

Datation par la spectrométrie gamma non destructive et la résonance de spin électronique (ESR) du remplissage de la grotte de l'Arbreda

YUJI YOKOYAMA (*), HUU-VAN NGUYEN (*), JEAN-PIERRE QUAEGBEUR (**), GUILLEMETTE LE HASIF (*) (***)
et ODILE ROMAIN (*) (***)

RÉSUMÉ

Des ossements du remplissage de la grotte de l'Arbreda (Gérone, Espagne) ont été datés par la spectrométrie gamma non destructive et la résonance de spin électronique (ESR). Les âges obtenus par des mesures préliminaires sur les trois niveaux du Solutréen et du Gravettien sont compatibles avec les âges obtenus par la méthode du C-14 sur les charbons de bois.

Pour le niveau inférieur du Moustérien, un âge Pa-231/U-235 de $83.000 \pm \frac{10.700}{8.700}$ ans et un âge Th-230/U-234 de $85.100 \pm \frac{38.200}{26.700}$ ans ont été obtenus.

ABSTRACT

Bones taken from the Arbreda cave deposits (Gerona, Spain) were dated by the non destructive gamma-ray spectrometry and the electron spin resonance (ESR). The ages obtained by preliminary measurements on three levels of the Solutréen and the Gravettien are compatible with the C-14 ages of charcoal samples.

For the lower mousterien level, a Pa-231/U-235 age of $83.000 \pm \frac{10.700}{8.700}$ years and a Th-230/U-234 age of $85.100 \pm \frac{38.200}{26.700}$ years are obtained.

1. INTRODUCTION

La grotte de l'Arbreda est située au nord-est de l'Espagne, à 30 Km. environ de la Méditerranée, dans la province de Gérone, non loin du village de Serinyà. Elle appartient à un ensemble d'abris et de grottes (Pau, Mollet I, Mollet III, Reclau-Viver,...) connu sous le nom de grottes de Serinyà. Ces gisements préhistoriques, très proches les uns des autres, sont creusés dans les travertins de l'ancienne terrasse du lac de Banyoles (terrasse de 65 m.) (fig. 1).

De toutes ces grottes dignes d'intérêt de Serinyà, celle de l'Arbreda reste encore la plus intéressante et la plus importante, car le remplissage de plus de 8 m. de profondeur comprend une succession presque complète des sols de différentes époques, le Solutréen, le Gravettien, l'Aurignacien et le Moustérien.

En effet, il est rare de trouver dans une site préhistorique une telle succession de différents faciés culturels, et par conséquent, la grotte de l'Arbreda peut être considérée comme le site de référence par excellence dans cette région.

Découverte en 1947 par J. M. Corominas, la grotte de l'Arbreda a été fouillée depuis 1972, et la collaboration franco-espagnole a débuté 1975 par H. de Lumley. Actuellement une campagne de fouille très intense est organisée chaque été par N. Soler, et la présentation des résultats de différentes études sur ce site est l'un des objets principaux de ce colloque.

2. STRATIGRAPHIE

La stratigraphie de cette grotte (fig. 2) peut être résumée de manière suivante:

1) de 0 à 2 m.: Néolithique - Age de métaux.

Ces couches sont caractérisées par la présence d'ossements humains accompagnés d'une industrie sur silex et quartz et d'une céramique en grande majorité lisse.

2) de 2 à 2,6 m.: Epipaléolithique.

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

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

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

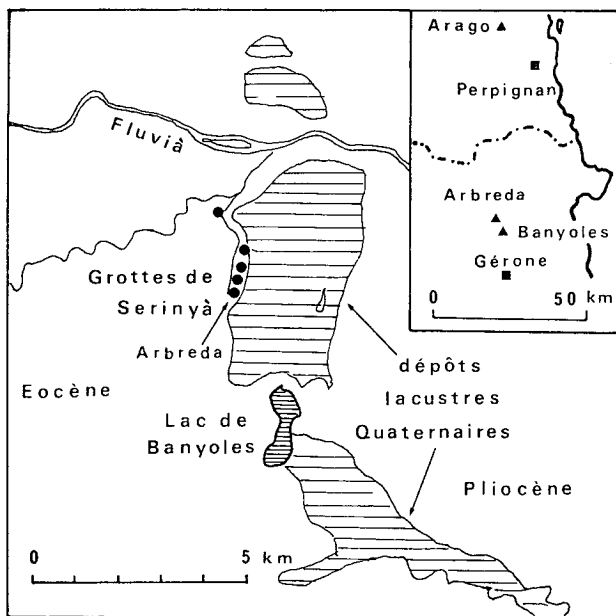


Fig. 1. - Situation géographique et géologique de la grotte de l'Arbreda à Gérone, Espagne.

On y trouve de nombreux ossements d'animaux. Par contre, l'industrie, semblable à celle de Reclau Viver, est peu abondante.

3) de 2,6 à 3,2 m.: Solutrénien.

Les niveaux solutréens se distinguent, d'une part, par la présence de gros blocs provenant de l'effondrement de la voûte de la grotte, et d'autre part, par une industrie lithique très riche: feuilles de laurier, pointes solutréennes fines, pointes pédonculées asymétriques. Des ossements d'animaux sont aussi abondants. Deux niveaux principaux se présentent entre 3 m. et 3,2 m., que nous appelons niveau supérieur (ou niveau 1) et niveau inférieur (ou niveau 2). Ces deux niveaux peuvent avoir des âges proches.

4) de 3,2 à 4,5 m.: Gravettien.

Ces niveaux sont dominés par une industrie taillée sur le silex et de très grande qualité technique: grattoirs, burins, pointes de la Gravette et lamelles à bord abattu. Il y a également une industrie sur galets. Des ossements d'animaux sont abondants.

5) de 4,5 à 5,6 m.: Aurignacien.

L'Aurignacien de l'Arbreda est lui aussi de bonne qualité. On y trouve des sagaies en os, des racloirs, des grattoirs à museaux, des burins, une industrie sur galets, des pointes de type moustérien, des pointes de Tayac, des pointes de Chatelperron, et des denticulés. Un niveau de l'Aurignacien évolué et celui de l'Aurignacien ancien sont relativement proches l'un de l'autre. Les fouilles entreprises à partir de l'été 1982 par N. Soler et ses collaborateurs ont découvert un foyer aurignacien.

6) de 5,6 à 8,8 m.: Moustérien.

Les niveaux du Paléolithique Moyen de cette grotte est remarquable par leur grande richesse et qualité du matériel. D'après la structure et la coloration des terres, deux niveaux géologiques, tous deux altérés par des phénomènes pédologiques mais dont la faune et l'industrie sont restées intactes, peuvent être mis en évidence:

de 5,6 à 7,2 m.: niveau dominé par des couteaux à dos, et

de 7,2 à 8,6 m.: où les denticulés et la technique Levallois abondent.

L'industrie est essentiellement taillée dans le quartz, puis la quartzite et les roches volcaniques. L'industrie sur silex est pratiquement absente. Elle n'apparaît qu'au niveau de 5,6 m. avec le début du Paléolithique Supérieur.

3. EXPÉRIENCES

Les échantillons analysés par la présente datation sont d'une part, trois mandibules d'animaux provenant du niveau supérieur solutrénien, du niveau inférieur solutrénien et du niveau inférieur gravettien, et d'autre part, trois échantillons d'esquille provenant de ces trois niveaux et une autre esquille prélevée dans un niveau moustérien situé au fond de puits (tableau I et fig. 2).

Les ossements sont souvent altérés par l'action de l'eau qui s'infiltre dans les sédiments, et, par conséquent, tous les ossements ne sont pas forcément datables. C'est pour cette raison qu'une sélection des échantillons est nécessaire. Dans ce but, nous avons d'abord effectué des mesures préliminaires sur ces échantillons. Les échantillons ainsi sélectionnés feront l'objet d'analyses plus précises dans l'avenir. Dans le présent article, nous rapportons les résultats de ces mesures préliminaires.

Pour les niveaux du Paléolithique Supérieur, les esquilles ont été datées par la résonance de spin électronique (ESR), et les mandibules par la spectrométrie gamma non destructive. Cette même méthode a été utilisée pour la datation de l'esquille du niveau moustérien. Nous donnons ici une brève explication de ces deux méthodes:

1) la spectrométrie gamma non destructive: on mesure directement les activités de U-238, U-234, Th-230 et Pa-231 par des rayonnements gamma émis par ces nucléides ou leurs descendants de courte période. L'âge de l'échantillon est obtenu soit par le rapport Th-230/U-234 (la méthode de l'uranium-thorium) soit par le rapport Pa-231/U-235 (celle de l'uranium-protactinium), (Yokoyama et Nguyen, 1980, 1981; Giacobini et al., 1984). Une analyse précise nécessite en général, 4 à 5 semaines de mesure. Les analyses préliminaires effectuées sur ces échantillons sont d'une durée de 3 à 7 jours. Par conséquent, la précision n'est pas très grande, mais suffisante pour reconnaître la qualité des échantillons.

2) la résonance de spin électronique (ESR): on mesure l'accumulation des électrons piégés dans le phosphate des ossements fossiles. Ces électrons piégés sont dus à l'action des rayonnements alpha, bêta et gamma des radioéléments contenus dans l'os et dans les sédiments environnants. L'âge est obtenu par la division de la paléodose par la dose annuelle. La paléodose est la dose accumulée des rayonnements, qui ont été absorbés par l'échantillon depuis sa formation. La hauteur du signal ESR est proportionnelle à cette paléodose. La dose annuelle est la dose des rayonnements, reçue annuellement par l'échantillon, et elle peut être calculée à partir des teneurs en radioéléments. Ces teneurs peuvent être également déterminées par la spectrométrie gamma (Yokoyama et al., 1982).

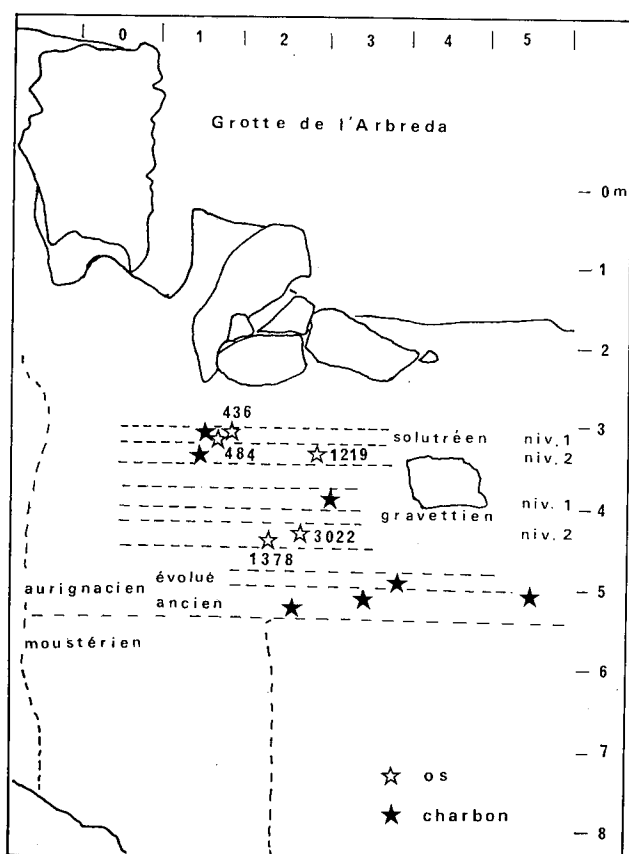


Fig. 2. - Coupe schématique entre zones D et E de la grotte de l'Arbreda à Gérone, Espagne. Seules les positions des échantillons prélevés dans ces zones sont indiquées.

Niveau	Zone N°	Nature
Solutréen niv. 1	E1 AE64 436	Mandibule de cheval
	E1 AE66 484	Diaphyse de tibia de cerf?
	E1 AE62-63	Charbon de bois
Solutréen niv. 2	E2 BE15 1219	Esquille d'os long d'artiodactyle
	B5 EB9 206	Mandibule de boeuf
	E1 AE66-70	Charbon de bois
Gravettien niv. 1	E2 BE24-26	Charbon de bois
Gravettien niv. 2	E1 AE88 1378	Esquille d'os long d'artiodactyle
	E2 BE34 3022	Mandibule de boeuf
Aurignacien réc.	E3 CE46-47	Charbon de bois
Aurignacien anc.	B3-E5	Charbon de bois
Moustérien	Fond de puits B3-43	Esquille d'os long (radius?)

Tableau 1.- Liste des échantillons prélevés dans différents niveaux paléolithiques de la grotte de l'Arbreda à Gérone, Espagne.

4. RESULTATS ET DISCUSSIONS

La figure 3 reproduit la région de basse énergie du spectre gamma d'un de ces échantillons. On peut y distinguer les pics dus aux Pb-210, Th-227, Th-230, U-234 et Th-234. Ce dernier nuclide a été utilisé pour la détermination de l'U-238. D'autre part, le Pa-231 a été déterminé par des rayonnements gamma de ses descendants, Th-227, Ra-223 et Rn-219. Le tableau II résume les résultats obtenus par la spectrométrie gamma non destructive.

Les figures 4 à 6 montrent les spectres ESR et la détermination des paléodoses par la méthode de l'addition. Les résultats de la méthode sont résumés dans le tableau III.

Les âges obtenus par ces méthodes sont récapitulés dans le tableau IV. Dans ce dernier tableau, les âges obtenus par la méthode C-14 sur des charbons du bois (Délibrias et al., 1986) sont aussi reportés à titre de comparaison.

Pour les niveaux du Paléolithique Supérieur, les âges obtenus par trois méthodes indépendantes, celle de l'uranium-thorium, celle de l'uranium-protactinium et celle de l'ESR sont, en général, en bon accord avec les âges C-14, si l'on tient compte des erreurs relativement importantes de ces analyses préliminaires.

La méthode de la spectrométrie gamma et celle de l'ESR sont généralement destinées à la datation des niveaux plus anciens. Cependant, ces niveaux anciens sont au-delà de la limite de la méthode du C-14, est c'est pourquoi une action coordonnée des différentes méthodes de datation pour un site comme l'Arbreda peut permettre de vérifier la fiabilité de ces nouvelles méthodes.

C'est donc avec ces méthodes bien confirmées que nous avons enfin daté le niveau inférieur du Moustérien de cette grotte, et obtenu un âge Pa-231/U-235 de $83.000 \pm_{-8.700}^{+10.700}$ ans et un âge Th-230/U-234 de $85.100 \pm_{-26.700}^{+38.200}$ ans. Ces âges indiquent que les dépôts préhistoriques de cette grotte remontent au début du Würm ou à la fin du Riss-Würm, et par conséquent peuvent comprendre une grande partie des événements du Würm.

Remerciement

Nous remercions H. de Lumley et N. Soler pour leur discussion fructueuse. Nous leur sommes aussi reconnaissants de nous avoir confié ces précieux échantillons.

Niveaux	Solutréen niv. 1		Solutréen niv. 2	Gravettien niv. 2		Moustérien
Échantillon	Mandibule 436	Esquille 484	Mandibule 206	Mandibule 3022	Esquille 1378	Esquille 43
Poids (g.)	211,5	10,3	195,4	291,7	14,8	161,0
Activité (dpm/g.)						
U-238	7,43 ±0,06	5,73±0,27	6,12 ±0,09	7,35 ±0,08	3,42±0,19	12,69 ±0,09
U-234	7,41 ±1,47	n.d.	6,38 ±1,56	7,51 ±1,78	n.d.	13,91 ±2,62
Th-230	0,81 ±0,37	n.d.	0,91 ±0,44	1,16 ±0,39	n.d.	7,64 ±0,76
Ra-226	0,70 ±0,12	0,84±0,09	0,96 ±0,17	1,08 ±0,14	0,86±0,07	7,88 ±0,18
Pa-231	0,067±0,018	n.d.	0,088±0,018	0,136±0,018	n.d.	0,483±0,020
Th-232	0,21 ±0,01	< 0,06	0,37 ±0,02	0,26 ±0,01	< 0,04	< 0,02
Rapport						
U-234/U-238	0,998±0,198	n.d.	1,042±0,255	1,022±0,242	n.d.	1,096±0,207
Th-230/U-234	0,109±0,054	n.d.	0,142±0,077	0,154±0,063	n.d.	0,549±0,117
Ra-226/U-234	0,094±0,025	0,147±0,034*	0,150±0,045	0,143±0,039	0,246±0,062*	0,566±0,107
Pa-231/U-235	0,196±0,053	n.d.	0,314±0,064	0,402±0,053	n.d.	0,827±0,035
Th-230/Th-232	3,9	>14**	2,6	4,5	>21**	>390
Age (ans)						
Th-230/U-234	12.500±6.900	n.d.	16.600±10.500	18.100±8.700	n.d.	85.100 ^{+38.200} -26.700
Ra-226/U-234	10.700±3.100	17.300±4.200*	17.600± 6.200	16.700±5.300	30.600±9.400*	89.100 ^{+36.800} -24.300
Pa-231/U-235	10.300±3.200	n.d.	17.800± 4.600	24.300±4.400	n.d.	83.000 ^{+10.700} - 8.700

n.d. non déterminé.
 * Le rapport U-234/U-238 de la mandibule prélevée dans le même niveau a été utilisé.
 ** Le rapport Ra-226/Th-232

Tableau II. – Datation par la spectrométrie gamma non destructive des ossements prélevés dans différents niveaux paléolithiques de la grotte de l'Arbreda à Gérone, Espagne.

Echantillon			U	Paléodose	Dose annuelle (mrad/an)			Age
Niveau	N°	(ppm)	(Krad)		int.	ext.	tot.	(ans)
Solutréen	niv. 1	484	7,81±0,37	1,97±0,11	44	40	84	23.400±5.000
Solutréen	niv. 2	1219	6,62±0,15	1,62±0,21	37	40	77	21.000±5.000
Gravettien	niv. 2	1378	4,66±0,26	1,36±0,11	26	40	66	20.600±4.400

Tableau III. – Datation par la méthode de la résonance de spin électronique (ESR) des ossements prélevés dans différents niveaux paléolithiques de la grotte de l'Arbreda à Gérone, Espagne.
 Les âges ont été calculés par la méthode publiée précédemment (Yokoyama et al., 1982), en tenant compte des déséquilibres radioactifs des familles de l'uranium dans l'ossement. Par conséquent, les doses annuelles reportées dans ce tableau sont des doses moyennes dans le temps.
 Nous avons adopté les paramètres empiriques suivants: la valeur k = 0,1; la dose externe = 40 mrad/an; le rapport Rn-222/Ra-226 = 0,25; la teneur en eau = 50 % et l'erreur de la dose annuelle = ±20 %.

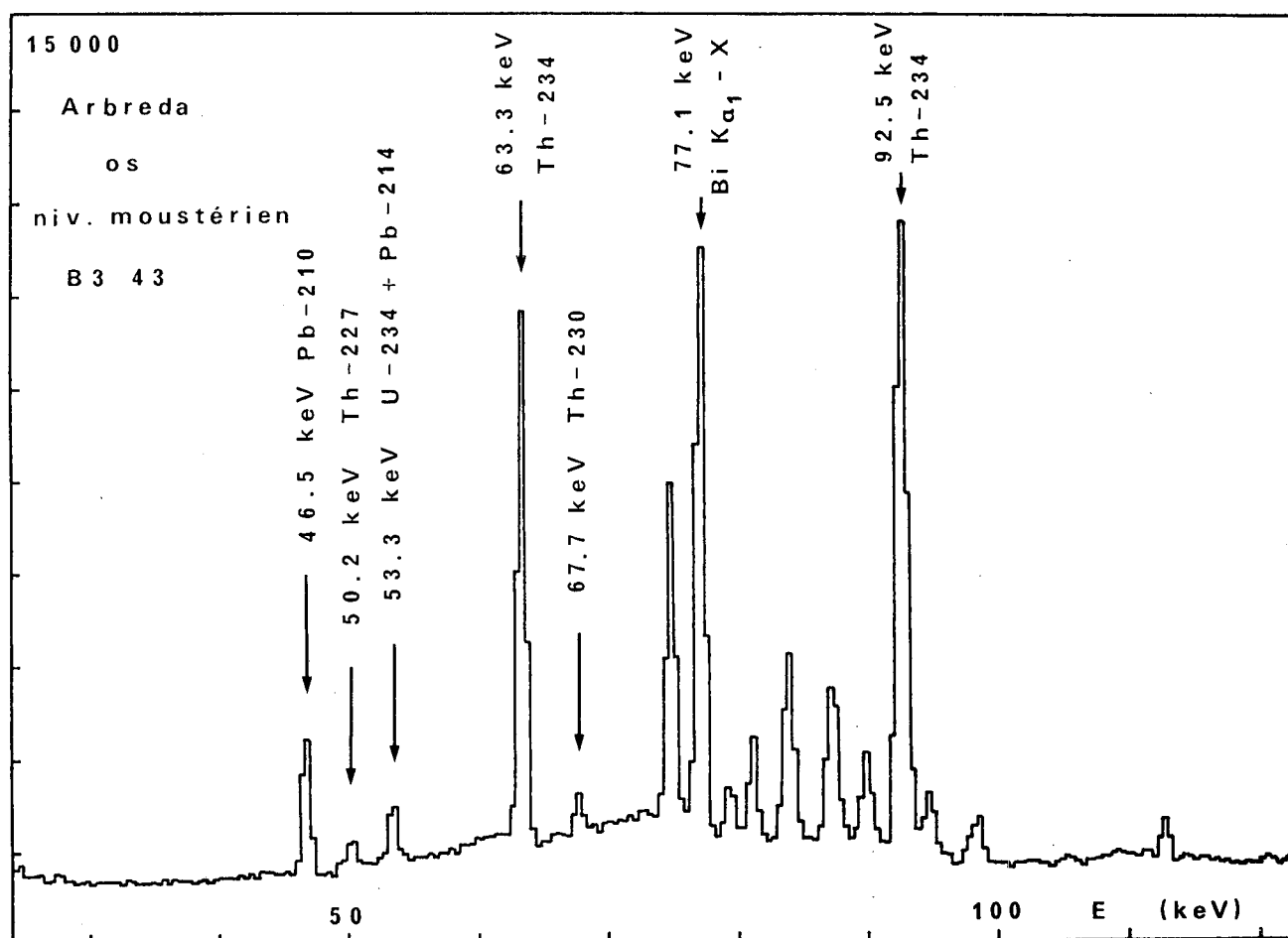


Fig. 3. - Spectre gamma d'un échantillon d'ossement prélevé dans un niveau moustérien de la grotte de l'Arbreda à Gérone, Espagne (temps de comptage: 12.572 minutes).

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

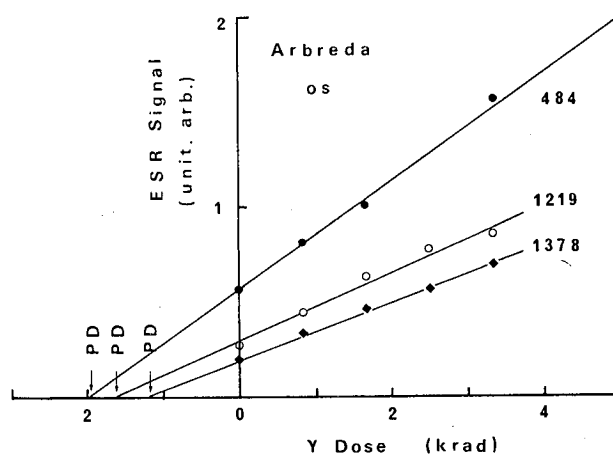


Fig. 6. - Détermination des paléodoses par la méthode de l'addition des ossements prélevés dans différents niveaux paléolithiques de la grotte de l'Arbreda à Gérone, Espagne.

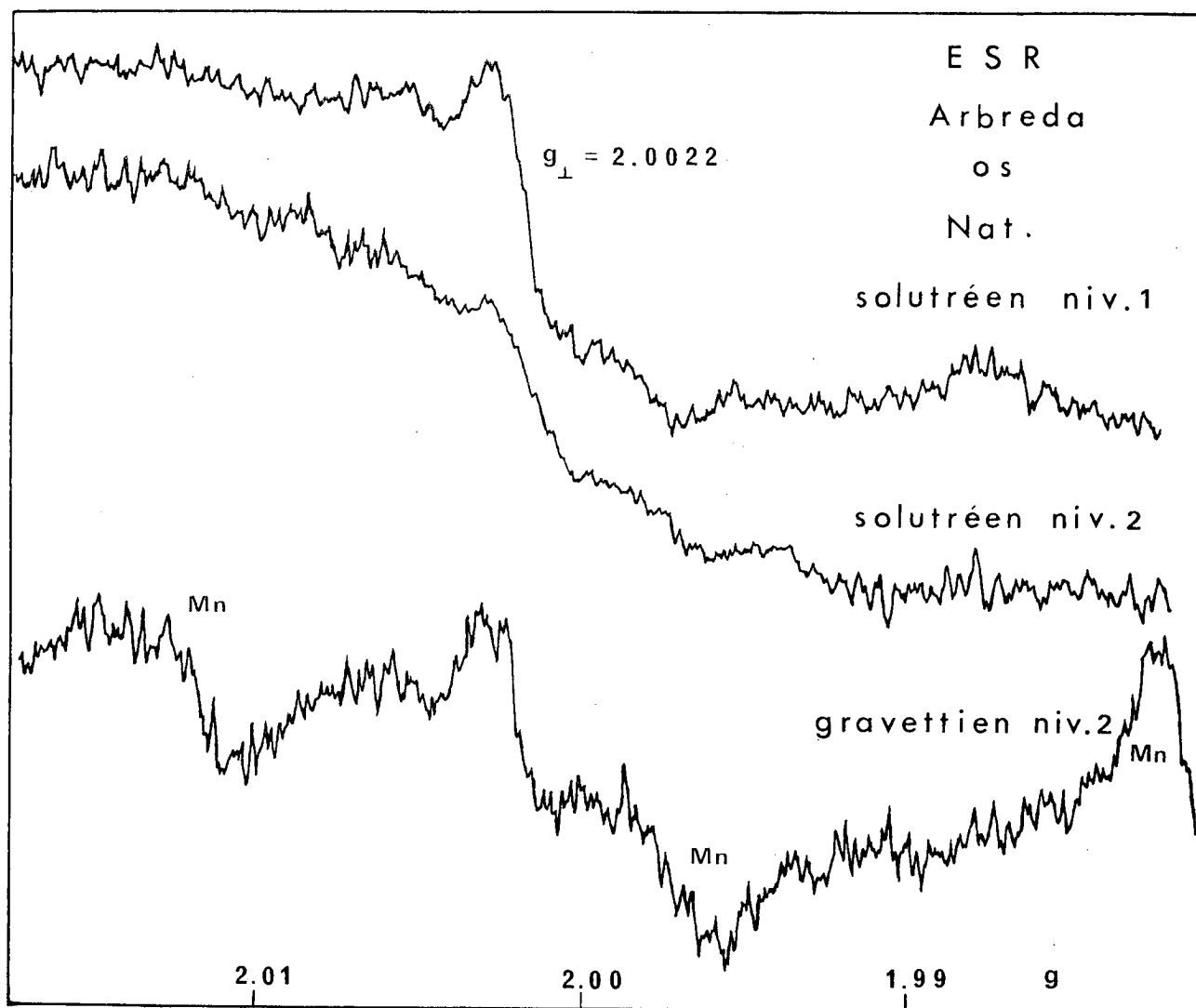


Fig. 4. - Spectres ESR des ossements prélevés dans différents niveaux paléolithiques de la grotte de l'Arbreda à Gérone, Espagne.

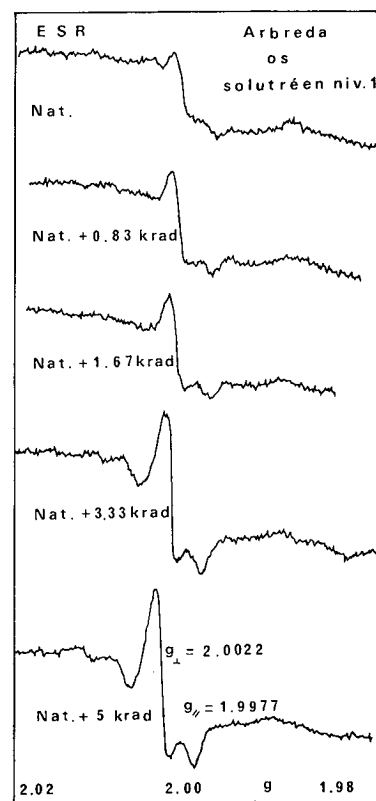


Fig. 5. - Spectres ESR d'un ossement irradié avec les différentes doses gamma.

Niveau		Age (ans)			
		C-14	ESR	Pa-231/U-235	Th-230/U-234
Solutréen	niv. 1	17.320±290	23.400±5.000	10.300± 3.200 —	12.500± 6.900 17.300± 4.200(*)
Solutréen	niv. 2	17.720±290	21.000±5.000	17.800± 4.600	16.600±10.500
Gravettien	niv. 1	20.130±220	—	—	—
Gravettien	niv. 2	—	20.600±4.400	24.300± 4.400 —	18.100± 8.700 30.600± 9.400*
Aurignacien rec.		22.590±290	—	—	—
Aurignacien anc.		25.830±400	—	—	—
Moustérien		—	—	+10.700 83.000 — 8.700	+38.200 85.100 —26.700

* L'âge Ra-226/U-234 (voir la note du tableau II).

Tableau IV. – Comparaison des âges obtenus par les différentes méthodes pour les niveaux paléolithiques de la grotte de l'Arbreda à Gérone, Espagne.

BIBLIOGRAPHIE

DELIBRIAS G., ROMAIN O. et LE HASIF G. (1986) - Datation par la méthode de carbon-14 du remplissage de la grotte de l'Arbreda, *Cypselà*, VI, Girona, pp.

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.

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. ORIBE et K. SA-
RUHASHI 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., NGUYEN H. V., QUAEGBEUR J. P. et POUPEAU G. (1982) - Some problems encountered in the evaluation of annual dose-rate in the electron spin resonance dating of fossil bones, *PACT*, 6, pp. 103-115.