, elle rajeunit l'âge de l'échantillon par l'introduction dans le système de l'uranium non accompagné de ses descendants.

Cependant, l'âge C-14 de ce travertin est beaucoup plus jeune: 17.600 ± 1.000 ans. Ce jeune âge indique que le carbonate de ce travertin a été en partie remplacé par du carbonate moderne. On peut estimer, à

partir de l'âge C-14, la contribution du carbonate moderne. Cette estimation a montré qu'environ 40 % des atomes de carbone ont été remplacés (voir la discussion ultérieure). L'uranium et ses descendants dans ce travertin ne peut rester dans le système fermé au moment d'un tel remplacement du composant majeur. C'est pourquoi il serait plutôt raisonnable de considérer ce travertin comme un système ouvert. Dans cette condition, pour déduire correctement l'âge Th-230/U-234, nous avons recherché le modèle de système ouvert, selon lequel la différence des âges entre la méthode C-14 et celle Th-230/U-234 puisse être expliquée avec cohérence.

Ce modèle consiste en deux étapes:

(i) On estime la fraction F du carbonate remplacé, à partir de l'âge C-14.

(ii) En utilisant cette fraction F, on corrige le rapport Th-230/U-234 R, et ensuite on en déduit l'âge de l'échantillon.

Dans cette première étape, nous supposons que le remplacement partiel du carbonate a commencé au temps t_1 (BP), et continué jusqu'au présent avec une vitesse constante, k, qui est égale à la fraction remplacée annuellement. La calcite nouvellement formée par ce remplacement peut avoir une activité C-14 égale à f/A_0 , où f est la fraction du carbone moderne et A_0 est l'activité spécifique du carbone moderne, 15,3 dpm/g C. Avec ces hypothèses, on obtient les équations suivantes:

$$A = \int_0^{t_1} k \cdot f \cdot A_0 \cdot \exp(-\lambda t) \cdot dt \quad (1)$$

$$= k \cdot f \cdot A_0 \cdot (1 - \exp(-\lambda t_1)) / \lambda \quad (1')$$

$$A = A_0 \cdot \exp(-\lambda T) \quad (2)$$

$$F = k \cdot t_1 \quad (3)$$

où A est l'activité C-14 du travertin, λ est la constante de désintégration du C-14, t est le moment du remplacement, F est la fraction totale de la calcite remplacée, et T est l'âge apparent C-14: 17.600 ± 1.000 ans.

A partir de Eq. (2) et la valeur de T, on obtient la valeur du rapport A/A_0 égale à 0,112: ce rapport représenterait la fraction des atomes du carbone moderne, si le remplacement de calcite avait été instantané et la décroissance du C-14 ainsi remplacé était négligeable. Cependant, il est peu probable que ce remplacement soit instantané, et par conséquent, il faut tenir compte de cette décroissance. D'autre part, tous les atomes de carbone dans la calcite nouvellement formée n'ont pas une origine moderne. Nous allons d'abord traiter ce dernier problème. Les carbonates de l'eau souterraine sont formés par la dissolution des calcaires ou travertins anciens par le gaz carbonique d'une origine atmosphérique ou biologique, dans une réaction chimique:



Comme on peut voir dans Eq. (4), la moitié des atomes du carbone dans l'ion HCO_3^- a une origine atmosphérique et l'autre moitié appartient au calcaire

Échantillon	Travertin YB-T1		Ossement A-146
	Spectrométrie α	Spectrométrie γ non destructive	Spectrométrie γ non destructive
Impureté			
insoluble %	0,2	n.d.	n.d.
Activité (dpm/g)			
U-238	0,101	$0,103 \pm 0,019$	$31,96 \pm 0,12$
U-234	0,135	n.d.	$36,87 \pm 3,28$
Th-230	0,068	n.d.	$5,13 \pm 0,78$
Ra-226	n.d.	n.d.	$4,05 \pm 0,19$
Rn-222	n.d.	$0,067 \pm 0,006$	$2,25 \pm 0,02$
Pa-231	n.d.	n.d.	$0,447 \pm 0,019$
Th-232	0,004	$< 0,004$	$< 0,011$
Rapport			
U-234/U-238	$1,340 \pm 0,017$	n.d.	$1,154 \pm 0,103$
Th-230/U-234	$0,504 \pm 0,014$	$0,485 \pm 0,099^*$	$0,139 \pm 0,025$
Pa-231/U-235	n.d.	n.d.	$0,304 \pm 0,013$
Th-230/Th-232	17,1	$> 17^*$	> 460
Age (ans)			
Th-230/U-234	73.000 ± 4.000	$70.000 \pm 21.000^*$	16.200 ± 3.200
Pa-231/U-235	n.d.	n.d.	17.100 ± 900

* L'équilibre entre le Th-230 et le Rn-222 a été supposé, et le rapport U-234/U-238 mesuré par la spectrométrie alpha été utilisé.

Tableau I. - Datation du travertin et de l'ossement prélevés dans la terrasse inférieure de Banyoles à Gérone, Espagne.

ancien. L'eau souterraine dans les régions calcaires est en général basique (pH = 8 à 9), et l'ion dominant est HCO_3^- . Par conséquent, la fraction du C-14 moderne, f, est égale à 0,5 (Tamers, 1966).

En ce qui concerne la décroissance du C-14 remplacé, on peut la calculer par une intégrale de l'Eq. (1). Pour cela, il est nécessaire d'estimer le temps du commencement de ce remplacement. La vitesse de remplacement du carbonate peut être faible pendant la période froide du Würm, et par conséquent, ce remplacement a pu être commencé à partir du réchauffement climatique à la fin Würm: par exemple il y a 11.000 ans. Nous adoptons cette dernière valeur pour t_1 (d'autres hypothèses seront expliquées dans l'annexe). En appliquant ces données dans Eqs. (1-3), nous avons pu obtenir une valeur de k égale à $0,374 \times 10^{-4}$, et celle de F égale à 0,41. Cette dernière valeur signifie que 41 % de carbonate de ce travertin ont été remplacé par du carbonate nouvellement formé.

Dans la deuxième étape de ce modèle, nous essayons de déterminer le rapport Th-230/U-234 de la partie intacte du travertin, en utilisant la valeur de la fraction F ainsi déduite de la première étape. Pour cela, nous supposons que les activités des nuclides dans ce travertin sont constituées de deux parties, celles dans la partie remplacée et celles dans la partie intacte:

$$A_{234,t} = F \cdot A_{234,n} + (1 - F) \cdot A_{234,a} \quad (5)$$

$$A_{230,t} = F \cdot A_{230,n} + (1 - F) \cdot A_{230,a} \quad (6)$$

où A_{234} et A_{230} sont respectivement l'activité de U-234 et celle de Th-230, et les indices a, n et t désignent respectivement les parties ancienne, nouvelle et totale. Ces deux équations peuvent être combinées pour déduire la relation entre les rapports des activités Th-230/U-234 dans ces différentes parties:

$$R_a = ((1-F + p \cdot F) \cdot R_t - F \cdot p \cdot R_n) / (1-F) \quad (7)$$

où R est le rapport Th-230/U-234, les indices a, n et t désignent respectivement les parties ancienne, nouvelle et totale, et p est un facteur qui est égal au rapport des activités de l'U-234 entre les parties nouvelle et ancienne. La teneur en uranium de la calcite nouvellement formée peut être égale à celle de la calcite ancienne, mais très souvent inférieure à cette dernière. Nous avons estimé une valeur de p égale à 0,5 avec une incertitude d'un facteur 2.

D'autre part, au moment de la recristallisation, les éléments tels que le thorium, qui sont incompatibles au réseau cristallin, peuvent être éliminés de ce dernier, et par conséquent, dans la partie nouvellement formée, le chronomètre Th-230/U-234 redémarre à zéro. Comme nous avons supposé que le remplacement du carbonate a commencé il y a 11.000 ans, la calcite nouvelle a un âge moyen de 5.500 ans, et par

conséquent, un rapport Th-230/U-234 égal à 0,05 (R_n). En introduisant dans Eq. (7) la valeur de F déduite dans la première étape, 0,41, et le rapport Th-230/U-234 mesuré expérimentalement, $R_t = 0,504 \pm 0,014$ (tableau I), nous avons pu déduire le rapport Th-230/U-234 de la partie originelle de ce travertin: $R_a = 0,66^{+0,16}_{-0,08}$. L'âge déduit de ce rapport est égal à $110.000^{+55.000}_{-20.000}$ ans.

L'erreur relativement importante de l'âge ainsi obtenu est due à l'incertitude du facteur p.

En conclusion, grâce à un modèle approprié de système ouvert, notre étude a montré que le travertin de Banyoles a un âge d'environ 110.000 ans. Cet âge confirme l'appartenance de ce travertin au Riss-Würm.

Remerciement

Nous remercions H. de Lumley pour sa discussion fructueuse. Nous lui sommes aussi reconnaissants de nous avoir aidé dans le prélèvement des échantillons.

Annexe

Nous avons essayé d'autres hypothèses, en particulier, celles selon lesquelles le remplacement du

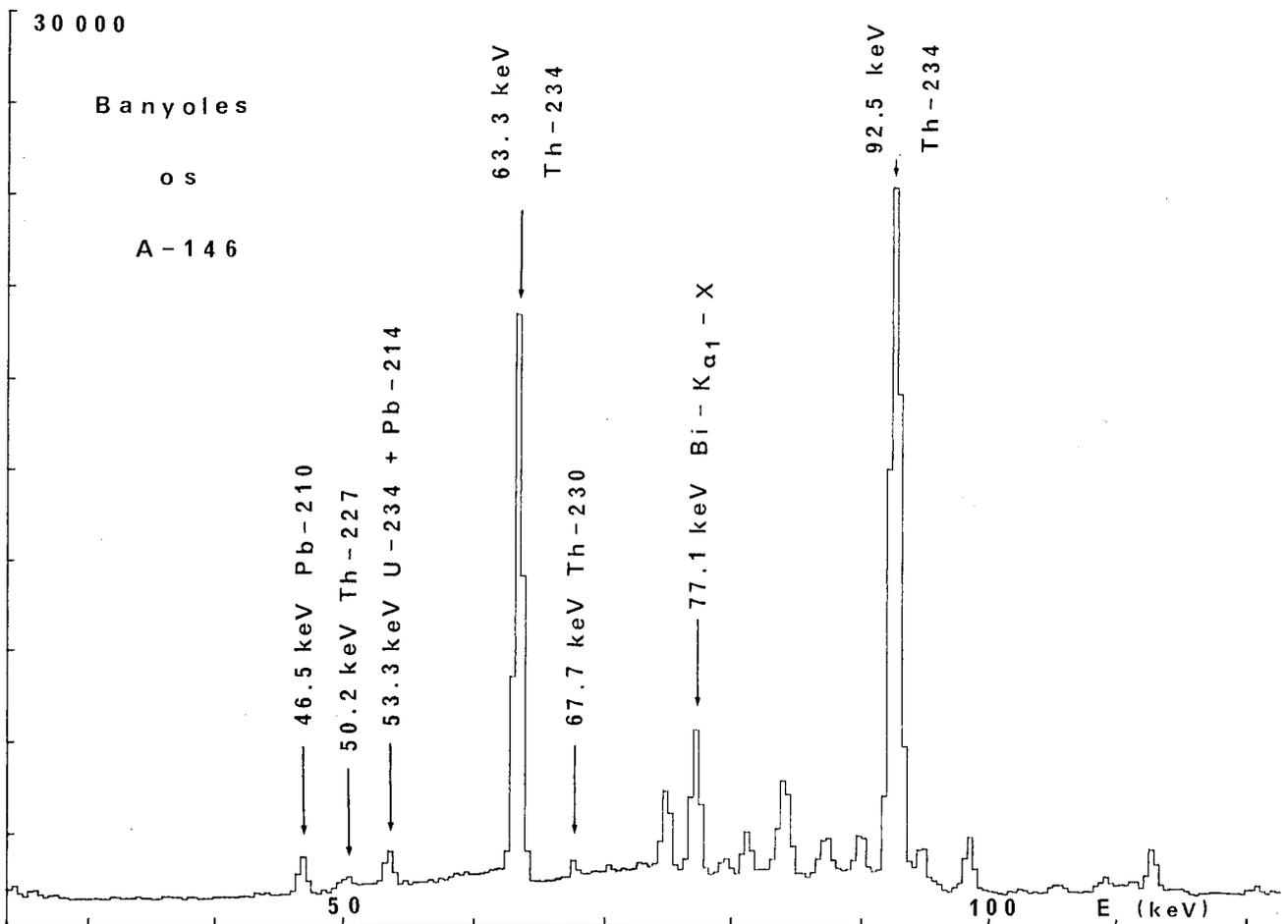


Fig. 2. - Spectre gamma d'un échantillon d'ossement, A-146, prélevé dans la terrasse inférieure de Banyoles à Gérone, Espagne (temps de comptage: 11.021 min.).

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

carbonate a commencé depuis la formation de ce dernier. Pour cela, trois modèles ont été considérés:

(1) la vitesse de remplacement est une constante par rapport à l'ensemble de carbonate, mais le remplacement est limité uniquement à la partie originelle: $dF/dt = k$. Ce modèle est le même que celui utilisé dans le texte, à l'exception du temps de commencement de remplacement.

(2) la vitesse de remplacement est également une constante mais par rapport à la partie restante non remplacée: $dF/dt = k(1-F)$.

(3) la vitesse de remplacement est toujours une constante, mais le remplacement s'effectue indifféremment sur la partie originelle et celle déjà remplacée précédemment.

Pour expliquer l'activité C-14, les deux premiers modèles aboutissent aux âges maximum de 36.000 ans BP et 21.000 ans BP respectivement. Ces âges sont contradictoires avec l'âge minimum Th-230/U-234: 73.000 ans BP.

En ce qui concerne la troisième modèle, en obtient, à partir de l'activité C-14, un âge moyen de 28.000 ans pour le carbonate. Le rapport maximum Th-230/U-234 obtenu par ce modèle est égal à 0,20.

Ce rapport maximum est en contradiction avec celui obtenu par l'expérience, $0,504 \pm 0,014$ (tableau I). Par conséquent, parmi les modèles que nous avons essayés, seul celui que nous avons expliqué dans le texte semble cohérent.

Méthode	Travertin		Os
	Système ouvert	Système fermé	Système fermé
Th-230/U-234*	110.000 ^{+55.000} _{-20.000}	73.000 ± 4.000	16.200 ± 3.200
Pa-231/U-235	n.d.	n.d.	17.100 ± 900
C-14**	n.d.	17.600 ± 1.000	n.d.

* Ce travail.

** Berger et Libby (1966).

n.d. non déterminé.

Tableau II. - Comparaison des âges obtenus par les différentes méthodes pour les échantillons de Banyoles à Gérone, Espagne.

BIBLIOGRAPHIE

- BECH J. D. (1971) - Contribution à la connaissance de la chronologie des terrasses lacustres de Banyoles, *Bull. Ass. Fr. Quat.*, I.
- BERGER R. et LIBBY W.F. (1966) - UCLA radiocarbon dates V, *Radiocarbon*, 8, pp. 467-497.
- GIACOBINI G., LUMLEY de M. A., YOKOYAMA Y. et NGUYEN H. V. (1984) - Neanderthal child and adult remains from a Mousterian deposit in Northern Italy (Caverna della Fate, Finale Ligure), *J. Human Evolution*, 13, pp. 687-707.
- LUMLEY de M. A. (1972) - L'Homme de Bañolas, *Anténéanderthalien et Néanderthalien du bassin méditerranéen occidental européen*, Études Quaternaires, 2, Université de Provence, pp. 105-229.
- RIPOLL E. et LUMLEY de H. (1964-1965) - El Paleolítico medio en Cataluña, *Ampurias*, 26-27, Barcelona, pp. 1-70.
- TAMERS M. A. (1966) - Surface water infiltration and ground

- water movement in arid zones of Venezuela, *Proc. Symp. Isotop. Hydrol.*, AIEA, Vienne, pp. 339-351.
- YOKOYAMA Y. et NGUYEN H. V. (1980) - Direct and non-destructive dating of marine sediments, manganese nodules, and corals by high resolution gamma-ray spectrometry, *Isotope Marine Chemistry* (E. D. GOLDBERG, Y. HORIBE et K. SARUHASHI, ed.), Uchida Rokakuho, Tokyo, Japon, pp. 259-289.
- YOKOYAMA Y. et NGUYEN H. V. (1981) - Datation directe de l'Homme de Tautavel par la spectrométrie gamma, non destructive, du crâne humain fossile Arago XXI, *Comptes rendus Acad. Sci.*, Paris, 292, Série III, pp. 741-744.
- YOKOYAMA Y. et NGUYEN H. V. (1982) - Datation directe par la spectrométrie gamma non destructive de l'Homme de la grotte du Prince à Grimaldi, *Résumés du 1.^{er} Congrès international de Paléontologie humaine*, Nice, p. 93.