

CINQ MILLÉNAIRES DE MÉTALLURGIE EN MONTAGNE BASQUE LES APPORTS D'UNE DÉMARCHE INTÉGRÉE ALLIANT PALYNOLOGIE ET GÉOCHIMIE ISOTOPIQUE DU PLOMB

Didier GALOP*, Magali TUAL**, Fabrice MONNA***, Janusz DOMINIK****,
Argitxu BEYRIE***** et Fabrice MAREMBERT*****

RÉSUMÉ – Une démarche intégrée alliant palynologie et géochimie isotopique du plomb a été engagée dans une tourbière du Pays basque, au cœur d'une région reconnue comme étant un foyer métallurgique ancien. Elle permet de reconstituer l'histoire des activités minières et métallurgiques et d'en apprécier l'impact sur l'environnement forestier au cours des cinq derniers millénaires. Plusieurs phases d'activités ont été repérées entre le début du III^e millénaire av. J.-C. et l'époque moderne (Bronze moyen, Bronze final, Antiquité, époque moderne). La plupart sont clairement associées à des indices polliniques de réduction du couvert forestier, toutefois il ressort que localement l'impact de la métallurgie au bois sur les forêts n'atteint son paroxysme qu'à partir des XV^e-XVI^e siècles.

MÉTALLURGIE – GÉOCHIMIE – PALYNOLOGIE – HISTOIRE DE L'ENVIRONNEMENT – PAYS BASQUE

ABSTRACT – FIVE THOUSAND YEARS OF METALLURGY IN THE BASQUE MOUNTAINS: THE CONTRIBUTIONS OF AN INTEGRATED PROCESS MIXING PALYNOLOGY AND THE ISOTOPIC CHEMISTRY OF LEAD. An interdisciplinary research combining palynology and lead isotopic geochemistry was performed in a peat bog of the Basque Country, in an area recognized as being an old metallurgical centre. These various analyses make it possible to reconstitute mining and metallurgical activities and to appreciate the impact on forest during last five millennia. Several phases are attested between late Neolithic and modern times (Middle Bronze age, Late Bronze age, Antiquity and finally modern time). Most of these phases are clearly related to forest clearance, however it arises that locally the impact of the metallurgy on wood peaks at the beginning of centuries 15th-16th.

METALLURGY – GEOCHEMISTRY – PALYNOLOGY – ENVIRONMENTAL HISTORY – PAYS BASQUE

RESUMEN – CINCO MILENIOS DE METALURGÍA EN LAS SIERRAS VASCAS. APORTES DE UN MÉTODO INTEGRADO, USANDO PALINOLOGÍA I GEOQUÍMICA ISOTÓPICA DEL PLOMO. Un método integrador que usa conjuntamente palinología i geoquímica del plomo ha sido empleado en una turbera del País Vasco, en el corazón de una región de antigua metalurgia. Así se puede reconstituir la historia de las actividades mineras y metalúrgicas, y evaluar las consecuencias sobre el ambiente forestal durante los cinco últimos milenios. Se identifican varias fases de actividad entre los principios del tercer milenio AC y la época moderna (Bronce medio, Antigüedad, época moderna). La mayoría es claramente asociada a pruebas polínicas de una superficie forestal disminuida; sin embargo, el impacto de la metalurgia basada en leña alcanza su paroxismo en los siglos quince y dieciséis.

METALURGÍA – GEOQUÍMICA – PALINOLOGÍA – HISTORIA DEL MEDIO AMBIENTAL – PAÍS VASCO

* Chargé de recherches CNRS, laboratoire de Chrono-Écologie, UMR 6565 CNRS, UFR des Sciences et Techniques, 16 route de Gray, F-25030 Besançon Cedex, France.

** Étudiante DEA, GéoSol, CST, UMR INRA, Université de Bourgogne, 6 bd Gabriel, F-21000 Dijon, France.

*** Maître de Conférences, GéoSol, CST, UMR INRA, Université de Bourgogne, 6 bd Gabriel, F-21000 Dijon, France.

**** Institut F.-A. Forel, Université de Genève, 10 route de Suisse, CH-1290 Versoix, Suisse.

***** Doctorante, UTAH-UMR 5608 CNRS, Maison de la recherche, Université de Toulouse-Le-Mirail, F-31058 Toulouse Cedex.

***** Doctorant, Centre d'anthropologie, UMR 8555 CNRS, 30 allées Jules Guesde, F-31000 Toulouse, France.

Introduction

Grâce aux recherches historiques et écohistoriques réalisées principalement en Ariège et dans les Pyrénées-Orientales, on est désormais en mesure d'évaluer le poids de la métallurgie au bois sur l'économie et sur la transformation des paysages forestiers pyrénéens depuis la fin du Moyen Âge (Fruhauf, 1980; Bonhôte, 1992; Verna, 1994; Izard, 1999; Davasse, 2000). Cependant, force est de constater que les données antérieures à cette époque sont rares, bien que les preuves d'une industrie minière et métallurgique datant du début de notre ère (I^{er}-IV^e siècle apr. J.-C.) soient patentes sur l'ensemble du massif (Mut *et al.* 1984; Dubois et Guilbaut 1986; Dubois *et al.*, 1998; Ancel, 1999; Davasse, 2000; Beyrie, sous presse). Plus on remonte dans le temps et plus l'histoire de ces activités devient incertaine. Plusieurs découvertes d'objets en métal laissent supposer une production métallurgique pyrénéenne dès le début de l'âge des métaux, mais rien n'est encore réellement confirmé, contrairement au rebord méridional de la Montagne Noire, où cette activité est attestée dès le début du III^e millénaire av. J.-C. (Ambert, 1996 et 1997). L'éventualité d'échanges commerciaux et d'une forte mobilité des objets métalliques est souvent évoquée.

Toutefois, la logique voulant que des régions riches en ressources minérales soient favorables à l'émergence de cette activité (Guilaine, 1994), on peut légitimement supposer que la métallurgie s'est développée sur le massif pyrénéen dès la fin du Néolithique, mais cela reste encore à démontrer.

Si les vides chronologiques caractérisant la métallurgie constituent des questions ouvertes, son impact sur l'environnement dans la longue durée en est une autre, tout aussi fondamentale. En effet, dans l'étude des conséquences de l'anthropisation sur les écosystèmes pyrénéens (Galop, 1998), l'impact de la métallurgie au bois n'est considéré qu'à partir de l'Antiquité, sous l'effet pervers d'un « romanocentrisme » bien involontaire. Il devient important de réévaluer ce point de vue, en associant désormais aux conséquences du développement des

pratiques agro-pastorales, celui des premières métallurgies. Celui-ci paraît cependant difficile à évaluer, notamment par des méthodes classiques telles que la palynologie.

Cet article présente les premiers résultats d'une recherche intégrée, initiée dans le cadre du Programme Collectif de Recherche « Paléoenvironnement et dynamiques de l'anthropisation de la montagne basque ». Ces investigations combinent à l'analyse pollinique d'une tourbière, l'étude géochimique de ce même enregistrement sédimentaire, dans le but de reconstituer l'histoire et l'impact environnemental des activités métallurgiques dans une perspective diachronique. Cette démarche interdisciplinaire, qui représente une nouvelle voie de recherche dans le domaine de la paléométallurgie, a été engagée sur le site de Quinto Real, dans la haute vallée des Aldudes (Navarre) (fig. 1). Ce secteur du Pays basque, connu en raison de la présence des mines et de la fonderie de cuivre de Banca, constitue à l'échelle du massif un foyer métallurgique important et ancien en raison de sa richesse en gisements polymétalliques (Cu, Pb, Zn, Fe). Les sources textuelles attestent d'une intense exploitation minière et métallurgique entre le XVII^e et le début du XX^e siècle (Machot, 1995), mais il apparaît que le cuivre, le fer et le plomb y ont été exploités

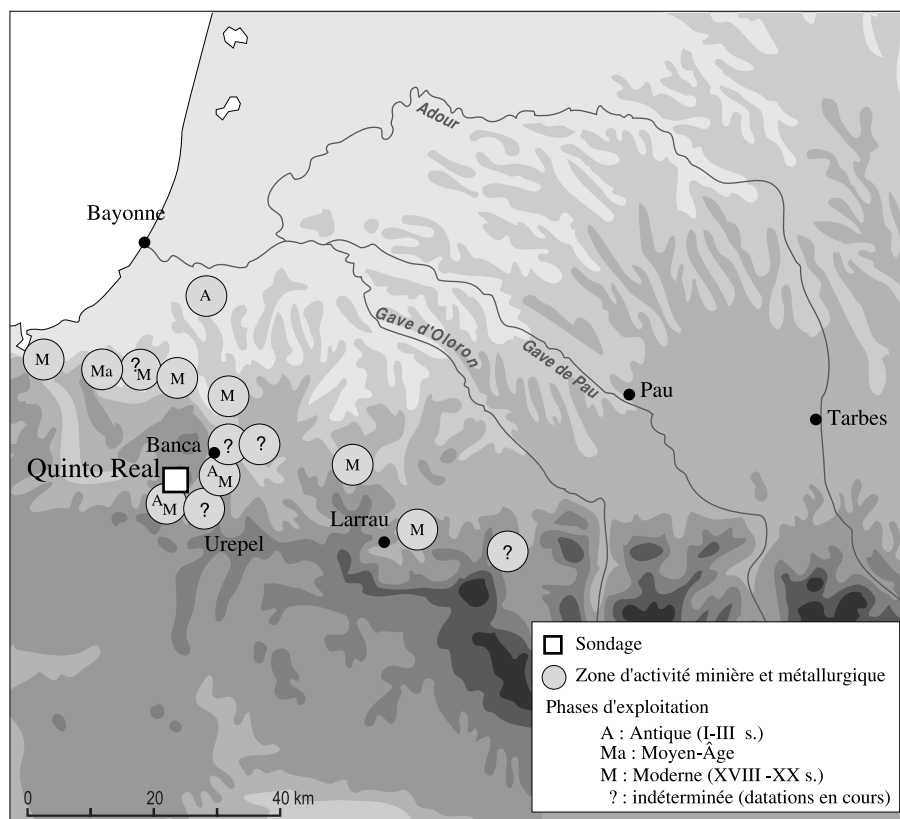


Fig. 1 – Localisation du site de Quinto Real et principales zones d'activités minières et métallurgiques en Pays basque nord entre l'Antiquité et l'époque moderne

et traités depuis le début de notre ère. Bien que les recherches archéologiques n'en soient qu'à leur début, plusieurs phases d'exploitation sont attestées depuis l'Antiquité, comme en témoignent les ferriers et zones d'extractions des I-III^e siècles repérés dans la partie amont de la vallée, notamment dans le bassin d'Urepel et dans le massif de l'Hayra (Beyrie, 2000). Toutefois, malgré les évidences d'un peuplement protohistorique important signalé dès la fin de l'âge du bronze ⁽¹⁾ par l'abondance des structures mégalithiques (Blot, 1993), il n'existe encore pas de preuve d'une activité paléométallurgique antérieure à l'Antiquité.

I – La mémoire du plomb

L'analyse pollinique n'est pas en mesure de confirmer à elle seule l'existence d'activités extractives ou métallurgiques. Tout au plus livre-t-elle des informations sur les éventuelles déforestations consécutives à ces pratiques tout en décrivant le contexte d'anthropisation dans lequel elles s'inscrivent. En revanche, l'étude géochimique des archives naturelles : tourbières (Shotyk *et al.*, 1996; Martinez-Cortizas *et al.*, 1997; Weiss *et al.*, 1997; Görres et Frenzel, 1997; Kempter *et al.*, 1997; MacKenzie *et al.*, 1998; Kempter et Frenzel, 1999, 2000; Shotyk *et al.*, 2000), glaces (Hong *et al.*, 1994; Boutron, 1995; Rosman *et al.*, 1997), sédiments lacustres (Schettler et Romer, 1998) et marais côtiers (Alfonso *et al.*, 2001), permet de retracer l'histoire des dépôts atmosphériques en micro-polluants métalliques, et donc de reconstruire en partie la chronologie des grandes phases d'exploitation. À titre d'exemple, on a ainsi récemment démontré que l'incidence des activités extractives et métallurgiques pendant l'Antiquité dépasse largement le cadre régional du bassin méditerranéen puisqu'elle affecte des territoires aussi reculés que le Groenland (Boutron *et al.*, 1994; Hong *et al.*, 1994) et le Nord de la Suède (Brännvall *et al.*, 1997, 1999). Deux problèmes se posent alors. Ils concernent d'une part la bonne conservation du signal géochimique contenu dans l'archive, et d'autre part les capacités de discrimination des apports locaux face à la contribution continentale. En outre, la seule mesure des concentrations en métaux lourds peut engendrer certaines ambiguïtés, notamment dans les cas où les variations observées résultent de phénomènes naturels comme par exemple l'augmentation des apports détritiques consécutifs à une déforestation massive. C'est pour cette raison que dans ce domaine l'utilisation des techniques isotopiques du plomb s'est

(1) Deux structures funéraires ont fait l'objet de datation (Blot, 1993). Il s'agit du Cromlech de Mehatze à Banca, daté 2730 ± 100 BP (879 cal BC) et du tumulus-cromlech de Zaho II, aux Aldudes, daté 2640 ± 90 BP (804 cal BC).

développée depuis peu (Brännvall *et al.*, 1997; Rosman *et al.*, 1997; Shotyk *et al.*, 1998; Dunlap *et al.*, 1999; Bindler *et al.*, 1999; Renberg *et al.*, 2000; Monna *et al.*, 2000a). En effet le plomb possède des caractéristiques uniques qui le rendent particulièrement bien adapté à cette recherche (Faure, 1986; Kramers et Tolstikhin, 1997). Il est composé de quatre isotopes stables : ²⁰⁴Pb, ²⁰⁶Pb, ²⁰⁷Pb et ²⁰⁸Pb. Le premier de ces isotopes (²⁰⁴Pb) n'est pas radiogénique, c'est-à-dire qu'il n'est pas issu de la désintégration d'un isotope radioactif. Son abondance est donc restée identique depuis la formation de la Terre. Les trois autres isotopes (²⁰⁶Pb, ²⁰⁷Pb et ²⁰⁸Pb) sont produits de façon continue au cours du temps par la désintégration d'isotopes radioactifs : ²³⁸U, ²³⁵U et ²³²Th. Pour simplifier, lors de la ségrégation d'une minéralisation, en général sulfurée comme la galène, le plomb est isolé de ses isotopes pères (U et Th); sa composition isotopique s'en trouve « gelée »; elle n'évolue plus à partir de la cristallisation. À l'opposé, dans les roches et les sols, la production en plomb radiogénique continue en présence d'isotopes pères. Bien que cela ne soit pas toujours vrai, les minéralisations sont souvent moins radiogéniques que les terrains encaissants. Il est donc possible de distinguer un plomb issu de l'érosion du substratum de celui remobilisé par l'homme dans l'environnement à la suite des pratiques minières ou métallurgiques ⁽²⁾. En archéologie, cette même méthode est utilisée avec plus ou moins de succès pour déterminer la provenance de certains objets (Stos-Gale *et al.*, 1995; Snoek *et al.*, 1999; Boni *et al.*, 2000; Shortland *et al.*, 2000; Al-saa'd, 2000).

II – Matériel et méthodes

La tourbière de Quinto Real se trouve en Espagne, dans la haute vallée des Aldudes, à une altitude de 910 m (fig. 1). Il s'agit d'une tourbière active topogène d'une superficie inférieure à un hectare permettant un enregistrement local de la pluie pollinique (Jacobson et Bradschaw, 1981). Le gisement est installé sur l'interfluve séparant les vallées du Baztan et de la Nive des Aldudes, dans une dépression située en amont d'un bourrelet dont l'origine semble héritée des processus de solifluxion ayant affecté le versant nord-est du massif d'Ocoro (Viers, 1960). L'environnement immédiat est dominé par des pelouses pastorales et par des lambeaux de hêtraie.

Une carotte de 420 cm a été prélevée à l'aide d'un carottier manuel (type GIK) de 8 cm de diamètre en vue de son étude géochimique et pollinique. La stratigraphie, relativement homogène, est détaillée sur le diagramme polli-

(2) Ces méthodes sont également utilisées pour retracer la genèse d'un gisement ou déterminer son âge.

nique (fig. 4). Le seul changement lithologique noté dans ce profil essentiellement organique et tourbeux est constitué par une passée argileuse surmontée d'un horizon sableux entre les profondeurs 314 et 358 cm.

Analyses géochimiques, palynologiques et datations

Les 56 échantillons, prélevés à pas plus ou moins régulier, ont été séchés à l'étuve à 50° C pendant trois jours puis broyés dans un mortier. La perte au feu permet d'obtenir une information rapide sur la teneur en matière organique. Elle a été déterminée à partir d'un gramme de tourbe sèche après passage dans un four en silice, maintenu à 500° C pendant quatre heures. Les teneurs élémentaires en scandium et en plomb ont été déterminées respectivement par activation neutronique instrumentale (Actlabs, Ontario), et par ICP-MS HP 4500 à l'Institut F.-A. Forel-Université de Genève après attaque totale (Monna *et al.*, 2000a). Les

compositions isotopiques en Pb ont également été déterminées à l'aide de l'ICP-MS HP 4500 selon la procédure décrite dans Monna *et al.* (1998, 2000b).

L'étude du contenu sporo-pollinique de cette séquence a été réalisée avec une résolution moyenne. 70 échantillons ont pour l'instant fait l'objet d'une analyse. Chaque spectre a été établi à partir d'une somme totale supérieure à 500 grains de pollen, exclusion faite de l'aulne (Janssen 1959), des spores et des taxons hygrophiles (*Cyperaceae*, *Ranunculaceae*). Les résultats de l'analyse ont permis d'établir un diagramme pollinique (fig. 4) dont nous présentons ici les courbes des principales essences forestières et des herbacées indicatrices des activités humaines (cf. nitrophiles, rudérales et plantes cultivées).

Quatre datations par le radiocarbone ont été réalisées sur l'ensemble du profil (tabl. 1). Trois d'entre elles ont été confiées au Centre des Sciences de la Terre de l'Université

de Lyon et une a fait l'objet d'une mesure AMS par le Laboratoire *Beta Analytic Inc.* de Miami. Ces datations ont été calibrées à l'aide du logiciel Calib 4.3. (Stuiver *et al.*, 1998).

Ces datations révèlent un taux de sédimentation relativement rapide (fig. 2), proche du millimètre/an. Une telle dilatation, rarement observée dans les Pyrénées, rehausse l'intérêt de cette séquence, car elle permettra ultérieurement des reconstitutions détaillées.

Quelle signification donner aux signaux géochimiques ?

Avant de tirer des conclusions des signaux géochimiques observés dans la colonne de tourbe, il est nécessaire de s'intéresser à leur signification réelle. Ce qui revient en d'autres termes à s'assurer que le plomb n'a pas migré suite à des processus propres à

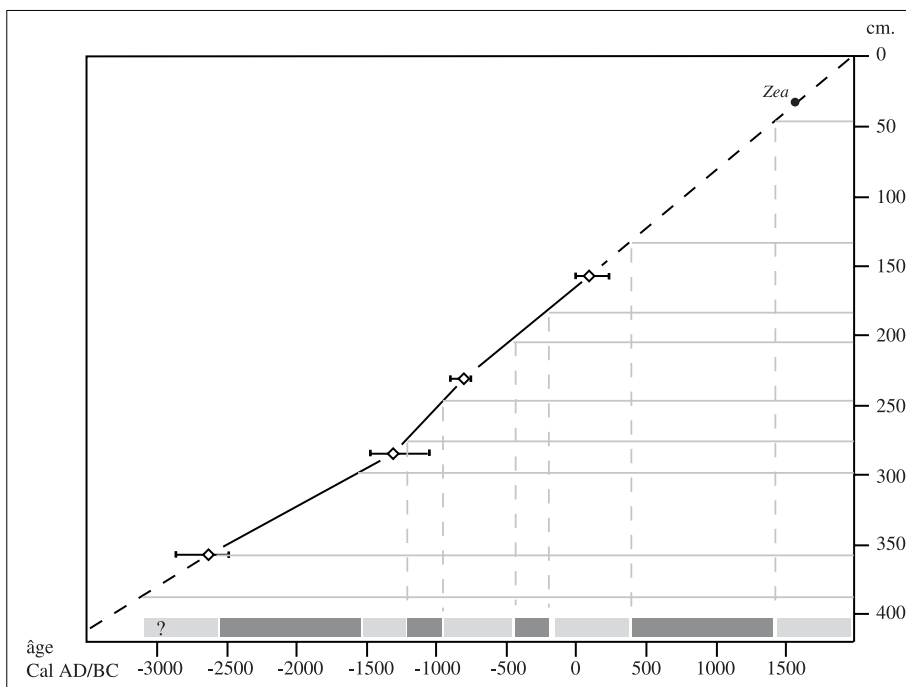


Fig. 2 – Taux de sédimentation dans la tourbière de Quinto Real

Celui-ci est établi sur la base des datations radiocarbone disponibles. Les rythmes signalés en pointillés sont, faute de datation, affectés d'un marge d'incertitude. En gris clair, les phases d'exploitation minière et métallurgique identifiées ; en gris foncé, les phases de repli.

Tableau 1 – Dates radiocarbone obtenues sur la séquence de Quinto Real

Échantillon	Profondeurs	Matériel	Âge 14 C BP (2 sigma)	Âge calibré AD/BC (2 sigma)
Ly-10587	157-159	Tourbe	1895±50	3 (88, 100, 125) 240 cal AD
Ly-10588	229-231,5	Tourbe	2645±45	896 (804) 787 cal BC
Ly-10589	283-285	Tourbe	3045±70	1485 (1368, 1362, 1315) 1051 cal BC
Beta-156997	357	Tourbe	4120±40	2876 (2662, 2646, 2625) 2501 cal BC

l'évolution de la matière organique, et que son évolution en profondeur reflète essentiellement l'histoire des apports atmosphériques.

Il est communément admis qu'avec des teneurs en matière organique bien inférieures à 90 %, les apports en éléments métalliques ne s'effectuent pas uniquement par dépôts atmosphériques, mais aussi en partie par transferts aqueux latéraux et/ou basaux depuis le substratum (Shotyk, 1996a ; Shotyk, 1996b). La tourbière peut donc être qualifiée de minérotrophe, à l'opposé du type ombrogène presque exclusivement organique et isolé des apports venant du substratum. En outre, le plomb ayant un fort pouvoir complexant avec la matière organique (Fisher *et al.*, 1992), on peut raisonnablement s'interroger sur la bonne conservation de l'enregistrement dans les niveaux les plus détritiques observés autour de 315 cm, mais aussi dans ceux situés vers 140 et 80 cm. Deux questions se posent alors :

– ces distributions résultent-elles d'une migration verticale, auquel cas elles ne sont plus interprétables en termes historiques ?

– et ensuite, si le signal atmosphérique est convenablement préservé dans la tourbière, comment l'isoler de celui provenant du substratum ?

Sans fournir de réponses définitives, un examen attentif des courbes (fig. 3) offre plusieurs indices. Si le plomb apporté par l'atmosphère avait migré verticalement vers des zones riches en matière organique où il se serait finalement stabilisé, il devrait présenter de fortes corrélations

avec cette dernière. Or ce n'est jamais le cas, sauf dans la partie basale (290 à 414 cm). Au contraire, les pics apparaissent indépendamment des enrichissements en matière organique, comme celui identifié vers 150 cm qui est même associé à une zone plutôt terrigène.

La zone enrichie en surface et celle localisée vers 150 cm sont peu développées alors que si elles avaient été affectées par une migration après le dépôt on pourrait s'attendre à un étalement important par effet de pénétration, voire même à une homogénéisation d'une partie du profil. La redistribution élémentaire par les plantes à travers la colonne de tourbe peut aussi être raisonnablement écartée, comme en témoigne la faible amplitude du niveau sévèrement pollué dans la partie sommitale.

Excepté les horizons situés entre 290 et 414 cm qui méritent une attention particulière, puisque les concentrations de plomb y suivent assez étroitement celles de la matière organique, il paraît raisonnable de penser que le signal atmosphérique n'a pas subi de réelles perturbations tout au moins dans les trois premiers mètres. Ceci va dans le sens d'une étude récente (Alfonso *et al.*, 2001), qui démontre qu'au moins depuis l'Antiquité les apports atmosphériques en plomb sont correctement conservés dans un marais côtier d'Aquitaine très peu organique.

Demeure néanmoins le problème lié à la discrimination du signal naturel face aux apports atmosphériques d'origine anthropique. Les variations des teneurs en plomb pourraient-elles s'expliquer par de simples changements de régimes détritiques ? Pour répondre à cette question, nous

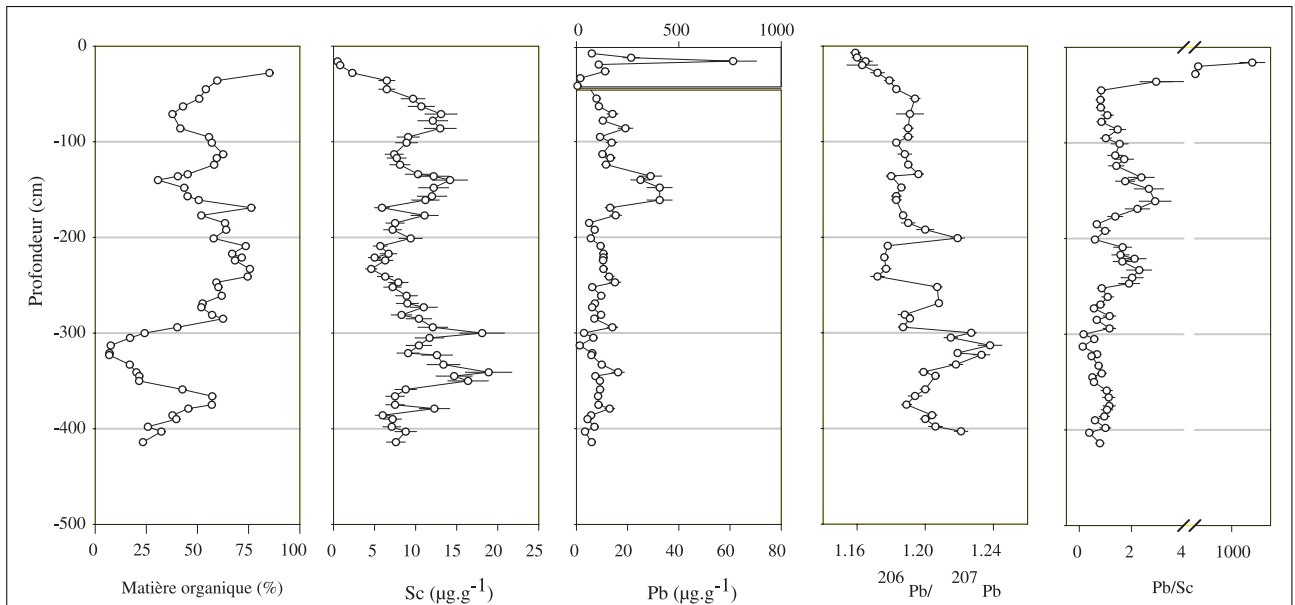


Fig. 3 – Teneurs en matière organique, scandium, plomb et rapports isotopiques $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ et Pb/Sc , Quinto Real 910 mètres (vallée de Baïgorry, Navarre)

Les barres d'erreurs sont inférieures à la taille du point lorsqu'elles ne sont pas visibles. Elles correspondent à un intervalle de confiance à 95 %. Notez la double échelle pour les concentrations en plomb.

disposons de deux outils géochimiques puissants : les rapports Pb/Sc et $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$.

Le scandium est un métal qui ne présente pas d'origine anthropique significative. Comme le zirconium ou le thorium, il est très peu soluble puisque ses formes oxydées résistent particulièrement bien à l'érosion chimique (Shotyk, 1996b). Le plomb naturel associé aux aluminosilicates du substratum, qui s'incorpore ensuite à la tourbière par apports détritiques, devrait donc se trouver corrélé au scandium. C'est pourquoi la normalisation Métal/Sc permet de s'affranchir des variations naturelles liées aux apports détritiques. Une élévation du rapport Pb/Sc indique donc un excès en plomb par rapport aux teneurs du substratum, soit, en d'autres termes, un apport anthropique.

En complément, et selon les principes exposés précédemment, le plomb anthropique ne devrait pas posséder les mêmes caractéristiques isotopiques que le substratum. Dans la carotte de Quinto Real, les rapports $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ les plus radiogéniques avoisinent 1,22-1,24. De telles valeurs sont tout à fait semblables à celles reportées en plusieurs occasions pour caractériser le pôle naturel en Europe de l'Ouest (Grousset *et al.*, 1994; Moor *et al.*, 1996; Shotyk *et al.*, 1998). En somme, une augmentation des rapports Pb/Sc associée à une baisse simultanée des rapports $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ atteste d'une intensification des apports atmosphériques d'origine anthropique.

III – Éléments pour une trame historique des activités métallurgiques

Une confrontation des résultats provenant des analyses polliniques et géochimiques (fig. 4) permet de proposer quelques jalons historiques concernant l'histoire des activités métallurgiques depuis la fin du Néolithique et d'en reconstituer les conséquences environnementales. Cette périodisation repose sur une analyse des anomalies observées dans les rapports isotopiques du plomb. Au total cinq phases distinctes ont été repérées.

1. Les indices d'une métallurgie ancienne remontant au début du III^e millénaire av. J.-C.

À la base de l'enregistrement (QR1 et QR2), les données polliniques reflètent l'existence d'un environnement forestier dominé par le chêne (*Quercus*) et le noisetier (*Corylus*), mais dans lequel on peut noter des indices polliniques d'activités agro-pastorales. Ainsi, la présence de pollens de céréales (*Cerealia-type*, *Triticum-type*), de *Plantago lanceolata* et l'élévation des composées héli-

philes (*Cichorioideae*, *Asteroideae*) traduisent une anthropisation certaine de ce secteur, antérieure à 4120 ± 40 BP. La zone QR3 reflète quant à elle une augmentation conséquente de la pression anthropique. Elle se manifeste par une nette élévation des plantains (*Plantago lanceolata*, *Plantago sp.*), des oseilles (*Rumex*) et par les occurrences régulières des céréales; tandis que le recul progressif des fréquences du chêne et la hausse du bouleau (*Betula*) suggèrent une ouverture du milieu forestier consécutive à des déforestations. La présence du mélampyre (*Melampyrum*) semble également indiquer l'existence d'essartages (abattis-brûlis) (Iversen, 1949; Moore *et al.*, 1986).

Ces déboisements sont certainement en partie responsables de l'accentuation des processus d'érosion et d'une modification du régime sédimentaire enregistrées dans la stratigraphie en QR3b. Cet épisode sédimentaire est également révélé par les faibles teneurs en matières organiques, par l'augmentation consécutive du scandium et, enfin, par les compositions isotopiques en plomb ($^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb} = 1,22-1,24$) qui désignent sans équivoque du plomb issu du substratum. Si l'évolution du plomb durant cette phase est significative, cela semble indiquer que les déforestations enregistrées dans la zone QR3b ne sont pas à mettre en relation avec l'activité métallurgique, mais davantage avec une extension des espaces agro-pastoraux. C'est dans ce contexte fortement anthropisé que l'on observe une première anomalie dans les signatures géochimiques. Centrée sur la zone QR3a, on note une augmentation des rapports Pb/Sc qui coïncide avec une diminution des rapports $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$. Bien qu'il faille garder à l'esprit les réserves émises précédemment quant à la signification du signal géochimique dans ces niveaux, ces variations pourraient être la conséquence d'activités extractives et/ou métallurgiques antérieures à 2600 av. J.-C. dans la zone. Ces pollutions témoigneraient alors de l'existence d'une métallurgie à l'extrémité occidentale de la chaîne des Pyrénées dès la première moitié du III^e millénaire av. J.-C. Même si les recherches dans ce domaine n'en sont qu'à leur début, c'est précisément durant cette période que semble s'opérer en France du Sud un décollage des productions métalliques autochtones (Guilaine, 1997; Ambert, 1997). Deux éléments supplémentaires viennent s'ajouter à cette coïncidence chronologique : d'une part, l'existence de gisements cuprifères dans la vallée (Chalcopyrite à Banca) qui pourrait avoir conditionné l'émergence d'une métallurgie du cuivre opportuniste en association avec une importante utilisation agro-pastorale de la montagne; d'autre part le fait qu'une anomalie similaire dans le rapport $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ait été enregistrée dans les sédiments d'un marais côtier du Médoc, sensiblement à la même date vers 4400 ± 70 BP, soit entre 3346 et 2884 cal BC (Alfonso *et al.*, 2001). Même si les auteurs de cette

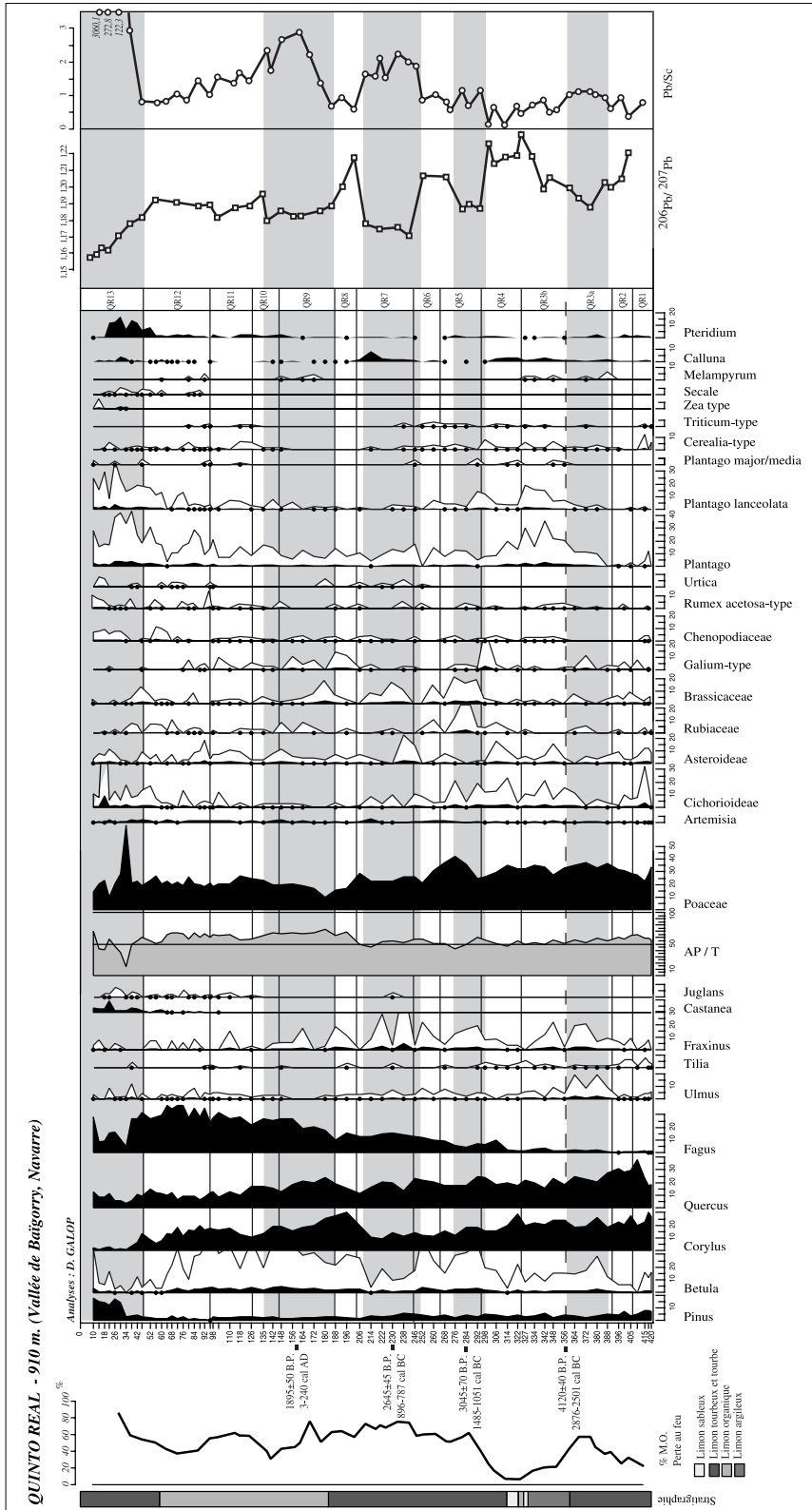


Fig. 4 – Diagramme pollinique simplifié de Quinto Real, 910 mètres

Les teneurs en matière organique comme les rapports Pb/Sc et $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ont été reportés afin de faciliter la comparaison entre les données polliniques et géochimiques.

étude restent prudents quant à l'origine exacte de ce signal, on ne peut que remarquer l'étonnant synchronisme caractérisant ces anomalies qui pourraient être l'indice du développement des premières métallurgies atlantiques en Europe occidentale.

En dépit de ce faisceau convergent d'évidences, des doutes persistent et les indices de réduction du couvert forestier révélés par la palynologie dans le site de Quinto Real ne lèvent pas l'ambiguïté de cet épisode, car ils peuvent être seulement la résultante des défrichements agro-pastoraux. Par la suite, les zones QR5 et QR7 sont identifiées comme des périodes d'activités métallurgiques et/ou minières en raison d'une augmentation significative du rapport Pb/Sc et de l'importante baisse des rapports $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$. Ces deux épisodes, respectivement datés 3045 ± 70 BP (1368, 1362, 1315 cal BC) et 2645 ± 45 BP (804 cal BC), correspondent au Bronze moyen médocain et au Bronze final IIIb. Durant ces phases, le synchronisme entre les données géochimiques et les connaissances générales relatives à la métallurgie sont remarquables. En effet, c'est entre les XV^e-XIV^e siècle av. J.-C. que les productions métalliques s'intensifient dans les zones atlantiques du sud de la France (Coffyn *et al.*, 1995); tandis que la deuxième phase, calée autour de 800 cal BC, correspond à une phase reconnue de reprise dans la production des objets métalliques (ateliers de fondeurs, objets de prestige, échanges commerciaux vers la Méditerranée). Bien évidemment, il est hasardeux d'attribuer une origine locale à ces signatures géochimiques. L'origine des métaux reste encore inconnue et il est vraisemblable que les apports ibériques aient été nombreux, mais on ne peut exclure l'hypothèse d'activités au voisinage de la tourbière. Les dynamiques environnementales enregistrées localement fournissent quelques informations indirectes à ce sujet. Les données polliniques montrent ainsi une coïncidence entre ces deux phases d'activités minières et/ou métallurgiques et des évidences d'ouverture du milieu forestier. Dans la zone QR5, la diminution des valeurs du chêne, du noisetier et, dans une moindre mesure, du hêtre (*Fagus*) est associée à une élévation des fréquences polliniques du bouleau et des Poacées. De même, durant la phase QR7 des signaux de déforestation sont perceptibles par un recul du chêne, du bouleau ainsi que par la hausse de certaines héliophiles, telle que la callune. Dans les deux cas, et cela semble paradoxal, les indices polliniques d'activités agro-pastorales (*Plantago lanceolata*, *Plantago major/media*, *Melampyrum*, *Rumex*) sont faiblement représentés, en régression, ou absents. Cette caractéristique est nette dans QR7, durant laquelle les indices polliniques d'agriculture disparaissent, à l'exception des orties (*Urtica*) et des plantains qui témoignent du maintien d'une fréquentation pastorale. Il ressort que des déboisements, quoique modérés,

ont été réalisés aux environs du site dans des contextes de faible pression, voire de déprise agro-pastorale et il nous paraît raisonnable d'envisager des causes supplémentaires pour expliquer cette réduction de la forêt. L'hypothèse de prélèvements destinés aux activités métallurgiques peut être formulée. Les évidences d'exploitation des ressources forestières liées à des activités de transformation sont encore peu nombreuses pour des périodes aussi anciennes, mais deux cas semblables ont été repérés dans le Jura entre la fin de l'âge du bronze et l'âge du fer en connexion avec une exploitation du sel (Gauthier, 2001; Dufraisse *et al.*, sous presse), ou des activités métallurgiques (Richard et Eschenlhor, 1998). D'autres éléments sont à verser au crédit de cette hypothèse, en particulier les indices de reforestation enregistrés entre ces deux périodes d'activités, lors des phases QR6 et QR8. Ces deux zones sont caractérisées par une hausse du chêne, du hêtre et des arbres recolonisateurs (bouleau et noisetier), ainsi que par une diminution des Poacées qui suggère une diminution des espaces ouverts. Ces phases correspondent systématiquement avec une baisse du rapport Pb/Sc et une augmentation du rapport $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ qui signalent un affaiblissement des activités extractives et/ou métallurgiques. Un lien direct entre activités minières/métallurgiques et dynamique de la couverture forestière locale semble donc exister, ce qui renforce l'éventualité d'activités métallurgiques ou extractives localisées dans cette partie de la haute vallée des Aldudes. Une estimation chronologique fondée sur les taux de sédimentation (fig. 2) indique que ces périodes de régénération forestière et de ralentissement des activités métallurgiques se situeraient entre 1000-1200 BC (QR6) et 500-300 BC (QR8). Ces résultats vont dans le sens des données archéologiques régionales qui indiquent un net ralentissement des productions métalliques en Aquitaine vers 1100 av. J.-C. (Cantet, 1991).

2. De la phase antique à l'exploitation moderne

Dans les zones QR9 et QR10, les données géochimiques signalent une nouvelle hausse du rapport Pb/Sc concomitante avec une diminution du rapport $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$. Ces pollutions confirment l'existence d'activités extractives et/ou métallurgiques dans la région. Parallèlement, les données paléobotaniques reflètent une reprise des déforestations qui affectent le chêne et le noisetier, tandis que le hêtre semble au contraire s'étendre. L'ouverture du milieu est confirmée par une légère augmentation des Poacées, par l'extension du bouleau, ainsi que par la présence de *Melampyrum* qui pourrait indiquer l'existence de faciès incendiés. Là encore, les signes d'une réduction de la forêt apparaissent sans qu'aucun indice pollinique ne traduise la présence d'activités culturelles (QR9). Seules les faibles

représentations de *Plantago lanceolata* attestent d'une fréquentation pastorale modérée. Les premiers indicateurs culturels (*Cerealia*-type) n'apparaissent que dans la zone QR10, à la fin de cette période.

Pour cet épisode, la datation obtenue place le maximum de l'activité métallurgique au début de notre ère. Après calibration, les pics de probabilités le situent précisément entre la fin I^{er} et le début du II^e siècle apr. J.-C. (88, 100, 125 cal AD). Toutefois, d'après nos estimations chronologiques (fig. 2), le démarrage de ces activités s'effectuerait plus tôt, dès le II^e siècle av. J.-C., soit à la fin de l'âge du fer. On ne peut s'empêcher de rapprocher ces informations des évidences archéologiques d'activités minières et métallurgiques antiques attestées à Banca (Machot, 1995 ; Parent 1997 ; Ancel 1999, 2000) et de celles repérées lors de prospections récentes (Beyrie, 2000 ; Collectif, 1992) dans le bassin d'Urepel, à proximité du site de Quinto Real. Ces découvertes prouvent l'existence d'exploitations polymétalliques (Cu, Fe, Pb, Ag) dès le I^{er} siècle de notre ère dans notre aire d'étude. Rien de surprenant, donc, à voir une signature isotopique aussi nette. Par contre l'impact de ces activités sur les forêts reste vraisemblablement encore modéré et ne concerne apparemment que le chêne et les formations secondaires de moyenne altitude (valléennes ?) qui lui sont associées.

Durant les phases QR11, QR12, la baisse régulière du rapport Pb/Sc et le retour progressif du rapport $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ vers des valeurs plus radiogéniques annoncent un ralentissement des activités minières et/ou métallurgiques à partir des IV^e-V^e siècles (fig. 2). Cet affaiblissement local de la métallurgie semble validé par l'archéologie et les sources textuelles. En effet, aucune preuve matérielle, ni mention d'une activité métallurgique médiévale n'ont été découvertes. Par contre, durant cette période on peut observer une élévation graduelle des indices polliniques d'activités agro-pastorales (*Plantago*, *Plantago lanceolata*, *Urtica*, *Cerealia*, *Secale*), tandis que le hêtre devient localement dominant et que le chêne recule sous les effets probables d'une extension des défrichements agricoles à plus basse altitude.

La zone QR13 marque une rupture importante. La représentation pollinique de l'ensemble des essences forestières (*Fagus*, *Quercus*, *Corylus*) s'effondre et reflète un déboisement important des environs de la tourbière. Cette ouverture de l'espace forestier est également signalée par une hausse des herbacées héliophiles ainsi que par une extension de la callune, tandis que la hausse des valeurs de certains taxons (*Rumex*, *Plantago*, *Chenopodiaceae*, *Cichorioideae*) suggère une intensification locale des pratiques pastorales. Simultanément, le rapport Pb/Sc grimpe en flèche, tandis que le rapport $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ chute brutalement. Il est certain que l'essentiel du signal anthropique est

local, car les quantités de métal impliquées sont trop importantes pour être le résultat d'un apport atmosphérique de large amplitude. Nous retrouvons dans cette anomalie le décollage de l'activité métallurgique qui caractérise la vallée de Baïgorry, et plus largement le Pays basque, à la fin du Moyen Âge (Goyehentxe, 2001). Nos estimations chronologiques ainsi que l'apparition du maïs ⁽³⁾ (*Zea*) dans les niveaux immédiatement supérieurs permettent de caler ce démarrage entre la fin du XV^e et le XVI^e siècle. C'est par ailleurs à partir de 1555 que commence à fonctionner la fonderie de cuivre de Banca (Lefebvre, 1933). Son activité s'intensifiera jusqu'à la fin du XVIII^e, couplée à une production momentanée de fer à partir du XVII^e siècle. La consommation en charbons de bois nécessaires au fonctionnement de cet établissement était considérable et l'essentiel de l'espace forestier de la vallée était dévolu au charbonnage, tout comme une grande partie des forêts du Pays basque (Lefebvre, 1933). Le synchronisme entre la déforestation enregistrée par les données pollenanalytiques et cette intensification de la pression métallurgique n'a rien de surprenant, d'autant plus que les vestiges de charbonnières que l'on observe encore dans les forêts voisines du site traduisent l'intensité des prélèvements destinés à l'alimentation des forges de la vallée.

3. Origine du plomb

Reportées dans un diagramme $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ vs. $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$, les analyses isotopiques s'inscrivent grossièrement dans un triangle (fig. 5), plutôt que de s'aligner sur une droite liant le pôle naturel à une unique source anthropique comme c'est le cas en présence d'un simple mélange binaire. Au minimum deux composants anthropiques distincts plus ou moins enrichis en ^{208}Pb sont nécessaires pour expliquer une telle configuration. Pour l'instant et compte tenu du manque d'information sur les signatures isotopiques des sources potentielles dans la région du Pays basque, il est hasardeux de pousser plus loin la discussion sur l'origine précise des apports. Cependant ces données traduisent certainement une histoire minière complexe. Un décryptage plus approfondi des données isotopiques combiné à l'examen des teneurs en cadmium, zinc et cuivre enregistrées dans la tourbière devrait permettre d'identifier prochainement l'origine géographique des apports. Même si la méthode isotopique, à elle seule, ne parvient pas toujours à accomplir cette tâche, notamment quand de nombreuses sources sont impliquées, elle présente l'avantage d'être beaucoup plus sensible que la seule mesure des concentrations aux influences anthropiques discrètes (cf. QR5) (Munksgaard et Parry, 1998 ; Monna *et al.*, 2000).

(3) L'introduction de cette céréale est attestée dès le XVI^e siècle au Pays basque (Monnier, 1992).

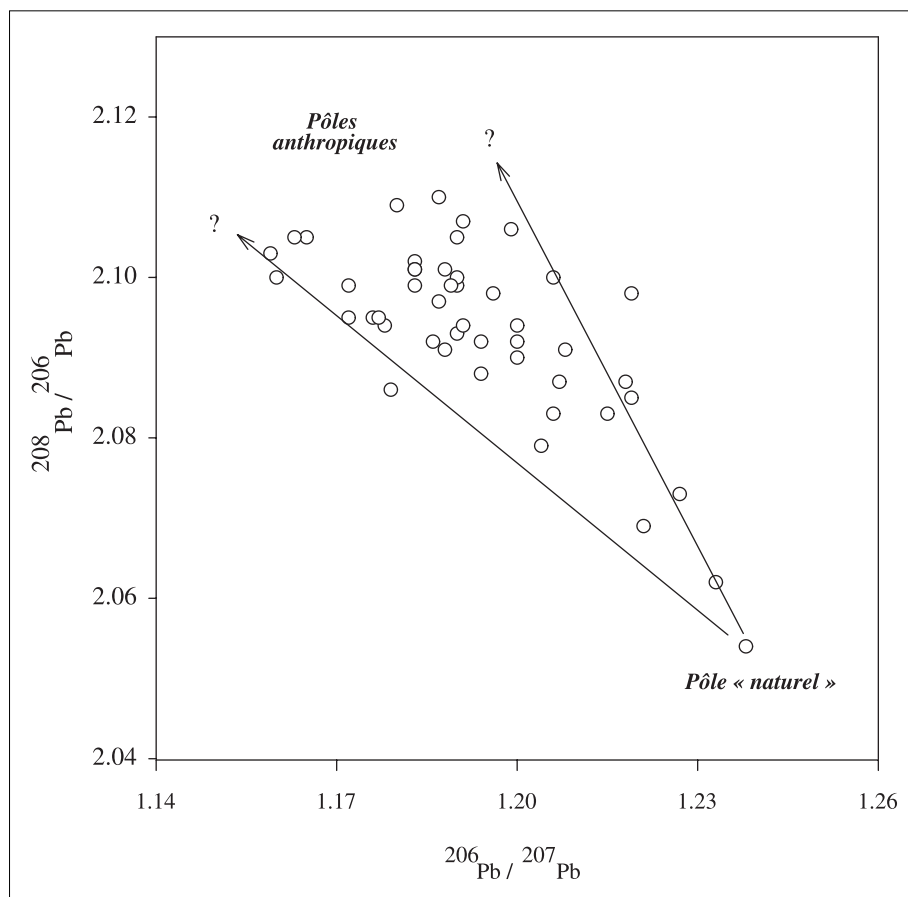


Fig. 5 – Diagramme $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ vs. $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$

Conclusions

Les résultats préliminaires de cette étude consacrée à reconstruire l'histoire des activités métallurgiques à l'extrémité occidentale des Pyrénées montrent l'opportunité d'une démarche intégrant palynologie et géochimie isotopique. Ils ont permis de cerner localement, pour la première fois sur la longue durée, plusieurs grandes phases d'exploitation et de repli des activités minières et/ou métallurgiques. Quatre périodes d'exploitation sont clairement identifiées : il s'agit de l'âge du bronze moyen médocain (XV^e-XIV^e siècle av. J.-C.); de l'âge du bronze final (IX^e siècle av. J.-C.); de la période couvrant la fin de l'âge du fer et l'Antiquité (II^e siècle av. J.-C.-IV^e siècle apr. J.-C.) et enfin, de l'époque moderne à partir de la fin du XV^e siècle. Ces pics de pollution correspondent bien avec les connaissances archéologiques concernant l'histoire des activités minières et métallurgiques de la région. Reste le problème de la phase la plus ancienne, qui est contempo-

raîne du début du III^e millénaire avant notre ère. De nombreux éléments plaident en sa faveur et semblent la valider, mais seuls des résultats obtenus sur une tourbière totalement ombrogène lèveront toute ambiguïté au sujet d'une activité métallurgique aussi précoce dans les Pyrénées. En ce qui concerne l'impact de ces activités sur l'environnement, deux points semblent intéressants à souligner :

- d'une part, cette étude met en évidence les premières pollutions proto-industrielles ayant affecté le massif pyrénéen et force est de constater qu'une grande partie du plomb accumulé dans le réservoir sédimentaire de Quinto Real s'est déposée bien avant l'ère industrielle;

- d'autre part, la confrontation entre données géochimiques et polliniques montre qu'à partir de l'âge du bronze il existe un lien étroit entre les signaux d'activité métallurgique et des indices de déforestation. Sans sous-estimer le poids des défrichements agropastoraux, il est certain que les prélèvements destinés à la métallurgie ont contribué dès cette époque à la transformation des forêts de cette haute vallée du Pays basque mais sans jamais atteindre l'ampleur qui les caractérisent à partir de la fin du Moyen Âge. L'élargissement de ces recherches vers d'autres foyers métallurgiques reconnus du versant nord des Pyrénées et de la Montagne Noire doit fournir des informations plus précises à ce sujet.

Remerciements : Cette recherche a bénéficié du soutien financier du PCR « Paléoenvironnement et dynamique de l'anthropisation en montagne basque », Ministère de la Culture-SRA Aquitaine.

Les auteurs remercient A. Bidart, G. Bossuet, A. Lopez Saez pour leur assistance lors des travaux de terrain; P. Berringer pour les travaux de laboratoire, ainsi que D. Vignati et P.-Y. Favargé (Institut F.-A. Forel), M.-J. Milloux et J. Lévêque (GéoSol) pour leur aide pendant les analyses et leurs précieux commentaires.

Références bibliographiques

- ALFONSO S., GROUSSET F., MASSÉ L. *et al.*, « A European lead isotope signal from 6000 to 300 years in coastal marshes (SW France) », *Atmospheric Environment* 35, 2001, p. 3 595-3 605.
- AL-SAA'D Z., « Technology and provenance of a collection of islamic copper-based objects as found by chemical and lead isotope analysis », *Archaeometry* 42 (2), 2000, p. 385-397.
- AMBERT P. (dir.), « Cabrières-Hérault et le contexte régional de la première métallurgie du cuivre en France (III^e millénaire av. J.-C.) », *Archéologie en Languedoc*, 20, 1, 1996.
- AMBERT P., « Recherche sur les fours de métallurgistes Chalcolithiques et de l'âge du bronze d'Europe occidentale (domaines méditerranéen et alpin) », *Archéologie en Languedoc*, 21, 1997, p. 29-44.
- ANCEL B., *Les mines de cuivre de Banca, Saint-Étienne-de-Baïgorry, Pyrénées Atlantiques*, Rapport de fouille 1999, SRA Aquitaine, 1999.
- ANCEL B., *Les mines de cuivre de Banca, Saint-Étienne-de-Baïgorry, Pyrénées Atlantiques*, Rapport de fouille, SRA Aquitaine, 2000.
- BEYRIE A., « Mines et métallurgies antiques du fer en Labourd et en Basse-Navarre (Pyrénées-Atlantiques) », *L'artisanat dans l'Antiquité, production, commercialisation et consommation*, 2^e Colloque International sur la romanisation en Pays basque, Vitoria-Gazteiz (30 novembre-2 décembre 2000), sous presse.
- BEYRIE A., *Mines et métallurgies antiques dans les vallées de la Nive et des Aldudes*, Rapport de prospection thématique 2000, SRA Aquitaine, 2000.
- BINDLER R., BRÄNNVALL M.-J., RENBERG I. *et al.*, « Natural lead concentrations in pristine boreal forest soils and past pollution trends : a reference for critical load models », *Environmental Science and Technology* 33, 1999, p. 3362-3367.
- BLOT J., *Archéologie et montagne basque*, Donostia, Elkarlanean, 1993, 240 p.
- BONHÔTE J., *Forges à la catalane et évolution forestière dans les Pyrénées de la Haute-Ariège. Pour une histoire de l'environnement*, Thèse de Doctorat, Université de Toulouse-Le Mirail, 1992, 425 p.
- BONI M., DI MAIO G., FREI R. *et al.*, « Lead isotopic evidence for a mixing provenance for roman water pipes from Pompeii », *Archaeometry*, 42 (1), 2000, p. 201-208.
- BOUTRON C., « Historical reconstruction of the earth's past atmospheric environment from Greenland and Antarctic snow and ice cores », *Environmental Review* 3, 1995, p. 1-28.
- BOUTRON C., CANDELONE J.-P., and HONG S., « Past and recent changes in the large-scale tropospheric cycles of lead and other heavy metals as documented in Antarctic and Greenland snow and ice : a review », *Geochimica and Cosmochimica Acta*, 58 (15), 1994, p. 3217-3 225.
- BRÄNNVALL M.-L., BINDLER R., EMTERYD O. *et al.*, « Stable isotope and concentration records of atmospheric lead pollution in peat and lake sediments in Sweden », *Water, Air, and Soil Pollution* 100, 1997, p. 243-252.
- BRÄNNVALL M.-L., BINDLER R., RENBERG I. *et al.*, « The medieval metal industry was the cradle of modern large-scale atmospheric lead pollution in northern Europe », *Environmental Science and Technology* 33, 1999, p. 4 391-4 395.
- CANTET J.-P., *L'âge du bronze en Gascogne gersoise*, Archéologies, n° 4, Archéologies Vesuna, 1991, 240 p.
- COFFYN A., MOREAU J., BOURIS J.-R., « Les dépôts de bronze de Soulac-sur-mer », *Aquitania*, 13, 1995, p. 7-31.
- COLLECTIF, « Inventaire diachronique des sites miniers et métallurgiques du Pays basque nord », Labourd, *Ikartzaleak*, 17, 1993.
- DAVASSE B., *Forêts, charbonniers et paysans dans les Pyrénées de l'est du Moyen Âge à nos jours. Une approche géographique de l'histoire de l'environnement*, GEODE, 2000, 287 p.
- DUBOIS C., GUILBAUT J.-E., « Les exploitations minières antiques de Rivèrenert et des Abères, commune de Rivèrenert », *Les ressources minérales et l'histoire de leur exploitation*, 108^e Congrès des Sociétés Savantes, Paris, 1986, p. 91-116.
- DUBOIS C., MÉTAILIÉ J.-P., IZARD V., « Archéologie de la forêt charbonnée : questions et méthodes, illustrées par l'exemple du site de Lercoul (Ariège) », *La dynamique des paysages proto-historiques, antiques, médiévaux et modernes*, APCDA, Sophia-Antipolis, 1998, p. 525-540.
- DUBOIS C., « Métallurgie du fer en Ariège de l'Antiquité au XVII^e siècle. Le point sur les données archéologiques », *Paléométallurgie du fer et cultures*, P. Benoit et P. Fluzin éd., 1996, p. 387-396.
- DUFRAISSE A., GAUTHIER E., PÉTREQUIN A.-M. *et al.*, « Techniques d'exploitation préhistoriques du sel en Franche-Comté et en Bourgogne », *Actes du Congrès SPF*, Nanterre, novembre 2000, sous presse.
- DUNLAP C. E., STEINNES E., and FLEGAL A. R., « A synthesis of lead isotopes in two millennia of European air », *Earth and Planetary Science Letters* 167, 1999, p. 81-88.
- FAURE G., *Principles of isotope geology*, 2nd edition, John Wiley and sons ed., 1986.
- FISHER K., RAINER C., BIENIEK D. *et al.*, « Desorption of heavy metals from typical soil components (clay, peat) with glycine », *Intern. J. Environ. Anal. Chem.* 46, 1992, p. 53-62.
- FRUHAUF C., *Forêt et société*, Paris, CNRS, 1980, 302 p.
- GALOP D., *La forêt, l'homme et le troupeau dans les Pyrénées. 6000 ans d'histoire de l'environnement entre Garonne et Méditerranée*, GEODE-LET-FRAMESPA, 1998, 285 p.
- GAUTHIER E., *Évolution de l'impact de l'homme sur la végétation du massif jurassien au cours des quatre derniers millénaires. Nouvelles données palynologiques*, Thèse de Doctorat, Université de Franche-Comté, 2001, 250 p.
- GÖRRES M. and FRENZEL B., « Ash and metal concentrations in peat bogs as indicators of anthropogenic activity », *Water, Air, and Soil Pollution* 100, 1997, p. 355-365.
- GOYEHENETXE M., *Histoire générale du Pays basque. Évolution économique et sociale du XVI^e au XVIII^e siècle*, Donostia, Elkarlanean, 2001, 411 p.

- GROUSSET F. E., QUÉTEL C. R., THOMAS B. *et al.*, « Transient Pb isotopic signatures in the Western European atmosphere », *Environmental Science and Technology*, 28, 1994, p. 1 605-1 608.
- GUILAINE J., *La mer partagée. La Méditerranée avant l'écriture 7000-2000 avant Jésus-Christ*, Paris, Hachette, 1994, 453 p.
- GUILAINE J., « Les débuts de la métallurgie du cuivre en Méditerranée occidentale. Questions ouvertes, hypothèses archéologiques », *Archéologie en Languedoc*, 21, 1997, p. 9-16.
- HONG S., CANDELONE J.-P., PATTERSON C. C. *et al.*, « Greenland ice evidence of hemispheric lead pollution two millennia ago by Greek and Roman civilisation », *Science* 265, 1994, p. 1 841-1 843.
- IVERSEN J., « The influence of prehistoric man on vegetation », *Danmarks Geol. Unders.*, Serie IV, 3, 1949, p. 1-23.
- IZARD V., *Les montagnes du fer. Éco-histoire de la métallurgie et des forêts dans les Pyrénées méditerranéennes (de l'Antiquité à nos jours). Pour une histoire de l'environnement*, Thèse de Doctorat, Université de Toulouse-Le Mirail, 1999, 2 tomes, 560 p. et 192 p.
- JACOBSON G.L., BRADSHAW R.H.W., « The selection of sites for palaeoecological studies », *Quaternary Research*, 16, 1981, p. 80-96.
- JANSSEN C.R., « *Alnus* as a disturbing factor in pollen diagrams », *Acta Bot. Neerland*, 8, 1959, p. 55-58.
- KEMPTER H. and FRENZEL B., « The local nature of anthropogenic emissions sources on the elemental content of nearby ombrotrophic peat bogs », Vulkaneifel, Germany, *The Science of the Total Environment* 241, 1999, p. 117-128.
- KEMPTER H. and FRENZEL B., « The impact of early mining and smelting on the local tropospheric aerosol detected in ombrotrophic peat bogs in the Harz », Germany, *Water, Air and Soil Pollution* 121, 2000, p. 93-108.
- KEMPTER H., GÖRRES M., and FRENZEL B., « Ti and Pb concentrations in rainwater-fed bogs in Europe as indicators of past anthropogenic activities », *Water, Air, and Soil Pollution* 100, 1997, p. 367-377.
- KRAMERS, J.-D., TOLSTIKHIN, I.N., « Two terrestrial lead isotope paradoxes, forward transport modelling, core formation and the history of the continental crust », *Chemical Geology* 139, 1997, p. 75-110.
- LEFEVRE T., *Les modes de vie dans les Pyrénées atlantiques orientales*, Paris, Armand Colin, 1933, 777 p.
- MACHOT P., *Mines et établissements métallurgiques de Banca*, Biarritz/Saint-Etienne-de-Baïgorry, Éditions Izpegi, 1995.
- MACKENZIE A. B., LOGAN E. M., COOK G. T., *et al.*, « A historical record of atmospheric depositional fluxes of contaminants in west-central Scotland derived from an ombrotrophic peat core », *The Science of the Total Environment* 222, 1998, p. 157-166.
- MARTINEZ-CORTIZAS A., PONTEVEDRA-POMBAL X., NOVA-MUNÓZ J. C. *et al.*, « Four thousand years of atmospheric Pb, Cd and Zn deposition recorded by the ombrotrophic peat bog of Penido Vello (Northwestern Spain) », *Water, Air and Soil Pollution* 100, 1997, p. 387-403.
- MONNA F., HAMER K., LÉVÊQUE J. *et al.*, « Pb isotopes as reliable marker of early mining and smelting in the Northern Harz province (Lower Saxony, Germany) », *Journal of Geochemical Exploration*, 68, 3, 2000a, p. 201-210.
- MONNA F., LOIZEAU J.-L., THOMAS B.A. *et al.*, « Pb and Sr isotope measurements by inductively coupled plasma-mass spectrometer : efficient time management for precise improvement », *Spectrochim. Acta*, part B. 59, 1998, p. 1 317-1 333.
- MONNIER Y., « L'empreinte des Amériques dans le paysage », *Revue de Géographie de Bordeaux*, 170-189, 1992, p. 441-449.
- MONNA F., LOIZEAU, J.-L., THOMAS B *et al.*, « Noise identification and sampling frequency determination for precise isotopic measurements by quadrupole-based Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry », *Analisis*, 28, 2000b, p. 750- 757.
- MOOR H. C., SCHALLER T., and STURM M., « Recent changes in stable lead isotope ratios in sediments of lake Zug, Switzerland », *Environmental Science and Technology* 30, 1996, p. 2 928-2933.
- MOORE P.D., EVANS A.R., CHATER M., « Palynological and stratigraphic evidence for hydrological changes in mires associated with human activity », *Anthropogenic indicators in pollen diagrams* (K.-E. Behre ed.), A.A. Balkema, Rotterdam, 1986, p. 209-220.
- MUNKSGAARD N. C. and PARRY D. L., « Lead isotope ratios determined by ICP-MS : Monitoring of mining-derived metal particulaes in atmospheric fallout, Northern Territory, Australia », *The Science of the Total Environment* 217, 1998, p. 113-125.
- MUT G, PINÉDA J., SIRET A., *Mines et fonderies antiques et médiévales du Canigou (région Est)*, Mémoire de maîtrise, Université de Toulouse-Le Mirail, 1984-1985.
- PARENT G., *Site minier et métallurgique de Banca*, Rapport de sondage, 1997, SRA Aquitaine, 1997.
- RENBERG I., BRÄNNVALL M.-L., BINDLER R. *et al.*, « Atmospheric lead pollution history during four millennia (2000 BC to 2000 AD) in Sweden », *Ambio* 29, 2000, p. 150-156.
- RICHARD H., ESCHENLHOR L., « Essai de corrélation entre les données polliniques et les données archéologiques : le cas des forêts de Lajoux dans les Franches-Montagnes (Lajoux, Suisse) », *Revue d'Archéométrie*, 22, 1998, p. 29-37.
- ROSMAN K., CHISHOLM W., HONG S. *et al.*, « Lead from Carthaginian and Roman spanish mines isotopically identified in Greenland ice dated from 600 B.C. to 300 AD », *Environmental Science and Technology* 31, 1997, p. 3 413-3 416.
- SCHETTLER G. and ROMER R. L., « Anthropogenic influences on Pb/Al and lead isotope signature in annually layered Holocene Maar lake sediments », *Applied Geochemistry* 13 (6), 1998, p. 787-797.
- SHORTLAND A. J., NICHOLSON P. T., and JACKSON C. M. « Lead isotopic analysis of eighteenth-dynasty egyptian eyepaints and lead antimonate colourants », *Archaeometry* 42 (1), 2000, p. 153-157.