

colloques
et
séminaires

HYDROLOGIE ET GÉOCHIMIE ISOTOPIQUE

HYDROLOGY AND ISOTOPE GEOCHEMISTRY

Éditeurs scientifiques
Christiane Causse, Françoise Gasse



CRISTOM
éditions

Hydrologie
et géochimie isotopique

*Hydrology
and isotope geochemistry*

Publications issues du Symposium international
à la mémoire de Jean-Charles Fontes
Paris, 1^{er} et 2 juin 1995

*Proceedings of the International Symposium
in memory of Jean-Charles Fontes
Paris, June 1st and 2nd 1995*

Hydrologie
et géochimie isotopique
*Hydrology
and isotope geochemistry*

ÉDITEURS SCIENTIFIQUES
Christiane Causse, Françoise Gasse, URA 723
CNRS-Université de Paris-Sud

Éditions de l'Orstom
INSTITUT FRANÇAIS DE RECHERCHE SCIENTIFIQUE
POUR LE DÉVELOPPEMENT EN COOPÉRATION

collection Colloques et Séminaires

Paris, 1998

Ouvrage publié avec le soutien des organismes suivants :

Institut de France

23, quai de Conti, 75006 Paris

*Institut français de recherche scientifique
pour le développement en coopération*

213, rue La Fayette, 75010 Paris

Centre national de la recherche scientifique

3 rue Michel-Ange, 75016 Paris

Université Paris-Sud

15, rue Georges-Clémenceau

91405 Orsay Cedex

Union française des géologues

77, rue Claude-Bernard, 75005 Paris

Société géologique de France

77, rue Claude-Bernard, 75005 Paris

Mise en page

Atelier Christian Millet

Maquette de couverture

Michelle Saint-Léger

Fabrication

Marie-Odile Charvet Richter

Photos de couverture

Oued el Akarit, Tunisie (cliché K. Zouari)

Cheminée hydrothermale du lac Abhé,
République de Djibouti (cliché J.-Ch. Fontes)

Chott Fedjej, Tunisie (cliché K. Zouari)

La loi du 1^{er} juillet 1992 (code de la propriété intellectuelle, première partie) n'autorisant, aux termes des alinéas 2 et 3 de l'article L. 122-5, d'une part, que les « copies ou reproductions strictement réservées à l'usage du copiste et non destinées à une utilisation collective » et, d'autre part, que les analyses et les courtes citations dans le but d'exemple ou d'illustration, « toute représentation ou reproduction intégrale ou partielle faite sans le consentement de l'auteur ou de ses ayants droit ou ayants cause, est illicite » (alinéa 1^{er} de l'article L. 122-4). Cette représentation ou reproduction, par quelque procédé que ce soit, constituerait donc une contrefaçon passible des peines prévues au titre III de la loi précitée.

© Orstom éditions, 1998

ISSN : 0767-2896

ISBN : 2-7099-1377-1

Table des matières

Contents

Préface	
<i>Preface</i>	
J. DERCOURT	IX
Liste des auteurs	
<i>Authors list</i>	XI

PREMIÈRE PARTIE

PART I

Cycle des eaux naturelles

Cycle of natural waters

On the isotopic composition of precipitation	
<i>Sur la composition isotopique des précipitations</i>	
R. GONFIANTINI	3
Stable isotopes in soil and water studies	
<i>Isotopes stables dans l'étude des sols et de l'eau</i>	
G. B. ALLISON	23
L'apport des isotopes de l'environnement à l'étude de la recharge et de la dynamique des aquifères	
<i>Input of environmental isotopes in the study of the recharge and the flow dynamic of aquifers</i>	
J.-F. ARANYOSSY, R. NJITCHOUA ET G. M. ZUPPI	39
Isotope hydrology: Applied discipline in Earth sciences	
<i>L'hydrologie isotopique: une discipline des sciences de la Terre</i>	
K. FROELICH, K. ROZANSKI AND L. ARAGUÀS ARAGUÀS	55
Hydrologie et géochimie du bassin soudano-sahélien du fleuve Niger	
<i>Hydrological and geochemical studies on the Sahelo-Sudanian Basin of the Niger River</i>	
J. C. OLIVRY	73

Interaction eaux-roches en milieu périglaciaire : exemple des carbonates secondaires de la presqu'île de Brögger (Spitzberg) <i>Water-rock interaction under periglacial conditions: example of the secondary carbonates of the Brögger Peninsula (Spitzbergen)</i>	
C. MARLIN ET L. DEVER	97
Origin and age of deep waters of the Paris Basin <i>Origine et âge des eaux profondes du bassin de Paris par l'utilisation des traceurs chimiques et isotopiques</i>	
J.-M. MATRAY AND L. CHERY	117

DEUXIÈME PARTIE

PART II

Paléohydrologie et géochimie des sédiments
Palaeohydrology and sediment geochemistry

Isotopes in global change science: from isotope analytics to Earth system research <i>Les isotopes pour l'étude du changement du système Terre</i>	
H. OESCHGER	137
Paléolacs et paléoclimats aux pourtours de l'océan Indien occidental depuis 25 ka BP <i>Palaeolakes and palaeoclimates in the circum Western Indian Ocean since 25 ka BP</i>	
F. GASSE, L. BERGONZINI, F. CHALIÉ, E. GIBERT, M. MASSAULT ET F. MÉLIÈRES	147
Chronologie (¹⁴ C et Th/U) des épisodes humides majeurs du Quaternaire récent au Sahara : sites choisis du programme PALHYDAF <i>Radiocarbon and Th/U chronologies of humid episodes of Late Quaternary from Sahara: Selected sites of PALHYDAF Programme</i>	
K. ZOUARI, E. GIBERT ET C. CAUSSE	177
La carbonatogenèse bactérienne <i>Bacterial carbonatogenesis</i>	
S. CASTANIER, G. LE MÉTAYER-LEVREL ET J.-P. PERTHUISOT	197
Were the tropics significantly cooler during the last glacial maximum? <i>Des tropiques plus frais qu'aujourd'hui au dernier maximum glaciaire ?</i>	
M. STUTE	219

TROISIÈME PARTIEPART III

Production cosmique et production *in situ*
de radionucléides
Cosmogenic isotopes and in situ production
of radio-isotopes

Le carbone 14 : progrès récents et limitations de la méthode de datation <i>Carbon 14 dating: Recent progress and limits of the method</i> J.-C. DUPLESSY, M. ARNOLD, E. BARD, E. CORTIJO, L. LABEYRIE, C. LAJ, B. LEHMAN, A. MAZAUD, M. PATERNE, N. TISNERAT AND L. VIDAL	229
Oklo, Natural Analogue of the radionuclides migration through the geological barrier <i>Oklo, Analogue Naturel de la migration de radionucléides</i> <i>dans l'environnement</i> D. LOUVAT	251
Liste des rapporteurs <i>List of reviewers</i>	271
Les travaux de Jean-Charles Fontes	273

Préface

Preface

Notre ami le professeur Jean-Charles Fontes n'est plus. Une automobile, sur une route du Mali qui le conduisait à l'aéroport de Bamako l'a fauché le 2 février 1994. Il est mort en terre africaine. Il a consacré là une partie importante de sa vie à comprendre pour agir. Il n'avait que 58 ans.

L'œuvre de Jean-Charles Fontes est marquée par un goût très fort pour l'analyse instrumentale qu'il développa et il fut expérimentateur innovant et rigoureux. Il monta plusieurs laboratoires au cours de sa carrière ; il avait le génie pour débusquer les pistes de financements, toujours trop étroites à son goût et pourtant il sut les élargir pour créer des outils remarquables dont le dernier, celui d'Orsay, est un modèle. C'était un homme de voyage qui fréquentait les laboratoires des confrères lors de longs séjours, tout autant que les colloques et les congrès : n'avait-il pas commencé à s'adonner à la passion de sa vie scientifique – la Géochimie des isotopes des eaux naturelles – auprès de ce grand découvreur qu'était le professeur Ezio Tongiorgi à Pise ? Il séjourna souvent dans ce laboratoire ami. On trouvera au fil des pages de ce volume des contributions de la plupart de ces collègues devenus ses amis, on y lira l'internationalité de ses amitiés. Il aimait prélever lui-même les échantillons et en comprendre le cadre géologique général ; il battit la campagne en France, en Italie, en Afrique saharienne, sahélienne, équatoriale, dans le Maghreb, en Oman, à Djibouti et en Amérique du Sud tropicale... Dans ces opérations, il aimait travailler avec les hommes connaisseurs des terrains qu'il associait à ses travaux ; par exemple, les géologues de l'Orstom s'en souviennent avec émotion.

Au fil des ans, le laboratoire d'Orsay devint une référence internationale et Jean-Charles Fontes y agissait en expert sollicité pour des programmes nationaux (en France on notera le rôle qu'il joua dès la naissance de l'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs) et internationaux.

Les données actuelles éclairent un instant la Planète et ne prennent leurs réelles significations qu'en les plaçant dans le temps. Géologue, Jean-Charles Fontes conçut et anima un programme de paléohydrogéologie de l'Afrique dont des résultats nouveaux sont exposés dans ce volume. Le géologue s'intéressa aussi à la paléo-écologie et au paléo-environnement des lagunes paléogènes d'Alsace et du bassin de Paris et bien évidemment au plus vaste réceptacle d'évaporites au monde, la Méditerranée au Messinien. Ses travaux s'inscrivent dans cette volonté de comprendre le passé de la Terre.

Un tel programme nécessite un concepteur, un lanceur d'idées. Jean-Charles Fontes l'a été très tôt, il a su attirer à la discipline qu'il illustrait de nombreux jeunes chercheurs dont beaucoup sont devenus ses collaborateurs réguliers ou épisodiques et il construisit l'important laboratoire de l'université Paris-Sud à Orsay.

Je pense que l'on comprendrait mal l'homme si l'enseignant n'était pas évoqué. Certes, il n'aimait guère les rudes contraintes des horaires et des calendriers, mais ses cours éveillèrent la passion de beaucoup de géologues qui participent à la communauté française et étrangère. Ce fut un maître au sens plein de ce terme, il n'a pu parachever son œuvre, mettre en ordre tous les programmes qu'il imaginait, dont il rêvait ; il avait à peine pris ses responsabilités à l'Agence internationale de l'énergie atomique de Vienne dont il avait été pendant beaucoup d'années un expert écouté.

Les articles que l'on va lire forment ensemble un corpus de géochimie isotopique de l'eau. Cet ouvrage sera précieux en lui-même. Il deviendra une référence. Chaque auteur a rédigé ces lignes en pensant que c'était l'hommage le plus fort qu'il pouvait rendre à Jean-Charles Fontes.

Jean DERCOURT,
de l'Académie des Sciences

Liste des auteurs

Authors list

Graham B. ALLISON

Division of Water Resources, Adelaide Laboratory, PMB2, Glen Osmond, Adelaide, 5064, South Australia.

Luis ARAGUÁS ARAGUÁS

Isotope Hydrology Section, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.

Jean-François ARANYOSSY

Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (ANDRA), B.P. 38, 92266 Fontenay-aux-Roses, France.

Maurice ARNOLD

Centre des faibles radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

Édouard BARD

CEREGE, Université d'Aix-Marseille-III, FU CNRS 17, BP 80, Europôle de l'Arbois, 13545 Aix-en-Provence Cedex 4, France.

Laurent BERGONZINI

CNRS – UA 0723, Laboratoire d'hydrologie et géochimie isotopique, Université Paris-Sud, Bât. 504, 91405 Orsay Cedex, France.

Sabine CASTANIER

Université d'Angers, Faculté des Sciences, Belle Beille, 49000 Angers ; Service de microbiogéologie, (EAD 1708), France.

Christiane CAUSSE

CNRS – UA 0723, Laboratoire de géologie, MNHN, 43 rue Buffon, 75005 Paris, France.

Françoise CHALIÉ

CNRS – UA 0723, Laboratoire d'hydrologie et géochimie isotopique, Université Paris-Sud, Bât. 504, 91405 Orsay Cedex, France.

Laurence CHERY

BRGM, Avenue de Concyr, BP 6009, F-45060 Orléans Cedex 2, France.

Elsa CORTIJO

Centre des faibles radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

Laurent DEVER

Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique, URA 723-CNRS, Bât. 504, Université Paris-Sud, 91405 Orsay Cedex, France.

Jean-Claude DUPLESSY

Centre des faibles radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

Klaus FROEHLICH

Isotope Hydrology Section, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.

Françoise GASSE

CNRS – UA 0723, Laboratoire d'hydrologie et géochimie isotopique, Université Paris-Sud, Bât. 504, 91405 Orsay Cedex, France.

Élisabeth GIBERT

CNRS – UA 0723, Laboratoire d'hydrologie et géochimie isotopique, Université Paris-Sud, Bât. 504, 91405 Orsay Cedex, France.

Roberto GONFIANTINI

Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique, URA 723, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France

Present address : Institute for Reference Materials and Measurements, European Commission-Joint Research Centre, 2440 Geel, Belgium.

Laurent LABEYRIE

Centre des faibles radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

Carlo LAJ

Centre des faibles radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

Benoît LEHMAN

Centre des faibles radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

Gaële LE MÉTAYER-LEVREL

Laboratoire de biogéologie, Faculté des sciences et des techniques, Université de Nantes, 44072 Nantes Cedex 03 (EAD 1708), France.

Didier LOUVAT

Commissariat à l'énergie atomique, Département d'entreposage et de stockage des déchets nucléaires, Centre d'étude de Cadarache, France.

Christelle MARLIN

Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique, URA 723-CNRS, Bât. 504, Université Paris-Sud, 91405 Orsay Cedex, France.

Marc MASSAULT

CNRS – UA 0723, Laboratoire d'hydrologie et géochimie isotopique, Université Paris-Sud, Bât. 504, 91405 Orsay Cedex, France.

Jean-Michel MATRAY

BRGM, Avenue de Concyr, BP 6009, F-45060 Orléans Cedex 2, France.

Alain MAZAUD

Centre des faibles radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

Frédéric MÉLIÈRES

CNRS – UA 0723, Laboratoire de géologie, MNHN, 43 rue Buffon, 75005 Paris, France.

Roger NJITCHOUA

Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique, URA 723, Université Paris-Sud, Bât. 504, F-91405 Orsay Cedex, France.

Hans OESCHGER

Universität Bern, Physikalisches Institut, Siderstrasse 5, CH-3012 Bern.

Jean-Claude OLIVRY

Orstom, BP 5045, 34032 Montpellier Cedex 2, France.

Martine PATERNE

Centre des faibles radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

Jean-Pierre PERTHUISOT

Laboratoire de biogéologie, Faculté des sciences et des techniques, Université de Nantes, 44072 Nantes Cedex 03 (EAD 1708) , France.

Kazimierz ROZANSKI

Isotope Hydrology Section, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.

Martin STUTE

Lamont-Doherty Earth Observatory, Palisades, NY 10964/Barnard College, New York, NY 10027.

Nadine TISNERAT

Centre des faibles radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

Laurence VIDAL

Centre des faibles radioactivités, Laboratoire mixte CNRS-CEA, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

Kamel ZOUARI

École nationale d'ingénieurs de Sfax. Laboratoire de géochimie isotopique et de paléoclimatologie. BP « W » 3038 Sfax (Tunisie).

Gian Maria ZUPPI

Laboratoire d'hydrologie et de géochimie isotopique, URA 723, Université Paris-Sud, Bât. 504, F-91405 Orsay Cedex, France.

Liste des rapporteurs

List of reviewers

Les rapporteurs, dont les noms figurent ci-dessous, sont chaleureusement remerciés pour leurs commentaires et critiques constructives qui ont contribué à l'amélioration des manuscrits.

Thanks are due to the reviewers listed below for their constructive and critical comments which have improved the manuscript quality.

Boulègue (J.), Laboratoire de Géochimie et Métallogénie, Université Pierre et Marie Curie, Paris, France.

Clark (I. D.), Department of Geology, University of Ottawa, Ontario, Canada.

Coleman (M.), University of Reading, Whiteknights, Reading, U.K.

Decarreau (F.), CNRS-URA 721, Université de Poitiers, Poitiers, France.

Duplessy (J.-C.), CNRS-UMR 2101, Centre des Faibles Radioactivités, Gif-sur-Yvette, France.

Edmunds (M.), British Geological Survey, Wallingford, UK.

Gasse (F.), CNRS-URA 723, LHGI, Université de Paris-XI, Orsay, France.

Gauthier-Lafaye (F.), Centre de Géochimie de la Surface, Université Louis Pasteur, Strasbourg, France.

Gonfiantini (R.), Institute for Reference Materials and Measurements, European Commission-Joint Research Center, Geel, Belgium.

Gröning (M.), Agence Internationale pour l'Energie Atomique, Vienne, Autriche.

Hillaire-Marcel (C.), GEOTOP, Université du Québec, Montréal, Canada.

Jouzel (J.), Laboratoire de Modélisation du Climat et de l'Environnement, CEA, Saclay, France.

Mahé (G.), ORSTOM, Bamako.

Marsily (G. de), CNRS-URA 1367, Université Pierre et Marie Curie, Paris, France.

McNeil (G.), University of Reading, Whiteknights, Reading, UK.

Michelot (J.-L.), CNRS-URA 723, LHGI, Université de Paris-XI, Orsay, France.

Miskowski (J.-C.), CNRS-UMR 5590, Tautavel, France.

Purser (B.), Université de Paris XI, Orsay, France.

Ribstein (A.), Laboratoire de Géologie Appliquée, Université Pierre et Marie Curie, Paris, France.

Rozanski (K.), Faculty of Physics and Nuclear Techniques, Academy of Mining and Metallurgy, Krakow, Poland.

Zuppi (G.), Dipartimento Scienze della Terra, Università di Torino, Torino, Italia.

PREMIÈRE PARTIE

PART I

Cycle des eaux naturelles

Cycle of natural water

On the isotopic composition of precipitation

Sur la composition isotopique des précipitations

R. GONFIANTINI

ABSTRACT – The paper discusses some aspects of the isotopic composition (tritium and stable isotopes) of global precipitation which is being monitored since the late fifties through the network established by the International Atomic Energy Agency.

Three quarters of the tritium formed during the atmospheric thermonuclear tests were released in the biennium 1961-1962. The successive five years of test moratorium provide a unique information on the tritium transfer rate from the stratosphere to the troposphere. The tritium concentration decreased steadily, and the decrease rate appears to be greater at high latitude. This fact can possibly be explained by precipitation recycling by evapotranspiration, which is more important at low latitudes, and tritium injections by jet streams. In the northern hemisphere, the mean tritium concentration ratio between two successive years, is close to 0.68 ± 0.02 , with the exception of the year 1965, when the tritium content dropped to 0.50 ± 0.02 with respect to the previous year.

At latitudes between 30 and 60°, the correlations between $\delta^2\text{H}$ and $\delta^{18}\text{O}$ show almost identical slopes in winter and summer precipitation, but different intercepts. The correlations are: $\delta^2\text{H} = (8.36 \pm 0.13)\delta^{18}\text{O} + (14.2 \pm 4.2)$ for January and $\delta^2\text{H} = (8.33 \pm 0.13)\delta^{18}\text{O} + (8.2 \pm 3.9)$ for July. This reflects a different seasonal deuterium excess (defined as $d = \delta^2\text{H} - 8\delta^{18}\text{O}$), which has a mean value of $10.7 \pm 0.6\text{‰}$ in January and $5.8 \pm 0.5\text{‰}$ in July, and a higher average value in stations with prevailing winter rains. Also, the slope becomes about 8 when summer and winter precipitation are considered all together.

The altitude effect on the isotopic composition of precipitation on Mount Cameroun is re-examined. The model which best fits the data is based on the adiabatic condensation of the atmospheric vapour with a liquid/vapour ratio increasing from 0.15 at sea level to 0.45 at 4,000 m asl.

Keywords: tritium, deuterium, 18-oxygen, deuterium-excess.

RÉSUMÉ – On discute certains aspects de la composition isotopique (tritium et isotopes stables) des précipitations mondiales, échantillonnées depuis la fin des années cinquante par le réseau établi par l'Agence internationale de l'énergie atomique de Vienne.

Les trois quarts du tritium formé lors des essais thermonucléaires effectués dans l'atmosphère ont été relâchés en 1961 et 1962. Les cinq années qui ont suivi correspondent à une période de suspension des essais nucléaires. On assiste alors à une diminution progressive et continue de la teneur en tritium des précipitations, qui permet d'étudier la vélocité de transfert du tritium de la stratosphère à la troposphère. La concentration en tritium diminue plus rapidement aux hautes latitudes. Le recyclage des pluies par évapotranspiration, plus intense aux basses latitudes, ainsi que l'injection de tritium stratosphérique par les courants-jet, peuvent expliquer cette différence latitudinale. Dans l'hémisphère nord, le rapport moyen de la concentration en tritium des précipitations entre deux années successives est proche de $0,68 \pm 0,02$, à l'exception de l'année 1965, pour laquelle la teneur en tritium a chuté de 50 % par rapport à celle de l'année précédente.

Entre 30 et 60 °N et 30 et 60 °S de latitude, les droites de corrélation entre $\delta^2\text{H}$ et $\delta^{18}\text{O}$ des précipitations d'hiver et des précipitations d'été ont des pentes très voisines, mais des interceptions à zéro différentes. La corrélation est : $\delta^2\text{H} = (8,36 \pm 0,13)\delta^{18}\text{O} + (14,2 \pm 4,2)$ en janvier, et $\delta^2\text{H} = (8,33 \pm 0,13)\delta^{18}\text{O} + (8,2 \pm 3,9)$ en juillet. L'excès en deutérium (défini comme $d = \delta^2\text{H} - 8\delta^{18}\text{O}$) diffère donc selon les saisons, avec une valeur moyenne de $10,7 \pm 0,6\%$ en janvier et de $5,8 \pm 0,5\%$ en juillet. Par conséquent, sa valeur moyenne annuelle est plus élevée dans les stations où les pluies hivernales sont dominantes. La pente approche la valeur de 8 lorsque la corrélation est établie pour l'ensemble des précipitations d'hiver et d'été.

L'effet d'altitude sur la composition isotopique des précipitations sur le mont Cameroun est réexaminé. Le modèle montrant le meilleur accord avec les données est celui d'une condensation adiabatique des masses de vapeur atmosphérique, avec un rapport liquide/vapeur qui augmente d'une valeur de 0,15 à 0,45 entre le niveau de la mer et 4 000 m d'altitude.

Mots clés : tritium, deutérium, oxygène-18, excès en deutérium.

*

INTRODUCTION

The discovery of hydrogen and oxygen stable isotope natural variations during the thirties, and of tritium, the radioactive hydrogen isotope, in the late forties, together with the establishment of adequate techniques for the routine measurements of these isotopes, led to the birth of a new field of scientific investigation of natural water systems, which later was called isotope hydrology. Environmental hydrogen and oxygen isotopes appeared almost ideal tracers of water, because they are incorporated in the water molecules and therefore their behaviour and variations reflect the origin of, and the hydrological and geochemical processes underwent by, natural water bodies.

However, it was clear from the beginning that the use of isotopic tools in hydrology and hydrogeology required the detailed knowledge of the spacial and temporal variations of stable isotope and tritium concentration in precipitation, which is the main source of recharge of hydrological systems. In addition, monitoring the tritium content of precipitation was important for environmental reasons, because large amounts of tritium were produced and injected in the natural water cycle by the atmospheric thermonuclear tests carried out in the decade 1952-1962 by USA, USSR and UK, and later from 1967 to 1980 by China and France.

The global monitoring of the isotopic composition of precipitation was initiated by the International Atomic Energy Agency in Vienna in co-operation with the World Meteorological Organization in Geneva, through the establishment in the late fifties of a network of more than 100 stations for the collection of monthly precipitation samples for stable isotope and tritium measurement. This network, partly re-organized and extended with the inclusion of several national networks, is still in operation. The results are published at regular intervals. IAEA is also publishing the statistical evaluation of these data, the updated version of which appeared in 1992.

The isotopic composition of global precipitation has been discussed in several papers, among which one must mention Dansgaard (1964), Craig and Gordon (1965), Schell *et al.* (1974), Merlivat and Jouzel (1979), Jouzel (1986), Rozanski *et al.* (1991, 1993). Thus, the objective of this paper will be limited to summarize some of the scientific achievements reached through the data generated by the IAEA-WMO network on isotopes in precipitation, and to discuss some aspects which appear of particular interest to the author.

TRITIUM IN PRECIPITATION

Natural and thermonuclear tritium in the atmosphere

In 1953, when the tritium concentration of precipitation sharply increased as a consequence of the first atmospheric thermonuclear tests performed in

1952 by the USA in the atolls of Eniwetok and Bikini, only very few laboratories were ready to carry out tritium determinations in natural waters with the required accuracy. Thus, the only existing complete record of tritium in precipitation for the years 1953-57 is that of Ottawa, Canada (Brown, 1961). Other stations which started early to operate on a continuous basis, were Valentia, Ireland, from 1957, and Pretoria, South Africa, from 1958. Vienna, Austria, started in 1961.

The last large atmospheric thermonuclear tests were carried out in December 1962. From January 1st, 1963, the Limited Test Ban Treaty among the thermonuclear countries (UK, USSR and USA) came into force, by which it was agreed to ban explosions of nuclear devices of any type in the atmosphere, hydrosphere and all the sites from where released radioactive debris could migrate outside of the territorial limits of the country performing the test.

The tests carried out in the 1961-62 only, produced all together about 240 Mt of fusion energy (Carter and Moghissi, 1977), and an estimated release of 1.8×10^8 TBq of tritium (readily oxidized to water) with a yield of about 7.4×10^5 TBq·Mt⁻¹ (Miskel, 1973 ; UNSCEAR, 1982 and 1993). Three quarters of tritium were released in the northern polar atmosphere, and one quarter in the tropics; three quarters were injected and stored in the stratosphere, and one quarter remained in the troposphere from where it was readily washed out by precipitation and exchange with the ocean. The thermonuclear tritium released was two orders of magnitude higher than that naturally produced in the same biennium by the cosmic radiation, estimated to about 1.4×10^6 TBq (production rate 0.25 atoms·cm⁻²·s⁻¹; Peters, 1961, and Lal and Suess, 1968). In comparison the tritium produced by fission bombs, with a yield per Mt four orders of magnitude lower than that of fusion devices, is negligible. Also the thermonuclear ¹⁴C released in the 1961-62 biennium was high, about 1.6×10^5 Bq, versus a natural production of 3.1×10^3 TBq and a tropospheric inventory in air CO₂ of 1.7×10^5 TBq.

In spring 1963 the tritium concentration in precipitation reached a maximum value in the northern hemisphere - up to three orders of magnitude higher than the natural level in the most northern stations - and then it started to decrease with an approximately constant rate till 1967. Thus, the years 1963-67 were crucial for the understanding of the atmospheric tritium cycle. In 1967 the atmospheric thermonuclear explosions were resumed by China and, one year later, by France. China continued the experiments till 1980. Nevertheless, the fusion energy yield of Chinese and French explosions was limited, and the tritium produced was less than 5 % of that released in the biennium 1961-62. It was therefore capable to determine fluctuations of the tritium content of precipitation, but not to reverse the general decreasing trend. An estimate of tritium released in the atmosphere by thermonuclear tests is given in Table 1.

TABLE 1.

Tritium released in the atmosphere by thermonuclear tests

Test sites: USA: Eniwetok and Bikini, Marschall Islands, Pacific Ocean (11°30' N, 162-165 E); USSR: Novaya Zemlia, Barents Sea (75° N, 55° E); UK: Christmas Island, Pacific Ocean (2° N, 157° W); China: Lop Nor, Xin Jiang Desert (40° N, 90° E); France: Fangataufa and Mururoa, Tuamotu Archipelago, Pacific Ocean (16-22° S, 140° W).

Tritium relâché dans l'atmosphère par les essais thermonucléaires

Sites des essais : Eniwetok et Bikini, îles Marschall, océan Pacifique (11°30' N, 162-165 E); USSR: Novaya Zemlia, mer de Barents (75° N, 55° E); UK: île Christmas, océan Pacifique (2° N, 157° O); Chine : Lop Nor, désert de Xin Jiang (40° N, 90° E); France : Fangataufa et Mururoa, archipel de Tuamotu, océan Pacifique (16-22° S, 140° W).

Year <i>Année</i>	Country <i>Pays</i>	Fusion energy <i>Energie de fusion</i> Mt	Tritium released <i>Tritium relâché</i> TBq × 106
1952	USA	6.0	4.4
1953	USSR	?	?
1954	USA	17.5	13
1955	USSR	1.5	1.1
1956	USA, USSR	15.3	11.3
1957	UK, USSR	10.0	7.4
1958	UK, USA, USSR	31.1	23
1961	USSR	96.9	72
1962	USA, USSR	140.8	104
Limited Test Ban Treaty (UK, USA, USSR)			
1967	China	1.3	1
1968	China, France	2.6	1.9
1969	China	1.0	0.7
1970	China, France	1.2	0.9
1973	China	0.9	0.7
1974	China	0.15	0.1
1976	China	1.75	1.3
1980	China	0.15	0.1
1995	Thermonuclear tritium still present in the hydrosphere		36

Conversion factor: $7.4 \times 105 \text{ Tbq} \cdot \text{Mt}^{-1}$.

Removal of tritium from the atmosphere

From the stratospheric reservoir, thermonuclear tritium is injected into the troposphere through jet streams and, in spring and early summer, by the rise of the tropopause in polar regions (Eriksson, 1967, 1984), which determines the incorporation of part of the stratosphere in the troposphere. The latter mechanism, together with the fact that the most powerful explosions were carried out by the USSR at 75°N latitude, explains why spring precipitations at high northern latitudes have the highest tritium concentration. This is in principle valid also for natural tritium, two thirds of which are formed in the stratosphere through the reaction $^{14}\text{N}(n, ^3\text{H})^{12}\text{C}$, mainly at high and mid geomagnetic latitudes, where the cosmic radiation is preferentially conveyed by the Earth magnetic field (Begemann, 1961).

As already said, tritium is rapidly removed from the troposphere by precipitation and by molecular exchange of atmospheric water vapour with water and ice surfaces. The exchange with water removes a tritium amount comparable with that deposited by precipitation, as it has been shown from tritium

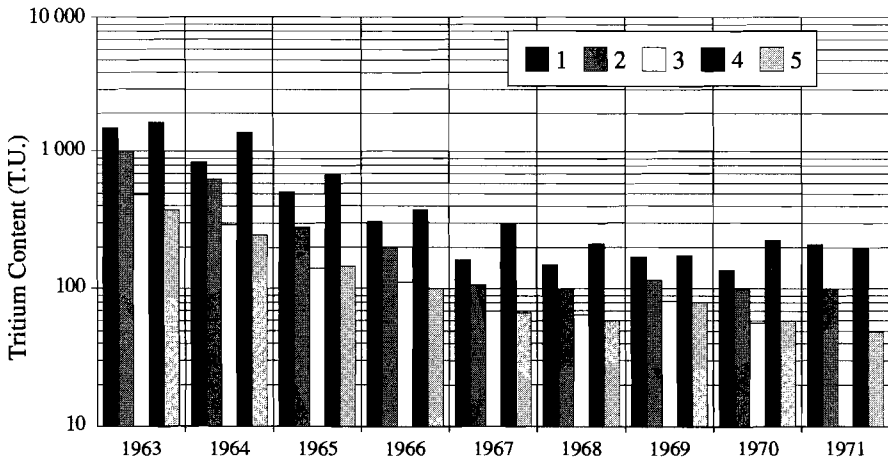


FIGURE 1.

Mean tritium concentration of precipitation in North Atlantic marine stations in the years 1963-1971. The values are normalized (corrected for decay) to 1963. The stations are: 1, Lista, Norway, 58°6'N 6°34'E; 2, Valentia, Ireland, 51°56'N 10°15'W; 3, Ponta Delgada, Portugal, 37°46'N 25°39'W; 4, Boston, Massachusetts, USA, 42°22'N 71°2'W; 5, Weathership E, USA, 35°0'N 48°0'W.

Concentration moyenne en tritium des précipitations sur des stations marines de l'Atlantique nord pour la période 1963-1971. Les valeurs sont normalisées à 1963. Les stations sont: 1, Lista, Norvège, 58°6'N 6°34'E; 2, Valentia, Irlande, 51°56'N 10°15'O; 3, Ponta Delgada, Portugal, 37°46'N 25°39'O; 4, Boston, Massachusetts, USA, 42°22'N 71°2'O; 5, Weathership E, USA, 35°0'N 48°0'O.

balance of lakes (Gat, 1970; Gonfiantini *et al.*, 1979; Lipps *et al.*, 1992). The exchange with ice is less efficient because of the lack of mixing in the solid phase and re-evaporation of tritiated vapour condensed on surface (Moser and Stichler, 1980).

The rate of tritium removal from the stratosphere can be derived from the tritium concentration in precipitation in the period 1963-67. In these years the thermonuclear tritium stored in the stratosphere is by far the largest but finite tritium source, and the natural tritium is negligible. Therefore, according to the simple model for the tritium removal from the stratosphere

$$\frac{dT_s}{dt} = -kT_s,$$

where T_s is the stratospheric tritium (normalized for decay) and k the removal rate constant, the tritium concentration in precipitation must decrease exponentially vs. time. This is in fact observed, as shown in Fig. 1 and 2 for selected continental and marine stations. In marine stations, the tritium concen-

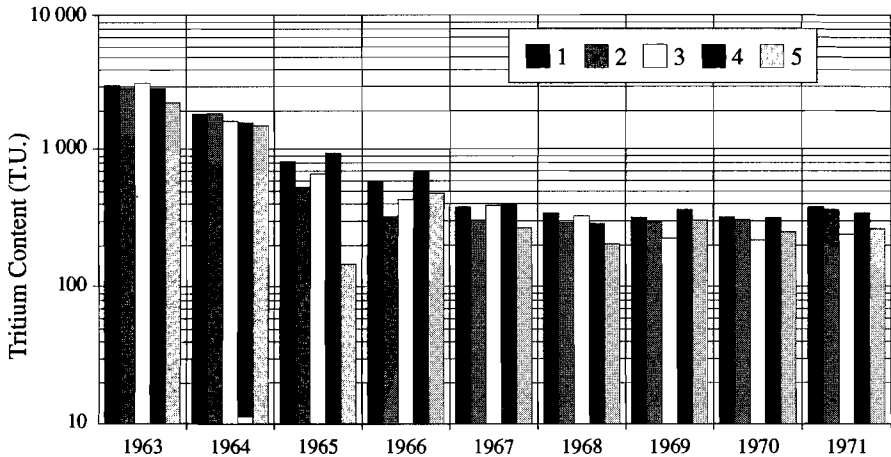


FIGURE 2.

Mean tritium concentration of precipitation in European, Asian and North American continental stations in the years 1963-1971. The values are normalized to 1963. The stations are: 1, Vienna, Austria, 48°15'N 16°22'E; 2, Thonon-les-Bains, France, 46°13'N 6°17'E; 3, Teheran, Iran, 35°41'N 51°19'E; 4, Ottawa, Ontario, Canada, 45°19'N 75°40'W; 5, Chicago, Illinois, USA, 41°47'N 87°45'W.

Concentration moyenne en tritium des précipitations sur des stations continentales d'Europe, d'Asie et d'Amérique pour la période 1963-1971. Les valeurs sont normalisées à 1963. Les stations sont : 1, Vienne, Autriche, 48°15'N 16°22'E; 2, Thonon-les-Bains, France, 46°13'N 6°17'E; 3, Teheran, Iran, 35°41'N 51°19'E; 4, Ottawa, Ontario, Canada, 45°19'N 75°40'O; 5, Chicago, Illinois, USA, 41°47'N 87°45'O.

tration of precipitation is lower due to molecular exchange of the atmospheric vapour with the ocean surface and dilution by oceanic vapour, whose tritium concentration is low. This effect can be seen also in Fig. 3, which shows the tritium content of precipitation in the northern hemisphere as a function of latitude, confirming that most of the tritium is injected in the troposphere at high latitudes.

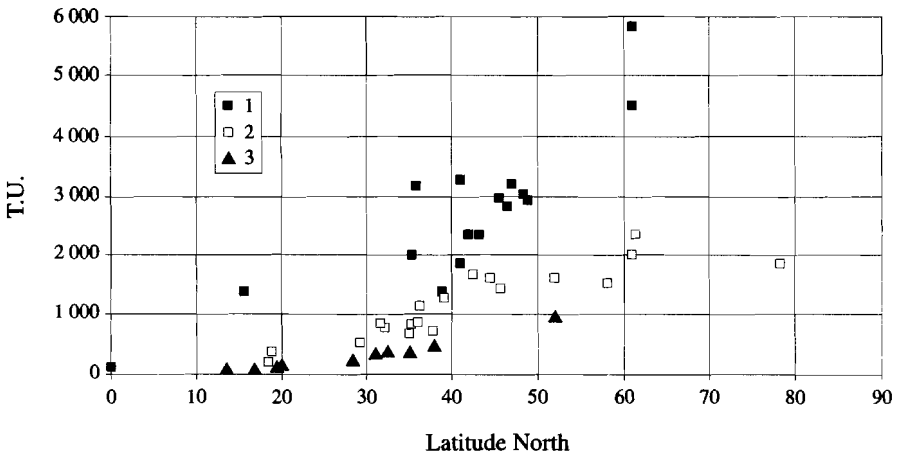


FIGURE 3.

Mean tritium concentration of precipitation in 1964 in the northern hemisphere as a function of latitude. 1, continental stations; 2, coastal stations; 3, island stations.

Concentration moyenne en tritium des précipitations de 1964 sur l'hémisphère nord en fonction de la latitude. 1, stations continentales; 2, stations côtières; 3, stations insulaires.

From 1967 till 1971, the tritium concentration remained almost constant, probably as a consequence of Chinese and French tests.

In the years 1963-67 the tritium concentration in precipitation decreased exponentially versus time with a slope $-k$, where k (dimensions t^{-1}) is the kinetic constant of tritium transfer from the stratosphere to troposphere. It appears that k decreases with latitude, as it is shown in Fig. 4: in other words, the tritium decrease rate is slowing down at lower latitude.

Considering only the five stations at latitude above 60°N , we obtain a mean value of k equal to $0.57 \pm 0.02 \text{ a}^{-1}$. The half time for the tritium transfer from stratosphere by the spring rise of troposphere in polar regions is therefore $1.22 \pm 0.05 \text{ a}$, and the mean residence time of tritium in the polar stratosphere is $1.75 \pm 0.07 \text{ a}$. All these values are depurated for tritium decay, and therefore apply also to water vapour in the stratosphere.

At the Equator, k reaches the value of $0.68 \pm 0.02 \text{ a}^{-1}$, as computed from the regression equation of Fig. 4. Recycling of precipitation by evapo-transpiration and tritium injection by jet streams may contribute to this effect.

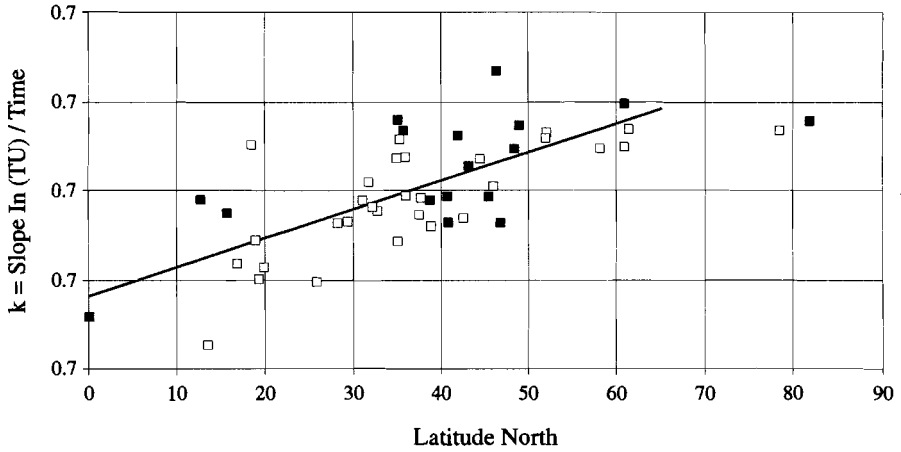


FIGURE 4.

Plot of k (1963-1967) vs. latitude.

The regression is: $k = (0.0032 \pm 0.0005) \text{ Lat. N} + (0.38 \pm 0.02)$ with a correlation coefficient of 0.696 and $n = 45$. The two stations at latitude above 70°N , have been excluded. There is no evidence of systematic difference between continental (filled squares) and marine stations (open squares).

Distribution de k (1963-1967) en fonction de la latitude.

La régression est : $k = (0,0032 \pm 0,0005) \text{ Lat. N} + (0,38 \pm 0,02)$ avec un coefficient de corrélation de 0,696 et $n = 45$. Les deux stations de latitude supérieure à 70° sont exclues. On n'observe pas de différence systématique entre les stations continentales (carrés noirs) et les stations marines (carrés blancs).

If the tritium transfer mechanisms operate at a constant rate, the ratio of tritium concentration between two successive years, in the period 1963-67, must be constant at the same place, if all other conditions are on the average constant. For the stations in the northern hemisphere, the mean values of such ratio are:

Tritium Concentration ratios	Mean Values	n
Tritium concentration in 1964/Tritium concentration in 1963	0.679 ± 0.022	45
Tritium concentration in 1965/Tritium concentration in 1964	0.499 ± 0.017	47
Tritium concentration in 1966/Tritium concentration in 1965	0.692 ± 0.024	47
Tritium concentration in 1967/Tritium concentration in 1966	0.672 ± 0.023	47

It is worth noticing that the 1965/1964 ratio is significantly lower than in other year pairs, and that this decrease occurred almost everywhere in the northern hemisphere. No adequate explanation has been found: if for some reasons the tritium transfer from the stratosphere was in 1964 greater than normal, or in 1965 smaller, this should be reflected also on the ratios 1964/1963 or 1966/1965, which should be higher than normal: this does not seem to happen.

Tritium from nuclear and industrial plants

Tritium is also released in the environment by nuclear plants in airborne and liquid effluents. The latter have no or little impact on tritium concentration of precipitation.

For airborne effluents, UNSCEAR (1993) reports that heavy water reactors, where tritium is formed by deuterium activation, discharged about 10,000 TBq of tritium in 1989, i.e. 970 TBq for GW(e) produced per year. Therefore, heavy water reactors, which produce only 5 % of the world nuclear power and are mainly located in Eastern Canada, are responsible for about 98 % of tritium released by nuclear power reactors in the atmosphere. For comparison, the ^{14}C released in airborne effluents by nuclear reactors in 1989 has been 10 TBq, the half of which by heavy water reactors, and the rest almost equally shared among pressured water reactors, boiling water reactors and gas cooled reactors.

Tritium discharges in the atmosphere by fuel reprocessing plants is estimated from data published by UNSCEAR to a value of $450 \pm 100 \text{ TBq}\cdot\text{a}^{-1}$, most of which by the Sellafield plant in the United Kingdom.

Tritium is used in luminescent dies and other luminous industrial products, the disposal of which is also a source of tritium released in the environment.

Nuclear reactors and industrial releases may determine in certain regions an almost permanent tritium contamination of the atmospheric moisture, which is observed in precipitation. However, these contamination sources are generally located in restricted areas at ground level and their impact can be noticeable but limited in extent. Possibly, investigations carried out on atmospheric water vapour may offer the opportunity of studying the characteristics and effects of these contaminations in some details.

STABLE ISOTOPES IN PRECIPITATION

The stable isotope variations of precipitation depend upon meteorological and climatological factors, and therefore are commonly used in the validation of general circulation models of the atmosphere (see, for instance, Jouzel *et al.*, 1987 and 1991). The main processes and parameters which determine the stable isotope composition of precipitation are related with season, latitude, altitude, distance from the ocean (continentality effect), amount, etc., and are:

- (i) the relative humidity and the temperature during the evaporation from the ocean, which is the main source of atmospheric vapour;
- (ii) the temperature and the degree of condensation of atmospheric vapour;
- (iii) the fraction and the nature of condensed phases (liquid water, ice) in clouds;
- (iv) the contribution of re-evaporated fresh water;
- (v) the evaporation during raindrop fall.

Broadly speaking, the main driving parameter is temperature, with which the isotopic composition of precipitation is almost always correlated. Even the modern increase of world mean temperature is reflected by the isotopic composition of precipitation (Rozanski *et al.*, 1992).

Correlation between deuterium and oxygen-18

The condensation of atmospheric vapour to form clouds and precipitation produces parallel and proportional variations of the $^2\text{H}/^1\text{H}$ and $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ ratios in both the condensed phase and the residual vapour. As a consequence, $\delta^2\text{H}$ and $\delta^{18}\text{O}$ of precipitation are linearly correlated. In particular it has been found that, on a global scale, the equation which best fits the correlation between $\delta^2\text{H}$ and $\delta^{18}\text{O}$, expressed as difference in parts per mille versus the mean isotopic composition of the ocean water, i.e. the primary vapour source, is (Craig, 1961):

$$\delta^2\text{H} = 8 \delta^{18}\text{O} + 10 \quad (1)$$

Equation (1) represents the so-called World Meteoric Water Line (WMWL). Deviations from the behaviour predicted by equation (1), observed in certain regions and circumstances, can be expressed in terms of deuterium excess d , a parameter defined as:

$$d = \delta^2\text{H} - 8 \delta^{18}\text{O} \quad (2)$$

The deuterium excess can be significantly different from the value of 10 ‰ of equation (1).

The slope 8 of equation (1) is the overall result of the complex condensation process of atmospheric vapour to form liquid and ice. The Rayleigh condensation model, which is commonly adopted to describe the isotopic composition of precipitation, although it does not foresee the co-existence of vapour and condensed water phases as in clouds, gives on the whole a sound explanation of the relationship between isotopic composition and temperature. With this simple model it can be shown that the liquid water formed by atmospheric vapour condensation exhibits a correlation between $\delta^2\text{H}$ and $\delta^{18}\text{O}$ with a slope close to 8 if the condensation process takes place at the isotopic

equilibrium between phases. The same relationship, however, does not hold when the model is applied to ice condensation, for which the computed slope is lower than 8.

A more complex model developed by Jouzel *et al.* (1980), takes into account that liquid water and/or ice co-exist together with water vapour in clouds. Deviations from equilibrium of the ice isotopic composition are observed during ice crystal accretion, which are due to vapour diffusion in supersaturated air, and determine a decrease of the apparent isotopic fractionation factors. With this model, the slope of the $\delta^2\text{H} - \delta^{18}\text{O}$ correlation in ice approaches the value of 8.

Seasonal variations of the deuterium excess

As already said, the deuterium excess is a way of expressing the deviations of the isotopic composition of water samples from the behaviour predicted by equation (1). The fact that the WMWL does not pass through the point (0,0) representing the mean isotopic composition of the ocean water, is mainly due to the additional diffusion fractionation during vapour transport in air, which sum up with the equilibrium isotopic fractionation at the liquid-vapour interface, according to the Craig and Gordon (1965) model.

The deuterium excess d increases with increasing moisture deficit $(1 - h)$ of the oceanic air masses, h being the air relative humidity normalized at the ocean surface temperature. The intercept value of 10‰ of the World Meteoric Water Line corresponds to an average relative humidity value of 81 % (Jouzel, 1986).

Let consider now the $\delta^2\text{H} - \delta^{18}\text{O}$ relationship in the temperate regions (latitude above 30°) in January, using the mean monthly values published by IAEA (1992) for each station of the IAEA-WMO network (Fig. 5). The equation of the reduced major axis line (Till, 1974) is:

$$\delta^2\text{H} = (8.05 \pm 0.09) \delta^{18}\text{O} + (11.6 \pm 4.5) \quad (3)$$

The same regression for July gives:

$$\delta^2\text{H} = (8.33 \pm 0.13) \delta^{18}\text{O} + (8.2 \pm 3.9) \quad (4)$$

The slightly lower slope in January is mainly due to the very negative δ -values of polar samples: this is in agreement with computations showing that, when the heavy isotope concentration becomes too low, i.e. in the final condensation stages of atmospheric vapour, the slope tends to decrease. Therefore, excluding five high latitude stations with $\delta^{18}\text{O}$ more negative than -25 ‰ in order to have similar $\delta^2\text{H}$ and $\delta^{18}\text{O}$ ranges for January and July, the correlation for January becomes:

$$\delta^2\text{H} = (8.36 \pm 0.13) \delta^{18}\text{O} + (14.2 \pm 4.2) \quad (5)$$

i.e. with a slope practically identical to that of July but a higher intercept.

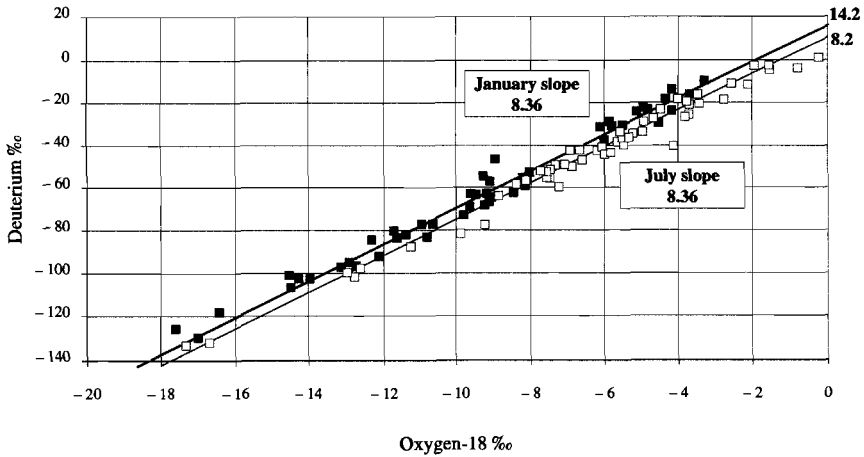


FIGURE 5.

Mean isotopic composition of precipitation in January (July for southern hemisphere) and July (January for southern hemisphere) in stations at latitudes higher than 30° . Five high latitude stations with $\delta^{18}\text{O}$ more negative than -25‰ have been excluded from January correlation.

Composition isotopique moyenne des précipitation de janvier (juillet pour l'hémisphère sud) et de juillet (janvier pour l'hémisphère sud) aux stations de latitude supérieure à 30° . Cinq stations de haute latitude dont les valeurs de $\delta^{18}\text{O}$ sont inférieures à -25‰ ont été exclues pour la corrélation de janvier.

The difference between the intercepts is probably significant, and reflects a different mean deuterium excess, which in fact in January is $10.7 \pm 0.6\text{‰}$, while in July it is $5.8 \pm 0.5\text{‰}$ only. This indicates also that the mean relative humidity of air masses at the departure from the ocean contact, is on the average about 10 % lower in winter than in summer, as it can be deduced from Merlivat and Jouzel model (1979). A possible explanation is that in winter the air is cooler than the ocean surface, and the warming of air masses when they come into contact with the ocean promotes their uplift. This reduces the contact time between the ocean and the air masses, whose moisture content remains relatively low. The contrary occurs in summer.

The effect of the air-ocean temperature difference on the deuterium excess is illustrated in Fig. 6 for North Atlantic stations under the Gulf Stream influence.

The deuterium excess seasonal shift from higher values in winter to lower values in summer, explains why:

- (i) in correlating $\delta^2\text{H}-\delta^{18}\text{O}$ values at any given station, the slope is often significantly lower than 8. This effect has been attributed to evapora-

tion during raindrop fall in summer, but another reason may be the different conditions of the vapour formation over the ocean between summer and winter described above;

- (ii) the overall correlation for all $\delta^2\text{H} - \delta^{18}\text{O}$ values has slope close to 8. For example, the regression for January and July values together is:

$$\delta^2\text{H} = (8.36 \pm 0.13) \delta^{18}\text{O} + (14.2 \pm 4.2) \quad (6)$$

However, a slope value of 8.30-8.40 seems to fit better the isotopic data of precipitation when samples from any single season are considered, which have been formed under comparable climatic conditions;

- (iii) in stations with prevailing winter precipitations, the weighted mean deuterium excess is usually higher than in other climatic conditions. Examples are the eastern Mediterranean stations, Ponta Delgada, Azores Islands, ($d = 13.7\text{‰}$), Bahrain, Persian Gulf (14.1‰), Kabul, Afghanistan (17.2‰), Cape Town, South Africa (14.7‰), Perth, Australia (16.2‰).

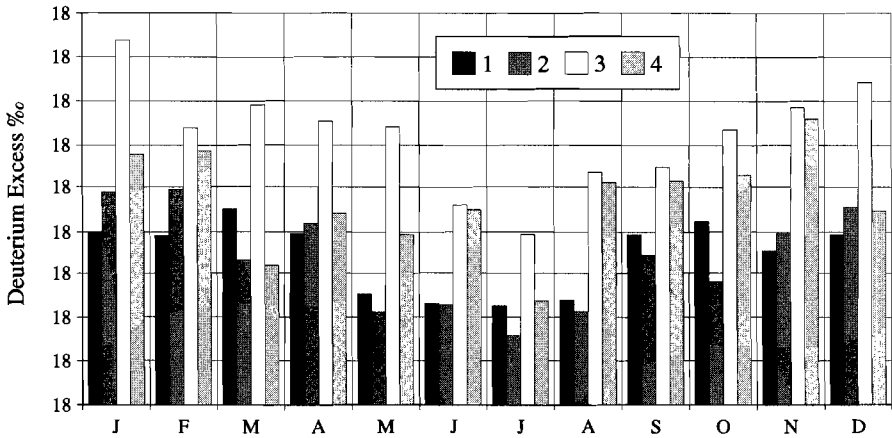


FIGURE 6.

Deuterium excess in North Atlantic stations: 1, Valentia, Ireland, $51^{\circ}56'N$ $10^{\circ}15'W$; 2, Reykjavik, Iceland, $64^{\circ}8'N$ $21^{\circ}56'W$; 3, Ponta Delgada, Portugal, $37^{\circ}46'N$ $25^{\circ}39'W$; 4, Weathership E, USA, $35^{\circ}0'N$ $48^{\circ}0'W$.

Excès en deutérium pour des stations de l'Atlantique nord: 1, Valentia, Irlande, $51^{\circ}56'N$ $10^{\circ}15'O$; 2, Reykjavik, Islande, $64^{\circ}8'N$ $21^{\circ}56'O$; 3, Ponta Delgada, Portugal, $37^{\circ}46'N$ $25^{\circ}39'O$; 4, Weathership E, USA, $35^{\circ}0'N$ $48^{\circ}0'O$.

Amount effect in tropical oceanic stations

For 54 tropical stations (latitude less than 30°) the $\delta^2\text{H} - \delta^{18}\text{O}$ reduced major axis regression has been established using the data of the most rainy month when evaporation during raindrop fall is assumed to be minimal. Four stations, where the mean yearly precipitation is less than 300 mm, have not been included in the correlation because they were suspected of evaporation effects. The regression equation is:

$$\delta^2\text{H} = (7.84 \pm 0.22) \delta^{18}\text{O} + (10.0 \pm 3.6) \quad (7)$$

No correlation exists between isotopic composition of the most rainy month and precipitation amount at each station. If however only oceanic stations are considered, the correlation of Fig. 7 appears. A similar effect was already reported by Rozanski *et al.* (1993).

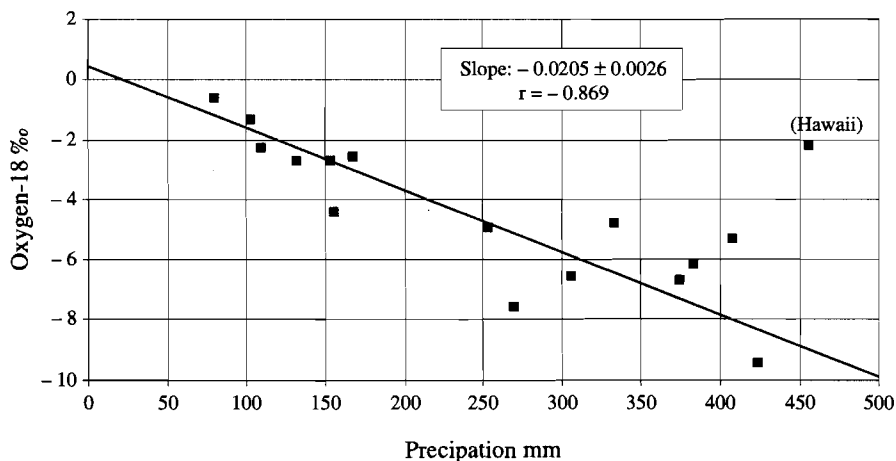


FIGURE 7.

Amount effect at oceanic tropical stations. Hawaii has been excluded from the regression.

Effet de masse pour les stations océaniques tropicales. Hawaii n'est pas pris en compte dans la régression.

Altitude effect on Mount Cameroun

The change of isotopic composition of precipitation with altitude, although of quite general occurrence, is particularly evident in zones where the presence of a high, isolated mountain with a prevailing direction of the air mass advection, determines the air mass rise along the slope with consequent adiabatic cooling and vapour condensation. Among the known examples of isotopic altitude effect, that of Mount Cameroun is probably the cleanest and finest

ever reported (Fontes and Olivry, 1976; Fontes, 1976; Fontes and Olivry, 1977). Mount Cameroun, at $4^{\circ}13'N$ and $9^{\circ}10'E$, rises sharply up to 4095 m asl on the Atlantic coast of western equatorial Africa. The yearly precipitation $\delta^{18}O$ in four different years in 20 stations along the slope, ranges from about -3 at sea level to about -10‰ at 4050 m asl. The mean isotopic gradient with altitude is $-0.155 \pm 0.005 \delta^{18}O\text{‰}$ per 100 m (Fig. 8). This gradient may appear rather small if compared for instance with that of -0.27 ± 0.03 observed on samples of a single snowfall collected along the slope of Mount Kilimanjaro between 4600 and 5700 m asl (Tongiorgi, 1970). In the second case, however, the temperature was much lower.

Let us assume that the air masses have a temperature of $25^{\circ}C$ and a relative humidity of 80 % when they leave the contact with the ocean, and the $\delta^{18}O$ of the atmospheric moisture is -12‰ . Under adiabatic expansion conditions, the air masses reach saturation and start to condense at about $20^{\circ}C$, and when a temperature of $16^{\circ}C$ is reached, the liquid water formed has a $\delta^{18}O$ of about -3‰ as that of rain at sea level elevation on the foothill of Mount Cameroun. Using the mean temperature gradient of $-0.53 \pm 0.01^{\circ}C/100$ m obtained in vertical profiles by sounding balloons in Douala (Fontes and Olivry, 1977), $16^{\circ}C$ are reached at 1700 m asl, which is assumed to represent the mean altitude of formation of rains falling at 0 m asl. These values of condensation temperature ($16^{\circ}C$), $\delta^{18}O$ (-3‰) and altitude of formation (1700 m asl), are considered typical of the first rains formed from the oceanic air masses along the mountain slope. With the temperature gradient of $-0.53 \pm 0.01^{\circ}C/100$ m, the rains falling at 4000 m have a mean temperature of $-5^{\circ}C$ and a mean altitude of formation of 5700 m asl.

Three models have been adopted to fit the isotopic data, which are illustrated in Fig. 8:

- (i) the Rayleigh model, in which the condensed liquid is removed as soon as it is formed. This model shows large deviations from the measured values at altitudes above 1500 m;
- (ii) a model in which vapour and liquid co-exist in clouds with a constant liquid to vapour ratio equal to 0.15. This model fits better the isotopic values than the previous one, but significant deviations appears at altitudes above 2500 m;
- (iii) a model in which the liquid/vapour ratio increases linearly with altitude from a value of 0.15 at sea level to 0.45 at 4000 m. This model produces the best fitting of the isotopic data. Therefore, an increase of the liquid/vapour ratio with altitude is assumed to approach reality rather well.

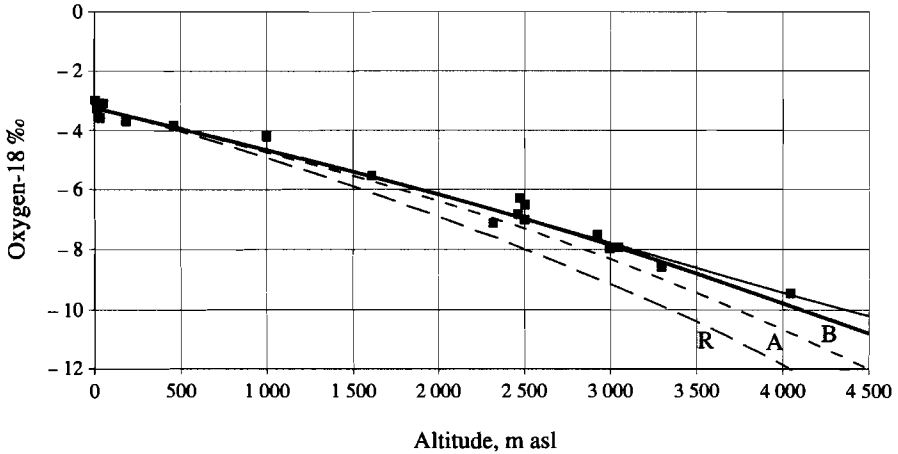


FIGURE 8.

Oxygen isotopic composition of precipitation on Mount Cameroun, Central Africa, as a function of altitude. The values are the average of measurements on yearly precipitation samples collected at 20 stations on the slope of Mount Cameroun in four different years (1972, 1973, 1974, and 1975). There is no apparent difference between windward and leeward stations. The regression line (LC) has the equation

$$\delta^{18}\text{O} = -(0.00155 \pm 0.00005) Z - (3.16 \pm 0.11)$$

Other lines represent: R, the Rayleigh condensation model with $L/V = 0$, where L/V is the cloud liquid/vapour ratio; A, model with $L/V = 0.15$, constant; B, model with L/V linearly increasing with elevation from 0.15 to 0.45. The model temperatures have been converted into altitude by using the gradient of $0.53\text{ }^\circ\text{C}/100\text{ m}$ and taking $T = 16\text{ }^\circ\text{C}$ for $Z = 0\text{ m}$ asl.

Composition isotopique en oxygène des précipitations sur le Mont Cameroun, Afrique centrale, en fonction de l'altitude. Les valeurs portées sont les moyennes des mesures d'échantillons de précipitations annuelles collectées en 20 stations sur les pentes du Mont Cameroun au cours de quatre années (1972, 1973, 1974 et 1975). On n'observe pas de différence apparente entre les stations au vent et les stations sous le vent. La droite de régression (LC) a l'équation suivante:

$$\delta^{18}\text{O} = -(0,00155 \pm 0,00005) Z - (3,16 \pm 0,11)$$

Les autres courbes représentent: R, modèle de condensation de Rayleigh avec $L/V = 0$, où L/V est le rapport liquide/vapeur dans les nuages; A, modèle avec $L/V = 0,15$, constant; B, modèle avec L/V croissant linéairement avec l'altitude de 0,15 à 0,45. Les températures utilisées dans le modèle ont été converties en altitude en considérant un gradient de $0.53\text{ }^\circ\text{C}/100\text{ m}$, et $T = 16\text{ }^\circ\text{C}$ pour $Z = 0\text{ m}$ (niveau de la mer).

GENERAL CONCLUSIONS

The IAEA database on isotopes in precipitation is still far from being fully exploited. The tritium concentration in precipitation from 1963 to 1967, when the thermonuclear tritium was high and natural tritium negligible, is crucial for the understanding of atmospheric part of the hydrological cycle, and especially of the stratosphere-troposphere interrelations, the atmospheric vapour-liquid exchange, and re-evaporation and re-cycling of precipitation. For instance, the change of tritium decrease rate with latitude, although admittedly not yet fully understood, provides an indication of increasing re-cycling of rains at low latitudes.

Nowadays, tritium has reached in precipitation levels similar to those occurring before 1952, i.e. before the thermonuclear tests. These low concentrations strongly limit the use of tritium in investigations on atmosphere global dynamics. However, in contaminated areas, tritium can be used to investigate vapour migration under different meteorological conditions, by sampling atmospheric vapour.

Stable isotopes are a powerful tool in meteorological and climatological investigations, and have been widely applied in atmospheric general circulation models. The processes governing the isotopic composition of precipitation are known in their general lines, but detailed studies in selected regions and seasons may help in investigating them in depth and in identifying deviations from the average behaviour. For instance, in the temperate zone, the deuterium excess seems to be different in different seasons, but the slope of the $\delta^2\text{H}-\delta^{18}\text{O}$ relationship does not seem to be affected and remains constant at the value of 8.30-8.35, which is slightly higher than that of 8 computed by Craig for the overall global precipitation and generally adopted.

A better understanding of the relationships between isotopes and their response to external factors, will also enhance the usefulness of stable isotopes in palaeoclimatological investigations and in climatic change prediction.

REFERENCES

- Begemann (F.), 1961. "Natural tritium". In *Summer Course on Nuclear Geology Varenna 1960*, Laboratorio di Geologia Nucleare, Pisa, pp. 109-126.
- Brown (R.M.), 1961. "Hydrology of tritium in the Ottawa Valley". *Geoch. et Cosmoch. Acta*, 21 : 199-220.
- Carter (M.W.), and Moghissi (A.A.), 1977. "Three decades of nuclear testing". *Health Physics*, 33 : 55-71
- Craig (H.), 1961. "Isotopic variations in meteoric waters". *Science*, 33 : 1702-1703.
- Craig (H.) and Gordon (L.I.), 1965. "Deuterium and oxygen-18 variations in

- the ocean and the marine atmosphere". In *Stable Isotopes in Oceanographic Studies and Paleotemperatures* (Tongiorgi, E., Editor), Consiglio Nazionale delle Ricerche Laboratorio di Geologia Nucleare, Pisa, pp. 9-130.
- Dansgaard (W.), 1964. "Stable isotopes in precipitation". *Tellus*, 16 : 436-468.
- Eriksson (E.), 1967. "Isotopes in hydrometeorology". In *Isotopes in Hydrology*, IAEA, Vienna, pp. 21-33.
- Eriksson (E.), 1984. "Stable isotopes and tritium in precipitation". In *Guidebook on Nuclear Techniques in Hydrology* (1983 Edition), IAEA, Vienna, pp. 19-33.
- Fontes (J.-Ch.), 1976. Isotopes du milieu et cycles des eaux naturelles : quelques aspects. Thèse de Doctorat d'état ès sciences, Université P. et M. Curie-Paris VI, 208 p.
- Fontes (J.-Ch.) and Olivry (J.-C.), 1976. "Gradient isotopique entre 0 et 4000 m dans les précipitations du Mont Cameroun. Résumé". *C. R. Réunion. Ann. Sc. Terre, Soc. géol. Fr.*, Paris, p. 171.
- Fontes (J.-Ch.) and Olivry (J.-C.), 1977. "Composition isotopique des précipitations de la région du Mont-Cameroun". Onarest, Institut de recherches sur les techniques, l'industrie et le sous-sol, 28 p.
- Gat (J.R.), 1970. "Environmental isotope balance of Lake Tiberias". In *Isotope Hydrology 1970*, pp. 109-127. IAEA, Vienna.
- Gonfiantini (R.), Zuppi (G.M.), Eccles (D.H.) and Ferro (W.), 1979. "Isotope investigation of Lake Malawi". In *Isotopes in Lake Studies*, pp. 195-207. IAEA, Vienna.
- Iaea, 1992. "Statistical Treatment of Data on Environmental Isotopes in Precipitation". *Techn. Reports Series* No. 331, 781 p. IAEA, Vienna.
- Jouzel (J.), 1986. "Isotopes in cloud physics: multiphases and multistage condensation processes". In *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry* (Fritz, P. and Fontes J.-Ch., Editors), Vol. 2, B: *The Terrestrial Environment*, pp. 61-112. Elsevier, Amsterdam.
- Jouzel (J.), Bricchet (N.), Thalmann (B.), and Federer (B.), 1980. "A numerical cloud model to interpret the isotope content of hailstones". In *Proceedings of the Eighth Conference on Cloud Physics*. LAMP, Clermont-Ferrand.
- Jouzel (J.), Russell (G.L.), Suozzo (R.J.), Koster (R.D.), White (J.W.C.) and Broecker (W.S.), 1987. "Simulations of the HDO and H₂¹⁸O atmospheric cycles using the NASA/GISS general circulation model: the seasonal cycle for present day conditions". *J. Geophys. Res.*, Vol. 92, pp. 14739-14760.
- Jouzel (J.), Koster (R.D.), Suozzo (R.J.), Russell (G.L.), White (J.W.C.) and Broecker (W.S.), 1991. "Simulations of the HDO and H₂¹⁸O atmospheric cycles using the NASA/GISS general circulation model: sensitivity experiments for present-day conditions". *J. Geophys. Res.*, 96 : 7495-7507.

- Lal (D.) and Suess (H.), 1968. "The radioactivity of the atmosphere and hydrosphere". *Ann. Review of Nuclear Sci.*, 18: 407-437.
- Lipps (F.B.) and Hemler (R.S.), 1992. "On the downward transfer of tritium to the ocean by a cloud model". *J. Geoph. Res.*, 97: 12889-12900.
- Merlivat (L.) and Jouzel (J.), 1979. "Global climatic interpretation of the deuterium-oxygen-18 relationship for precipitation". *J. Geophys. Res.*, 84: 5029-5033.
- Miskel (J.A.), 1973. "Production of tritium by nuclear weapons". In *Tritium* (Moghissi A.A., and Carter M.W., Editors), pp. 79-85. Messengers Graphics, Phoenix and Las Vegas.
- Moser (H.) and Stichler (W.), 1980. "Environmental isotopes in ice and snow". In *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry* (Fritz, P., and Fontes J-Ch., Editors), Vol. 1, A: *The Terrestrial Environment*, p. 141. Elsevier, Amsterdam.
- Peters (B.), 1961. "Cosmic ray produced isotopes as tracers in meteorological research". In *Summer Course on Nuclear Geology Varenna 1960*, pp. 99-108. Laboratorio di Geologia Nucleare, Pisa.
- Rozanski (K.), Gonfiantini (R.) and Araguás A. (L.), 1991. "Tritium in the global atmosphere: distribution patterns and recent trends". *J. Phys. G. Nucl. Part. Physics*, 17: S523-S536.
- Rozanski (K.), Araguás A. (L.) and Gonfiantini (R.), 1992. "Relation between long term trends of oxygen-18 isotope composition of precipitation and climate". *Science*, 258: 981-985.
- Rozanski (K.), Araguás A. (L.) and Gonfiantini (R.), 1993. "Isotopic patterns in modern global precipitation". In *Climate Change in Continental Isotopic Records* (Swart, P.K., Lohmann, K.C., McKenzie, J., and Savin, S., Editors), pp. 1-36. Geophysical Monograph 78, Am. Geophys. Union, Washington, D.C.
- Schell (W.R.), Sauzay (G.) and Payne (B.R.), 1974. "World distribution of environmental tritium". In *Physical Behaviour of Radioactive Contaminants in the Atmosphere*, pp. 375-400. IAEA, Vienna.
- Till (R.), 1974. *Statistical Methods for the Earth Scientist. An Introduction*. MacMillan, London, 154 p.
- Tongiorgi (E.), 1970. "Reported by Gonfiantini (R.) in the discussion of the paper by Moser (H.) and Stichler (W.): Deuterium measurements on snow samples from the Alps". In *Isotope Hydrology 1970*, pp. 43-57. IAEA, Vienna.
- Unsear (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation) 1982. *Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects*. United Nations, New York, 774 p.
- Unsear (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation) 1993. *Sources and Effects of Ionizing Radiations*. United Nations, New York.

Stable isotopes in soil and water studies

Isotopes stables dans l'eau et le sol

G. B. ALLISON

ABSTRACT – The composition of oxygen-18 and deuterium in soil waters varies mainly as a result of changes in the isotopic composition of rainfall and the processes of evaporation. This paper gives examples of how the isotope profiles which develop in the unsaturated zone can give information about recharge fluxes and mechanisms, evaporation from groundwater systems in arid areas and the zones in soil profiles from which plants use water. J.-Ch Fontes and his colleagues have been leaders in the application of these techniques to the measurement of evaporation from deep water tables in arid areas.

Keywords: deuterium, oxygen-18, arid zones, unsaturated zone, ground-water, soils.

*

RÉSUMÉ – La distribution de l'oxygène 18 et du deutérium dans les eaux souterraines varie essentiellement en raison des variations de la composition isotopique des eaux météoriques et des processus d'évaporation. Des exemples d'études de profils isotopiques dans la zone non saturée sont présentés. Ils informent sur les mécanismes et taux de recharge, l'évaporation à partir des aquifères profonds dans les zones arides et les profils de sols approvisionnant les plantes en eau. Jean-Charles Fontes et ses collaborateurs ont été des leaders dans les domaines des mesures d'évaporation à partir des aquifères profonds dans les zones arides.

Mots clés : deutérium, oxygène-18, zones arides, zones non saturées, eaux souterraines, sols.

*

BACKGROUND

In the 1960s much work was done on the isotopic behaviour of precipitation and water evaporating from open water bodies.

In the late sixties, Zimmermann *et al.* (1967) started work on the behaviour of isotopes in porous materials and showed that when saturated sands were subject to evaporation the isotopic composition of the water decreased exponentially (both oxygen-18 and deuterium) from a maximum at the surface. This work was extended to unsaturated zone by Munnich *et al.* (1980) and Allison (1982).

In the early 1980s Fontes and his students started work on changes in the isotopic composition of soil water in deep unsaturated zones in the Sahara. At the same time, Allison and Barnes were investigating the behaviour of isotopes in the laboratory and in simple field systems. At this time, the French and Australian workers were not aware of each others work, however, after some very interesting field profiles were obtained by Fontes and his students and initial theoretical work had been carried out by Barnes and Allison, the two teams started to work together in late 1983.

Barnes and Allison (1988) reviewed work on the behaviour of isotopes in the unsaturated zone.

INTRODUCTION

The symbols used are defined in the Notation section.

Following Zimmermann *et al.* (1967) it can be shown that for saturated soils:

$$\delta = \delta_{\text{res}} + (\delta_{\text{o}} - \delta_{\text{res}}) \exp(-z / z_1)$$

$$\text{where } z_1 = D_l^* / E$$

In unsaturated soils, either evaporating under steady state conditions with the water table at depth, or evaporating under non-steady conditions, water vapour is lost from a region known as the evaporating front which is well defined in light textured soils, but may be more diffuse in soils of higher clay content.

Beneath the evaporating front, water and isotope movement is mainly in the liquid phase, while above it, vapour transport dominates. For this reason, the isotope profile, beneath the evaporating front, at least under isothermal conditions, appears to be similar in shape but not in detail to that observed in saturated soils. In this case Barnes and Allison (1983) showed that:

$$\delta = \delta_{\text{res}} + (\delta_{\text{ef}} - \delta_{\text{res}}) \exp \left[- \int_{z_{\text{ef}}}^z dz / (z_1 + z_v) \right]$$

$$\text{where } z_v = \alpha^* \sigma^v D_v^* N_{\text{sat}} / E \rho$$

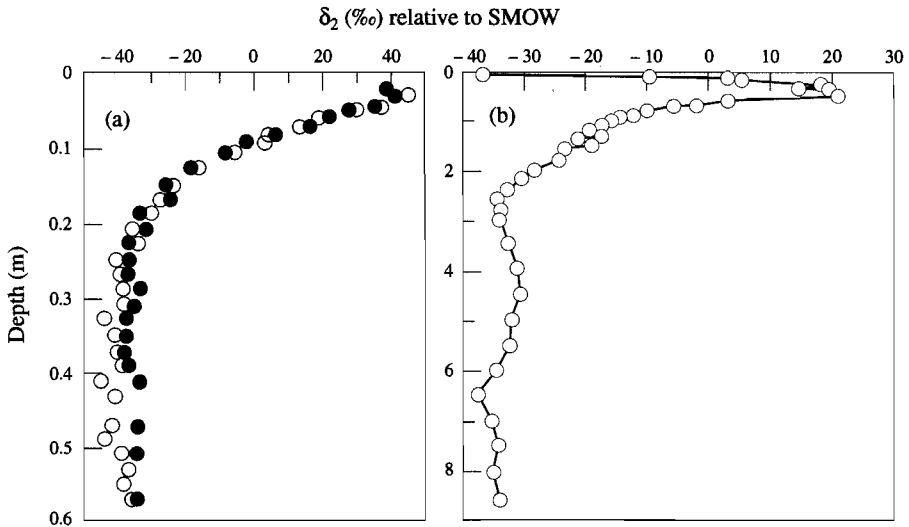


FIGURE 1.

Deuterium profiles for unsaturated soils undergoing evaporation (a) under steady state in the laboratory (from Allison *et al.*, 1983a), (b) from an arid zone dune (from Barnes and Allison, 1982).

Profils du deutérium en sols non saturés sous évaporation (a) en régime stationnaire au laboratoire (Allison et al., 1983a), (b) d'une dune en zone aride (Barnes et Allison, 1982).

As the effective liquid and vapour diffusivities (D_l^* , D_v^*) are controlled by a number of factors including the water content, this equation suggests that as the water content becomes lower beneath the evaporating front, the isotope profile will penetrate deeper into the soil. The magnitude of δ_{ef} is determined not only by processes in the soil, but also by the isotopic composition of atmospheric water vapour, the relative humidity of the air, as well as the diffusivity of water vapour and isotopes above the evaporating front.

Figure 1a shows typical isotope profiles for water evaporating under steady state conditions in the laboratory, while Figure 1b shows a profile from an arid zone dune.

One of the significant differences between evaporation from a saturated surface (either free water or a saturated soil) and a surface where evaporation proceeds through a dry layer is the slope of the deuterium- ^{18}O relationship.

When evaporation takes place two types of fractionation give rise to enrichment of isotopes at the evaporating surface. These are:

- the equilibrium effect due to small differences in the chemical potential between the isotopic species. This effect for HD^{16}O is about eight times that for H_2^{18}O .

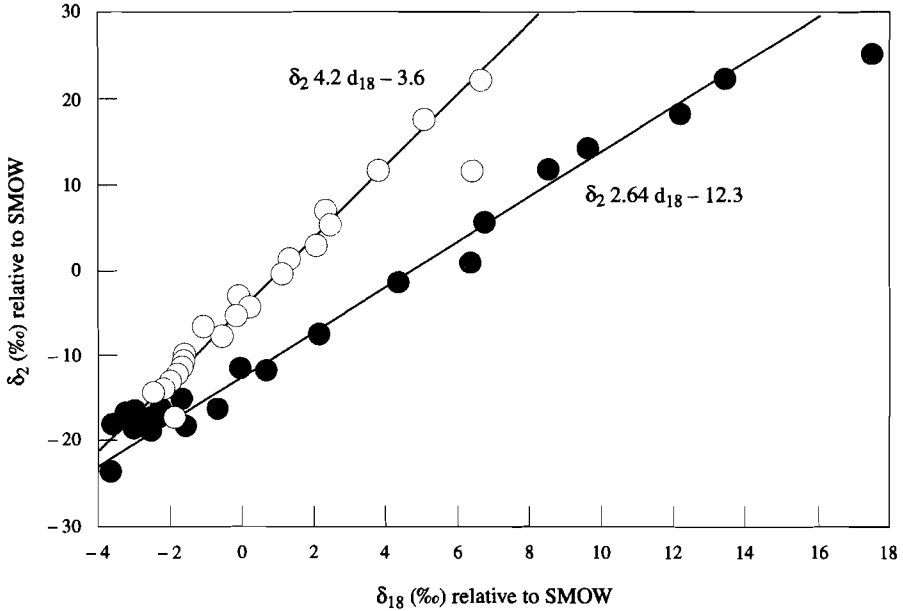


FIGURE 2.

Oxygen-18 deuterium relationships for laboratory columns undergoing steady state evaporation. The upper regression is for saturated and the lower for unsaturated conditions (from Barnes and Allison, 1988).

Relations ^{18}O -deutérium en colonnes de laboratoire sous évaporation en régime stationnaire. La droite de régression supérieure correspond aux conditions de saturation ; la droite inférieure aux conditions non saturées (Barnes et Allison, 1988).

- the kinetic effect due to different rates of diffusion of the isotopic species in the vapour phase. In this case both isotopic species behave in a similar fashion, Merlivat (1978).

As the evaporating front moves further into the soil profile the relative importance of the kinetic effect increases because of the development of a superficial dry layer where diffusive transport of water vapour dominates, leading to a reduction in the slope of the deuterium- ^{18}O relationship (Allison *et al.* 1983a). This is shown in Figure 2.

As evaporation in field soils always occurs under non-isothermal conditions it is important to assess the impact of temperature profiles on isotope profiles.

Using what they assumed were appropriate temperature gradients, Barnes and Allison (1984) showed that the effect of temperature on the isotope profiles was reasonably small but could explain a secondary minimum in the profile which is often observed in field situations. Theoretical profiles are shown in

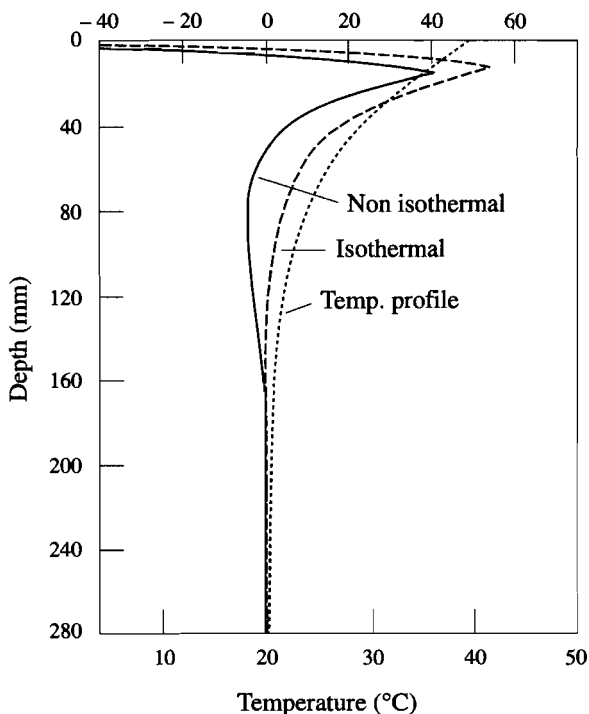


FIGURE 3.

A comparison of steady-state theoretical isothermal and non-isothermal deuterium profiles (from Barnes and Allison, 1984).

Comparaison des profils du deutérium en régimes stationnaires théoriques isotherme et non isotherme (Barnes et Allison, 1984).

Figure 3. However, an alternative explanation for the minimum observed in some field profiles could be infiltration of isotopically depleted rainfall.

Under non-steady state conditions, evaporation from soils normally decreases with time following an initial wetting event. Munnich *et al.* (1980) suggested that the isotope profiles they observed could be interpreted as being in quasi-steady state, with the isotope profiles being exponential and determined by the instantaneous rate of evaporation. However it was later shown that the decay of isotope concentrations with depth is more rapid than this under non-steady conditions, and the profile has the form of a complimentary error function.

Walker *et al.* (1988) and Barnes and Walker (1989) modelled non-isothermal non-steady state evaporation from laboratory columns. However, the complexities of the dependencies of the various parameters on water content and temperature make analytical solutions difficult, if not impossible. To over-

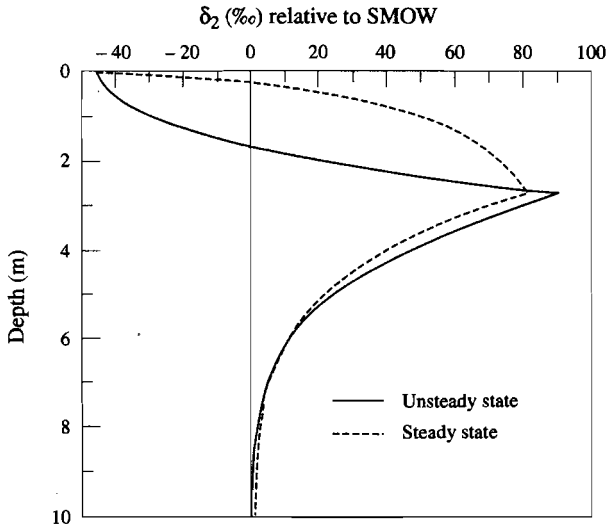


FIGURE 4.

A comparison of theoretical steady state and non-steady state deuterium profiles for the same instantaneous rate of evaporation (from Barnes and Walker, 1989).

Comparaison des profils du deutérium en régimes théoriques stationnaire et non stationnaire pour un même taux instantané d'évaporation (Barnes et Walker, 1989).

come this difficulty Shurbaji and Phillips (1995) published recently details of a numerical model for water, isotopes and heat transport in the unsaturated zone.

Barnes and Walker (1989) showed, for what they believe to be conditions representative of evaporation in the field, that a major difference in steady state and non-steady state conditions is in the shape of the profile above the evaporating front as shown in Figure 4.

The above discussion is directed mainly at the changes in isotopic composition which occur as a result of evaporation from the soil surface. This is one of the major driving forces which brings about changes in the isotope concentrations in the unsaturated zone. However, changes in the isotopic composition can also be brought about by infiltration of rainfall of different composition or condensation or partial freezing of soil water.

Stable isotopes at environmental concentrations in the unsaturated zone have been used to obtain information about several aspects of the hydrologic cycle namely:

- groundwater recharge
- processes by which infiltration occurs
- rates of evaporation from soils and shallow groundwater systems
- depths of water uptake by vegetation

GROUNDWATER RECHARGE

In using concentrations of stable isotopes to study groundwater recharge, piston flow where inputs are layered, but with mixing by diffusion, has been found to be a useful model in the unsaturated zone. However, in some studies much has been learned about flow in macropores or other structures from the study of stable isotopes in the unsaturated zone.

As a general rule stable isotopes have been most successful in recharge studies when the recharge fluxes are relatively high, say 200 mm per year or greater. It is also necessary for there to be seasonal changes in the isotopic composition of rainfall. This makes the technique most applicable for cool humid areas where there is a significant difference in the isotopic composition of summer and winter precipitation.

In principle however, the technique could be used in tropical areas provided there is a seasonal dry period where a significant isotope enrichment profile could develop as a result of evaporation and that this could then be displaced into the soil profile as a result of subsequent rainfall thus giving an annual signal which could then be observed during soil sampling.

It has been found that vegetation has little impact on concentrations of stable isotopes in soil water ; however, to obtain reliable estimates of recharge, soil samples for determining isotope concentrations should be taken from beneath the zone where extraction by roots is occurring.

Several authors have used this approach successfully, e.g. Thoma *et al.* (1979) and Saxena and Dressie (1983). Best estimates are obtained when long cores of the unsaturated zone are taken. This enables several years recharge to be reflected in the isotope profile (see for example Figure 5). In this case the higher the recharge rate the better will be the precision of estimates of recharge.

Allison *et al.* (1983b) showed that in areas of limited vegetation and low rates of recharge it was possible to show that there was a linear relationship between the shift in isotopic composition from the meteoric water line and the inverse of the square root of recharge. From limited field data there was agreement with this relationship ; however, this approach has not been tested further and, if useful, will only be appropriate for very low rates of recharge (less than 10 mm per year) in areas where transpiration is relatively unimportant.

PROCESSES BY WHICH INFILTRATION OCCURS

Fontes (1983) showed that a range of processes can occur during infiltration and the interaction between water in small and large pores may be especially complex. Much of this work was carried out in lysimeters. There

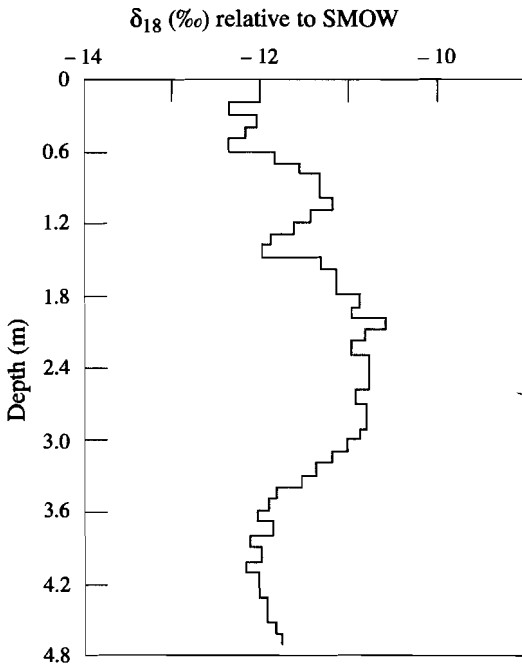


FIGURE 5.

The depth profile of oxygen-18 where the recharge rate is approximately 260 mm yr^{-1} (from Saxena and Dressie, 1983).

Profil ^{18}O en fonction de la profondeur, pour un taux de recharge d'environ 260 mm.a^{-1} (Saxena et Dressie, 1983).

have been a number of other lysimeter studies carried out in which the isotopic composition of rainfall input has been compared with that of drainage water and information about transport processes have been obtained. Of particular interest is a study by Maloszewski *et al.* (1995) in which they used ^{18}O and D in rainfall to study percolation through refuse. They were able to partition the amount of water moving through the material as bypass flow. To do this they assumed both mobile and immobile water within the lysimeters. As a general rule, biochemical reactions have a greater impact on deuterium than on ^{18}O composition and this enabled the importance of biochemical reactions to be clearly evidenced by water samples falling above the meteoric water line. The impact of evaporation is shown by samples falling below the meteoric water line.

A number of field studies have been carried out on the British Chalk, e.g. Darling and Bath (1988), which have used stable isotopes to obtain information about the relative importance of fissure and piston flow in these materials in overly important groundwater systems in Britain. A recent study by Nativ *et al.* (1995) described water and solute movement in a fractured Chalk in Israel. The site was arid (rain 50-200 mm per year). They were able to show that water percolates both in preferential paths and through the Chalk matrix. However at one of their sites, the ^{18}O profile (Figure 6) was very similar in

shape to that reported by Fontes *et al.* (1985). The latter was interpreted as being indicative of a net discharge rather than a recharge one, as was suggested by Nativ *et al.* The tritium profile at this site does show evidence of some percolation by preferred pathways, but the overriding process appears to be one of evaporative loss (see below). This is supported by the fact that the slope of the $^{18}\text{O} - ^2\text{H}$ line for soil water beneath the evaporating front is 3.0. As shown in Allison *et al.* (1983b) a recharge profile should show two segments in the $^{18}\text{O} - ^2\text{H}$ line.

EVAPORATION

Barnes and Allison (1983) showed that three methods for determining evaporation rates using stable isotopes were possible.

- Interpretation of the zone of exponential decay beneath the evaporating front. However the diffusivity of soil water may exhibit rather complex

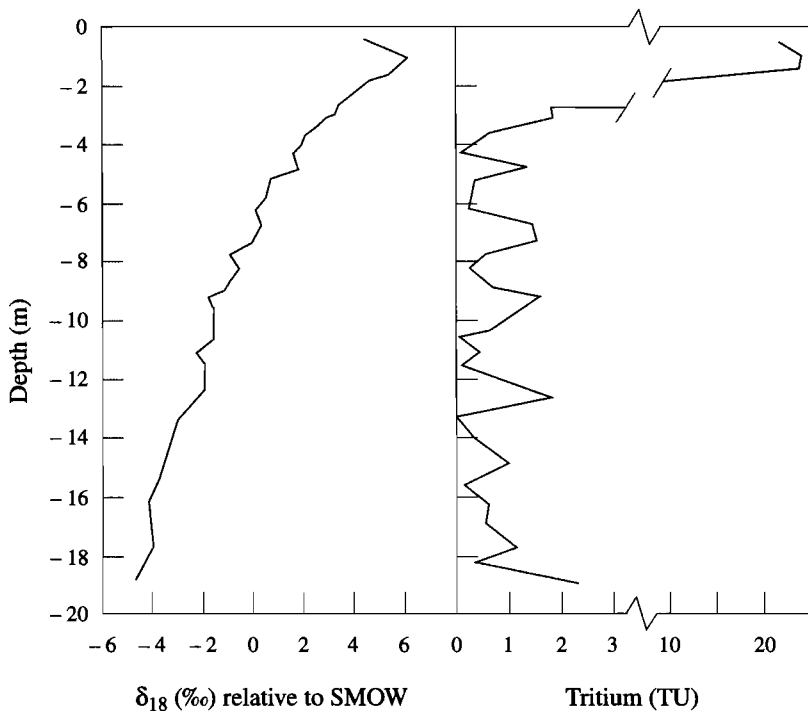


FIGURE 6.

Depth profiles of oxygen-18 and tritium for a fractured chalk in an arid area (from Nativ *et al.*, 1995).

Profils ¹⁸O et tritium de craie fracturée en zone aride (Nativ et al., 1995).

behaviour at low water contents and there may be problems in determining this.

- Use of the position of the maximum in the isotope profile to determine the depth of the evaporating front and then use this depth combined with the diffusivity of water vapour to obtain an estimate of evaporation rate. This technique is best for low rates of evaporation.
- Use of the shape of the isotope profile in the region above the evaporating front; however, this is not likely to be successful often, as there are sampling and analytical problems associated with the very low water contents usually encountered in this region.

A good example of the use of these techniques on field data is given in Fontes et al (1985) who studied steady state evaporation from a water table at greater than 10 metres depth in the Sahara. Their oxygen-18 profile is shown in Fig. 7. Note the similarity in shape to Fig 1a. In this study the first two

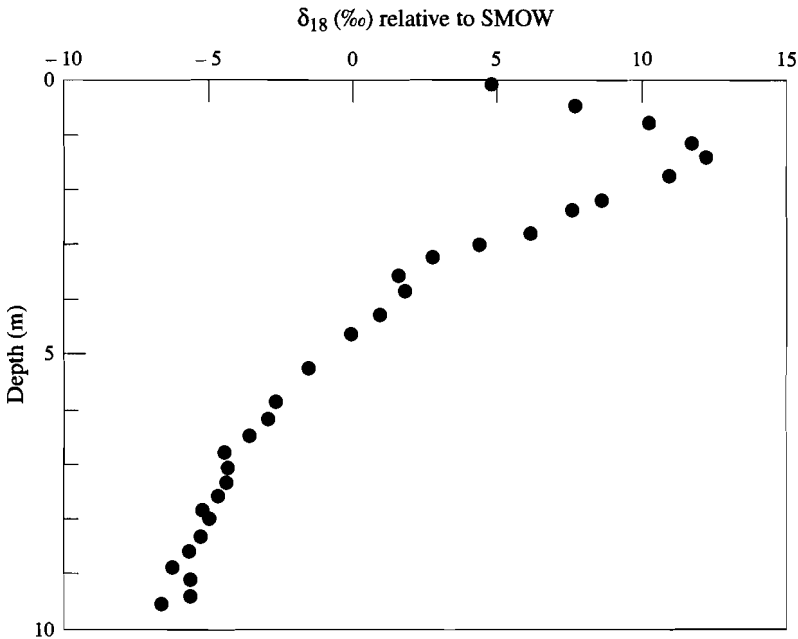


FIGURE 7.

The oxygen-18 profile for steady state evaporation from a water table at depth (from Fontes et al., 1986)

Profil ^{18}O sous évaporation en régime stationnaire d'une nappe d'eau en profondeur (Fontes et al., 1986).

methods above were used to obtain estimates of long term evaporation rate which are essentially independent. There were 2.2 and 1.4 mm a⁻¹. Although not in close agreement the match is reasonable in light of the difficulty of estimating the tortuosity of liquid water in these dry soils. The techniques used are probably the only ones available to estimate low rates of evaporation. Fontes and his colleagues (Aranyossy *et al.*, 1992) extended this work to estimate evaporation from water tables at various depths in an arid region of Niger.

Christmann and Sonntag (1987) also studied evaporation from deep sandy soils in hyper-arid regions in the Sahara and estimates of evaporation rate were made on the basis of steady-state conditions.

For steady-state evaporation from water tables several meters beneath the soil surface, long times (decades to centuries) may be needed to establish steady-state isotope profiles. For this reason the techniques discussed here will be useful only in very arid areas. However as shown in Fontes *et al.* the isotope profiles can be used to find the position of the evaporation front and hence the instantaneous evaporative flux using the second method above.

As discussed earlier, the secondary minimum which occurs in some profiles can in part be explained by temperature gradients in the unsaturated zone. However, temperature does not seem to play a major role in field profiles although a large number of sites show similar characteristics with a secondary minimum beneath a region where there is exponential-like decay beneath the evaporating front. The secondary minimum seems to be more extensive than can be explained by temperature gradients as shown in Figure 8.

In the field, especially in more temperate areas, profiles rarely reach steady state unless the water table is quite near the surface. However, in more arid areas, if rainfall does not penetrate to significant depth, this may be all lost by evaporation without disrupting the isotope profile. This is likely to be the case in the profiles investigated by Fontes *et al.* (1985).

Barnes and Walker (1989) showed that the exponential part of the profile beneath the evaporating front could give a reasonable estimate of the instantaneous evaporation rate from a soil where evaporation was proceeding under non-steady state conditions.

In arid zones where estimates of evaporation from water tables at depth are often remote, sampling equipment is often difficult and expensive to position. For this reason Fontes and colleagues attempted the use of samples of soil CO₂ and water vapour for determining ¹⁸O and deuterium profiles in soil water (Allison *et al.* 1987). In their preliminary work they were able to obtain reasonable agreement between δ_2 and δ_{18} for actual soil water samples and those in water vapour and CO₂ in the soil after correction for fractionation factors. However their samples were collected at atmospheric pressure and

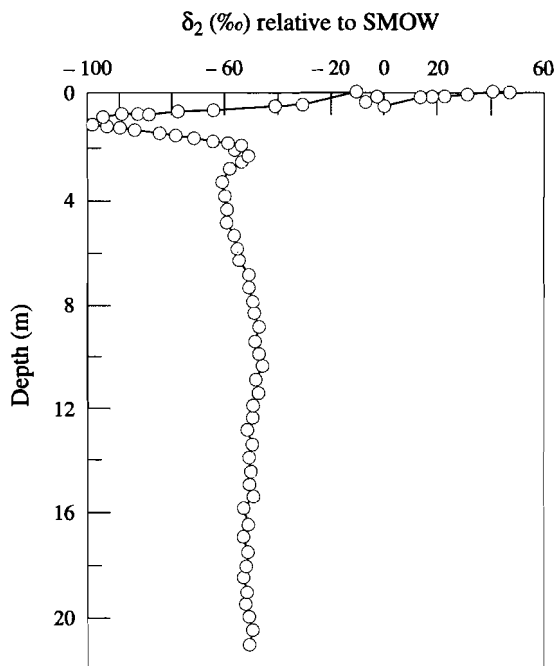


FIGURE 8.

The depth profile of deuterium for an arid zone dune (from Barnes and Allison, 1988).

Profil du deutérium en fonction de la profondeur pour une dune en zone aride (Barnes et Allison, 1988).

problems with condensation of the water vapour and re-equilibration with CO_2 is likely to have introduced errors in the δ_{18} values.

If this technique can be proven to be adequate it has the advantage that less field equipment is needed. A simple, small diameter spike is driven to the required depths and samples withdrawn. The use of this technique has been followed up by Amundson and Wang (1995) who used a similar technique but overcame problems of condensation by drying the samples of soil gas. Their data also suggested that soil CO_2 was in equilibrium with soil water.

Diffuse discharge is often an important component of the water balance of groundwater systems – for example the aquifers beneath the Sahara and the Great Artesian Basin (GAB). Such discharge may be an important component of the water balance and may need to be evaluated to estimate the sustainable yield of some groundwater systems.

For example, Woods (1990) used the techniques described here to show that diffuse discharge from a part of the GAB was approximately four times that from springs which were the generally accepted outflow points of this aquifer.

WATER UPTAKE BY PLANTS

White *et al.* (1985) was able to partition water being used by plants as coming from groundwater or soilwater or a combination of both. Since this work, a number of studies aimed at determining the depth in the soil from which water is extracted.

It has now been well documented that with few exceptions water uptake by vegetation is non-fractionating and that the isotopic composition of water in small twigs is representative of that extracted by roots.

Dawson and Ehleringer (1991) used deuterium values to determine the water uptake patterns of riverbank vegetation, and showed that small trees and shrubs extracted water which had a similar isotopic composition to that of a nearby stream. The interesting result found in this study was that the larger trees did not seem to be drawing water from the same source even though it was freely available.

A rather similar result was found by Thornburn and Walker (1994) who showed that mature Eucalyptus trees took up soil water from depth rather than water which had infiltrated into the surface soil as a result of flooding even though the inundation lasted for several months. Both these data and those above have shown that at least for mature vegetation the source of soil water is not necessarily related to the availability of water.

There can be significant changes in the isotopic composition of soil water with depth as a result of different rainfall events, evaporation, groundwater inflow or bank storage. However, in many actual soil profiles it is not possible to assign unambiguously, using ^{18}O or deuterium values, the depths from which uptake occurs. Brunel *et al.* (1995) used matric and osmotic potentials together with isotopes to partition which of two or three soil compartments vegetation was drawing water from. As simple techniques are now available for estimating matric potentials in soils, this seems a promising approach.

Stable isotopes provide possibly the only way to determine the source of water used by vegetation in field environments and it is likely that literature in this field will continue to grow.

CONCLUSIONS

The study of the behaviour of stable isotopes in the unsaturated zone has been taking place over the past three decades. Only limited advances have been made in the development of new theory or applications for studying recharge or evaporation in the last decade ; however, significant advances have been made in this time in evaluating the sources of water used by vegetation.

In the future, stable isotopes are likely to be an important tool for studying regions of very low recharge. They are likely to be particularly important in

studying sites to be considered as repositories for radioactive or other intractable wastes. They will be especially valuable if temperature gradients in the unsaturated zone are established as a result of the storage of these wastes.

Through the early to late 1980s the group led by J.-C. Fontes at the Université de Paris-Sud played a leading role in developing the techniques for evaluating evaporation from soils and developing an understanding of water and solute movement during infiltration.

REFERENCES

- Allison (G.B.), 1982. « The relationship between ^{18}O and deuterium in water and sand columns undergoing evaporation ». *J. Hydrol.* 55 : 163-169.
- Allison (G.B.), Barnes (C.J.) and Hughes (M.W.), 1983a. « The distribution of deuterium and oxygen-18 in dry soils: II. Experimental ». *J. Hydrol.* 64 : 377-397.
- Allison (G.B.), Barnes (C.J.), Hughes (M.W.) and Leaney (F.W.J.), 1983b. « The effect of climate and vegetation on oxygen-18 and deuterium profiles in soils ». *Proc. 1983 Int. Symp. Isotope. Hydrol. Water Resour. Dev.*, IAEA, Vienna, No. IAEA-SM-270/20.
- Allison (G.B.), Colin-Kaczala (C.), Filly (A.) and Fontes (J.-C.) 1987. « Measurement of isotopic equilibrium between water, water vapour and soil CO_2 in arid zone soils ». *J. Hydrol.* 95 : 131-141.
- Amundson (R.) and Wang (Y.), 1995. « The relationship between the oxygen isotopic composition of soil CO_2 and Water ». *Int. Symp. Isotopes in Water Resources Management*, IAEA, Vienna, Paper SM 336/2.
- Aranyossy (J.F.), Filly(A.), Tandia (A.A.), Louvat (D.), Ousmane (B.), Joseph (A.) and Fontes (J.-C.), 1992. « Estimation of diffuse evaporation rates under sandy cover in a hyper-arid climate (Erg de Bilma, Niger) ». *Proc. Symp. Isotope Techniques in Water Resources Development 1991*, IAEA, Vienna, 309-324.
- Barnes (C.J.) and Allison (G.B.), 1982. « Interpretation of stable isotope profiles in arid zone dunes ». *Hydrol. Water Resour. Symp.*, IEA, Melbourne, pp. 98-101.
- Barnes (C.J.) and Allison (G.B.), 1983. « The distribution of deuterium and oxygen-18 in dry soils: I ». *Theory, J. Hydrol.* 60 : 141-156.
- Barnes (C.J.) and Allison (G.B.), 1984. « The distribution of deuterium and oxygen-18 in dry soils: III Theory for non-isothermal water movement ». *J. Hydrol.* 74 : 119-135.
- Barnes (C.J.) and Allison (G.B.), 1988. « Tracing of water movement in the unsaturated zone using stable isotopes of hydrogen and oxygen ». *J. Hydrol.* 100 : 143-176.

- Barnes (C.J.) and Walker (G.B.), 1989. « The distribution of deuterium and oxygen-18 during unsteady evaporation ». *J. Hydrol.*, 112 : 55-67.
- Brunel (J-P.), Walker (G.R.) and Kennett-Smith (A.K.), 1995. « Field validation of isotopic procedures for determining sources of water used by plants in a semi-arid environment ». *J. Hydrol.* 167 : 351-368.
- Christmann (D.) and Sonntag (C.), 1987. « Groundwater evaporation from East-Saharan depressions by means of deuterium and oxygen-18 in soil moisture ». *Proc. Int. Symp. Use Isot. Tech. Water Resour. Dev.*, Vienna, Pap. IAEA-SM-299/037.
- Darling (W.G.) and Bath (A.H.), 1988. « A stable isotope study of recharge processes in the English chalk ». *J. Hydrol.* 101 : 31-46.
- Dawson (T.E.) and Ehleringer (J.R.), 1991. « Streamside trees that do not use stream water ». *Nature*, 350 : 335-336.
- Fontes (J-C.), 1983. « Examples of isotope studies of the unsaturated zone ». *Rep. Inst. Geol. Sci.* 82 : 60-70.
- Fontes (J-C.), Yousfi (M.) and Allison (G.B.), 1986. « Estimation of the long term, diffuse groundwater discharge in the Northern Sahara using stable isotope profiles in soil water ». *J. Hydrol.* 86 : 315-327.
- Maloszewski (P.), Moser (H), Stichler (W) and Trimbom (P), 1995. « Isotope hydrology investigations in large refuse lysimeters ». *J. Hydrol.* 167 : 149-166.
- Merlivat (L.), 1978. « Molecular diffusivities of $H_2^{16}O$, $HD^{16}O$ and $H_2^{18}O$ in gases ». *J. Chem. Phys.* 69 : 2864-2871
- Munnich (K.O.), Sonntag (C.), Christmann (D.) and Thoma (D.), 1980. « Isotope fractionation due to evaporation from sand dunes. 2 ». *Mitt. Zentralinst. Isot. Strahlenforsch.* 29 : 319-332.
- Nativ (R.), Adar (E.) Dahan (O.) and Geyh (M.), 1995. « Water recharge and solute transport through the vadose zone of fractured chalk under desert conditions ». *Water Res.* 31 : 253-261.
- Saxena (R.K.) and Dressie (Z.), 1983. « Estimation of groundwater recharge and moisture movement in sandy formations by tracing natural oxygen-18 and injected tritium profiles in the unsaturated zone ». *Proc. IAEA Int. Symp. Isot. Tech. Water Resour. Dev.*, 139-150.
- Shurbaji (A-R.M) and Phillips (F.M.), 1995. « A numerical model for the movement of H_2O , $H_2^{18}O$ and 2HHO in the unsaturated zone ». *J. Hydrol.* in press.
- Thoma (G.), Esser (N.), Sonntag (C.), Weiss (W.), Rudolph (J.) and Leveque (P.), 1979. « New technique of in-situ soil-moisture sampling for environmental isotope analysis applied at Pilat sand dune near Bordeaux ». In: P. Udluft *et al.* (Editors), *Isotope Hydrology. Proc. Symp. Munich.* Tech. Univ. Munich, 1 : 191-204.

- Thorburn (P.J.) and Walker (G.R.), 1994. « Variations in stream water uptake by *Eucalyptus camaldulensis* with differing access to stream water ». *Oecologia* 100 : 293-301.
- Walker (G.R.), Hughes (M.W.), Allison (G.B.) and Barnes (C.J.), 1988 - The movement of isotopes of water during evaporation from a bare soil surface. *J. Hydrol.* 97 : 181-197.
- White (J.W.C.), Cook (E.R.), Lawrence (J.R.) and Broecker (W.S.), 1985. « The D/H ratios of sap in trees: implications for water sources and tree ring D/H ratios ». *Geochim. et Cosmochim. Acta.* 49 : 237-246.
- Woods (P.H.), 1990. Evaporative discharge of groundwater from the margin of the Great Artesian Basin near Lake Eyre, South Australia. Unpub. PhD Thesis, Flinders University, South Australia
- Zimmerman (U.), Ehhalt (D.) and Munnich (K.O.), 1967. « Soil-water and evapotranspiration: changes in the isotopic composition of the water ». *Proc. IAEA Symp. Isot. Hydrol.*, IAEA, Vienna, pp. 567-584.

Notation

D_l^*	Effective liquid diffusivity of isotopes
D_v^*	Effective diffusivity of water vapour
E	Evaporation rate
N_{sat}	Saturated water vapour density
z	Depth coordinate, positive downwards
z_{ef}	Depth of evaporating front
z_l	Length scale for liquid diffusion
z_v	Length scale for vapour diffusion
α^*	Equilibrium fractionation factor
δ	Isotope ratio delta-value
δ_{res}	Delta value of feed water
δ_{ef}	Delta value at $z = z_{\text{ef}}$
δ_0	Delta value at the surface
δ_2	Delta values for $^2\text{H}/^1\text{H}$ ratios
δ_{18}	Delta values for $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ ratios
σ_v	kinetic fractionation factor
ρ	Density of liquid water
‰	Parts per thousand

L'apport des isotopes de l'environnement à l'étude de la recharge et de la dynamique des aquifères

Input of environmental isotopes in the study of the recharge and the flow dynamic of aquifers

J.-F. ARANYOSSY, R. NJITCHOUA ET G. M. ZUPPI

RÉSUMÉ – Les exemples présentés dans cette note illustrent, sans prétention d'exhaustivité, un certain nombre de problèmes d'ordre hydrogéologique pour lesquels l'application des techniques isotopiques s'est révélée, depuis plusieurs décennies, particulièrement efficace.

Les contributions relatives des trois principaux mécanismes de recharge des aquifères sont aisément mises en évidence par l'étude des isotopes de l'environnement et des méthodes géochimiques : recharge directe par les précipitations (Sénégal) ; recharge indirecte par infiltration des eaux de surface (Italie, Nord-Cameroun) ; recharge par drainance ascendante d'un aquifère à l'autre (Algérie, Niger).

L'application des techniques isotopiques joue également un rôle primordial dans la reconstruction des variations des conditions de la recharge des aquifères au cours de l'Holocène sous conditions semi-aride (Niger), tempérée (Italie) ou tropical humide (Vietnam).

Quelques exemples sont enfin rappelés concernant la mise en évidence de la dynamique des aquifères : homogénéité isotopique due aux phénomènes de diffusion et du temps de résidence de l'eau (Continental Intercalaire du Sahara), hétérogénéité des caractères géochimiques et isotopiques due aux variations de faciès géologiques et aux discontinuités hydrauliques (Liptako, Mont-Blanc).

Mots clés : isotopes de l'environnement, hydrogéologie, recharge, dynamique, aquifères.

ABSTRACT – Several examples of hydrogeological studies have been selected in order to illustrate the input of environmental isotopic techniques in the general knowledge of aquifer systems : evaluation of the present aquifer recharge (Mali, Senegal, Italy, North-Cameroon, North-Sahara, Niger); evidence of the recharge variation with time (Niger, Italy, Vietnam); evaluation of the aquifer characteristics and hydraulic conditions (Chad, Niger). Most of these studies were carried out in collaboration with Professor Jean-Charles Fontes.

Keywords : environmental isotopes, hydrogeology, recharge, flow dynamic, aquifers.

*

(Abridged English Version)

INTRODUCTION

Nuclear and isotopic techniques have been widely used in hydrological studies during the last decades. These techniques, notably those applying environmental isotopes, provide useful information on the recharge mechanism and aquifer dynamics.

This paper is a selective review of some isotopic applications in groundwater studies carried out by the authors, in some cases in collaboration with Professor J.-Ch. Fontes.

PRESENT AQUIFER RECHARGE

The recharge of aquifers generally occurs through three major mechanisms (Simmers, 1988) : (i) direct infiltration of rain ; (ii) lateral percolation from rivers ; and (iii) leakage from surrounding aquifers.

Direct recharge

This term refers to the part of the rainwater that effectively reaches the groundwater reservoir (Castany and Margat, 1977). In temperate regions, this parameter can be determined by investigating the fluctuations of piezometric levels, of spring flows and regimes of rivers that drain the aquifer (Hamid *et al.*, 1989) ; detailed studies of water movement in the unsaturated zone using lysimeters (Aranyossy, 1991) may also provide estimation of the water budget and are also of great interest in studying the chemical behaviour of the interstitial water (Vachaud *et al.*, 1974, 1981 ; Dever *et al.*, 1982).

This evaluation becomes more difficult in semi-arid zones where the effective recharge may reach very low values and does not have the same significance as in temperate regions (Fig. 2). In the Sahel for instance, in natural places where the very flat topography does not allow deep vertical drainage of the superficial aquifer and where no water withdrawal occurs, the decrease

in the water table during the dry season can be attributed to evapotranspiration (Fig. 1). Depending on the soil type, the climatic conditions and the vegetation cover, this natural exfiltration may be higher than that of the seasonal recharge. The value of effective infiltration depends therefore on the time scale considered for the water balance evaluation. Tandia (1990) showed that annual effective infiltration estimated at the same site in Northern Senegal varied between 0 and 95 mm, depending on the methods employed (see Table). Such discrepancies may be partly attributed to the differences in both time and space scales used in the calculations.

Considering such a difficulty, the location of the thermonuclear tritium peak in the deep unsaturated zone may allow, in parallel with the chlorine distribution and balance, the estimation of the effective infiltration. For example, the tritium peak was found at depths of 12 and 20 m in two sand dune profiles in Northern Senegal (Fig. 3), corresponding to an annual infiltration of 22 and 26 mm, respectively (Aranyossy and Gaye, 1992). These results are consistent with those obtained from both the chloride budget and the chloride profile in the unsaturated zone (Edmunds *et al.*, 1992 ; Edmunds and Gaye, 1994).

Indirect recharge

The recharge of aquifers through lateral percolation of surface waters is an important process in both temperate and semi-arid regions. This mechanism was found to be the major recharge process in the Venetian plain (Fig. 4) where, on the basis of oxygen-18 contents, Bortolami *et al.* (1973) showed that groundwaters originating from both prealpine and alpine rivers. Another example of indirect recharge was found by Njitchoua *et al.* (1994) in the semi-arid regions of Northern Cameroon where, based on tritium measurements, these authors demonstrated the existence of hydraulic connections between the groundwater and the river system in the Garoua Sandstone Basin.

In arid areas, however, this mechanism is of minor importance in the recharge of regional aquifers. Recharge from rivers is usually limited to the alluvial aquifers adjacent to the rivers (Aranyossy, 1991 ; Gallaire, 1995).

Leakage of deep groundwaters

Available studies in the literature show that environmental isotopes are suitable for providing qualitative information about upward leakage from deep groundwaters. In the Northern Sahara for example, Gonfiantini *et al.* (1974) demonstrated a movement of water from the "Continental Intercalaire" aquifer towards the "Complexe Terminal" through a thick clay formation. The same phenomenon was recently shown by Andrews *et al.* (1994) in the Irhazer plain in Niger.

TEMPORAL RECHARGE VARIATIONS

Environmental isotopes, as well as dissolved chemical species and noble gases, are all of great importance for the reconstruction of the climatic conditions that prevailed at the moment of the recharge. Generally, very depleted stable isotope values are indicative of groundwaters recharged under cooler and more humid climatic conditions (Conrad and Fontes, 1970) than the prevailing ones. This distinction is not valid for a short time scale however; some rain events may display very depleted values (Gallaire, 1994; Njitchoua *et al.*, 1995).

Based on the oxygen-18 contents, it has been shown that deep groundwaters from the "Pô Delta" were recharged during the last glaciation (Fig. 5). In Niger, Joseph *et al.* (1990) and Andrews *et al.* (1994) showed that the last recharge of the sedimentary aquifers in the Irhazer plain occurred during the last humid of Holocene period.

In contrast, the remarkable homogeneity in stable isotope contents of the groundwaters between the recharge and the discharge areas of the confined aquifers in the Mekong Delta (Vietnam), indicates that the recharge conditions during the last 40,000 years have remained very stable (Ho *et al.*, 1992).

AQUIFER DYNAMIC

The homogeneity of the isotopic composition of large aquifers may reflect either very stable recharge conditions in time (Vietnam) or very long residence time of water during which diffusion processes occurred and smoothed any past fluctuations, as is the case in the great regional North African aquifer "*Continental Intercalaire*" (Gonfiantini *et al.*, 1974).

On a smaller time and space scale, isotopic homogeneity may be locally acquired with particular geological and geomorphological features such as the presence of a thick alteritic layer over a crystalline aquifer (i.e. in some parts of the granitic belt of the Sahelian region). Homogeneity then results from mixing of water from successive recharge episodes with that of the aquifer. Fontes *et al.* (1969) found that the annual mean stable isotope contents in the precipitation and groundwater from Kimi Kimi were quite identical.

Spatial heterogeneity in stable isotope contents of groundwaters may, on the contrary, result from rapid and direct infiltration of rainfall – as in the case of short residence time in the Liptako aquifer in Southern Niger (Ousmane *et al.*, 1984) – or indicate hydraulic discontinuities – as in the case of longer residence time in the aquifer of the Mont-Blanc tunnel (Fontes *et al.*, 1978).

Version française

INTRODUCTION

Face à la demande croissante et à la dégradation continuelle de la qualité des eaux de surface, le recours systématique aux réserves en eaux souterraines est devenu partout une nécessité. Et la même question revient continuellement aux hydrogéologues : les ressources exploitées sont-elles renouvelées ? Si oui, comment et à quel taux ?

Développée depuis plusieurs décennies (le premier colloque sur ce thème eut lieu à Tokyo en 1963), l'application des techniques nucléaires et isotopiques, notamment celles mettant en œuvre les isotopes de l'environnement, a largement contribué à répondre à ces questions en améliorant la connaissance des mécanismes de recharge et de la dynamique des aquifères. La mise en œuvre de ces techniques, jadis réservées à quelques initiés, s'est heureusement étendue au fil des années. Il ne peut être actuellement envisagé d'étude complète de systèmes aquifères sans faire appel, parallèlement aux méthodes de l'« hydrogéologie classique », aux techniques de la géochimie isotopique.

Les quelques exemples présentés dans cette note ont été sélectionnés pour leur côté démonstratif. Ils sont pour la plupart tirés d'études réalisées par les auteurs, souvent en collaboration avec le Professeur J.-Ch. Fontes.

**CARACTÉRISATION ET ÉVALUATION
DE LA RECHARGE ACTUELLE DES AQUIFÈRES**

On admet généralement que l'alimentation des aquifères s'effectue suivant trois mécanismes : (i) par infiltration directe des précipitations aux aires d'affleurement ; (ii) par percolation latérale à partir des eaux de surface ; et (iii) à travers la contribution d'eau en provenance d'autres aquifères (Simmons, 1988).

La recharge directe

La notion de « recharge directe » des aquifères est liée à celle de l'« infiltration efficace », généralement définie comme la part de la pluie qui échappe à l'évapotranspiration et au ruissellement pour rejoindre la nappe (Castany et Margat, 1977).

Dans les régions tempérées, la détermination de ce paramètre n'est certes pas aisée mais ne pose généralement pas, notamment en ce qui concerne les nappes libres, de problèmes particuliers (Hamid *et al.*, 1989). L'observation des fluctuations piézométriques, du débit des sources et du régime des cours d'eau qui drainent les aquifères permet d'effectuer des estimations satisfaisantes. L'emploi des lysimètres, sous réserve des précautions nécessaires⁽¹⁾

1. La création artificielle d'une zone à potentiel de succion nul (pour le drainage de l'eau), conduit à simuler la présence d'une nappe à la base du dispositif.

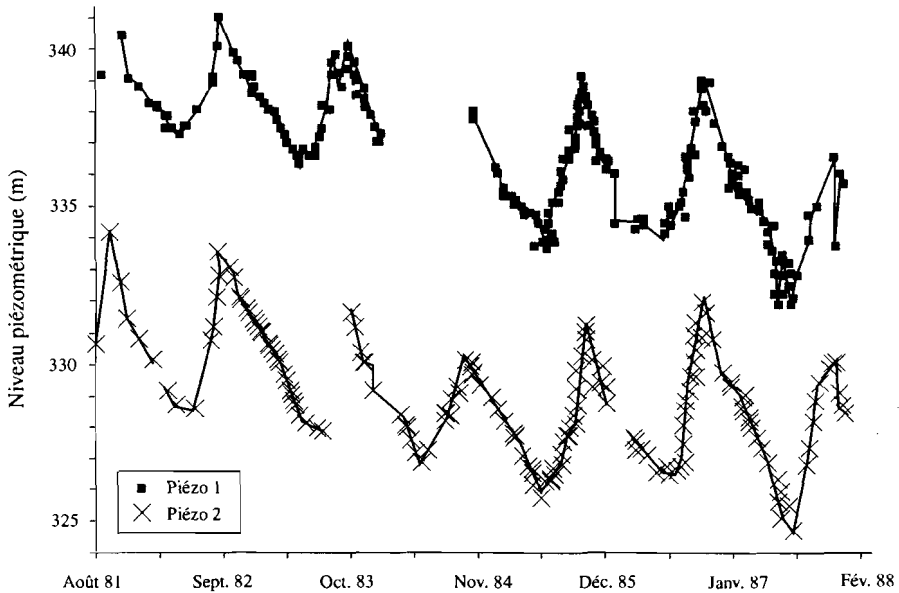


FIGURE 1.

Fluctuations piézométriques dans la région de Bougouni (Mali). In *DNHE/PNUD*, 1988.

Fluctuations of piezometric levels in the Bougouni region (Mali). From DNHE/PNUD, 1988.

(Aranyossy, 1991), concourt également à une meilleure estimation locale de l'infiltration et offre surtout un intérêt majeur dans le suivi des processus d'acquisition de la chimie des eaux dans la zone non saturée (Vachaud *et al.*, 1974, 1981 ; Dever *et al.*, 1982).

Sous conditions arides et semi-arides, la situation est fort différente. Le réseau hydrographique est réduit et ne fonctionne que temporairement pour collecter le ruissellement de surface pendant la saison des pluies. En l'absence de drainage profond (la topographie est généralement très plane en région sahélienne et ne permet pas le drainage vers des aquifères profonds), les baisses piézométriques observées (Fig. 1) pendant la saison sèche ne peuvent s'expliquer que par une importante reprise évapotranspiratoire qui peut annuler et même être supérieure à la recharge saisonnière. La valeur de l'infiltration efficace dépend donc là de l'échelle de temps considérée pour l'estimation du bilan hydrique (Fig. 2). Les différentes échelles de temps et d'espace adoptées dans les diverses études de bilan hydrique sous climat aride et semi-aride, expliquent en partie la disparité des résultats obtenus dans une même région. Les études comparatives menées dans le Nord-Sénégal (Tandia, 1990 ;

Aranyossy et Gaye, 1992) sont par exemple très significatives : elles fournissent des estimations de l'infiltration efficace variant, suivant les méthodes employées, entre 0 et 95 mm pour une même année (cf. Tableau).

Face à cette difficulté, la méthode basée sur la localisation du pic de tritium thermonucléaire reste, en zone non saturée profonde, une alternative pour estimer l'infiltration efficace. La mise en évidence du pic de tritium à 20 et 12 m de profondeur dans les sables dunaires non saturés au Nord-Sénégal (Fig. 3)

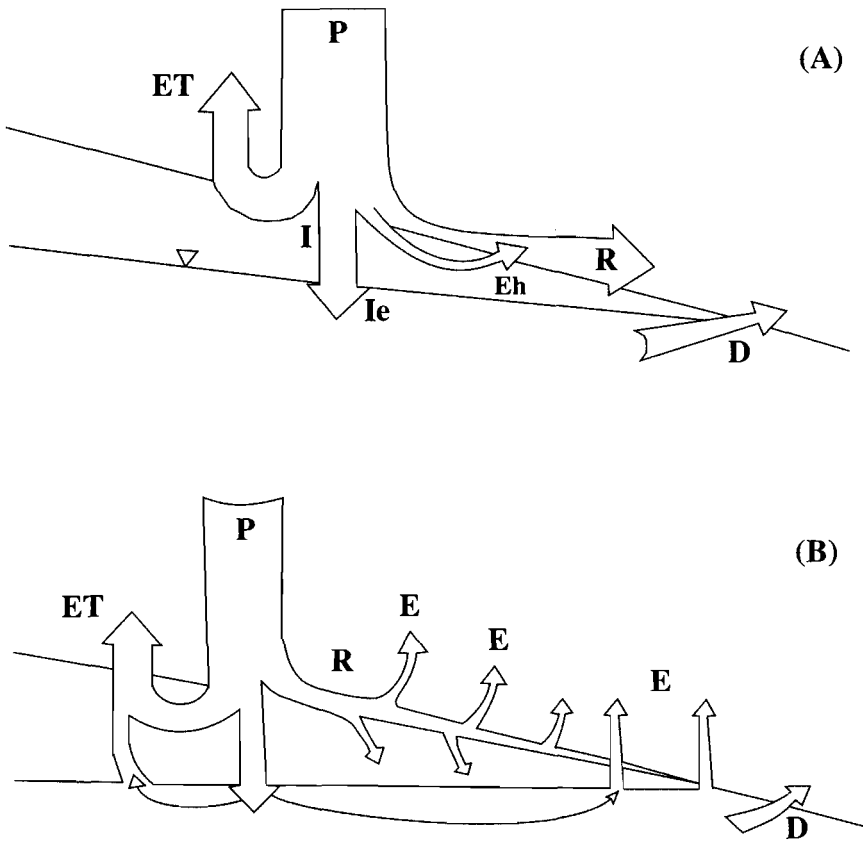


FIGURE 2.

Éléments du bilan hydrique sous climat tempéré (A) et sous climat semi-aride (B). D'après Knutsson, 1988, modifié. P – précipitations ; R – ruissellement + écoulements superficiels ; Eh – écoulement hypodermique ; ET – évapotranspiration ; I – infiltration, Ie – infiltration efficace ; D – drainage de l'aquifère.

Elements of water balance under temperate (A) and semi-arid (B) climates. From Knutsson, 1988, modified. P : precipitations, R : total runoff, Eh : underflow, ET : evapotranspiration, I : infiltration, Ie : efficient residual rainfall, D : groundwater drainage.

TABLEAU/TABLE
 Résultats comparatifs de l'estimation de l'infiltration efficace
 par différentes méthodes
*Comparative results of the estimation of the efficient residual rainfall
 using different methods (Tandia, 1990)*

Méthodes de calcul							
	Variations piézométriques			Bilan hydrique		Physiques	Simu- lations
	seuil de Hubert	méthode de Gaget	méthode directe	Thornth- waite	lysi- métrique		
1977	0	0	0 - 16	0	29 - 32	53	0
1978	58	0	0 - 12	0	52 - 71	95	0
1979	3	0	12 - 19	0	39 - 52	70	0
1980	0	0	0 - 3	0	34 - 45	61	0
Année moyenne	0	0	0	0	38 - 51	69	0

a par exemple permis d'estimer la valeur de l'infiltration directe locale à 22 et 26 mm/an respectivement, soit 6,5 et 8 % des précipitations depuis 1963 (Aranyossy et Gaye, 1992). Ces résultats sont d'ailleurs tout à fait concordants avec les études de la recharge basées sur le bilan des chlorures et leur distribution dans la zone non saturée (Edmunds *et al.*, 1992 ; Edmunds et Gaye, 1994).

Ces exemples soulignent en outre que la présence de tritium dans une nappe, témoin de l'apport d'eau récente, ne traduit pas automatiquement, en terme de bilan, une recharge effective. Inversement, l'absence de tritium ne signifie pas forcément une absence de recharge actuelle ; elle peut simplement correspondre à un temps de transit de l'eau dans la zone non saturée supérieur à 35-40 ans.

La recharge indirecte

On entend par « recharge indirecte », celle qui provient de la percolation latérale des eaux de surface.

En zones tempérées, au pied des chaînes montagneuses, la recharge (favorisée par le fort gradient hydraulique et la forte transmissivité des relais alluvionnaires) s'effectue principalement par ce mécanisme. L'étude isotopique de la basse plaine vénitienne (Fig. 4) a par exemple montré que les eaux souter-

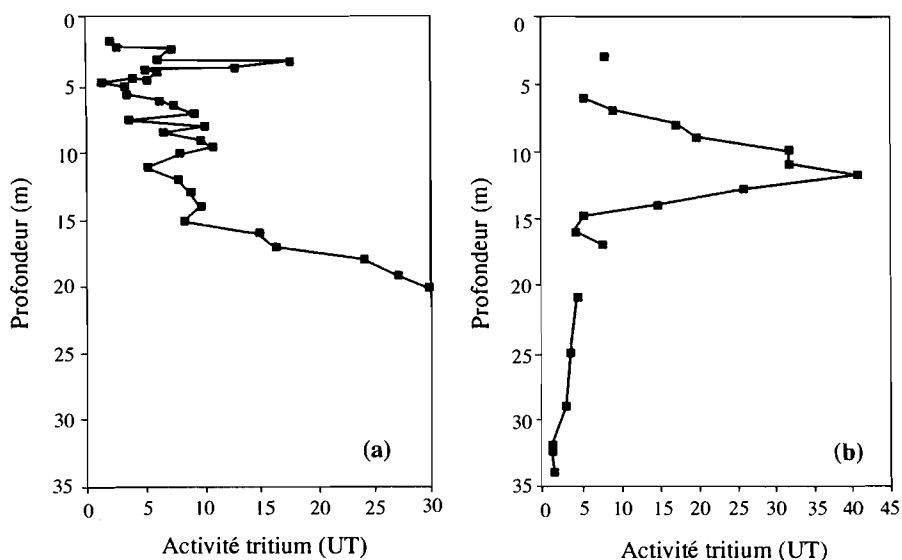


FIGURE 3.

Évolution du tritium dans deux profils de sables quaternaires à Louga (Nord-Sénégal).
D'après Aranyossy et Gaye, 1992.

*Tritium profile in pore water from the Quaternary sands at Louga (Northern Senegal).
From Aranyossy and Gaye, 1992.*

raines sont tributaires des rivières pré-alpines et alpines (Bortolami *et al.*, 1973). Dans les parties médiane et haute de la plaine, les eaux souterraines, caractérisées par une teneur en oxygène-18 homogène et voisine de -10‰ , proviendraient des rivières préalpines Brenta et Piave. Sous la lagune, les eaux souterraines, avec une teneur en oxygène-18 plus appauvrie et proche de -12‰ , correspondent à une recharge provenant de la rivière alpine Adige.

Ce mécanisme de recharge revêt également une grande importance en milieu semi-aride. Dans le bassin des « Grès de Garoua » au Nord-Cameroun, la présence de fortes teneurs en tritium décelées dans les forages localisés le long de la Bénoué et de ses affluents, témoigne de l'existence d'une relation hydraulique entre les eaux de surface et celles de la nappe des grès (Njitchoua *et al.*, 1994).

En milieu aride, les exemples de recharge de grands aquifères sédimentaires par les eaux du réseau de surface sont par contre extrêmement limités, voire inexistants. La recharge à partir des rivières est limitée aux seules nappes alluviales contenues dans le lit majeur des cours d'eau (Aranyossy, 1991 ; Gallaire, 1995).

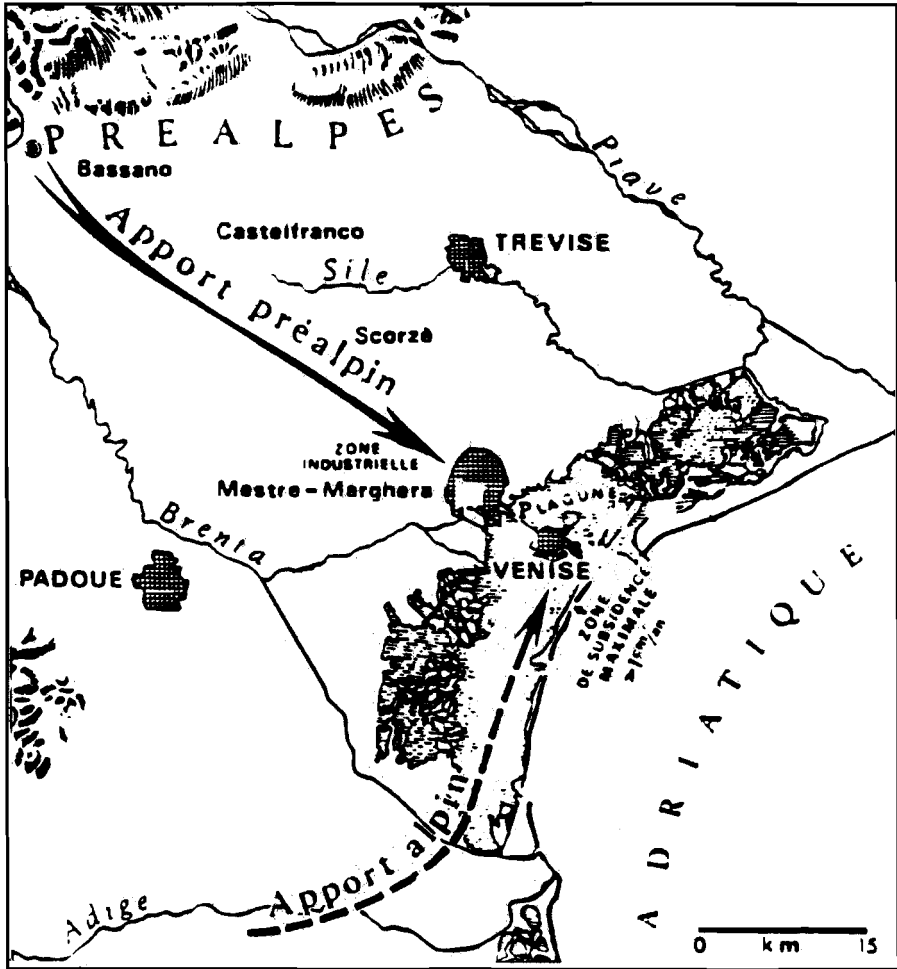


FIGURE 4.

Circulations profondes dans la plaine de Venise. D'après Bortolami *et al.*, 1973.

Deep circulations in the Venitian plain. From Bortolami et al., 1973.

La drainance

Les transferts d'eau entre aquifères sont difficilement révélés par les méthodes «classiques» de l'hydrogéologie. En revanche, ce phénomène a souvent été mis en évidence par l'étude des isotopes de l'environnement. L'un des exemples, sans doute le plus classique et le plus démonstratif, est celui de la drainance ascendante de la nappe du Continental Intercalaire vers l'aquifère du Complexe Terminal au Nord Sahara (Gonfiantini *et al.*, 1974). Cette drainance s'effectue non seulement à la hauteur de Gabès (zone d'exutoire

naturel dans le Sud-Tunisien), mais également à Ouargla (Algérie centrale) à travers une couche d'argile de plus de 400 m d'épaisseur. Plus récemment, le même phénomène a été observé au Niger par Andrews *et al.* (1994) dans la plaine de l'Irhazer le long de la faille majeure d'Inourarem.

VARIATIONS TEMPORELLES DE LA RECHARGE

En milieu semi-aride

Le premier indicateur de la présence d'eau ancienne dans les zones arides et semi-arides est la teneur en isotopes stables. Le cachet isotopique très appauvri de certains échantillons d'eau souterraine par rapport aux teneurs mesurées dans les eaux actuelles correspond en effet à des épisodes de recharge des nappes survenus sous des conditions climatiques plus froides et plus humides que celles régnant actuellement dans les régions considérées (Conrad et Fontes, 1970). Cette distinction n'est cependant plus vraie au niveau des événements pluvieux qui peuvent parfois présenter des teneurs très faibles, même en régions arides (Gallaire *et al.*, 1994 ; Njitchoua *et al.*, 1995).

La confrontation des données isotopiques (stables et radioactives) aux données géochimiques (éléments dissous et gaz rares) permet de reconstituer les variations des conditions de recharge aux limites du système hydrogéologique considéré. Au Niger par exemple, l'étude des aquifères sédimentaires de la plaine de l'Irhazer a permis de mettre clairement en évidence la contribution des dernières périodes humides de l'Holocène (30 000-23 000 ans ; 13 000-3 000 ans) à la recharge des nappes (Joseph *et al.*, 1990 ; Andrews *et al.*, 1994). Toutefois, les différences dans l'âge des eaux ne peuvent pas être interprétées en terme de vitesse de circulation dans l'aquifère. En effet, la répartition des charges et des perméabilités observée actuellement représente un état instantané de l'aquifère et ne peut donc pas être mise directement en parallèle avec la distribution des âges, résultat de l'historique des différents épisodes de recharge.

En milieu tempéré

Dans le Delta de Pô, les teneurs très faibles en oxygène-18 mesurées dans les eaux des aquifères profonds témoignent d'une paléorecharge datant de la dernière glaciation, il y a environ 20 000 ans (Fig. 5). L'appauvrissement des teneurs en oxygène-18 et en carbone-14 avec la profondeur rend compte de l'existence d'une stratification des eaux en rapport avec un système multicouche dont les aquifères n'ont pas été soumis à des phénomènes de drainage et de mélange. Cette stratification isotopique des eaux souterraines témoigne également d'une variation dans le temps des conditions climatiques dans le Delta de Pô.

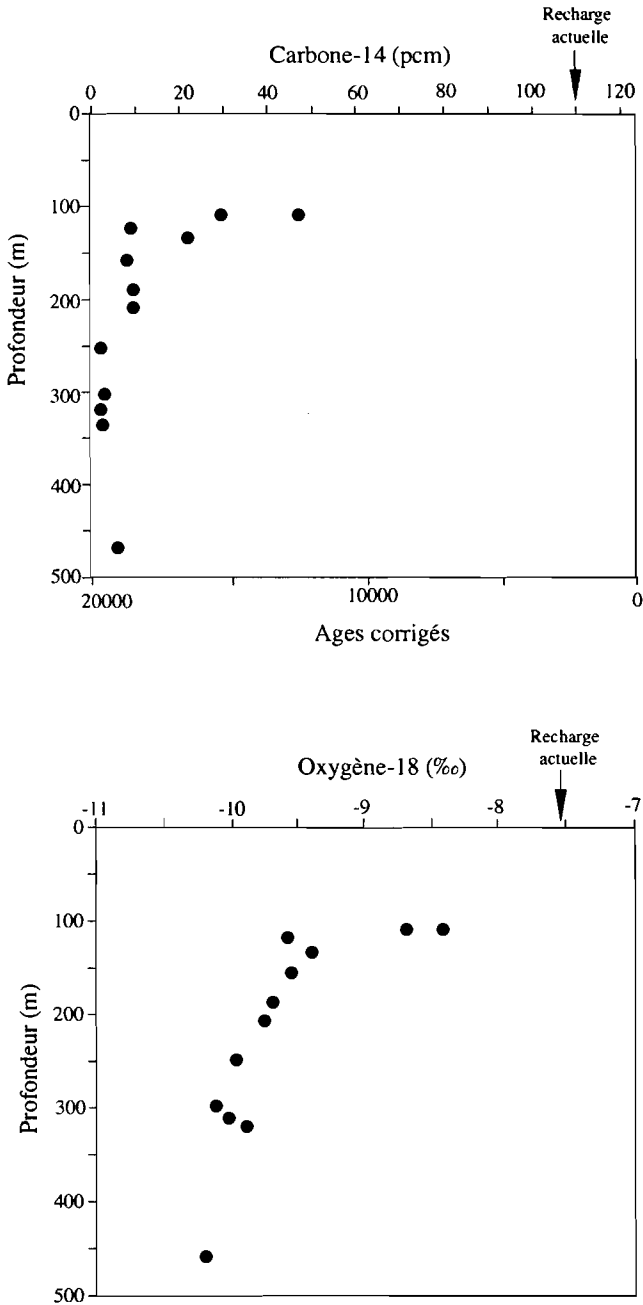


FIGURE 5.

Teneurs en oxygène-18 et en carbone-14 des eaux profondes du delta « del Pô ».
Oxygen-18 and carbone-14 contents of deep groundwaters from the delta « del Pô ».

En milieu tropical humide

Les aquifères captifs sous la plaine alluviale du delta du Mekong (Vietnam), montrent une remarquable homogénéité des teneurs en isotopes stables ($\delta^{18}\text{O} = -7,03 \pm 0,30\text{‰}$ pour la nappe du Pliocène, et $-7,35 \pm 0,19\text{‰}$ pour la nappe du Néogène) entre les zones d'alimentation situées plus à l'ouest dans la partie méridionale du Cambodge et les exutoires en mer de Chine. En tenant compte du fait que la circulation des eaux dans ces nappes est de type « piston », cette homogénéisation de la composition isotopique des eaux souterraines témoigne de la stabilité des conditions climatiques et de la régularité de l'alimentation durant les quarante derniers millénaires (Ho *et al.*, 1992) et, par conséquent, permet de considérer l'hydrodynamique des aquifères comme étant en « régime permanent ».

DYNAMIQUE DES AQUIFÈRES

La distribution géographique des teneurs en isotopes stables des eaux souterraines peut fournir des indications sur les conditions de recharge, les caractéristiques hydrauliques, la continuité et/ou la discontinuité hydraulique des systèmes aquifères.

Dans les grands aquifères, l'homogénéisation spatiale de la composition isotopique des eaux souterraines témoigne souvent d'un temps de résidence prolongé, ce qui permet aux processus de mélange et de diffusion d'effacer toutes traces des variations éventuelles dues à des épisodes successifs de recharge. L'exemple le plus frappant est sans doute celui du Continental Intercalaire d'Afrique du Nord (Gonfiantini *et al.*, 1974) dont les eaux souterraines montrent des teneurs en oxygène-18 très homogènes sur de très grandes étendues. A des échelles de temps et d'espace très réduites, des configurations géomorphologiques particulières (telle la présence d'une épaisse couche d'altérite sur un aquifère cristallin) peuvent contribuer à homogénéiser rapidement le signal isotopique des pluies avant que les eaux d'infiltration ne parviennent à l'aquifère sous-jacent. Fontes *et al.* (1969) ont par exemple montré l'existence d'une identité de faciès isotopique entre la teneur moyenne pluriannuelle des précipitations et la teneur moyenne des eaux souterraines à Kimi Kimi (Tchad).

L'hétérogénéité spatiale des teneurs en isotopes stables peut être en revanche le témoin, soit de recharges directes dont les cachets isotopiques n'ont pas été « tamponnés » par les processus de diffusion et de mélanges en relation avec des temps de résidence très courts ; soit de discontinuités hydrauliques qui ne favorisent pas les processus de mélanges, maintenant ainsi constants les signaux isotopiques même dans le cas de temps de séjour prolongés des eaux. Le premier cas peut être illustré par les hétérogénéités de recharge dans les aquifères

fères du socle cristallin au Niger, notamment dans le Liptako (Ousmane *et al.*, 1984), dans la région de Maradi et Zinder et dans l'Air (Joseph *et al.*, 1990). La variabilité de la géochimie et des teneurs isotopiques des eaux souterraines dans le tunnel du Mont Blanc fournit quant à elle un bon exemple de la mise en évidence de discontinuités hydrauliques au sein d'un massif cristallin dans lequel peuvent circuler des eaux récentes à proximité d'eaux très anciennes pratiquement stagnantes (Fontes *et al.*, 1978).

RÉFÉRENCES

- Andrews (J.N.), Fontes (J.-Ch.), Aranyossy (J.F.), Dodo (A.), Edmunds (W.M.), Joseph (A.), et Travi (Y.), 1994. « The evolution of alkaline groundwaters in the continental intercalaire aquifer of the Irhazer Plain, Niger ». *Water Res. Res.*, 30 (1) : 45-61.
- Aranyossy (J.F.), 1991. *L'apport des techniques isotopiques à l'étude de la recharge des aquifères sous contraintes techniques et climatiques extrêmes*. Diplôme d'habilitation à diriger des recherches en Sciences, Univ. Paris-Sud (Orsay), 576 p.
- Aranyossy (J.F.) et Gaye (C.B.), 1992. « La recherche du pic de tritium thermonucléaire en zone non saturée profonde sous climat semi-aride pour la mesure de la recharge des nappes : première application au Sahel ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 315 (série II) : pp. 637-643.
- Bortolami (G.), Fontes (J.-Ch.) et Panichi (C.), 1973. « Isotopes du milieu et circulations dans les aquifères du sous-sol vénitien ». *Earth Planet. Sc. Lett.*, 19 (3) : 800-808.
- Castany (G) et Margat (J), 1977. *Dictionnaire français d'hydrogéologie*, BRGM.
- Conrad (G.) et Fontes (J.-Ch.), 1970. « Hydrologie isotopique du Sahara Occidental ». *Isotope Hydrology 1970*, IAEA, Vienne, pp. 405-419.
- Dever (L.), Durand (R.), Fontes (J.Ch.) et Vachier (P.), 1982. « Géochimie des teneurs isotopiques des systèmes saisonniers de dissolution de la calcite dans un sol sur craie ». *Geochim. Cosmochim. Acta*, 4 (3) : 133-140.
- Edmunds (W.M.), Gaye (C.B.) et Fontes (J.-C), 1992. « A record of climatic and environmental change contained in interstitial waters from unsaturated zone of northern Senegal ». *Isotope techniques in water resources development 1991*, Proceed. Symp., IAEA, Vienna 1991, pp. 533-549.
- Edmunds (W.M.) et Gaye (C.B.), 1994. « Estimating the spatial variability of groundwater recharge in the Sahel using chloride ». *J. Hydrol.*, 156 : 47-59.

- Fontes (J.-Ch.), Bortolami (G.C.) et Zuppi (G.M.), 1978. « Hydrologie isotopique du massif du Mont-Blanc ». *Isotope Hydrology 1978*, AIEA, Vienne, pp. 411-440.
- Gallaire (R.), 1995. *Hydrologie en milieu subdésertique d'altitude, le cas de l'Air (Niger)*. Th. Doc. Sc., Univ. Paris-Sud (Orsay), 400 p.
- Gallaire (R.), Fontes (J.Ch.) et Zuppi (G.M.), 1995. « Isotopic characterization and origin of rainwater on the Air massif (Niger) ». *Application of Tracers in Arid Zone Hydrology* (Proceeding of the Vienna Symposium, August, 1994)». IAHS Publi., 232 : 293-302.
- Gonfiantini (R.), Conrad (G.), Fontes (J.-Ch.), Sauzay (G.) et Payne (B.R.), 1974. « Étude isotopique de la nappe du Continental Intercalaire et ses relations avec les autres nappes du Sahara septentrional ». *Isotope Techniques in groundwater Hydrology 1974*, Proceed. Symp., IAEA, Vienna, I : 227-241.
- Hamid (S.), Dray (M.), Ferhi (A.), Dorioz (J.M.), Normand (M.) et Fontes (J.-Ch.), 1989. « Étude des transferts d'eau à l'intérieur d'une formation morainique dans le bassin du Léman ». *J. Hydrol.*, 109 : 369-385.
- Ho (H.D.), Aranyossy (J.F.), Louvat (D.), Hua (M.Q.), Nguyen (T.V.) et Nguyen (K.C.), 1991. « Environmental isotope study related to the origin, salinization and movement of groundwater in the Mekong Delta (Viet Nam) ». *Isotope techniques in water resources development 1991*, IAEA, pp. 415-428.
- Joseph (A.), Aranyossy (J.F.) et Kanta (I.), 1990. « Recharge et paléorecharge des aquifères discontinus du socle de l'Air (Niger) ». *Geodinamica Acta*, 4 : 185-197.
- Njitchoua (R.), Aranyossy (J.F.), Fontes (J.-Ch.), Michelot (J.L.), Naah E. et Zuppi (G.M.), 1995. « Oxygène-18, deutérium et chlorures dans les précipitations à Garoua, Nord-Cameroun : implications météorologiques ». *C.R. Acad. Sci. Paris*, 321 (série II a) : 853-860.
- Njitchoua (R.), Fontes (J.-Ch.), Zuppi (G.M.), Aranyossy (J.F.) et Naah (E.), 1995. « Use of chemical and isotopic tracers in studying the recharge processes of the Upper Cretaceous aquifer of the Garoua Basin, Northern-Cameroon ». *Application of Tracers in Arid Zone Hydrology* (Proc. Symp. Vienna 1994). IAHS Publ. 232 : 363-372.
- Simmers (I.), 1988. « Estimation of natural groundwater recharge ». D. Reidel Publishing Company, *NATO ASI Series, C*, 222 : 510 p.
- Tandia (A.) 1990. *Revue critique des méthodes d'évaluation de la recharge des nappes. Contribution de l'approche géochimique et isotopique. Louga-Nord Sénégal*. Th. 3^e cycle, Univ. Dakar, 138 p.

- Vachaud (G.), Gaudet (J.P.) et Kuraz (V.), 1974. « Air and water flow during ponded infiltration in a vertically bounded column of soil ». *J. Hydrol.*, 50 : 191-200.
- Vachaud (G.), Vauclin (M.) et Colombani (J.), 1981. « Bilan hydrique dans le Sud-Tunisien. Caractérisation expérimentale des transferts dans la zone non saturée ». *J. Hydrol.*, 49 : 31-52.

Isotope hydrology:
Applied discipline in Earth sciences
Hydrologie isotopique :
une discipline des sciences de la Terre

K. FROELICH, K. ROZANSKI AND L. ARAGUÁS ARAGUÁS

ABSTRACT – The discipline “isotope hydrology ” is being reviewed from the perspective of the Isotope Hydrology Section of the International Atomic Energy Agency in Vienna. The Section was created in the late fifties and is actively involved in the scientific progress of this discipline. The role of the IAEA in the development of isotope hydrology has always been of a dual nature: on one hand, the Section has been and still is heavily engaged in supporting and coordinating further development of isotope methodologies, on the other hand, it serves as an interface between the methodological development in research institutes and the applied work using proven techniques in field projects on water resources assessment and management. The paper provides a brief overview of applications of isotope-based methodologies in hydrology, with emphasis on new trends and challenges related to man’s growing impact on the water cycle.

This contribution is a tribute to the memory of the former Head of the Isotope Hydrology Section, Jean-Charles Fontes, to whom we owe so much.

Keywords : methodological development, water resources, waste repositories, groundwater pollution, geothermics.

*

RÉSUMÉ – La discipline nommée « hydrologie isotopique » est considérée du point de vue de la section d’Hydrologie isotopique de l’Agence internationale de l’énergie atomique de Vienne. La section, formée dans les années

cinquante, s'occupe, entre autres, de l'avancement scientifique de cette discipline. Le rôle de l'Agence dans le domaine de l'hydrologie isotopique a toujours été double : d'une part, la section est, comme par le passé, fortement engagée dans le soutien et la coordination des progrès méthodologiques en hydrologie isotopique ; d'autre part, elle agit à l'interface entre les développements méthodologiques dans les instituts de recherche et les applications sur le terrain dans les programmes concernant l'évaluation et la gestion des ressources en eau. Ce mémoire présente une brève revue des applications des méthodes isotopiques en hydrologie, en mettant l'accent sur les nouvelles tendances et les défis occasionnés par les répercussions croissantes des activités humaines sur le cycle de l'eau.

Ce travail constitue un hommage à la mémoire de Jean-Charles Fontes, ancien directeur de la section d'Hydrologie isotopique de l'AIEA, auquel nous tous devons beaucoup.

Mots clés : développement méthodologique, ressources en eau, stockage de déchets, pollution des eaux souterraines, géothermie.

*

HISTORICAL OUTLOOK

The discipline "isotope hydrology" was created during the late 1950s and 1960s, beyond the classical hydrological science, by chemists and physicists, many of them working in research centres using artificial radioisotopes. At that time, the main stream of research was directed towards developing and testing new methodologies based on injection of isotope tracers in surface water systems. The relatively small amounts of radioisotopes needed to conduct the experiment and their low detection limit were major advantages of these new techniques.

During the following years, the development of more sensitive detection systems to measure radioactivity and the introduction of mass spectrometric techniques for determination of the atomic ratios of stable isotopes of light elements, led to a progressive increase in the use of environmental isotopes, mainly tritium and carbon-14 as "dating tools" and oxygen-18 and deuterium as indicators of the origin of water bodies. The atmospheric tests of nuclear fusion bombs carried out during the fifties and early sixties released huge amounts of artificial tritium into the atmosphere and consequently the hydrosphere. The observation of this transient tritium pulse in the water cycle led to multiple hydrological studies on a global, regional and local scale.

Among other things, tritium became a powerful indicator of young water in groundwater systems. These tritium studies were complemented by measurements of carbon-14 in total inorganic carbon dissolved in groundwater (TDIC).

In spite of the complexity of the carbon geochemistry in groundwater systems, carbon-14 soon became a widely used tool for assessing groundwater ages. In the seventies and eighties, the number of laboratories capable of measuring environmental isotopes in water samples increased substantially, allowing a wider use of these new methodologies in hydrogeological investigations.

Concerning the stable isotopes of hydrogen and oxygen (^2H and ^{18}O), the pioneering work of the early sixties addressed the main factors controlling the concentration of these isotopes in precipitation. Soon it became clear that these natural tracers have a large potential for the identification and characterization of different water bodies in hydrological systems, e.g. hydrograph separation, identification of paleowaters vs. present-day groundwater, mixing processes between groundwater and surface waters.

Isotope and geochemical techniques were initially applied by isotope specialists with limited knowledge of hydrological systems and, consequently, with a different perspective and perception of the problem, to that of hydrologists. While the first group was mainly concerned with the behaviour of isotope tracers in hydrological systems, the second group was more interested in how these systems function. Over the years, the two groups were coming closer in their approach and, as a result, scientists applying isotope methods started to consider in greater detail hydrogeological and climatic frameworks, rather than methodological aspects.

The demand for geochemical and isotope techniques in hydrological projects has been larger in areas where other (conventional) techniques do not provide convincing results. The characterization of groundwater systems in arid regions, the separation of flow components in catchment areas, the interconnection between surface and groundwater or the identification of recharge areas, represent typical problems studied by the combination of isotope and geochemical techniques. Examples of the application of isotope-based tools in hydrology are listed in Table 1.

Although the usefulness of these techniques has been clearly recognized by most hydrologists, only a relatively small number of specialized groups are so far integrating isotope techniques as a routine tool in their hydrological investigations.

INVOLVEMENT OF IAEA

The Isotope Hydrology Section of the International Atomic Energy Agency was created at the time of early developments in isotope hydrology and actively contributes to the scientific progress of the discipline. The Section promotes and co-ordinates research programmes and conducts field applications of these techniques through technical co-operation projects in develo-

TABLE I.

Examples of established and new applications of environmental isotope tools in hydrological studies

Exemples d'applications classiques et nouvelles de l'outil isotope aux études hydrologiques

Isotope	Substance	Application
^3H $^3\text{He}/^3\text{H}$ ^{85}Kr	H_2O	<ul style="list-style-type: none"> - Indication of recent recharge - Infiltration rates in the unsaturated zone - Transport mechanisms: fissure flow, matrix exchange - Delineation of protection zones
$^2\text{H}/^1\text{H}$ $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$	H_2O	<ul style="list-style-type: none"> - Identification of recharge areas - Interconnection with surface waters - Aquifer leakage - Salinization mechanisms - Recycling of irrigation water - Identification of paleowaters
$^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ^{129}I ^{36}Cl	HCO_3^-	<ul style="list-style-type: none"> - Identification of paleowaters - Groundwater dynamics - Validation of groundwater flow models - Rock-water interaction
$^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$ $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$	NO_3^- NH_4^+ N_2	<ul style="list-style-type: none"> - Identification of pollution sources - Identification of microbial denitrification
$^{11}\text{B}/^{10}\text{B}$	$\text{B}(\text{OH})_4^-$ $\text{B}(\text{OH})_3^-$	<ul style="list-style-type: none"> - Identification of pollution sources (sewage effluents)
$^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ $^2\text{H}/^1\text{H}$	CH_4	<ul style="list-style-type: none"> - Identification of methane source
$^{37}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$	Cl^- Chlorinated hydrocarbons	<ul style="list-style-type: none"> - Identification of pollution sources - Sources of salinity
$^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$	$\text{SO}_4^{=}$	<ul style="list-style-type: none"> - Pollution processes in groundwater, acidification - Sources of H_2S, salinity ; acid mine drainage - Groundwater flow in geothermal systems

ping countries. Although hydrological problems studied by means of isotope and geochemical methods include mainly the origin and dynamics of groundwater, the possibilities offered by these techniques are being explored also in other fields like geothermics, determination of hydraulic parameters and pollution aspects.

The role of the IAEA in the development of isotope hydrology has always been of a dual nature: on one hand, the Isotope Hydrology Section has been and still is heavily engaged in supporting and coordinating the further development of isotope methodologies, on the other hand, it serves as an interface between the methodological development in research institutes and applied work using proven techniques in field projects on water resources assessment and management. The overall scope of these projects reflects the needs and requirements of Member States in this field. Broadly speaking, it can be divided into the following areas :

- water supply in arid and semi-arid regions ;
- dynamics and protection of groundwater resources ;
- geothermal development ;
- engineering problems in surface waters ;
- soil erosion and sedimentation processes ;
- hydro-climatic changes ;
- analytical support to isotope hydrology laboratories in developing countries.

An important component of the work being done by the Isotope Hydrology Section is the dissemination of information related to the use of isotope-based methodologies in hydrology as well as extensive training activities addressing the needs of developing countries in this field.

RECENT TRENDS

The above mentioned dual role of IAEA in promoting isotope-based techniques provides a unique perspective with respect to both recent methodological developments and the emerging demand for these techniques in new challenging areas of the water sector. The following paragraphs contain a brief overview of the problems associated with these new areas, in which isotope techniques are already providing or are expected to provide a substantial contribution.

Assessment of waste repositories

Isotopic and geochemical methods are well suited to study the hydrogeology of potential sites for long-term waste repositories. The list of potential geochemical and isotopic tools to identify the origin of the slowly moving

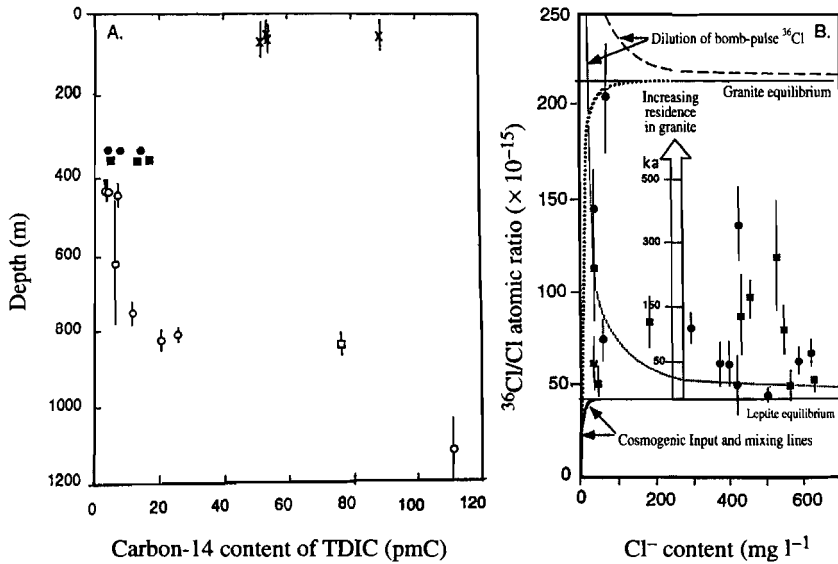


FIGURE 1.

- A. Radiocarbon content of the TDIC in the Stripa mine waters (central Sweden) sampled at various depths (Fontes, 1994).
- B. $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ ratio versus Cl^- content in Stripa deep groundwaters. The distance between equilibrium $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ ratios for leptite and granite, respectively, can be interpreted in terms of time elapsed since the saline waters entered the pluton intrusion (Fontes, 1994).

- A. Teneur en radiocarbone du C14D dans les eaux de la mine de Stripa (Suède centrale) échantillonnée à différentes profondeurs (Fontes, 1994).
- B. Rapport $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ en fonction de la teneur en Cl^- dans les eaux souterraines profondes de Stripa. La distance entre les rapports à l'équilibre $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ pour la leptite et le granite respectivement peut être interprétée comme le temps écoulé depuis que les eaux salées ont pénétré l'intrusion plutonique (Fontes, 1994).

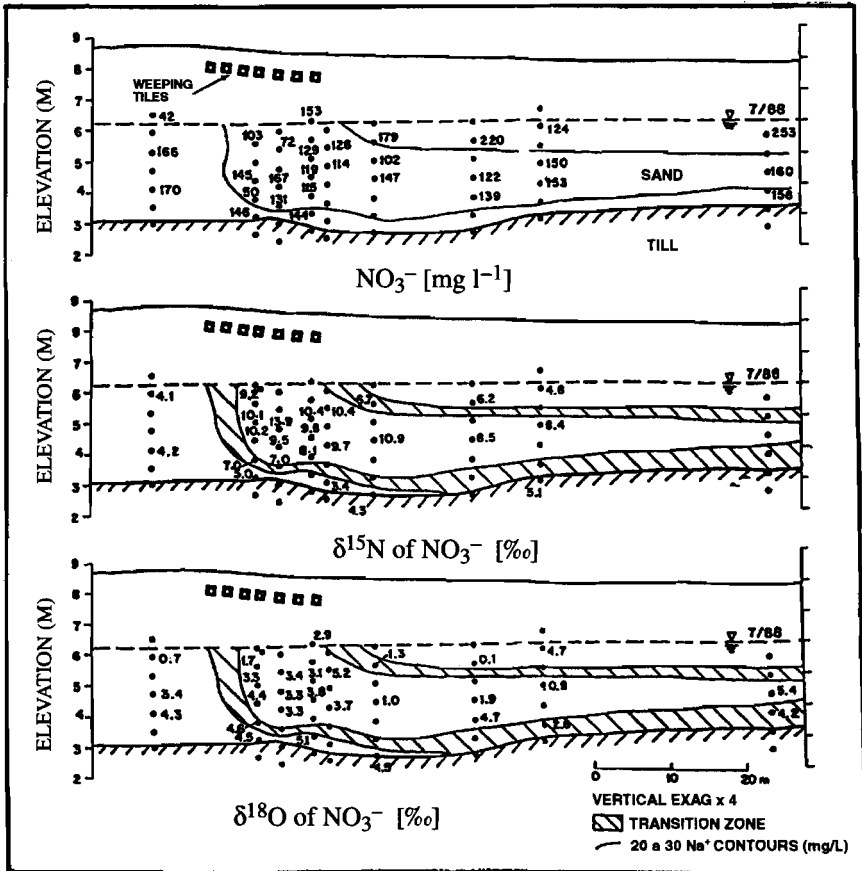
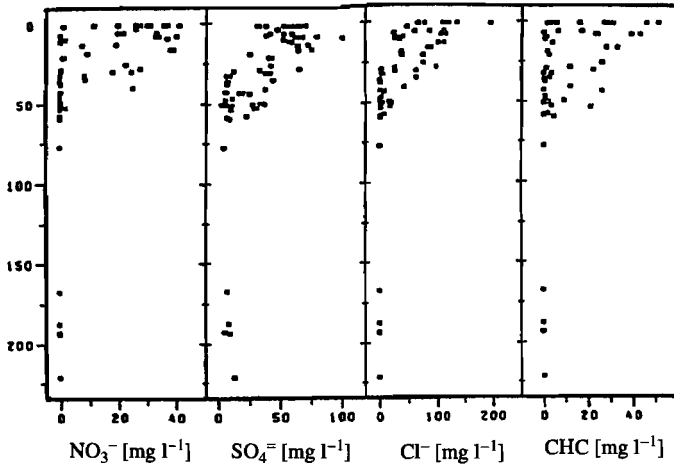
groundwaters and solutes, and to estimate their possible age is relatively large. The complexity of the contaminant behaviour in underground systems calls for the use of different approaches and methodologies. The list of potential tools include many isotopes or chemical species; from the commonly used major ionic components and the stable isotopes of the water molecule to some specific isotopes like ^{81}Kr , ^{37}Cl or ^{36}Cl , or trace elements, boron, or noble gases. Under special circumstances, several isotopes can be used to infer past hydrological circulation patterns that can serve as a constraint for the validation of predictive transport models of toxic substances being released from the repository.

Figure 1 illustrates the use of isotopes in a feasibility study aimed at assessing the potential of old mines located in crystalline environments as repository sites. The study was performed at Stripa Mine, central Sweden. Both carbon-14 and tritium content (the latter is not shown in Fig.1) in mine waters collected at various levels clearly point to the occurrence of fast groundwater circulation at depth. Figure 1B shows the $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ ratio versus Cl^- content in Stripa deep groundwaters. Due to the contrast in the equilibrium concentration of the *in situ* produced ^{36}Cl in the metamorphic rocks (leptites) and the pluton of granite, it was possible to estimate the time elapsed since the saline solutions migrated into the granite intrusion from the surrounding metamorphic rocks (Fontes, 1994).

Deep unsaturated zones are considered as another potential environment for the disposal of radioactive wastes. Such zones, with a depth exceeding 200 metres, exist at present in several parts of the world. In a study carried out recently in southern Nevada, USA (Tyler *et al.*, 1995), the distribution of ^{36}Cl , Cl^- , deuterium and oxygen-18 in the soil water was studied across the unsaturated zone extending over 250 m. Apart from conclusions on the usefulness as a site for waste disposal, the study manifested that isotopic tracers in the vadose zone allow the reconstruction of palaeoclimatic and palaeohydrological conditions in arid regions. The potential of deep unsaturated zones in arid regions as archives of past climatic and hydrological changes needs to be further explored.

Groundwater pollution

Pollution of shallow aquifers by anthropogenic contaminants is becoming one of the central problems in the management of water resources. Figure 2 (upper panel) shows depth profiles of characteristic anthropogenic contaminants (nitrate, sulfate, chloride, chlorinated hydrocarbons) in Quaternary and Tertiary aquifer systems in the area of Munich, Germany (Rauert *et al.*, 1993). The substantial contamination observed in the Quaternary aquifers of this region is typical not only for highly industrialized regions of temperate zones,



but is becoming apparent also in developing countries. Perhaps the most common pollution is the one caused by nitrate originating from agriculture and sewage systems.

Until recently, only ^{15}N was measured in dissolved nitrate or ammonia. The ambiguity in the interpretation of the ^{15}N results led to the publication of many papers defending or criticizing the usefulness of this isotope as the source indicator of nitrate and as a tracer of transformation processes which nitrogen compounds undergo in the environment. Recent analytical developments enabled also oxygen-18 to be measured effectively in nitrates (e.g. Böttcher *et al.*, 1990; Aravena *et al.*, 1993; Durka *et al.*, 1994, Kendall *et al.*, 1996 [see references]). The combined use of these two tracers offers new possibilities to resolve the ambiguity discussed above. This new approach has been applied in several field studies aimed at distinguishing between the possible sources of nitrate in shallow groundwater, studying nitrogen dynamics in shallow groundwater systems (Böttcher *et al.*, 1990) and investigating dynamics of soil organic matter in forest areas. Figure 2 (lower panel) illustrates the combined use of ^{15}N and ^{18}O as tracers to delineate a nitrate plume originating from a domestic septic system. The aquifer is characterized by high nitrate content outside and inside the contaminant plume (Aravena *et al.*, 1993).

Kendall *et al.* (1996) used a similar approach to study the sources of nitrate in catchment areas during spring (snow melt season). In many of the catchment areas it was observed that the nitrate concentration increases in the early spring.

◀ FIGURE 2.

Upper panel. Depth profiles of NO_3^- , SO_4^{2-} , Cl^- and chlorinated hydrocarbons (CHC) in the shallow (Quaternary) and the deep (Tertiary) aquifer systems in the area of Munich, Germany (Rauert *et al.*, 1993).

Lower panel. Distribution of NO_3^- , $\delta^{15}\text{N}$ of NO_3^- and $\delta^{18}\text{O}$ of NO_3^- in shallow groundwater system in Ontario, Canada, affected by a contaminant plume originating from a domestic septic system (Aravena *et al.*, 1993). High concentrations of NO_3^- in the aquifer make the delineation of the plume based only on NO_3^- concentration practically impossible. The apparent enrichment in ^{15}N and ^{18}O of the nitrate originating from the septic tanks makes such a distinction feasible.

Panneau supérieur. Profils de NO_3^- , SO_4^{2-} , Cl^- et carbones hydrogénés chlorurés (CHC) en fonction de la profondeur dans les systèmes aquifères superficiels (quaternaires) et profonds (tertiaires) de la région de Munich (Rauert *et al.*, 1993).

Panneau inférieur. Distribution de NO_3^- , $\delta^{15}\text{N}$ de NO_3^- , et $\delta^{18}\text{O}$ de NO_3^- dans un système aquifère superficiel de l'Ontario (Canada), contaminé par un système de fosses septiques domestiques (Aravena *et al.*, 1993). Les concentrations élevées en NO_3^- dans l'aquifère ne permettent pas de délimiter le panache des eaux contaminées par la seule mesure des concentrations en NO_3^- . Cette délimitation est possible en raison de l'enrichissement apparent en ^{15}N et ^{18}O des nitrates provenant des fosses septiques.

The isotope data provided evidence that soil nitrate is the major source of the observed increase rather than atmospheric deposition, as previously assumed.

Geothermal development

Isotope methods are considered a well established tool in most geothermal development projects. They provide basic information in the early stages of the exploration phase for the selection of potential drilling sites and are also useful in the elaboration of the conceptual models on the flow pattern in the area as well as in the location of reinjection wells for geothermal fluid. During the production phase, the reservoir is regularly monitored for physico-chemical changes in the fluids in order to predict the evolution of the system. Apart from being used as additional geothermometers, the properties of isotope species are used to investigate the recharge area, the flow patterns, processes linked to water-rock interaction or steam separation, dilution or mixing with other water bodies.

Isotopes have produced strong evidence that geothermal waters are meteoric in origin (Craig, 1963), that they have been heated up and interacted with the rocks. Recent evidence suggests that in high temperature volcanic systems tapped by deep wells, geothermal waters are enriched both in ^{18}O and ^2H , not only due to water-rock interaction but mainly because of mixing between meteoric and magmatic waters (Giggenbach, 1992; Mizutani *et al.*, 1986; D'Amore and Bolognesi, 1994; Gerardo *et al.*, 1993; Seki, 1991; Yoshida, 1991). Figure 3 illustrates major isotopic characteristics of different geothermal systems in the world.

Most of the high temperature geothermal areas are situated in volcanoes. These environments produce acidic fluids that are corrosive and cause fast deterioration of wells, as well as pipelines. Their commonly postulated origins are: (i) condensation of H_2S -rich steam into groundwater to form acid-sulfate waters, (ii) direct input of sulfur dioxide and other volcanic gases, and (iii) remobilization of sulfur deposits at depth. The understanding of their actual origin and occurrence enables better development strategies, specifically, drilling targets can be better defined. Recent studies indicate that the actual origin and the processes undergone by acidic fluids can be understood through the correlation of ^{34}S and ^{18}O in SO_4^- as well as with other geochemical parameters. The usefulness of this technique was demonstrated in some New Zealand, Philippine and American fields (Robinson *et al.*, 1987).

Engineering applications in surface waters

A number of hydraulic projects related to the utilization of surface waters demand the use of tracer methods to identify the relationship between different water types or to characterize the hydraulic parameters related to water

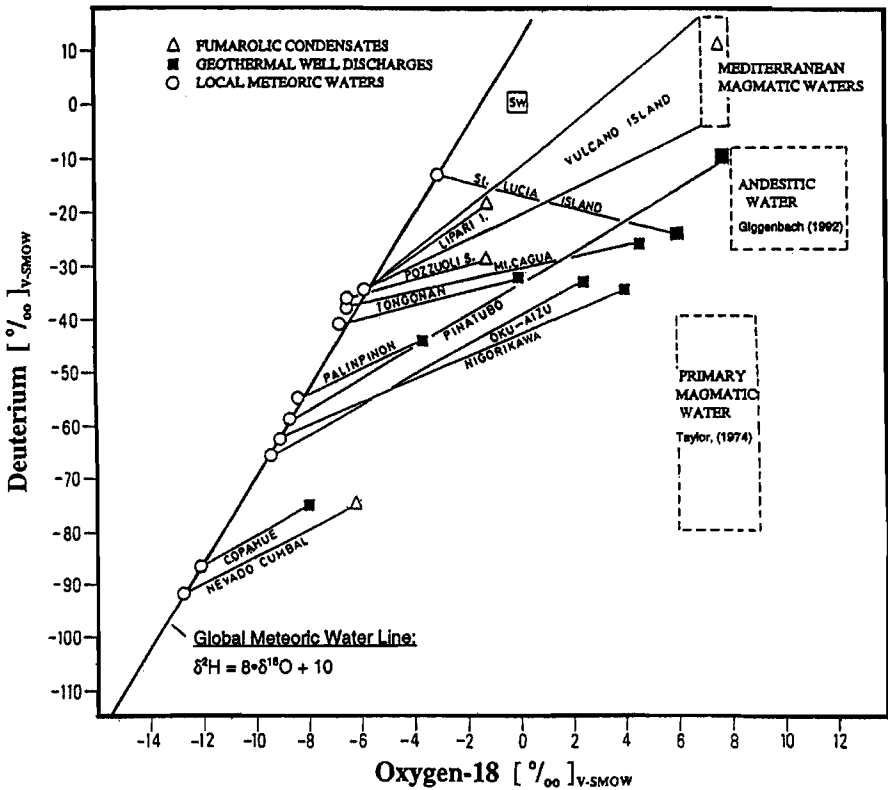


FIGURE 3.

Isotope characteristics of major geothermal systems of the world. Modified after D'Amore and Bolognesi, 1994; Gliggenbach, 1992.

Caractéristiques isotopiques des principaux systèmes géothermiques du monde. Modifié d'après D'Amore et Bolognesi, 1994; Gliggenbach, 1992.

and solute transport. The classical examples of these engineering problems are related to the identification of the flow patterns of subsurface flow emerging as leakage at the bottom of dams. These leakages in some cases can affect the stability of the dam and require a careful diagnosis before a costly remediation programme is implemented. Tracer methods are of primary importance here.

The modification of natural flow patterns as a consequence of the construction of a surface reservoir leads to changes in the discharge patterns of local groundwater and, in some cases, to the development of leakage through the contact between the embankment and the surrounding rocks or the bottom of

the reservoir. Due to the chemical and isotopic contrast between the different types of water contributing to leakages (reservoir water, groundwater), the contribution of each type can be easily assessed by geochemical and isotopic methods. Furthermore, the transport dynamics of water from the reservoir to the leakage outlet can be studied through interconnection experiments using artificial tracers.

Another growing field of application of tracers, both in developed and developing countries, is the validation of mathematical models created to predict the transport of pollutants in surface waters and adjacent groundwater systems released in accidental spills (Stichler *et al.*, 1986; Plata Bedmar *et al.*, 1992; Adler *et al.*, 1993; Aoki *et al.*, 1996).

NEW ISOTOPIC TOOLS AND APPROACHES

Isotopic fingerprints

Boron isotopes have recently been applied to identify sources of anthropogenic pollution in groundwater, particularly of sewage effluents (Vengosh *et al.*, 1994). The distinct isotopic signature of boron in anthropogenic boron compounds (especially sodium perborate used as a bleaching agent in detergents) makes the $^{11}\text{B}/^{10}\text{B}$ ratio a useful tool in tracing the origin of dissolved constituents and, hence, sources of contamination in groundwater.

Chlorine-37 and ^{13}C have been used to identify the source of pollution of shallow groundwater by organic contaminants, particularly chlorinated solvents (Aravena *et al.*, 1996). This issue has legal implications because of the high costs of remedial measures which should be charged to the institution/company responsible for the pollution. The preliminary data suggest that it will be possible to identify the producer of the given chemical compound through its characteristic isotopic signature.

Recently, it has been demonstrated (Rank *et al.*, 1992; Maloszewski *et al.*, 1995) that rainfall infiltrating through sanitary landfills often acquires a specific isotope signature which can be used to delineate the contaminant plume caused by the given waste disposal site in the groundwater system. Elevated concentrations of tritium in water percolating through the landfill were recorded, most probably originating from disposed leaking watches where tritium is widely used in dials. In addition, it was found that percolating water can be enriched in deuterium by up to 40 ‰, when compared to local rainfall. This enrichment stems from isotope effects during the anaerobic decomposition of organic wastes and can be used as a «natural» tracer for the water circulating through a landfill.

Isotope mapping

In major urban centers and in areas of intense agricultural activities connected with irrigation, local groundwater systems are under heavy stress. Irrigation return flow, modification of the natural flow patterns and the recharge/discharge regime, leakages from distribution and sewage systems, are all factors which make sound management of water resources in these areas extremely difficult. Recently, it was demonstrated (Davisson and Criss, 1996) that a widespread isotope mapping of the aquifers exploited under such conditions, using classical isotopic indicators (deuterium, oxygen-18, tritium, carbon-14, carbon-13), can provide new insight into the effects of exploitation and disturbance of the natural flow pattern in such systems, and can help to design adequate management strategies.

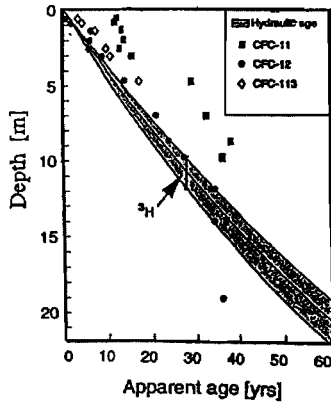
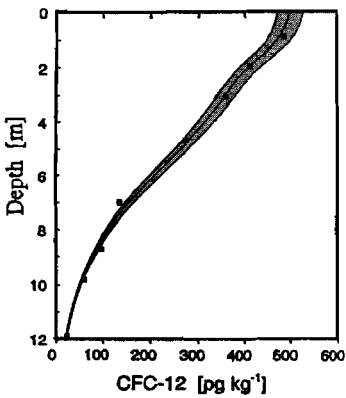
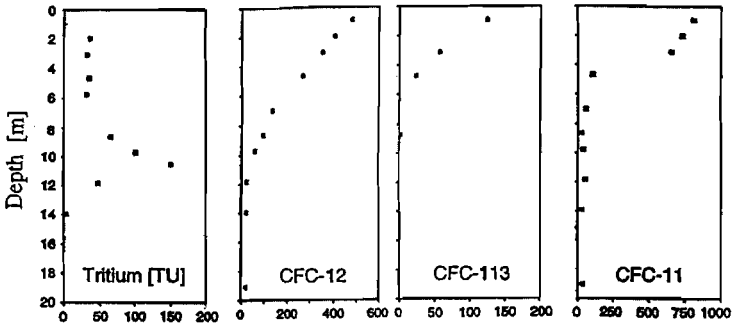
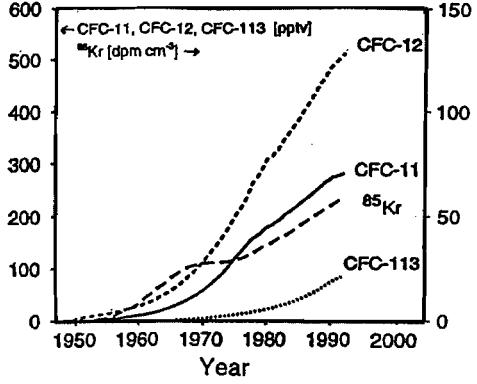
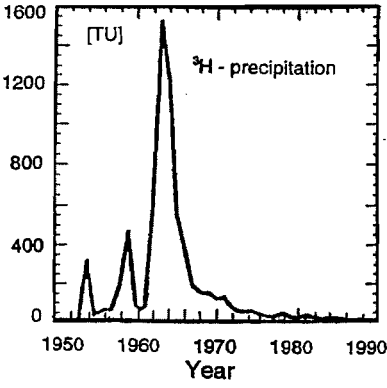
New tracers for young groundwater

In most parts of the world the concentration of tritium in precipitation is approaching the natural level. This makes the use of bomb-tritium as a tracer for groundwater more and more problematic. The results of lumped parameter modelling of groundwater systems suggest that by the end of the present decade the quantitative estimates of the mean residence time of water using bomb-tritium will no longer be possible. On the other hand, there is a growing demand for quantitative assessment of the dynamics of shallow groundwater systems in connection with pollutant transport and protection of water resources.

Attempts have been made to use both radioactive (^{85}Kr) and non-radioactive substances (tritogenic ^3He , chlorofluorocarbons) as tracers for young groundwaters. In several recent studies the applicability of the above mentioned tracers in shallow groundwater systems has been examined in some detail (e.g. Schlosser *et al.*, 1989, Smethie *et al.*, 1992; Ekwurzel *et al.*, 1994; Cook *et al.*, 1995, Cook and Solomon, 1995). Figure 4 illustrates the use of CFC-11, CFC-12 and CFC-113 to derive apparent ages of groundwater in a well-characterized field site in central Ontario, Canada, where a detailed tritium investigation was performed earlier (Robertson and Cherry, 1989). The experience gathered so far with these new tracers is encouraging in spite of problems with sampling (^{85}Kr , ^3He) and with sorption and degradation of CFCs.

CONCLUDING REMARKS

Over the last decade, a major shift from the assessment towards the management of water resources has been observed. The problems related to pollution of both surface and groundwater systems are becoming central target areas for many institutions working in the water sector. The problems being tackled involve identification of pollutants, their transport in an underground



environment and the development of adequate remediation strategies. A better understanding of the processes taking place in the unsaturated zone is seen as one of the key elements of sound management of groundwater resources. The growing need for quantification of contaminant transport in both surface and underground environment calls for the development of realistic models of flow and mass transport in various geological media. This in turn requires adequate calibration and validation methodologies to be used.

The anthropogenic impact on climate and related short-term evolution of the hydrological cycle is already a major challenge and will necessarily become one of the most important tasks for the scientists of the next century. Better quantification of response of the hydrological cycle to short-term climate variability, in particular in the inter-tropical zone, is crucial. This region, occu-

◀ FIGURE 4.

Top panel. Long-term variations of atmospheric tritium, ^{85}Kr and chlorofluorocarbon (CFC-11, CFC-12, CFC-113) concentrations in the northern hemisphere, between 1950 and 1990 (after Ekwurzel *et al.*, 1994; Cook and Solomon, 1995).

Middle panel. Depth profiles of tritium, CFC-11, CFC-12 and CFC-113 measured in 1991 in the shallow aquifer located in central Ontario, Canada (Cook *et al.*, 1995).

Bottom panel (left). Comparison of measured depth profile of CFC-12 concentration in the above mentioned shallow aquifer with model profiles simulated, using the two-dimensional flow model. The shaded region depicts the profiles simulated under a recharge rate of 130 mm yr^{-1} for recharge temperatures between 2°C and 4°C (Cook *et al.*, 1995).

Bottom panel (right). Apparent groundwater age profiles estimated using tritium and chlorofluorocarbons, for the above mentioned shallow aquifer. The error bar depicts the position of the ^3H peak in 1991. The shaded region depicts the hydraulic age profile calculated using the two-dimensional flow model, using the recharge rate obtained from the position of the tritium peak (Cook *et al.*, 1995).

Panneau supérieur. Variations à long terme des concentrations dans l'atmosphère en tritium, ^{85}Kr et chlorofluorocarbones (CFC-11, CFC-12, CFC-113) de l'hémisphère nord, entre 1950 et 1990 (d'après Ekwurzel *et al.*, 1994; Cook et Solomon, 1995).

Panneau central. Profils des concentrations en tritium, CFC-11, CFC-12, CFC-113 mesurés en 1991 en fonction de la profondeur, dans l'aquifère superficiel de l'Ontario central, Canada (Cook *et al.*, 1995).

Panneau inférieur gauche. Comparaison du profil vertical des concentrations en CFC-12 dans l'aquifère précité avec les profils simulés par un modèle de circulation à deux dimensions. La zone ombrée indique les profils simulés avec un taux de recharge de 130 mm a^{-1} , et des températures de recharge comprises entre 2°C et 4°C (Cook *et al.*, 1995).

Panneau inférieur droit. Âges apparents des eaux souterraines du même aquifère superficiel en fonction de la profondeur, estimés à partir des concentrations en tritium et en chlorofluorocarbène. La barre d'erreur représente la position du pic de ^3H en 1991. La zone ombrée indique l'âge hydraulique du profil, calculé à partir d'un modèle de circulation à 2 dimensions, et le taux de recharge déduit de la position du pic de tritium (Cook *et al.*, 1995).

ped mostly by developing countries, is subject to extreme hydroclimatic variations (droughts and floods). The short-term predictions of such events are therefore a major requirement for sustainable development of the region.

These new challenges require an integrated approach combining conventional and non-conventional methodologies. Isotope tools, although still considered “non-conventional” by the majority of the hydrological community, can make important contributions in these new target areas. Links should be explored between isotope/geochemical methods and techniques which provide spatially averaged information, such as remote sensing. An important prerequisite for success in this new endeavour is a broad education programme for hydrologists and hydrogeologists at university level, which should cover modern physical and chemical methods, including isotope-based methodologies, for a better understanding of the structure and dynamics of the water cycle at various spatial and temporal scales.

REFERENCES

- Adler (M.), Jakob (A.), Hanisch (H.), Leibundgut (Ch.), van Mazijk, Spreafico (M.) and Wiesner (H.), 1993. “Alarm model ‘Rhein’ - A model for the operational prediction of the transport of pollutants in the river Rhine”, *IKSR/CIPR*, Report No. I-12, 121 pp.
- Aoki (P.E.), Bombonato (C.) and Maloszewski (P.), 1996. “Determination of hydrodynamic parameters in the Pavia Castro Reservoir using artificial tritium”. *Isotope Techniques in Water Resources Management*, International Atomic Energy Agency, Vienna, I: 157-166.
- Aravena (R.), Evans (M.L.) and Cherry (J.A.), 1993. “Stable isotopes of oxygen and nitrogen in source identification of nitrate from septic systems”. *Groundwater* 31 (2): 180-186.
- Aravena (R.), Frappe (S.K.), Van Warmerdam (E.H.), Drimmie (R.J.) and Moore (B.), 1996. “Use of environmental isotopes in organic contaminant research in groundwater systems”. *Isotope Techniques in Water Resources Management*, International Atomic Energy Agency, Vienna, I: 31-42.
- Böttcher (J.), Strebel (O.), Voerkelius (S.) and Schmidt (H.L.), 1990. “Using isotope fractionation of nitrate-nitrogen and nitrate-oxygen for evaluation of microbial denitrification in a sandy aquifer”. *J. Hydrol.* 114: 413-424.
- Cook (P.G.), Solomon (D.K.), Plummer (L.N.), Busenberg (E.) and Schiff (S.L.), 1995. “Chlorofluorocarbons as tracers of groundwater transport processes in a shallow, silty sand aquifer”. *Water Res. Research*, 31 (3): 425-434.

- Cook (P.G.) and Solomon (D.K.), 1995. "Transport of atmospheric trace gases to the water table: Implications for groundwater dating with chlorofluorocarbons and krypton 85". *Water Res. Research*, 31 (2): 263-270.
- Craig (H.), 1963. "The isotopic geochemistry of water and carbon in geothermal areas". In: *Nuclear Geology on Geothermal Areas*, CNR, Pisa, 17-53.
- D'Amore (F.) and Bolognesi (L.), 1994. "Isotopic evidence for a magmatic contribution to fluids of the geothermal systems of Larderello, Italy and the Geysers, California". *Geothermics* 23 : 21-32.
- Davisson (M.L.) and Criss (R.E.), 1996. "Stable isotope and groundwater flow dynamics of agricultural irrigation recharge into groundwater resources of the Central Valley, California". *Isotope Techniques in Water Resources Management*, International Atomic Energy Agency, Vienna, I: 405-418.
- Durka (W.), Schulze (E.D.), Gebauer (G.) and Voerkelius (S.), 1994. "Effects of forest decline on uptake and leaching of deposited nitrate determined from ^{15}N and ^{18}O measurements". *Nature* 372 : 765-767.
- Ekurzel (B.), Schlosser (P.), Smethie (W.M.), Plummer (L.N.), Busenberg (E.), Michel (R.L.), Wepperling (R.) and Stute (M.), 1994. "Dating of shallow groundwater: comparison of the transient tracers $^3\text{H}/^3\text{He}$, chlorofluorocarbons, and ^{85}Kr ". *Water Res. Research*, 30 (6) : 1693-1708.
- Fontes (J.-Ch.), 1994. "Isotope palaeohydrology and the prediction of long-term repository behaviour". *Terra Nova* 6 : 20-36.
- Gerardo (J.Y.), Nuti (S.), D'Amore (F.), Seastres (J.S.) and Gonfiantini (R.), 1993. "Isotopic evidence for magmatic and meteoric water recharge and the processes affecting reservoir fluids in the Palinpinon geothermal system, Philippines". *Geothermics*, 22 : 521-534.
- Giggenbach (W.F.), 1992. "Isotopic shifts in waters from geothermal and volcanic systems along convergent plate boundaries and their origin". *Earth Planet. Sci. Lett.* 113 : 495-510.
- Kendall (C.), Silva (S.R.), Chang (C.C.Y), Burns (D.A.), Campbell (D.H.), and Shanley (J.B.), 1996. "Use of the $\delta^{18}\text{O}$ and $\delta^{15}\text{N}$ of nitrate to determine sources of nitrate in early spring runoff in forested catchments". *Isotope Techniques in Water Resources Management*, International Atomic Energy Agency, Vienna, I: 167-176.
- Maloszewski (P.), Moser (H.), Stichler (W.) and Trimborn (P.), 1995. "Isotope hydrology investigations in large refuse lysimeters". *J. Hydrol.*, 167 : 149-166.
- Mizutani (T.), Hayachi (S.) and Sugiura (T.), 1986. "Chemical and isotopic composition of fumarolic gases from Kuju-iwoyama, Kyushu, Japan". *Geochem. Journ.*, 20 : 273-285.

- Plata Bedmar (A.), Araguás-Araguás (L.), Torres (E.), Obando (E.), Jimenez (G.) and Zapata (A.), 1992. "Hydraulic parameters of the Magdalena river (Colombia) derived from large scale tracer experiments". *Isotope Techniques in Water Resources Development 1991*, International Atomic Energy Agency, Vienna, 85-105.
- Rank, (D.), Papesch, (W.), Rajner, (V.) and Riehl-Herwirsch, (G.), 1992. "Environmental isotope study at the Breitenau Experimental Landfill (Lower Austria)". In: *Tracer Hydrology*, Hötzl & Werner (eds.), Balkema, Rotterdam, 173-177.
- Rauert, W., Wolf, M., Weise, S.M., Andres, G. and Egger, R., 1993. "Isotope-hydrological case study on the penetration of pollution into the deep Tertiary aquifer in the area of Munich, Germany". *J. Cont. Hydr.*, 11 : 15-38.
- Robertson (W.D.) and Cherry (J.A.), 1989. "Tritium as an indicator of recharge and dispersion in a groundwater system in central Ontario". *Water Res. Research*, 25 : 1111-1123.
- Robinson (B.), Villasenor (L.) and Clemente (V.), 1987. "Preliminary stable isotope investigations of acid fluids in geothermal systems of the Philippines". *Proc. 9th New Zealand Geothermal Workshop*, pp. 73-78.
- Schlosser (P.), Stute (M.), Sonntag (C.) and Münnich (K.O.), 1989. "Tritogenic ^3He in shallow groundwater". *Earth Planet. Sci. Lett.*, 94 : 245-256.
- Seki (Y.), 1991. "The physical and chemical structure of the Oku-aizu geothermal system, Japan". *Geochem. Journ.* 25 : 245-265.
- Smethie (W.M.), Solomon (D.K.), Schiff (S.L.) and Mathieu (G.G.), 1992. "Tracing groundwater flow in Borden aquifer using krypton-85". *J. Hydrol.*, 130 : 279-297.
- Stichler (W.), Maloszewski (P.) and Moser (H.), 1986. "Modelling of river water infiltration using oxygen-18 data". *J. Hydrol.*, 83 : 355-365.
- Tyler (S.W.), Chapman (J.B.), Conrad (S.H.) and Hammermeister (D.), 1995. "Paleoclimatic response of a deep vadose zone in southern Nevada, USA, as inferred from stable and radioisotopic tracers". *Tracers in Arid Zone Hydrology*, IAH-Publication, 232 : 351-362.
- Vengosh (A.), Heumann (K.G.), Juraske (S.) and Kasher (R.), 1994. "Boron isotope application for tracing sources of contamination in groundwater". *Environ. Sci. Technol.*, 28 : 11, 1968-1974.
- Yoshida (Y.), 1991. "Geochemistry of the Nigorikawa geothermal system, southwest Hokkaido, Japan". *Geochem. Journ.* 25 : 203-222.

Hydrologie et géochimie
du bassin soudano-sahélien du fleuve Niger

*Hydrological and geochemical studies
on the Sahelo-Sudanian Basin of the Niger River*

J.-C. OLIVRY

RÉSUMÉ – Les chroniques hydrologiques du Niger supérieur et de sa cuvette lacustre montrent un appauvrissement de la ressource en eau depuis deux décennies lié aux déficits pluviométriques et à l'amenuisement des ressources souterraines. La cuvette lacustre – et son delta intérieur – constitue un hydro-système particulier de lacs et de plaines d'inondation où les pertes annuelles, dues essentiellement à l'évaporation, varient de 40 km³ à 6 km³, soit 47 % des entrées en période humide et 30 % en période sèche du fait de la réduction des zones inondées.

Des recherches plus complètes sur les flux du Niger (isotopie, chimie, sédimentologie), entreprises depuis 1990, montrent notamment qu'environ un quart des charges en suspension et dissoutes se dépose dans le Delta intérieur pour un flux global d'entrée de 2,2 Mt en 1992-1993. L'évolution de la chimie des eaux et les variations saisonnières de la charge solide, en amont et en aval du Delta intérieur, permettent de préciser le fonctionnement de l'hydrosystème. Faute d'observer l'existence d'un bassin sédimentaire ancien, l'importance relativement faible des dépôts de matière dans la cuvette lacustre doit être ramenée à la vaste extension des zones de dépôts.

Mots clés : Afrique, fleuve Niger, Mali, sédimentologie, hydrologie isotopique, ressources en eau.

*

ABSTRACT – The Niger River is the third largest African river. The Upper Niger is defined before the inner Delta at the station of Koulikoro. In addition with the Bani River, its surface basin is of 250 000 km². The Niger River flows from the humid Guinean mounts (more than 1500 mm year⁻¹ precipi-

tations) to the semi-arid areas (less than 200 mm year⁻¹ precipitations). Hydrological parameters are defined. African drought and rainfall deficits observed during the last twenty years had important repercussions on the runoff of the Niger River (annual deficit of 20 % during the 70's and of 46 % during the 80's). A large reduction of the groundwater storage explains the persistent degradation of the hydrological resource. The inner Delta of the Niger River is a particular system submitted to Sahelian and subdesertic climatic conditions, and is characterized by large flood plains. Time series of input water volumes in the inner Delta and of the water losses inside it show that the water losses, due to the intense evaporation, vary from 40 km³ to 6 km³. The water losses are maximum during the wettest years, up to 47 %, and minimum during the driest years, only 32%, due to the reduction of the flooded area.

Since 1990 the EQUANIS program associates hydrological and chemical measurements in the study of the dissolved and suspended matter flows in the Niger River's flows to the Sahel. First results on the upper basin and after the inner Delta show low concentrations of matter. The specific sediment load vary between 7 or 8 t km² year⁻¹ for the upper Niger River and 3 t km² year⁻¹ for the Bani River. The specific dissolved load vary between 10 or 12 t km² year⁻¹ for the Niger River and 2,5 t km² year⁻¹ for the Bani River. The annual input in the inner Delta was about 2,2 Mt in 1992-1993. Sediment and chemical budgets show a sediment deposit of 0,24 Mt and a saline deposit of 0,3 Mt in the inner Delta. Seasonal variations of the matter fluxes are very different between the upper and the lower parts of the inner Delta, due to the breaking of the annual flood and to the more important flood plains in the upper Delta. The preliminary results indicate that both rivers have a low level in dissolved element concentration. The mean conductivity values ranging from 50 to 80 $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ increase regularly during low water stage and decrease drastically with swelling. The pH values are slightly basic, from 7,1 to 8. Silica and bicarbonates are the main dissolved species ; they always represent more than 75 % of the dissolved load. In May, when rising stage begins, the waters are poorly mineralized at the input of the Delta while they have been enriched during the dry season in the Delta. A good mass balance is found between inputs and outputs through the Delta.

The inner Delta is not an old sedimentary basin and the actual deposits of matter should characterize its working during the lasting deficit of the water resources of the Niger River.

Keywords : Africa, Niger River, Mali, sedimentology, isotopic hydrology, water resources.

INTRODUCTION

Le projet sur l'Environnement et la Qualité des Apports du Niger au Sahel (EQUANIS) s'est attaché à mettre en place au Mali un réseau de stations d'observation des flux hydriques et de matières particulaires et dissoutes et à développer sur le Niger les recherches biogéohydrodynamiques des grands écosystèmes relevant de la thématique du Programme sur l'Environnement de la Géosphère Intertropicale (PEGI, INSU/ORSTOM).

Le projet EQUANIS est malheureusement le dernier exemple d'une dynamique initiée directement par Jean-Charles Fontes associant, depuis plus de vingt-cinq ans, en collaboration avec les hydrologues de l'Orstom, les recherches sur les régimes hydrologiques, sur l'érosion et la qualité des eaux, sur l'hydrologie isotopique, sur la climatologie et la paléohydrologie et sur l'hydrogéologie en milieu intertropical (Fontes, 1976).

Les quelques résultats présentés ici, en hommage à la mémoire de Jean-Charles Fontes, apportent un éclairage nouveau sur le fonctionnement du fleuve Niger notamment dans sa traversée de la cuvette lacustre.

I. HYDROLOGIE DU NIGER ET DE SA CUVETTE LACUSTRE

Issu de la dorsale guinéenne qui sépare la moyenne Guinée et la Guinée forestière de la Sierra Leone et du Liberia, le Niger, troisième fleuve d'Afrique par sa longueur (4 200 km), s'écoule suivant une direction générale Nord-Est jusqu'aux confins du Sahara. Il décrit une grande boucle dans sa traversée des régions sahéliennes et subdésertiques où il perd dans la cuvette lacustre une bonne part de ses apports hydriques avant de retrouver la route de l'océan au fond du golfe de Guinée où son régime est devenu tout à fait original pour la région.

A. Hydrologie du Niger supérieur

Le Niger supérieur a un régime tropical plus classique. Le haut Niger reçoit sur le territoire guinéen en amont de Siguiri trois affluents importants : le Tinkisso, le Niandian et le Milo puis parvenu au Mali, il reçoit à l'amont de Bamako, le Sankarani d'origine essentiellement guinéenne. Le Niger ne reçoit plus ensuite que des affluents mineurs jusqu'à sa confluence avec le Bani à Mopti dont le bassin versant est à peine plus petit que celui du Niger supérieur (Fig. 1).

La durée et l'abondance plus ou moins grandes des précipitations et l'extension des différentes zones climatiques intéressant le bassin du Niger supérieur permettent de distinguer :

- **Le domaine guinéen** qui concerne les têtes de bassin du Niger et de ses affluents. Le climat tropical de transition est appelé ici climat guinéen ; les précipitations annuelles sont supérieures à 1 500 mm.

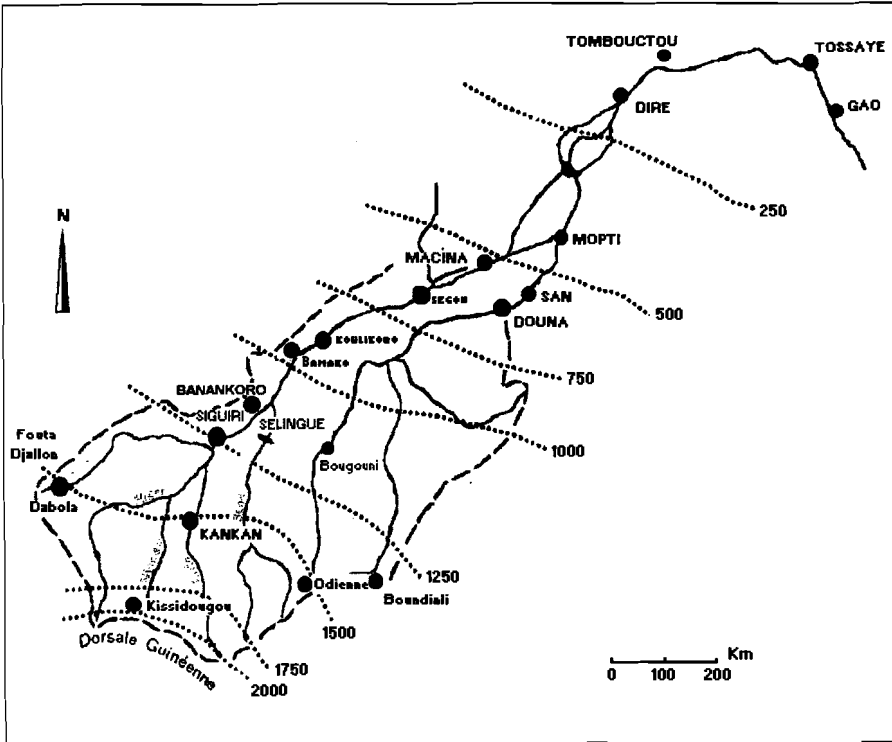


FIGURE 1.

Bassin du Niger et isohyètes interannuelles en millimètres.

Niger river basin and interannual isohyetal lines in mm.

- **Le domaine sud-soudanien** correspondant au climat tropical pur. Il est centré sur Siguiri-Bougouni-Sikasso. Les précipitations annuelles sont comprises entre 1 000 et 1 500 mm.
- **Le domaine nord-soudanien** qui constitue une variante plus sèche avec des précipitations comprises entre 750 et 1000 mm.
- **Le domaine sahélien**, avec des précipitations comprises entre 400 et 750 mm et réparties sur 3 à 4 mois, qui intéresse les régions de Ségou, Mopti et la partie sud de la cuvette lacustre.
- **Le domaine subdésertique**, recevant autour de 250 mm de précipitations (150-400 mm) réparties sur les 3 mois d'été, qui intéresse la majeure partie de la cuvette lacustre.

Pour toutes ces régions climatiques, la saison des pluies est centrée sur le mois d'août.

La chronique des débits du Niger constitue avec celle du Sénégal à Bakel, l'information intégrée la plus complète que l'on ait sur les variations hydroclimatiques de l'Afrique de l'Ouest depuis le début du siècle. La première station hydrométrique du fleuve Niger a été installée à Koulikoro en 1907 ; à cette station, la superficie du bassin versant est de 120 000 km², dont seulement un cinquième au Mali. Le débit moyen interannuel calculé sur 83 ans est de 1 420 m³ s⁻¹ soit un module spécifique (ramené à l'unité de surface) de 11,8 l s⁻¹ km⁻². Avec une hauteur de précipitation interannuelle estimée à 1 600 mm et une lame d'eau écoulee de 370 mm, le coefficient d'écoulement moyen atteint 23 % ; la reprise par évaporation serait de 1 230 mm (Brunet-Moret *et al.*, 1986).

La chronique des modules du Niger à Koulikoro a souvent été comparée à celle du fleuve Sénégal. Dans la période récente on a relevé qu'en dépit de certains sursauts d'une relative abondance en 1974, 1975, 1976, puis en 1979, l'hydraulicité des fleuves de la région n'a cessé de se dégrader, d'abord dans les années 72-73, première sécheresse catastrophique, puis de manière plus dramatique encore dans les années 1983 et 1984. La figure 2 reproduit la chronique des modules du Niger à Koulikoro et Diré et du Bani à Douana.

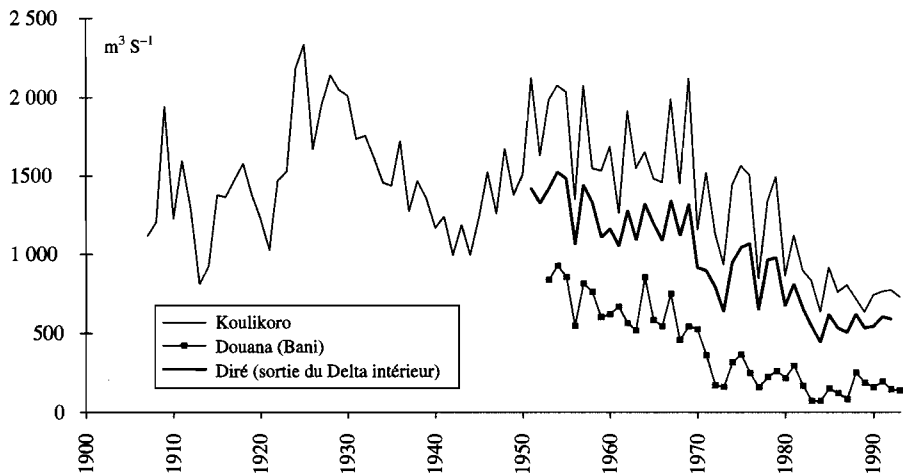


FIGURE 2.

Évolution des modules annuels, depuis l'origine des observations, du Niger à Koulikoro et Diré et du Bani à Douana.

Annual discharges variations, since the beginning of the observations, for the Niger at Koulikoro and Diré and for the Bani at Douana.

Soulignons qu'après le « minimum minimorum » de 1984, le module le plus bas est celui de 1989 sur le Niger.

Les fluctuations récentes montrent que la ressource en eaux de surface a diminué de moitié sur la dernière décennie (Olivry *et al*, 1995a).

On a montré que l'appauvrissement des ressources en eau de l'Afrique intertropicale résultait à la fois de la crise climatique que connaît le continent africain et de l'effet cumulé des déficits pluviométriques. La persistance de déficits hydriques aigus, au delà des crises majeures des précipitations, indique que les fluctuations hydrologiques ne peuvent être traitées au seul pas de temps annuel.

L'implication des aquifères des bassins – leur épuisement, la réduction de leur extension – à travers la contribution des écoulements de base, conduit à une minoration durable de l'abondance de la ressource hydrologique dans la région. Un éventuel retour à des conditions de précipitations excédentaires devra être soutenu sur plusieurs années pour permettre la reconstitution des aquifères et un retour à des conditions hydrologiques « normales ».

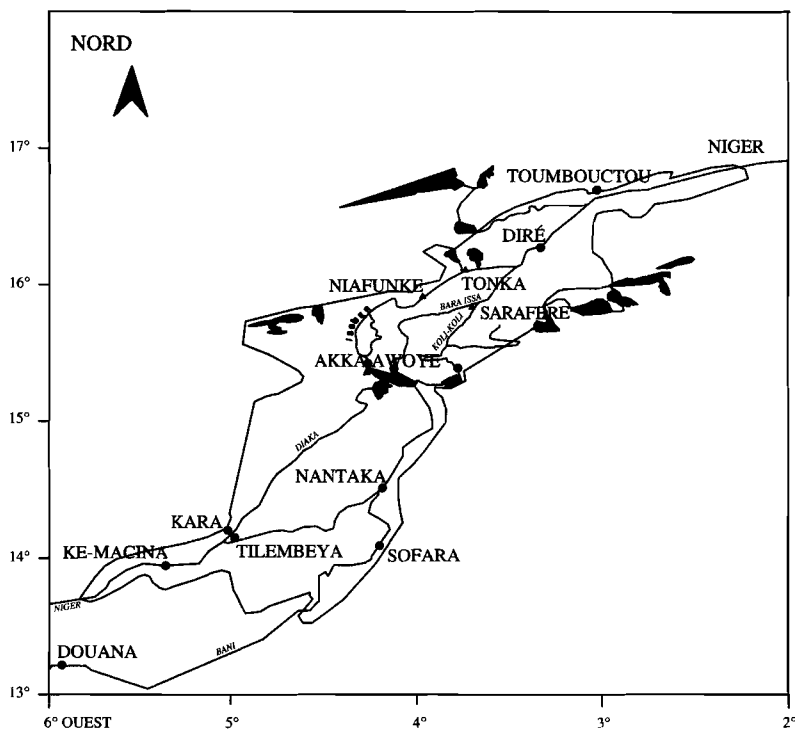


FIGURE 3.

Carte de situation de la cuvette lacustre.

Location map of the inner Delta.

B. La cuvette lacustre

Vaste zone d'épandage des apports du Niger, la cuvette lacustre constituée par un delta intérieur inondable et un système complexe de lacs en rive droite et rive gauche couvre une superficie de plus de 50 000 km² suivant un rectangle orienté SO-NE de 450 km de longueur sur 125 km de largeur (Fig. 3).

Le fonctionnement hydrologique de la cuvette lacustre du fleuve Niger est largement dépendant :

- des conditions d'écoulement exogènes, l'essentiel des ressources en eau provenant des régions beaucoup plus arrosées de l'amont et donc des régimes hydroclimatiques des bassins supérieurs du fleuve Niger et du Bani ;
- des conditions morphologiques et climatologiques propres au Delta intérieur, régissant les écoulements (défluences, inondations) et le bilan hydrologique (évaporation, infiltration).

Le tableau 1 rappelle pour trois années-type (humide, moyenne et sèche) les débits moyens annuels aux principales stations de Koulikoro, Douna et du Delta. L'année 1954 correspond à une année humide de fréquence cinquantennale ; 1968 est très voisine de la moyenne et 1985 à une fréquence cinquantennale sèche. L'examen des modules montre que les écoulements contrôlés à l'entrée du Diaka et après le confluent Mopti-Bani ont déjà perdu environ 18 %, 14 % et 6 % des apports initiaux, suivant que l'on a une crue forte, moyenne ou faible. Les pertes sont d'autant plus importantes que les zones d'inondations augmentent, mais aussi que les effluents secondaires transfèrent des volumes plus importants. Par rapport aux entrées, les modules de Diré ont perdu environ 47 %, 37 % et 32 %, de la crue forte à la crue faible.

Ce sont bien évidemment ces pertes et leur ampleur qui font la caractéristique hydrologique principale de la cuvette lacustre et, de celle-ci, une formidable machine évaporatoire en Afrique de l'Ouest. La chronique de ces pertes annuelles exprimées en km³ a été comparée dans la figure 4 à celle des entrées dans la cuvette lacustre. Une des autres caractéristiques importantes de l'hydrologie du Delta tient dans l'amortissement de la crue annuelle.

L'étude des pertes annuelles montre que l'on passe de 29 km³ entre les entrées et Diré pour la période humide, à 7 km³ pour la période sèche soit un rapport de 4,14 (valeurs extrêmes : 40 et 6 km³).

II. TRANSPORTS DE MATIÈRES

A - Régime du transport de matières en suspension

L'étude des matières en suspension dans les eaux des bassins amont montre des variations saisonnières des concentrations caractéristiques des fleuves

TABLEAU 1.

Exemples de variation des modules, de Koulikoro à Tossaye, pour trois années hydrologiquement contrastées ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$).

Station	Année humide (1954)	Année moyenne (1968)	Année sèche (1985)
Koulikoro	2075	1445	915
Ké Macina	1951	1306	765
Bani Douna	926	456	150
Bani Sofara	646	382	130
Diaka Kara	642	409	255
Niger Mopti	1702	1098	604
Diré	1522	1118	619
Tossaye	1457	1033	574

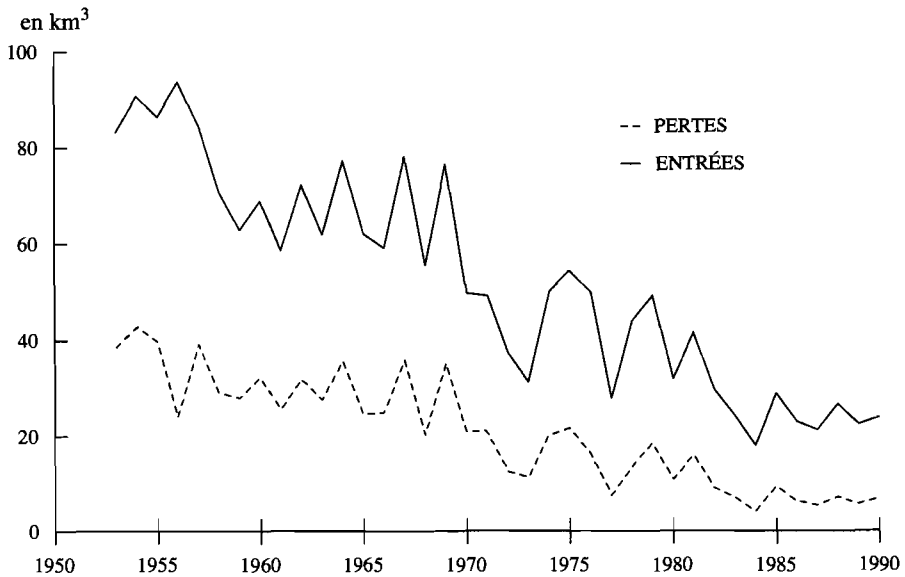


FIGURE 4.

Évolution des volumes des apports annuels du bassin supérieure en milliards de m^3 (km^3) mesurés sur Ké-Macina et Douna et pertes correspondantes à l'aval du Delta Central (Diré).

Water inputs (Ké-Macina and Douna) and losses in the inner Delta (Diré) in km^3 .

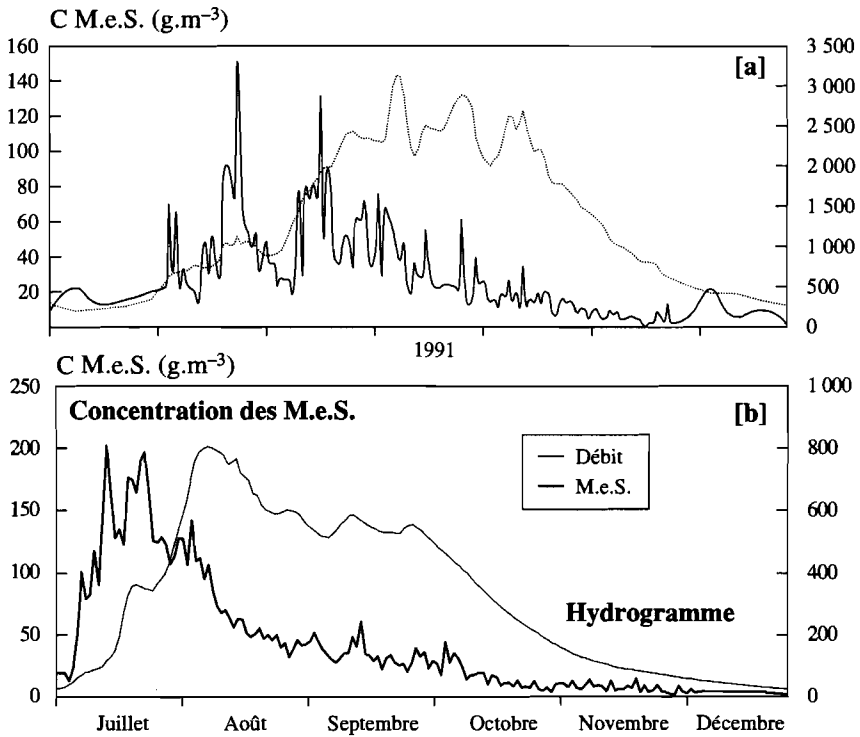


FIGURE 5.

Exemples d'hydrogrammes et de concentrations en M.e.S. pour le Niger à Koulikoro (a) et le Bani à Douna (b).

Hydrograph and TSS concentrations for the Niger at Koulikoro (a) and the Bani at Douna (b).

tropicaux. Les concentrations les plus élevées correspondent au début de la saison des pluies. Elles dépassent rarement 100 mg l^{-1} pour le Niger et 200 à 250 mg l^{-1} pour le Bani. Elles tombent en saison de basses eaux jusqu'à 5 mg l^{-1} et, compte tenu des débits, le transport de matière devient alors pratiquement négligeable.

La figure 5 illustre pour le Bani et le Niger supérieur, les variations de concentration des matières en suspension et celles des débits liquides. Les pics de concentration précèdent la crue hydrologique. Les concentrations ont considérablement diminué au moment du maximum de la crue suivant une décroissance assez régulière sur le Bani, plus variable sur le Niger. L'hystérésis de la relation concentrations-débits illustrée pour le Bani (Fig. 6) correspond à un phénomène classique en zone tropicale.

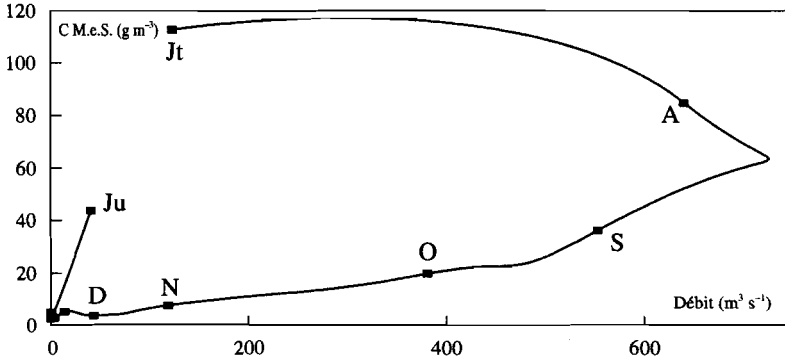


FIGURE 6.

Exemple de relation Concentration – Débits pour le Bani à Douna.

Suspended load concentration vs discharges for the Bani at Douna.

La figure 7 donne pour la période d'observation les histogrammes des concentrations moyennes mensuelles des matières en suspension et la courbe de variation des débits mensuels correspondants pour les trois stations principales du bassin amont. Les concentrations moyennes annuelles varient de 28 à 36 mg l^{-1} sur le Niger et de 53 à 59 mg l^{-1} pour le Bani ; ces valeurs sont très faibles en comparaison des observations effectuées dans la même zone climatique de l'Afrique ; ainsi, Gac (1980) donne dans son étude sur le bassin du lac Tchad des concentrations moyennes annuelles sur le Logone à Kousseri de 117 mg l^{-1} et 159 mg l^{-1} respectivement en année humide et sèche, et sur le Chari à N'Djaména, pour les mêmes années caractéristiques, de 73 et 97 mg l^{-1} . Sur le Sénégal (Orange, 1990) la concentration moyenne de la charge annuelle en suspension est de 230 mg l^{-1} sur neuf années de la décennie 80.

La variation des flux de matière est très dépendante de celle de l'hydrogramme de crue du Niger et du Bani, et les maximums d'exportations de matière coïncident avec la période des très hautes eaux. Les débits solides maximum ont atteint des valeurs de 100 à 130 kg s^{-1} à la station de Banankoro, de 160 à 200 kg s^{-1} à Koulikoro et de 60 à 120 kg s^{-1} sur le Bani à Douna (Olivry *et al.*, 1995b).

Le bilan annuel des exportations de matières en suspension est indiqué dans le tableau 2.

En terme d'érosion spécifique, les valeurs de la dégradation moyenne annuelle varient de 8,1 à 6,6 $\text{t km}^{-2} \text{an}^{-1}$ pour le Niger à Banankoro et le Niger à Koulikoro, et de 3,2 à 2,5 $\text{t km}^{-2} \text{an}^{-1}$ seulement, pour le Bani à Douna.

Ces très faibles dégradations, liées pour une part à la faible hydraulicité des cours d'eau, doivent être rapprochées de celles du bassin actif du fleuve

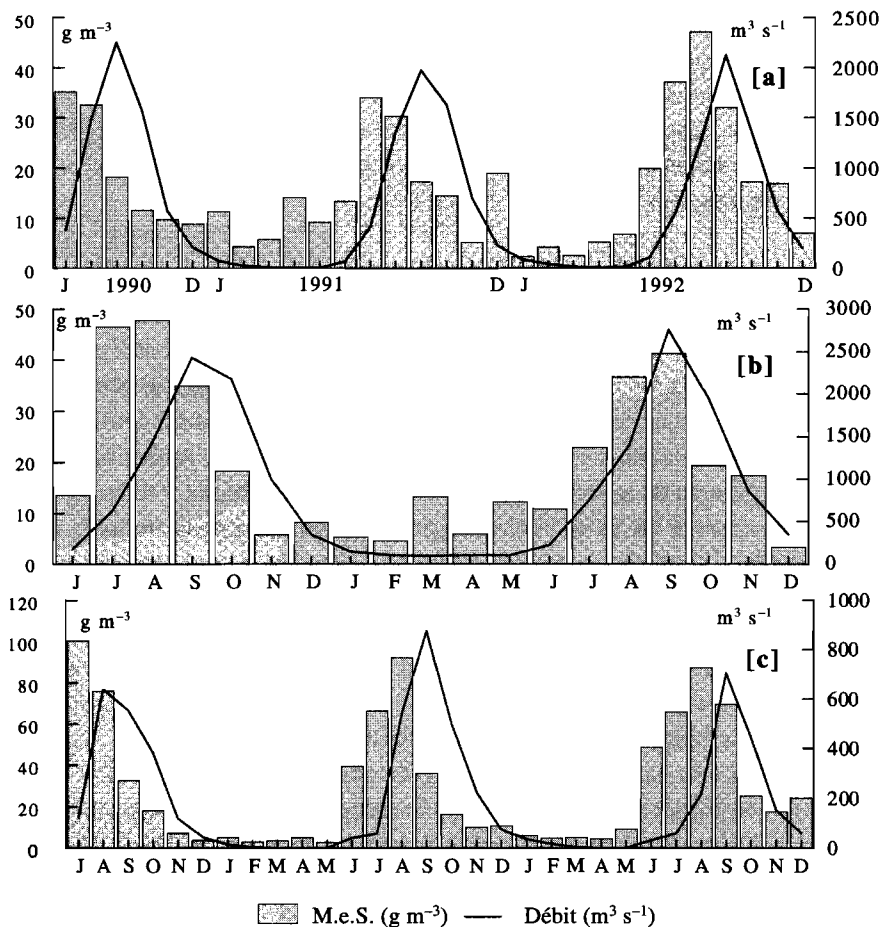


FIGURE 7

Concentrations mensuelles des suspensions et débits mensuels pour le Niger à Banankoro (a), le Niger à Koulikoro (b) et le Bani à Douna (c).

Monthly concentrations of suspended matters and monthly discharges for the Niger at Banankoro (a) and Koulikoro (b) and for the Bani at Douna (c).

TABLEAU 2.

Flux annuels de matières en suspension (en tonnes) sur le Niger et le Bani supérieurs.

Année hydrologique	Niger à Banankoro	Niger à Koulikoro	Bani à Douna
1990-1991	—	—	283 000
1991-1992	579 000	890 000	325 000
1992-1993	476 000	760 000	253 000

Sénégal dont la valeur moyenne est de $16,7 \text{ t km}^{-2} \text{ an}^{-1}$ sur 9 années récentes déficitaires (Gac et Orange, 1990).

Cette différence peut en partie s'expliquer par l'importance relative plus grande sur le bassin du Sénégal que sur le bassin du Niger, du plateau mandingue à couverture latéritique plus érodable. Les hauts bassins guinéens des deux fleuves sont moins sensibles à l'érosion.

B. Régime du transport des matières dissoutes

L'étude des transports des matières dissoutes en terme de concentrations, de flux et de variations saisonnières a été menée conjointement à celle des matières en suspension. Les concentrations sont comprises entre 30 et 80 mg l^{-1} pour le Niger à Banankoro, entre 20 et 100 mg l^{-1} pour le Bani à Douna, avec les plus fortes concentrations en fin de saison sèche et un minimum dès le début de la montée de la crue, période pour laquelle la phase de ruissellement est la plus intense en valeur relative par rapport à l'écoulement de base. L'augmentation progressive des concentrations pendant la crue annuelle traduit une contribution de plus en plus importante des apports d'origine souterraine. Enfin, à la décrue, avec la fin des écoulements superficiels, la phase de tarissement est marquée par une augmentation plus forte des concentrations.

L'amplitude des variations de concentrations est moindre pour le Niger à Koulikoro et le Niger à Ké-Macina. Les débits de saison sèche sont soutenus par les lâchures du barrage de Sélingué (volume de retenue de 2.10^9 m^3) ; ces apports de la retenue, essentiellement liés aux écoulements superficiels de la saison des pluies précédente, sont moins concentrés en éléments dissous.

La figure 8 illustre par quelques exemples ces variations de concentration au cours de l'année.

Les flux annuels de matières dissoutes observés en 1991 et en 1992 sont respectivement :

- de 690 000 et 840 000 t sur le Niger à Banankoro,
- de 960 000 et 936 000 t sur le Niger à Koulikoro,
- de 275 000 et 255 000 t sur le Bani à Douna.

La différence entre 1991 et 1992 sur les apports intermédiaires entre Banankoro et Koulikoro dont l'essentiel provient du Sankarani, varie du simple à plus du double. Cet aspect devra être précisé au cours des prochaines années de prélèvement.

Les flux spécifiques de matières dissoutes observés sont de l'ordre de $11 \text{ t km}^{-2} \text{ an}^{-1}$ sur le Niger à Banankoro, de $8 \text{ t km}^{-2} \text{ an}^{-1}$ sur le Niger à Koulikoro et seulement de $2,6 \text{ t km}^{-2} \text{ an}^{-1}$ sur le Bani à Douna.

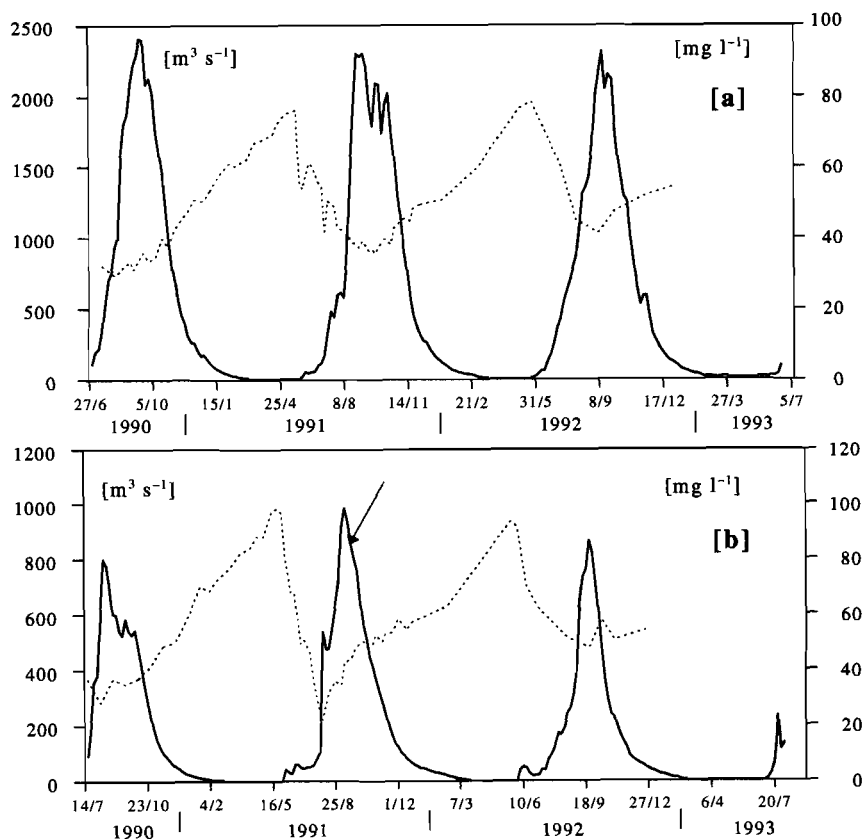


FIGURE 8.

Concentrations des matières dissoutes (courbe en points) et débits journaliers (trait plein) pour le Niger à Banankoro (a) et le Bani à Douna (b).

Dissolved matter concentrations (dotted line) and daily discharges (solid line) for the Niger at Banankoro (a) and the Bani at Douna (b).

C. Mesures isotopiques des eaux du Niger à Banankoro et du Bani à Douna

Deux séries de prélèvements ont été effectués par l'ORSTOM sur le fleuve Niger à Banankoro du 7/7/1990 au 17/4/1991 et sur le fleuve Bani à Douna du 9/7/1990 au 18/4/1991. Les analyses des isotopes stables ^{18}O et ^2H faites par l'AIEA permettent de donner un premier aperçu sur les eaux du bassin supérieur du Niger et du Bani et devraient être comparées aux résultats acquis sur les nappes souterraines de la région (Fontes *et al.*, 1991).

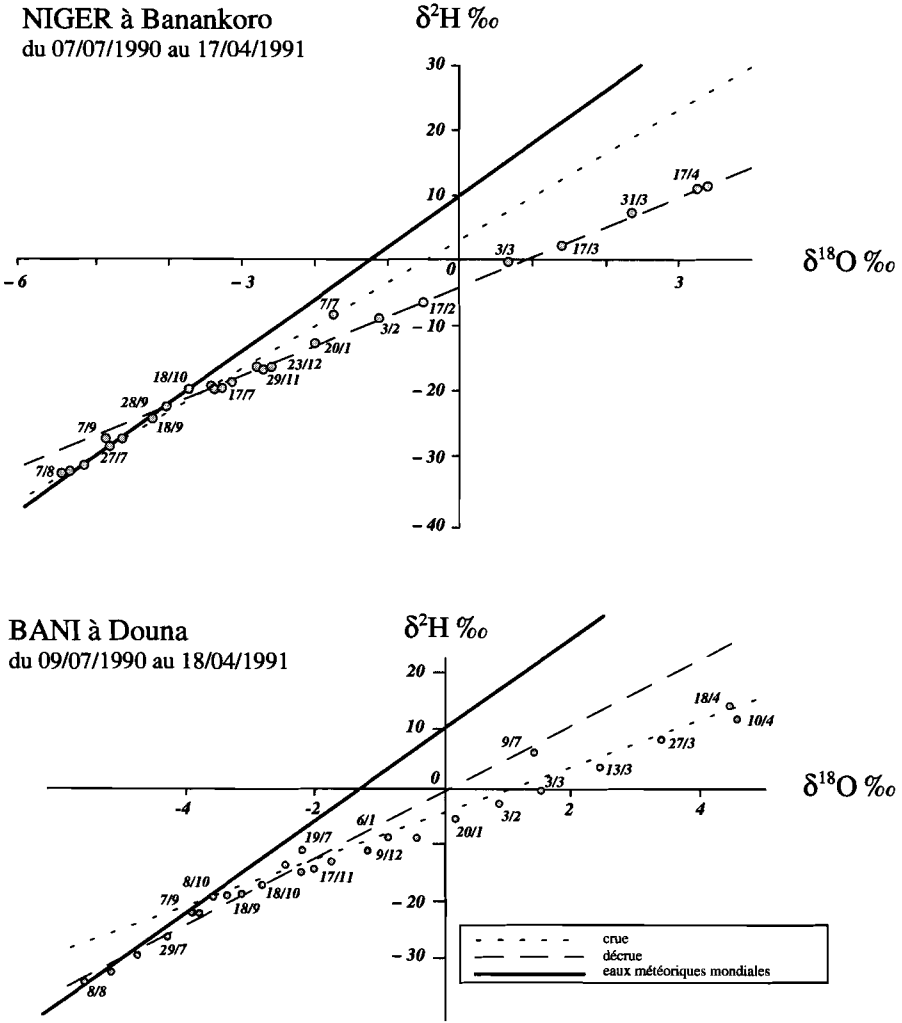


FIGURE 9.

Variations de la composition isotopique moyenne des eaux pour le Niger à Banankoro (a) et le Bani à Douna (b)

Fluctuations of the isotopical composition of waters for the Niger at Banankoro and the Bani at Douna.

Sur le Niger à Banankoro, l'évolution au cours de l'année est marquée au début de la saison des pluies (juillet) par une diminution rapide des teneurs en isotopes lourds, par lessivage direct. Un enrichissement débute en août alors que l'hivernage n'est pas terminé et que le débit du fleuve continue à augmenter. La nappe du socle qui existe dans cette région présente un horizon superficiel d'altérite épaisse perméable qui favorise un écoulement latéral de type ruissellement différé qui est évacué par le réseau de surface. Cet horizon est enrichi en isotopes sous l'effet de l'évaporation durant la saison sèche. Les premières pluies, par infiltration et effet piston, en permettent l'écoulement vers le Niger. En amont de Banankoro, à partir de Siguiri (Guinée), il existe quelques plaines d'inondation dont les grandes surfaces permettent un enrichissement par fractionnement isotopique dû à l'évaporation. Ces plaines se vidangent dans le fleuve et peuvent également jouer un rôle dans l'enrichissement observé. D'autres études ont montré qu'un enrichissement dû à cet horizon perméable avait lieu, mais tout au début de la saison des pluies (juin). Le retard observé à Banankoro pourrait être dû à la présence d'un front d'infiltration suivi d'un lessivage par les eaux d'infiltration (Gourcy, 1994).

Dès la décrue, l'évaporation domine et permet un enrichissement progressif en isotopes lourds des eaux du fleuve.

La relation $\delta^{18}\text{O} / \delta^2\text{H}$ montre que deux droites de régression peuvent être établies, l'une pour la période de crue et l'autre pour la période de décrue (Fig. 9). Les pentes de ces deux droites respectivement + 6,63 et + 4,58 indiquent une évaporation. Les points d'intersection de ces droites avec la droite des eaux météoriques mondiales donnent la composition de l'eau d'origine. Ces eaux se placent sur la droite de la chronique des eaux de pluies à Bamako ($\delta^2\text{H} = 5,8 * \delta^{18}\text{O} - 0,9$).

Sur le Bani, l'évolution au cours de l'année est très classique ; elle montre une diminution des teneurs durant la crue, due à l'apport des eaux de pluies. Dès le début de la décrue, l'évaporation agit sur la surface d'eau libre et un enrichissement en isotopes lourds par fractionnement isotopique a lieu.

La relation $\delta^{18}\text{O} / \delta^2\text{H}$ montre, là aussi, que deux droites ont pu être définies pour la crue et la décrue. Les pentes trouvées sont de + 5,81 et + 4,24 et correspondent à des eaux évaporées. Les points d'intersection avec la droite des eaux mondiales pour la crue et la décrue montrent que ces eaux sont les mêmes qu'à Banankoro. Les effets de continentalité et de latitude jouent un rôle négligeable. Les sources de ces deux fleuves se trouvent dans une région comprise entre les latitudes 8° et 13° nord et les longitudes 12° et 6° ouest.

III. BILAN ET VARIATION DES FLUX DE MATIÈRES DANS LA CUVETTE LACUSTRE

Au stade actuel des investigations, l'interprétation des résultats disponibles reste provisoire ; certains constats demanderont à être vérifiés par les mesures en cours de réalisation. La traversée de la cuvette lacustre et du Delta intérieur du Niger avec ses écoulements très lents, ses plaines d'inondation conduit à de notables modifications de la charge en suspension et dissoute du fleuve. On peut distinguer deux parties dans le Delta intérieur :

- une partie amont de vastes zones d'épandage encore largement inondées par la crue annuelle malgré le déficit hydropluviométrique, qui se termine au lac Débo, anévrisme majeur et permanent du réseau hydrographique de la région ;
- une partie aval où une géomorphologie très différente, caractérisée par la surimposition aux formes deltaïques antérieures d'un erg holocène, orienté est - ouest, conduit à observer un réseau hydrographique très diffus souvent commandé par les sillons interdunaires, avec des zones d'inondation plus réduites.

L'étude s'appuie sur les observations effectuées aux entrées amont du Delta (stations de Ké-Macina et Douna), aux sorties du Lac Débo et aux sorties du Delta aval à la station de Diré.

A. Bilan annuel des flux de matières

Le Niger et le Bani ont apporté au Delta un flux annuel de matières en suspension de 1 à 1,2 millions de tonnes en 1991 et 1992.

Le flux de matières dissoutes parvenant au Delta est de 1,2 millions de tonnes pour ces deux mêmes années.

Le bilan général de l'évolution de ces flux calculés sur l'année hydrologique 1992-1993 montre que la charge globale mesurée à Diré tombe à 790 000 t pour les suspensions et à 890 000 t pour les matières dissoutes. L'ensemble du Delta intérieur a retenu 244 000 t de suspensions et 300 000 t de sels.

Le tableau 3 donne le détail des pertes annuelles observées en 1992-1993. Les mesures intermédiaires effectuées aux sorties du Lac Débo montrent un comportement très différent des parties amont et aval du Delta intérieur.

Ainsi le bilan annuel met en évidence un piégeage de 331 000 t de suspensions avant le lac Débo et au contraire un gain de 87 000 t entre le lac Débo et Diré (Fig. 10).

Il y a décantation dans les plaines d'inondation de la zone amont de près d'un tiers de la charge solide alors que les phénomènes de reprise dans la zone aval excèdent largement la décantation. Le calcul des concentrations moyennes annuelles des matières en suspension (MES) suggère deux fonctionnements :

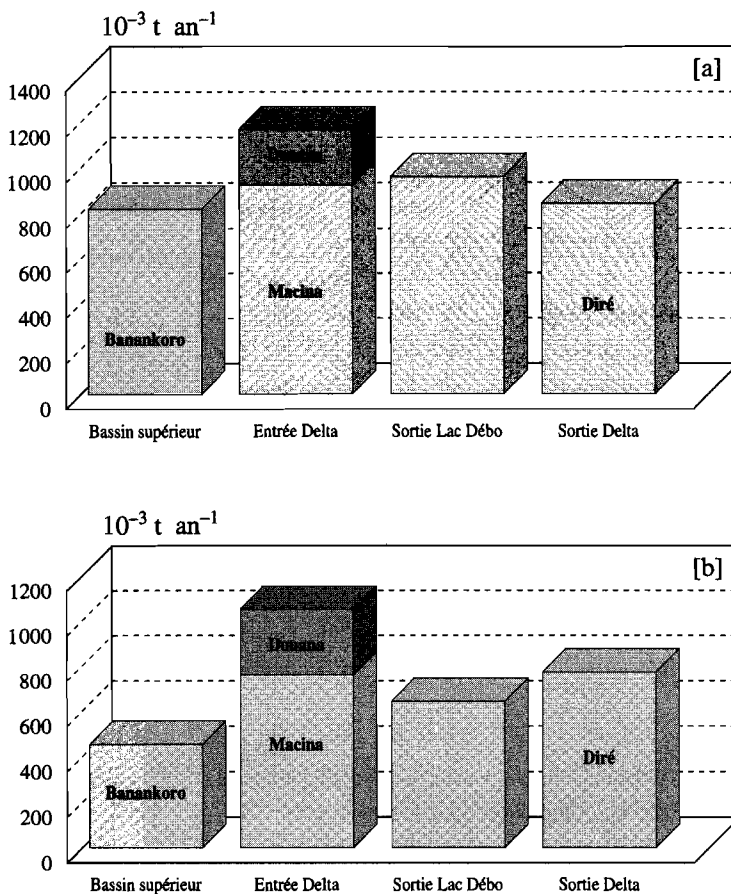


FIGURE 10.

Bilan annuel (1992-1993) des transports dissous (a) et particulaires (b) du fleuve Niger.
Annual budget (1992-1993) of the dissolved load (a) and suspended load (b) of the Niger river.

- **partie amont du Delta** : la baisse de concentration des MES ($-8,4 \text{ mg l}^{-1}$) pourrait indiquer qu'au piègeage de matière lié aux pertes en eau dans les plaines d'inondation s'ajoute une décantation des suspensions des eaux faisant retour au réseau en décrue.
- **partie aval du Delta** : la concentration augmente par rapport aux sorties du lac Débo ; les apports complémentaires, dus probablement aux reprises de berges par effet du vent ou dépôts de poussières atmosphériques mais aussi à des possibles transferts du dissous au particulaire d'origine biolo-

TABLEAU 3.

Bilan des flux hydriques et de matières dans le Delta intérieur du Niger
Année 1992 - 1993

	Écoulement 10 ⁹ m ³	Suspensions		Matières dissoutes	
		tonnage 10 ³ t	concentration g m ⁻³	tonnage 10 ³ t	concentration g m ⁻³
Entrées					
Ké-Macina + Douna	24,22	1 034	(42,7)	1 189	(49,1)
Pertes amont	3,72	331		213	
Sorties du lac Débo	20,5	703	(34,3)	976	(47,6)
Pertes aval	2,46	- 87 (gain)		87	
Sorties à Diré	18,04	790	(43,8)	889	(49,2)
Pertes totales	6,18	244		300	

gique (diatomées), s'associent à l'évaporation au fil des écoulements pour reconcentrer les suspensions à Diré.

Les concentrations moyennes de la matière dissoute n'ont pratiquement pas varié dans la traversée du Delta intérieur.

Un dépôt de 300 000 t de sels dans la cuvette lacustre, dont plus des 2/3 dans la partie amont, ne représente qu'une lame équivalente de 1/100^e de mm sur la superficie des zones inondées dans la période déficitaire actuelle, mais les conséquences à long terme de tels dépôts devraient être perceptibles ; c'est bien ce que montrent les cartes de conductivité moyenne des nappes superficielles établies par la Direction nationale de l'hydraulique où un enrichissement en sel apparaît nettement par rapport aux nappes extérieures à la zone ; en outre, dans les lacs de rive droite du Niger, des dépôts et encroûtements salins sont signalés. Il n'est pas exclu qu'un fonctionnement du type lac Tchad (dunes du Kanem) limite de manière conséquente l'incidence de ces pertes en sels dans le Delta proprement dit (Roche, 1973). La carte de la figure 11 illustre les bilans annuels des flux aux stations d'observation du Delta intérieur. Le suivi des variations mensuelles des flux de matières amène quelques informations complémentaires sur le fonctionnement hydro-dynamique du Niger dans sa traversée du Delta.

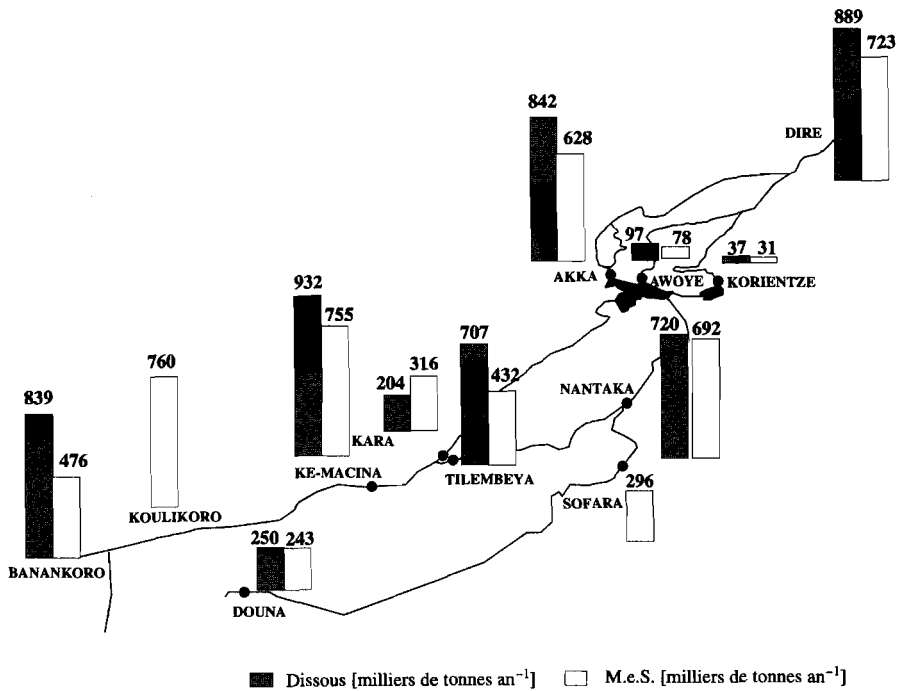


FIGURE 11.

Variation spatiale des transports dissous et particuliers du fleuve Niger en 1992-1993.
Spatial variation of the dissolved and sediment transports for the Niger river in 1992-1993.

B. Variations saisonnières des flux de matières

Le bilan mensuel des flux de matières en suspension a été établi entre les entrées amont et les sorties du lac Débo et entre le lac Débo et la sortie aval à Diré sur l'année hydrologique 1992-1993.

Les flux de sortie du Delta amont sont supérieurs aux entrées en mai, juin et juillet ; la fin de la saison des basses eaux se manifeste par une reprise des berges dans le lit mineur du fleuve. En août, septembre, octobre et novembre, avec l'inondation de la crue annuelle, des pertes importantes sont observées ; elles sont maximales en septembre avec un piégeage de 230 000 t. À partir de décembre, il y a restitution d'une petite partie du stock piégé.

Sur le Delta aval, le comportement du système est tout à fait différent ; seul les mois de juillet, août et septembre montrent une perte en sédiments, avec

un maximum en août qui atteint seulement 40 000 t. À partir de novembre, et en décembre et janvier, les exportations de matières observées à Diré excèdent d'environ 40 000 t mois⁻¹ les flux mesurés à la sortie du lac Débo.

Un léger excédent des sorties subsiste de février à juin. Ce gain de matières en suspension a déjà été évoqué dans le bilan annuel ; limité à la période novembre-juin, il correspond, en saison sèche, à l'observation de vents forts (harmattan) orientés dans la direction principale du fleuve à l'aval du lac Débo qui favorisent une érosion des berges et une reprise des dépôts de fond dans les biefs les moins profonds. C'est la période d'apports éoliens (sables dunaires) des brumes sèches et de poussières atmosphériques ; c'est aussi une période de blooms planctoniques (par exemple la transformation de silice dissoute en silice du test des diatomées). La position septentrionale du Delta aval plus proche des confins sahariens explique ce fonctionnement bien différencié de celui du Delta amont. La figure 12 illustre ces variations de flux des suspensions pour les deux parties du Delta et pour l'ensemble de la cuvette lacustre.

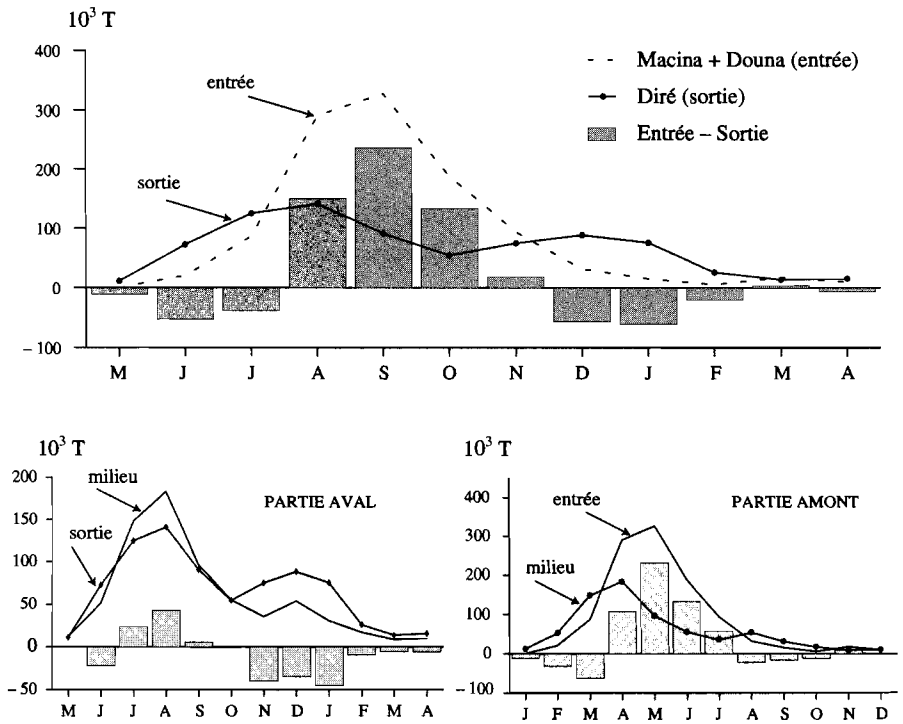


FIGURE 12

Variations mensuelles des transports particuliers du fleuve Niger en 1992-1993.

Monthly balance of the suspended load fluxes of the Niger river in 1992-1993.

Les variations mensuelles des flux de matières dissoutes montrent un schéma beaucoup moins différencié entre les deux parties du Delta intérieur. Sur la partie amont, les pertes sont maximales en septembre, mois de mise en eau des plaines d'inondation de la cuvette lacustre, avec 240 000 t ; les pertes du mois d'octobre atteignent 55 000 t. En novembre, décembre et janvier, une vidange vers le fleuve d'une partie des volumes de l'inondation ramène une charge dissoute excédentaire par rapport aux entrées, qui ne dépasse pas au total 40 000 t.

Dans la partie aval, les pertes sont plus étalées dans le temps (d'août à décembre) avec un maximum en septembre limité à 40 000 t.

C. Bilan des éléments dissous

Les bilans correspondent à la période allant du 1^{er} juillet 1990 au 30 juin 1991 à Banankoro (Fig. 13).

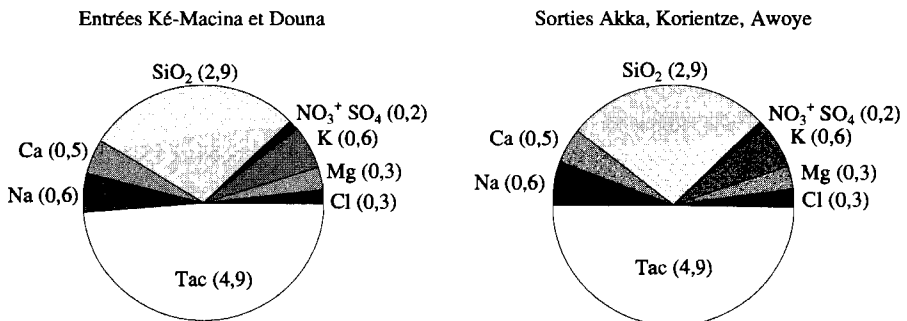


FIGURE 13.

Bilan de matières dissoutes (10³ tonnes an⁻¹).

Budget of dissolved matters (10³ tons year⁻¹).

Les premiers résultats acquis indiquent que les eaux du fleuve Niger et du Bani sont dans l'ensemble peu minéralisées, avec des conductivités moyennes de 50 à 80 $\mu\text{S cm}^{-1}$, augmentant régulièrement durant l'étiage et diminuant fortement dès les premières crues. Le pH est légèrement basique toute l'année, entre 7,1 et 8. En ce qui concerne les éléments dissous, la silice et les bicar-

bonates sont les espèces dominantes, leur somme dépassant toujours 75 % du poids total d'éléments dissous. Les bilans de matières dissoutes montrent qu'en début de crue (mai) les eaux à l'entrée du Delta sont peu minéralisées alors qu'elles ont été enrichies à la sortie pendant la saison sèche. Il y a ensuite dilution des eaux à l'aval et augmentation des débits amont. On constate par ailleurs un assez bon équilibre entre les apports au Delta et les sorties (Gourcy et Sondag, 1995).

L'effet de l'évaporation est un facteur prédominant. Les faibles teneurs en éléments dissous et leur variation peu importante ne permettent pas une analyse fine du fonctionnement du Delta. Les apports atmosphériques et les liens avec la nappe superficielle sont masqués du point de vue chimique à l'échelle d'étude adoptée.

Durant un cycle hydrologique, les sels sont, dans les marais, probablement pris par la végétation et accumulés dans les sols des lacs et des mares temporaires. Une partie peut repartir avec les vents lorsque les lacs s'assèchent. Les sels suivent un cycle complexe qui est accentué par une régression constante de la hauteur de l'inondation.

CONCLUSION

Au stade actuel des mesures disponibles, il est difficile d'aller plus loin dans l'interprétation du fonctionnement de l'hydrosystème et en particulier de celui du Delta intérieur. Des mesures complémentaires sur plusieurs années permettront de vérifier la répétition des phénomènes observés. Afin de mieux cerner le fonctionnement hydrochimique du Delta intérieur et de calculer des modèles de dilution, l'observation sur les stations principales doit être maintenue avec une fréquence régulière surtout durant la crue. Un suivi chimique annuel des pluies est nécessaire pour les corrections des apports atmosphériques, sans doute non négligeables à cause des forts vents de poussière régnant sur le milieu.

Le Delta intérieur du Niger ne correspond pas à un bassin sédimentaire ancien du type de celui du lac Tchad où l'épaisseur des dépôts traduit une longue histoire géologique. L'importance relativement faible des dépôts de matières, caractérisant ici les périodes de faible hydraulicité du Niger, doit être ramenée à la grande extension des zones d'inondation et à une distribution géographique des zones de dépôts qui a beaucoup évolué depuis le Quaternaire récent.

RÉFÉRENCES

- Brunet-Moret (Y.), Chaperon (P.), Lamagat (J.-P.) et Molinier (M.), 1986. *Monographie hydrologique du fleuve Niger* – tome I : Niger supérieur, 396 p. ; tome II : Cuvette lacustre et Niger moyen, 506 p., Coll. *Monog. Hydrol.* n° 8, Orstom, Paris.
- Fontes (J.-Ch.), 1976. Isotopes du milieu et cycles des eaux naturelles : quelques aspects. Thèse Doct. État Sciences, Univ. P. et M. Curie, Paris, 208 p.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), Edmunds (W.M.), Guerre (A.), Travi (Y.), 1991. « Paleorecharge by the Niger River (Mali) Deduced From Ground-water Geochemistry ». *Water Resources Research*, 27 (2) : 199-214.
- Gac (J.Y.), 1980. « Géochimie du bassin du lac Tchad. Bilan de l'altération, de l'érosion et de la sédimentation ». *Travaux et documents Orstom*, 123 : 251 p.
- Gac (J.Y.) et Orange (D.), 1990. Cadre naturel du haut bassin-versant du fleuve Sénégal. Rapp. Orstom Dakar. Projet CEE/EQUESEN n° TS-2-0-198-F-EDB, 150 p.
- Gourcy (L.), 1994. Fonctionnement hydrogéochimique de la cuvette lacustre du fleuve Niger (Mali). Thèse Doct. Sciences, Univ. Paris XI, Orsay, 271 p.
- Gourcy (L.) et Sondag (F.), 1995. Premiers résultats sur la distribution et le bilan des éléments majeurs dissous dans la cuvette lacustre du fleuve Niger (Mali) (année 1990-1991). In *Grands Bassins Fluviaux* (J.-C. Olivry et J. Boulègue, Ed. Sci.), Actes du Colloque PEGI, 22-24 Novembre 1993. Coll. Colloques et Séminaires Orstom, p. 293-304.
- Olivry (J.-C.), Bricquet (J.-P.), Bamba (F.) et Diarra (M.), 1995a. « Le régime hydrologique du Niger supérieur et le déficit des deux dernières décennies ». In *Grands Bassins Fluviaux* (J.-C. Olivry et J. Boulègue Éd. Sci.), Actes du Colloque PEGI, 22-24 Novembre 1993. Coll. Colloques et Séminaires Orstom, p. 251-266.
- Olivry (J.-C.), Gourcy (L.) et Toure (M.), 1995b. « Premiers résultats sur la mesure des flux de matières dissoutes et particulaires dans les apports du Niger au Sahel ». In *Grands Bassins Fluviaux* (J.-C. Olivry et J. Boulègue Éd. Sci.), Actes du Colloque PEGI, 22-24 Novembre 1993. Coll. Colloques et Séminaires Orstom, p. 281-292.
- Orange (D.), 1990. Hydroclimatologie du Fouta Djallon et dynamique actuelle d'un vieux paysage latéritique. Thèse, Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 220 p.
- Roche (M.-A.), 1973. Traçage naturel salin et isotopique des eaux du système hydrologique du lac Tchad. Thèse de Doctorat, Univ. Paris VI, 398 p.

Interactions eaux-roches en milieu périglaciaire :
exemple des carbonates secondaires
de la presqu'île de Brögger (Spitzberg)

*Water-rock interaction under periglacial conditions:
example of the secondary carbonates
of the Brögger Peninsula (Spitzbergen)*

C. MARLIN, L. DEVER

RÉSUMÉ – Le processus conduisant à la précipitation de carbonates secondaires en climat périglaciaire a été étudié *in situ* dans différents sites du Kongsfjord (côte ouest du Spitzberg, archipel du Svalbard). Les variations chimiques et isotopiques de la phase liquide, suivies de la période estivale à la reprise en gel du sol sur un site-référence (« cote 80 »), permettent de proposer un modèle de précipitation de calcite par effet de froid. Les observations micromorphologiques ainsi que les compositions chimiques et isotopiques des carbonates secondaires des différents sites montrent que ces néogénèses peuvent constituer de bons enregistreurs des conditions de milieu et de la mise en place d'une pédogenèse active dans ce système.

Mots clés : Spitzberg, carbonates, hydrologie, géochimie, isotopes, mollisol, climat périglaciaire.

*

ABSTRACT – Measurements of the isotopic and chemical contents of soil water and carbonates at different field sites in Spitzbergen were undertaken to study the precipitation conditions of soil secondary calcites under the current periglacial climate.

A main experimental site ("cote 80") has been established located on a fluvio-glacial terrace at 80 m.a.s.l. near Ny Alesund (79 °N, 12 °E). The active layer is at around 1.2 m depth on a continuous permafrost. The equipment has permitted a periodic sampling of solutions and gases, and measurements of

soil temperatures during summer. Solids were sampled concurrently at different sites of the Kongsfjord. This study of temporal geochemical processes was also extended to include spatial variation.

The soil temperatures measured every 5 cm from the surface to the permafrost show that the freezing fronts move from both the surface and permafrost, converging at around 0.6m depth where the system is closed. During the freezing process, the ^{18}O content of the water is depleted according to a Rayleigh distillation type equation. An evaporation of the solution occurs in the middle of the profile (0.6-0.9 m) : the vapour displacement is carried out without any loss towards the atmosphere. During the beginning of the freezing period, the solute content increases in the residual water according to the distribution coefficient between water and ice. An oversaturation with respect to calcite is then obtained. Calcite precipitation occurs in a second stage as indicated by the simultaneous decrease of the calcite saturation index and increase of the concentration of non-interactive elements.

Chemical and isotopic (^{18}O , ^2H , ^{13}C et ^{14}C) analyses have been made on the different samples with a mineralogical description of the carbonate coatings obtained by SEM and microprobe analyses. Secondary calcites are present as coatings below pebbles. The carbonate coatings, up to 1 mm in thickness, are made up of a maximum of five phases, as shown by SEM. The chemical analyses show that the coatings are made of pure and low magnesium calcite. The enriched signature in carbon 13 of the carbonates (up to + 8,7‰) and the oxygen-18 contents indicate a calcite precipitation from continental water in non-equilibrium conditions with biogenic carbon. The isotopic values result from a mixing between recent calcites and "old" calcites. The recent calcites (external phases) are probably in isotopic equilibrium with the present day solutions. The "old calcites" (internal phases) have precipitated under colder conditions than today. The low radiocarbon activities (10.2 to 24.8 pcm) of the "cote 80" site indicate that the "old calcites" have precipitated during the last interglacial period or an interstadial period of the Pleistocene for the site of "cote 80" which is the site with the longest history. At the other sites, the precipitation have begun at different periods of the Holocene. The good relationship between the carbon-14 activity and the carbon-13 content indicates that the beginning of the pedogenesis is not identical at all sites and is dependent on the timing of deglaciation and vulnerability of rocks to frost-weathering.

Keywords : Spitzbergen, carbonates, hydrology, geochemistry, isotopes, active layer, periglacial climate.

*

INTRODUCTION

La formation de carbonates secondaires précipités par effet de froid en climat périglaciaire actuel a été étudiée sur différents sites du Kongsfjord, sur la côte ouest du Spitzberg. Le processus de précipitation a été mis en évidence par l'analyse des caractéristiques chimiques et isotopiques (^{18}O , ^2H , ^{13}C , ^{14}C) des fluides interstitiels et des carbonates secondaires d'un site-référence (« cote 80 »). Cette première étude dont nous présentons ici les principaux résultats a été menée sur une couche active durant l'été et la période de reprise en gel de l'année 1989, du 20 juillet au 11 septembre (Marlin, 1991 ; Marlin *et al.*, 1993 ; Courty *et al.*, 1994). Deux autres campagnes de terrain, en 1991 et en 1994, ont permis d'effectuer un échantillonnage de carbonates secondaires sur neuf autres sites de typologie différente, autour du Kongsfjord sur la côte ouest du Spitzberg (Fig. 1).

Le site de la « cote 80 » est localisé près de Ny Ålesund sur la rive sud du Kongsfjord (79 °N, 12 °E). Composé de sédiments fluvio-glaciaires anciens (Pléistocène au moins) et recouvert d'un sol brun arctique d'une vingtaine de centimètres d'épaisseur, le profil est essentiellement composé de galets de phyllites, de micaschistes, de quartzites et dans une moindre part de calcite et de dolomite permo-carbonifère, ensemble de roches représentatif de la géologie régionale sur la presqu'île de Brögger. Pendant l'été, la teneur en eau pondérale varie de 16 % en surface à 2 % dans la partie basse du profil. L'intérêt de ce site réside dans la présence quasi-systématique de néogénèses carbonatées secondaires sur la face inférieure des éléments grossiers d'un profil de sol essentiellement silicaté.

Le climat de la région étudiée est polaire océanique marqué par deux saisons thermiques, l'été ($T_{\text{mensuelle}}$ maximale de + 5,0 °C) et l'hiver ($T_{\text{mensuelle}}$ minimale de - 14,3 °C). La température moyenne annuelle à Ny Alesund est de - 6.2 ± 1.3 °C pour une pluviométrie moyenne de 375 ± 93 mm dont 80 % environ sont sous forme solide (données de la période 1974-1991 *in* Marlin, 1991). Sous un tel climat, caractérisé par un seul cycle annuel gel-dégel, une couche active d'environ 1,5 m d'épaisseur se met en place de juin à septembre sur un permafrost continu.

Au site « cote 80 », les températures journalières du sol ont été mesurées à l'aide de thermistances jusqu'à 1 mètre de profondeur. L'eau du sol a été collectée par bougies poreuses disposées dans des sondages individuels tous les 5 cm, de la surface à 1 mètre de profondeur. L'échantillonnage des solutions du sol a été réalisé une fois par semaine durant l'été et une fois par jour durant la période de reprise en gel. Le pH et la conductivité électrique ont été mesurés sur le terrain. Les analyses chimiques ont été réalisées par chromatographie ionique et les mesures des teneurs isotopiques ont été menées sur

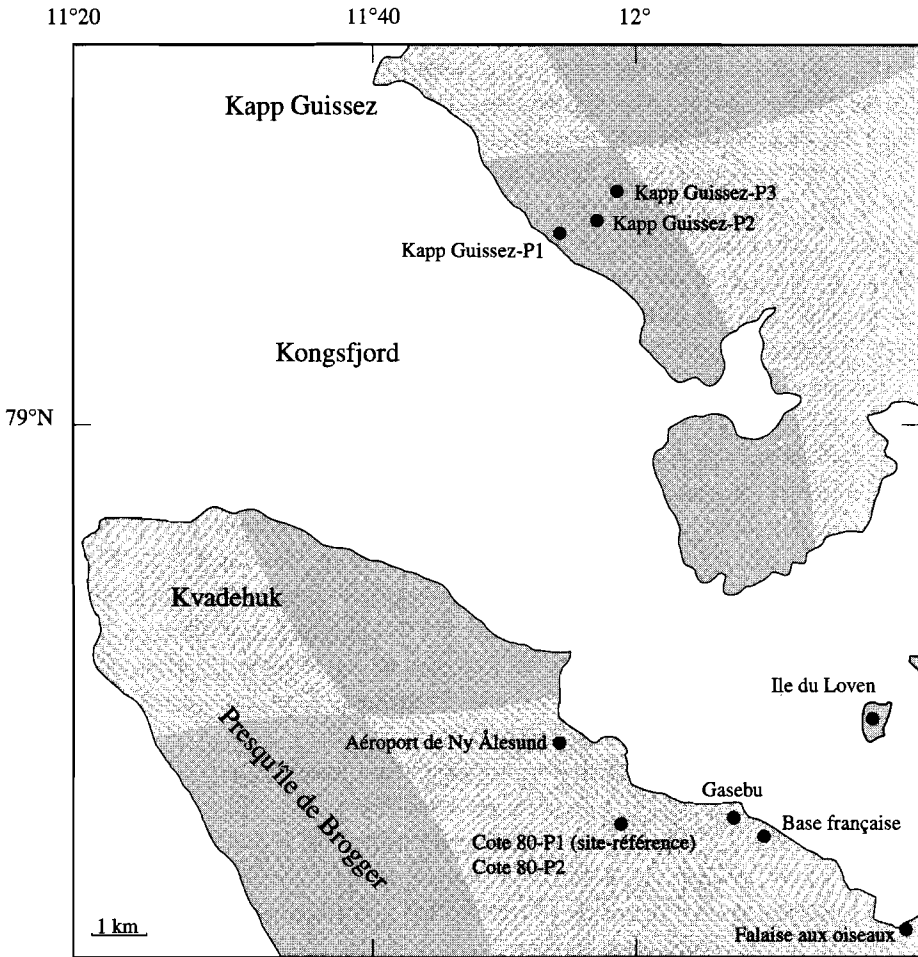


FIGURE 1.

Carte de localisation des sites d'étude autour du Kongsfjord (côte ouest du Spitsberg, Archipel du Svalbard).

Location map of study sites around the Kongsfjord (west coast of Spitsbergen, Svalbard archipelago).

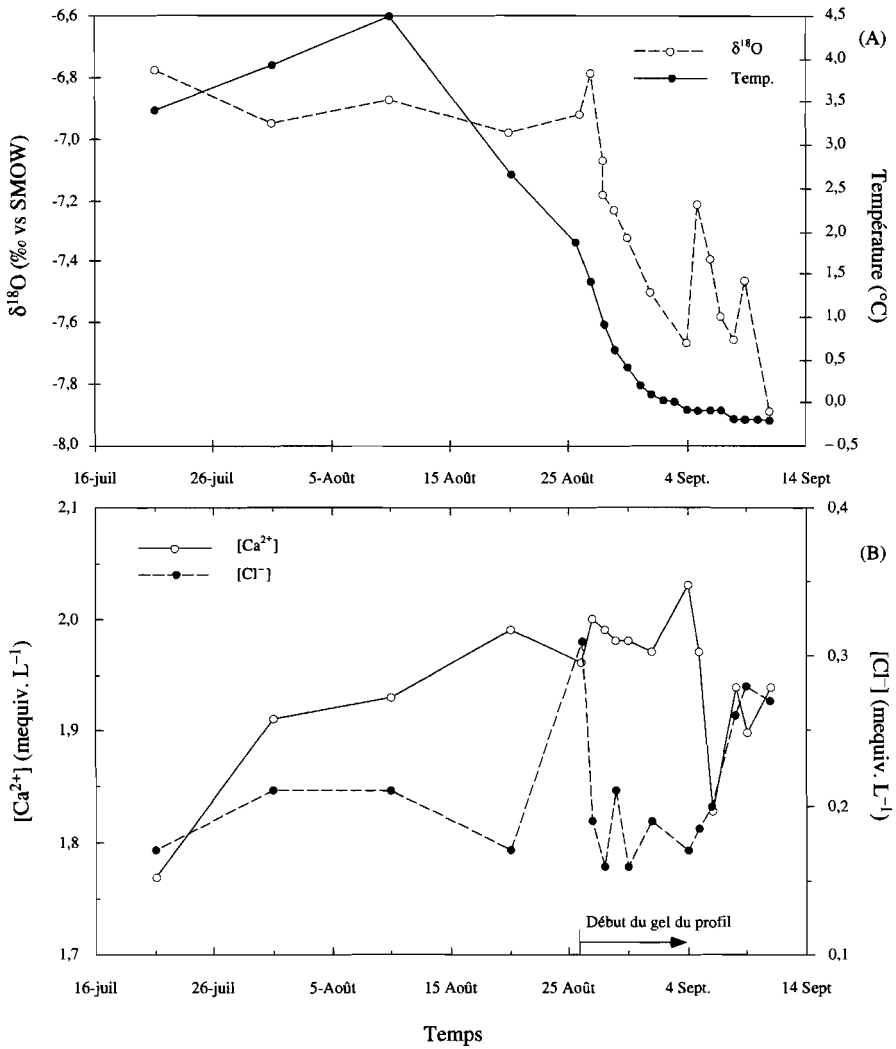


FIGURE 2.

Variations dans le temps des teneurs en ^{18}O de l'eau et de la température du sol (A) et des teneurs en Ca^{2+} et en Cl^- (B) à 70 cm de profondeur (site de la « cote 80 »).

Variations through time of (A) the soil temperature and of the ^{18}O contents of the soil water and of (B) Ca^{2+} and Cl^- contents at 70 cm depth (site of « cote 80 »).

l'eau ($\delta^{18}\text{O}$, $\delta^2\text{H}$), sur le carbone inorganique total dissous ($\delta^{13}\text{C}$) et sur les carbonates secondaires ($\delta^{13}\text{C}$, A^{14}C).

RÉSULTATS ET DISCUSSION

Teneur en oxygène-18 de l'eau (site « cote 80 »)

Durant la période d'observation estivale (20 juillet - 25 août), les températures du sol sont positives jusqu'à environ 1 m de profondeur. La forte diminution des températures de l'air au début de la phase de reprise en gel, après le 25 août, induit une brusque diminution des températures de la couche active jusqu'à une valeur moyenne de $-0,3^\circ\text{C}$ sur l'ensemble de la couche gelée, le 11 septembre (Marlin, 1991). Durant cette période, deux ondes de gel, l'une venant de l'atmosphère et l'autre du permafrost, progressent dans le profil en sens opposé pour se rejoindre à une profondeur moyenne de 60-70 cm. Comme l'eau localisée dans la porosité des sols peut rester liquide même sous des températures négatives (Anderson et Morgenstern, 1973), il a été possible de prélever le dernier échantillon d'eau le 11 septembre alors que la température du sol était de $-0,3^\circ\text{C}$.

Durant la phase de reprise en gel, les teneurs en ^{18}O à différentes profondeurs, en particulier à -70 cm, diminuent de $-6,8$ à $-7,9\%$ vs SMOW (Fig. 2). Cette variation isotopique, synchrone de la diminution de la température du sol, doit donc être reliée au gel des formations superficielles. À l'équilibre isotopique, le facteur de fractionnement entre l'eau et la glace est de 1,0031 (O'Neil, 1968). La glace étant enrichie en ^{18}O par rapport à l'eau, par effet de bilan de masse isotopique, l'eau résiduelle se trouve alors appauvrie. Cet appauvrissement peut être décrit par une équation du type distillation de Rayleigh :

$$\delta - \delta_0 \approx \epsilon_{g/l} \ln f \quad (1)$$

où : δ correspond à la composition isotopique de l'eau ;

δ_0 est la composition initiale de l'eau avant le gel ;

$\epsilon_{g/l}$ est le facteur d'enrichissement isotopique entre la glace et l'eau liquide ;

f est la fraction résiduelle de l'eau soumise au gel.

Selon l'équation (1), 35 % de l'eau du sol est gelée lors du dernier prélèvement d'eau, le 11 septembre.

Des profils moyens en oxygène-18 ont été réalisés en utilisant, pour chaque point de mesure, x , une moyenne glissante de trois mesures consécutives ($x - 5$ cm, x et $x + 5$ cm) (Fig. 3). En effet, les prélèvements ayant été effectués par bougies poreuses, en fonction de la teneur en eau et des propriétés hydrodynamiques des sédiments étudiés, il est possible qu'une bougie poreuse,

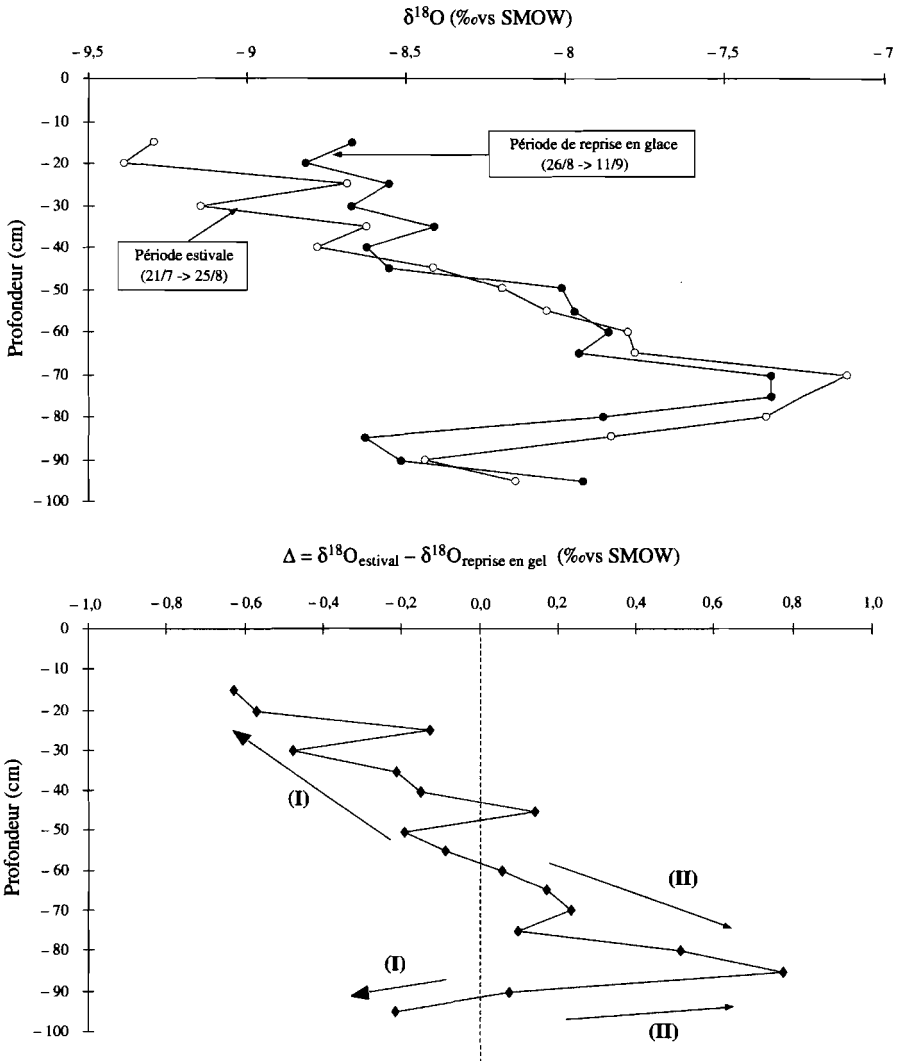


FIGURE 3.

Profils moyens en ^{18}O des solutions du sol prélevées en période estivale et de reprise en gel au site de la « cote 80 ».

Mean profiles in the ^{18}O contents of soil solutions sampled during summer and the following freezing phase (site of « cote 80 »).

placée à une profondeur donnée, intègre aussi bien les quelques centimètres de sédiments autour de la bougie elle-même que plusieurs centimètres sur une sphère d'influence supérieure à 5 cm autour de la bougie, ce qui nous a conduit dans ce cas à considérer les prélèvements effectués avec les bougies voisines.

Les variations observées dans ces profils moyens en oxygène-18 en période estivale et au début du gel du sol, sont significatives devant l'incertitude des mesures ($\pm 0,2\%$) et devant les écarts-types calculés (de 0,9 à 0,5 dans la partie 5-35 cm, et, de 0,5 à 0,1 dans la partie inférieure à 35 cm) par rapport aux variations observées (de 2,3 %). Ainsi, les profils indiquent une zone d'enrichissement isotopique dans la partie centrale du profil (60-90 cm) et d'appauvrissement de part et d'autre (Fig. 3). Cette répartition isotopique verticale rendrait compte d'un déplacement de l'eau sous forme vapeur vers les pôles froids, *i.e.* l'atmosphère et le permafrost, selon un mécanisme de cryodessiccation lors du regel du sol (Jame and Norum, 1980; Van Vliet-Lanoé, 1985). Le déplacement de vapeur peut être réalisé en système clos, sans perte vers l'atmosphère entre les niveaux gelés. Ce phénomène est aussi mis en évidence dans le profil moyen d'excès en deutérium où l'on observe une zone d'évaporation des solutions autour de 70 cm (Marlin *et al.*, 1993). Si l'on s'intéresse au profil d'été, en absence de gel induit par l'atmosphère, l'existence et la persistance d'une zone d'enrichissement pendant l'été témoignent (1) d'un héritage des phases de reprise en gel précédentes; les solutions prélevées sont donc principalement des eaux résiduelles des années passées et dont la signature isotopique a déjà été modifiée par un ou plusieurs cycles gel-dégel; et, (2) d'un très faible renouvellement des solutions interstitielles au cours de la période estivale, c'est-à-dire durant la période hydrologiquement active sous ces latitudes. La teneur moyenne en oxygène-18 des eaux du sol en été ($-8,2\%$) est supérieure à la teneur moyenne des précipitations de juillet et août 1989 ($-11,1\%$), ce qui confirme bien la faible participation des pluies estivales de 1989 à l'infiltration. Toutefois, cette teneur moyenne des profils, comparée à celles des précipitations moyennes ($-8,4\%$ pour la période 1964-1976; données de l'AIEA) témoigne bien d'une recharge estivale mais pluri-annuelle.

Hydrochimie

Entre la période estivale et la période de reprise en gel, les eaux interstitielles du profil de la « cote 80 » présentent des variations de minéralisation. En effet, de juillet à août 1989, les conductivités électriques des solutions varient de 150 à 300 $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ et diminuent autour de 100 $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ lors de la période de gel, rendant compte d'une diminution globale des teneurs ioniques des eaux du sol. Ces eaux présentent un faciès hydrochimique bicarbonaté calcique. Tous les ions majeurs ne présentent pas de diminution. Si les espèces

ioniques impliquées dans le système calco-carbonique (carbone total inorganique dissous (CITD), calcium et magnésium) montrent une diminution de leurs concentrations, les autres espèces comme les chlorures, indiquent, quant à elles, de faibles augmentations de concentration (Fig. 2). Ces deux tendances pourraient résulter de trois processus simultanés (Marlin *et al.*, 1993) :

- 1) Pendant le gel de l'eau, avec une vitesse de gel suffisamment faible, les ions se répartissent entre les phases eau et glace selon un coefficient de distribution spécifique, k :

$$k = [x]_{\text{glace}} / [x]_{\text{eau}} \quad (2)$$

où $[x]$ est la concentration de l'ion considéré dans la glace et l'eau.

Ce coefficient est, dans la plupart des cas, inférieur à 1 (Burton *et al.*, 1953 ; Leung and Carmichael, 1984 ; Sletten, 1988). Ainsi, par effet de bilan de masse chimique, les concentrations ioniques augmentent dans les solutions résiduelles (Fig. 2). Cependant, aucune quantification précise n'a été possible puisque toute modification de la cinétique de gel modifie largement ce coefficient de distribution (Hallet, 1976).

- 2) Pendant la période de gel, l'évaporation induite par la cryodessiccation est plus importante dans le dernier niveau à geler, expliquant le pic de concentration à 70 cm de profondeur. Cette augmentation peut conduire à la sursaturation des solutions vis-à-vis de la calcite.
- 3) Le calcium, élément incorporé dans une phase carbonatée, montre d'abord une augmentation globale de concentration similaire à celle observée pour les ions Cl^- en période estivale (Fig. 2). Cependant, l'augmentation en calcium est limitée par le produit de solubilité du carbonate solide, K_s . Durant la période de gel, les solutions deviennent légèrement sursaturées vis-à-vis de la calcite. Dès que les solutions du sol commencent à geler, la précipitation de calcite débute comme l'indique la diminution de l'indice de saturation vis-à-vis de ce minéral et la variation du pH de 8,5 à 7,9 (Marlin *et al.*, 1993). Cependant, la tendance générale de la baisse des teneurs en calcium montre des oscillations qui rendent compte d'une compétition entre deux processus : exclusion ionique entre la glace et l'eau résiduelle lors du gel des solutions et incorporation ionique dans le solide précipité.

Teneurs en carbone 13 du CITD

Avant la reprise en gel du sol, les teneurs en ^{13}C du carbone total inorganique dissous sont proches de -10‰ (Marlin *et al.*, 1993). En introduisant les facteurs de fractionnement entre ces espèces carbonées et le CO_2 gaz dans l'équation de bilan de masse isotopique CITD-espèces carbonées, il est possible

de vérifier l'équilibre potentiel de la phase gazeuse avec la solution en comparant valeurs mesurées et valeurs calculées :

$$\delta^{13}\text{C}_g \text{ calculé} = \delta^{13}\text{C}_{\text{CITD}} - \frac{(a)\epsilon_{g-a} + (b)\epsilon_{g-b} + (c)\epsilon_{g-c}}{(\text{CITD})} \quad (3)$$

où :

(a),(b),(c) indiquent respectivement les molarités en acide carbonique, en bicarbonate et en carbonate ;

$\text{CITD} = a + b + c$;

ϵ_{g-a} , ϵ_{g-b} , et ϵ_{g-c} sont les facteurs de fractionnement de l'acide carbonique, du bicarbonate, du carbonate vis-à-vis du CO_2 gaz ;

$\delta^{13}\text{C}_g$ est la teneur en carbone 13 du CO_2 gaz.

Les $\delta^{13}\text{C}_g$ calculés par l'équation (3) sont en accord avec les valeurs mesurées ($\delta^{13}\text{C}$ du CO_2 du sol $\approx -20\text{‰}$ correspondant à un couvert végétal de plantes en C3, composé de mousses et de lichens) avec des différences n'excédant pas 1‰. Ceci prouve que, pendant l'été, les espèces carbonées sont en équilibre isotopique avec le CO_2 du sol. La phase gazeuse imprime donc sa signature isotopique à la solution (système ouvert). Durant le gel du profil, la teneur en carbone 13 du CITD diminue de 4‰, en parallèle avec les variations des concentrations ioniques de la solution. Comme à l'équilibre isotopique entre le solide et la solution, la calcite est appauvrie de seulement 0,4‰ par rapport au bicarbonate à 0°C (Mook 1980), cette diminution peut résulter de la précipitation de calcite en condition hors équilibre comme l'ont montré les travaux de Clark et Lauriol (1992).

Les carbonates secondaires

Le site « cote 80 »

Les carbonates secondaires du site de la « cote 80 » se présentent sous la forme de placages gris à bruns localisés principalement sur la face inférieure des éléments grossiers du profil (> 1 cm). Ces placages ont environ 1 mm d'épaisseur et une surface irrégulière (morphologie colonnaire). Leur présence a été notée tout le long du profil, à l'exception des niveaux 0-25 cm et du niveau de transition avec le permafrost (> 90 cm). Ceci confirme les résultats apportés par l'étude de la phase liquide : la précipitation est réalisée en système clos lors du gel des solutions et de la propagation des deux ondes de gel, atmosphère et permafrost, dans la couche active (« effet mâchoire »). En fonction des variations climatiques et des changements de la position du permafrost, la profondeur de fermeture du système a pu changer au cours du temps, ce qui explique en partie la présence des placages carbonatés sur l'ensemble du profil de sol.

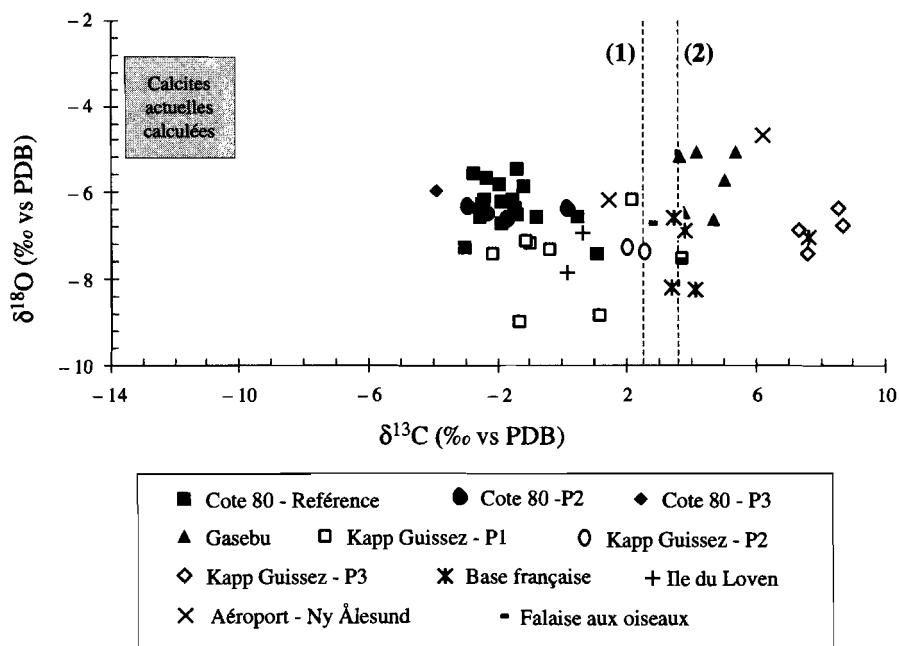


FIGURE 4.

Relation $\delta^{13}\text{C}$ versus $\delta^{18}\text{O}$ pour l'ensemble des sites d'étude.

Les droites (1) et (2) représentent les teneurs en carbone-13 de carbonates précipitant à l'équilibre avec un CO_2 atmosphérique ayant (1) un $\delta^{13}\text{C}$ holocène préindustriel ($\sim -6,7\text{‰}$) et (2) un $\delta^{13}\text{C}$ récent postindustriel ($\sim -8,0\text{‰}$).

Relationship $\delta^{13}\text{C}$ versus $\delta^{18}\text{O}$ for all the studied sites.

The lines (1) and (2) represent the carbon-13 contents of carbonates precipitating in equilibrium with an atmospheric CO_2 isotopic signature of -6.7‰ and of -8.0‰ for the Holocene and modern periods respectively.

D'un point de vue minéralogique, les encroûtements calcitiques sont essentiellement formés de calcite faiblement magnésienne englobant des éléments silicatés tels que quartz, feldspaths, micas, chlorite, et minéraux argileux. Ces éléments silicatés forment la fraction fine du profil. Les variations du rapport Mg/Ca obtenues sur ces carbonates par microsonde ionique indiquent 5 phases délimitant ainsi cinq lamines majeures (Courty *et al.*, 1994). Ces unités se distinguent également par d'autres éléments chimiques comme la silice, le fer, l'aluminium ou le potassium, sous forme d'inclusions détritiques dans certaines lamines carbonatées. L'analyse micromorphologique indique cependant que ces carbonates secondaires procèdent du même mécanisme de précipitation, par effet de froid, et que, probablement, seul le milieu de précipitation change d'une phase à l'autre (Courty *et al.*, 1994).

Les teneurs en isotopes stables des carbonates secondaires, étudiées dans leur globalité sans distinction de phases, varient de -3 à $+1$ ‰ en ^{13}C et de $-7,3$ à $-5,5$ ‰ en ^{18}O sur le site de la « cote 80 » (Fig. 4). L'observation des variations des teneurs en carbone 13 et en oxygène 18 des carbonates permet de mettre en évidence deux niveaux marquant la prépondérance de deux familles de carbonates précipités sous des conditions différentes.

À **30-40 cm**, l'enrichissement en ^{13}C (≈ 3 ‰) et l'appauvrissement relatif en ^{18}O (≈ 3 ‰) peuvent être reliés aux conditions climatiques prévalant pendant les phases de cristallisation. Les teneurs en ^{18}O des carbonates indiqueraient alors une précipitation de calcite sous des conditions plus froides qu'actuellement. Selon l'équation de paléotempérature définie sur les carbonates (Fontes *et al.*, 1973), les teneurs en ^{13}C du carbonate caractérisent une précipitation à partir d'une solution, à pH entre 7 et 8, à une température de 0°C en équilibre isotopique avec une phase gazeuse ayant une teneur en carbone 13 de -9 ‰. Cette valeur calculée prouve qu'une quantité limitée de carbone biogénique participe à la signature en carbone 13 des carbonates secondaires. Rappelons que les valeurs mesurées des teneurs en carbone-13 du CO_2 du sol actuel sont de l'ordre de -20 ‰.

À **65-75 cm** de profondeur, l'appauvrissement relatif en ^{13}C (≈ -2 à -3 ‰) et l'enrichissement en ^{18}O de ce niveau ($\approx -5,5$ à $-6,0$ ‰) peuvent aussi être reliés aux conditions climatiques. Ces valeurs suggèrent que la calcite précipite alors à l'équilibre isotopique sous des conditions de températures plus élevées et avec une plus grande production biogénique, conditions probablement plus proches des conditions actuelles.

Les compositions isotopiques ($\delta^{13}\text{C}$ et $\delta^{18}\text{O}$) d'une calcite, précipitant actuellement à 0°C , et en équilibre isotopique avec la solution et la phase gazeuse du sol, ont été calculées en utilisant les équations de paléotempératures de Shackleton (1974) et Fontes *et al.* (1973). Ces compositions ont été reportées dans le graphique $\delta^{13}\text{C}$ vs $\delta^{18}\text{O}$ (Fig. 4). Ces teneurs théoriques calculées varient de $-10,0$ à $-13,5$ ‰ vs PDB en carbone-13 et de $-2,4$ à $-5,2$ ‰ vs PDB en oxygène-18 et diffèrent largement des teneurs mesurées qui sont, elles, plus élevées en carbone-13 et plus faibles en oxygène-18. Ainsi, les calcites actuelles qui constitueraient les laminations externes des carbonates secondaires, seraient donc plus appauvries en carbone-13 et plus enrichies en oxygène-18 que les lamines « internes » en supposant que la précipitation actuelle s'effectue bien en condition d'équilibre isotopique. La différence de compositions entre calcite actuelle théorique et calcite mesurée peut s'expliquer par (1) une modification des conditions de milieu au cours de la formation des carbonates secondaires, ce qui est en accord avec nos conclusions précédentes et/ou par (2) une précipitation, actuelle et/ou passée,

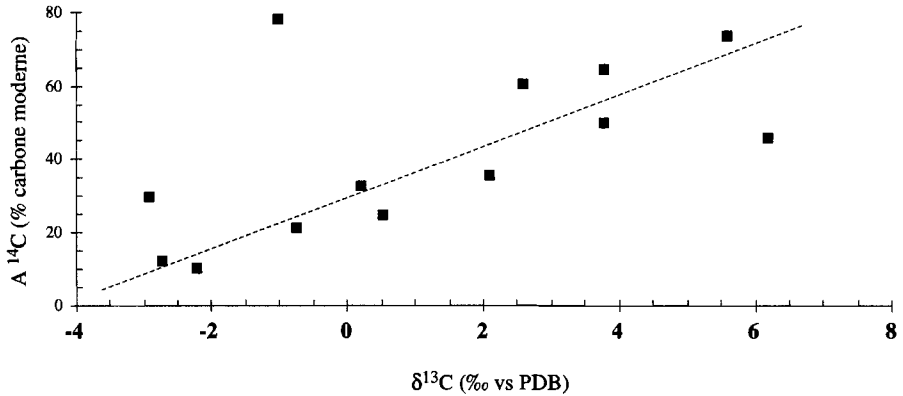


FIGURE 5.

Relation $A^{14}C$ versus $\delta^{13}C$ pour l'ensemble des sites d'étude.

Relationship $A^{14}C$ versus $\delta^{13}C$ for all the studied sites.

hors équilibre isotopique, incluant un fractionnement cinétique lors de gels brutaux des solutions (Clark et Lauriol, 1992).

Les activités radiocarbone des calcites de la « cote 80 » varient de 24,8 à 10,2 pcm (Fig. 5). Si l'on suppose une accréation continue et linéaire de l'encroûtement carbonaté de 10 000 ans B.P. à l'Actuel, on obtient des activités calculées de 45 ou 23 pcm, respectivement dans le cas d'un système ouvert ($A_0 = 100$ pcm) et d'un système fermé ($A_0 = 50$ pcm) sur le CO_2 du sol. Ces valeurs sont largement supérieures à celles mesurées si l'on considère un fonctionnement en système ouvert mais, pour les valeurs de l'ordre de 20 pcm, celles-ci pourraient s'expliquer par une précipitation continue holocène en système clos. Cependant, le système clos ne rend sans doute pas compte du fonctionnement du profil étudié car (1) l'étude des teneurs en carbone-13 du CITD et de la phase gazeuse du sol montrent actuellement un fonctionnement en système ouvert et (2) il ne permet pas d'expliquer les activités les plus faibles, autour de 10 pcm. Il faut alors supposer qu'une fraction de l'encroûtement doit être composée de carbone « mort » (activité de 0 pcm), c'est à dire précipitée durant une période interglaciaire du Pléistocène (au delà de la période de temps couverte par le radiocarbone). La position topographique du site (+ 80 m) permet une telle interprétation si l'on se réfère aux travaux de Forman et Miller (1984) : ces auteurs indiquent en effet des âges de 130 à 290 ka pour les terrasses supérieures 55-80 m à Kvadehuk (pointe nord-ouest de la presqu'île de Brögger située à une quinzaine de kilomètres du site de la « cote 80 » ; Fig. 1). L'étude de ce site, en position haute, avec un profil de sol bien drainé et possédant une stratification et des carbonates secondaires en place, consti-

tue un exemple de milieu arctique non actif d'un point de vue de la dynamique des sédiments mais actif géochimiquement durant au moins tout l'Holocène.

Les autres sites du Kongsfjord

Différents sites présentant des néogénèses carbonatées similaires à celles prélevées à la « cote 80 » ont été échantillonnés sur les rives nord et sud de la Baie du Roi (Fig. 1). Le choix des profils s'est effectué selon différents critères : la position topographique et la position dans le fjord, conditionnant dans cette région la période de déglaciation, la nature des matériaux parentaux (carbonates permo-carbonifères, marbre ou silicates avec une très faible quantité de carbonates), la qualité du drainage et le développement du couvert végétal. Les profils échantillonnés peuvent être scindés en deux groupes :

- profils stratifiés avec présence d'un sol, d'éléments fins dans le profil et développés sur des terrasses fluvio-glaciaires (cote 80 P1 et P2, Kapp Guisseez – P1 et P2, île du Loven) ;
- roches-mères carbonatées cryofractées sur place (marbre, carbonates permo-carbonifères ; sites de Base française, aéroport de Ny Ålesund), empilement massif de galets ou de débris de roches grossiers sans présence importante d'éléments fins (Gasebu, Kapp Guisseez – P3).

Des mesures isotopiques (^{13}C , ^{18}O , ^{14}C conventionnel et par accélérateur de particules – Tandétron, Gif-sur-Yvette), ainsi que des observations micromorphologiques ont été réalisées sur l'ensemble des carbonates secondaires.

L'analyse des valeurs obtenues en carbone-13 et en oxygène-18 sur les carbonates prélevés à différentes profondeurs sur chacun des sites conduit à plusieurs observations. Le site référence de la « cote 80 » et le profil P2 échantillonné sur la même terrasse présentent les valeurs les plus appauvries en carbone-13 (entre + 1,0 et - 4,0‰) (Fig. 4). Les mesures obtenues sur les carbonates des autres sites permettent d'étendre la gamme des $\delta^{13}\text{C}$ des calcites cryogéniques dans cette région vers des valeurs beaucoup plus positives (+ 8,7‰ pour le site de Kapp Guisseez-P3 ; Marlin *et al.*, en préparation). Cet écart de 12,7‰ en carbone-13 (variations entre - 4,0 et + 8,7‰) est relativement important pour des sites qui sont, actuellement dans des conditions de milieu qui ne diffèrent que par (1) la nature et la structure des matériaux parentaux et (2) par le degré de développement du couvert végétal, c'est à dire le degré de l'altération et de pédogénèse du site. Un simple calcul d'équilibre entre un CO_2 atmosphérique (couche active sans production biogénique) et un carbonate à 0 °C donnerait, pour la calcite précipitée, des teneurs de + 2,4‰ pour un $\delta^{13}\text{C}$ CO_2 de - 8,0‰ (CO_2 atmosphérique récent) et de + 3,7‰ pour un $\delta^{13}\text{C}$ CO_2 de - 6,7‰ (CO_2 atmosphérique holocène ; Leuenberger *et al.*, 1992). Ces valeurs constituent une limite supérieure des $\delta^{13}\text{C}$ de carbonates

précipités par effet de froid, dans des conditions de couvert végétal très réduit ou absent. La présence de matière organique ou d'une production végétale aurait pour conséquence un appauvrissement des teneurs en carbone-13 de la solution du sol et par conséquent des carbonates. Les carbonates étudiés ne peuvent donc pas avoir précipité à l'équilibre isotopique avec les phases gazeuse et liquide du sol. Les sites présentant les teneurs les plus élevées sont ceux constitués des roches-mères cryofractées sur place ou formés d'un empilement compact de galets, sans fraction fine (site de Kapp Guisnez 3, aéroport de Ny Ålesund, Base française et Gasebu) alors que les sites présentant les calcites les plus appauvries sont composés de sédiments fluvio-glaciaires stratifiés sous couvert végétal plus ou moins développé avec présence d'une fraction granulométrique fine. Dans les systèmes essentiellement rocheux et compacts, la progression de l'onde de gel à partir de l'atmosphère doit être plus rapide que dans les milieux stratifiés eu égard aux conductivités thermiques des matériaux. Comme l'ont prouvé les expériences en laboratoire de Clark et Lauriol (1992), nous devons envisager, pour ces carbonates, une précipitation par effet de froid hors équilibre isotopique. Si l'on se réfère à nos observations et mesures, le fractionnement cinétique dépendant des taux de gel se doit d'être plus important dans les milieux essentiellement rocheux où l'onde de froid progresse très rapidement et plus faible dans les profils où l'onde de gel est ralentie par la présence d'eau. Un dégazage de la solution au fur et à mesure du gel qui conduirait également à un enrichissement isotopique des carbonates précipités n'est pas envisageable ici puisque les teneurs en carbone-13 du CITD du site-référence de la « cote 80 » nous ont montré, au contraire, un appauvrissement de la solution au cours du gel.

Les teneurs en oxygène-18 des calcites définissent une gamme de variations plus restreinte (de $-4,7$ à $-8,8$ ‰) que celle observée pour le carbone 13. Il n'est donc pas possible de différencier les sites les uns des autres sur les seules teneurs en oxygène-18, qui représentent les teneurs isotopiques de l'eau du sol donc des précipitations moyennes locales, au facteur de fractionnement près. D'après l'équation de paléotempérature de Shackleton (1974), indiquant un fractionnement de $4,3$ ‰ entre le carbonate et l'eau, les teneurs en oxygène-18 de l'eau du sol seraient comprises entre $-9,0$ et $-13,1$ ‰. Les teneurs calculées sont inférieures à celles mesurées, ce qui indique que la précipitation de carbonate s'est effectuée sous des conditions climatiques plus froides que l'actuel, responsables, en particulier, de la présence dans le passé de solutions du sol plus appauvries en oxygène-18 que celles qui ont pu être prélevées.

Six mesures d'activité en carbone-14 ont été obtenues par méthode conventionnelle ou par spectrométrie de masse par accélérateur de particules. Les activités varient largement, de $10,2$ pcm (site-référence de la « cote 80 ») à

73,4 pcm (Kapp Guissez – P3) (Fig. 5). La bonne corrélation des points analytiques dans un diagramme $A^{14}\text{C}$ versus $\delta^{13}\text{C}$ indique que, dans le système étudié, le carbone-13, traceur dépendant des conditions de milieu est lié au carbone-14, traceur de temps et de mélange. Deux hypothèses peuvent expliquer cette répartition :

- un mélange de deux générations de carbonates en proportions variables : un carbonate ancien pléistocène appauvri en carbone-13 et un carbonate récent holocène plus riche en carbone-13. Les observations micromorphologiques ont effectivement montré un ou deux cycles de cristallisations selon les sites, chaque cycle lui même composé de 2 ou 3 lamines (Marlin *et al.*, en préparation). Il est difficile d'expliquer le sens des variations des teneurs en carbone-13 par des changements brutaux de conditions de milieu et des phases d'interruptions de croissance pendant l'Holocène.
- un début de fonctionnement différent d'un site à l'autre. L'évolution alors observée rendrait compte de la mise en place progressive d'une pédogénèse active sur les différents profils. La phase d'altération et de cryofraction des roches en serait le stade initial, expliquant ainsi les teneurs élevées en carbone-14 (calcite récente dans sa totalité) et en carbone 13 dans des milieux dépourvus d'une phase gazeuse à signature isotopique biogénique des sites de Kapp Guissez-P3 et de Gasebu. Le site-référence de la « cote 80 », présentant les carbonates secondaires les plus complets dans leur nombre de phases (5), est probablement celui qui a le fonctionnement le plus long mais également le sol le plus développé. Ceci est en bon accord avec les faibles activités en carbone 14 et les teneurs appauvries en carbone-13, témoin de la participation de carbone biogène à la signature isotopique des néogénèses carbonatées.

CONCLUSION

Dans un sol essentiellement silicaté, les solutions du sol deviennent sursaturées vis-à-vis de la calcite durant le gel de la couche active. Cette sursaturation est le résultat de l'exclusion des solutés durant la formation de glace, et de l'évaporation associée à un déplacement de vapeur vers les deux pôles froids que sont l'atmosphère et le permafrost, en période de regel. Les concentrations en ions calcium et bicarbonate augmentent jusqu'à la sursaturation vis-à-vis de la calcite alors que les espèces ioniques non-interactives et conservées dans le système présentent une faible augmentation liée à la réduction de volume d'eau liquide dans le système. La précipitation de calcite est réalisée actuellement en système clos vis-à-vis du CO_2 du sol. À l'équilibre isotopique, le facteur de fractionnement entre la calcite et le bicarbonate peut conduire à la formation d'une calcite appauvrie en ^{13}C par rapport aux ions

bicarbonates. Dans les différents sites étudiés, la calcite secondaire est, elle, enrichie en ^{13}C : faiblement enrichie pour les carbonates de la « cote 80 » où le CO_2 du sol a une composante biogène, et inhabituellement enrichie (jusqu'à + 8,7 ‰) pour les calcites des profils « rocheux » sans fraction fine. En référence à Clark et Lauriol (1992), les forts enrichissements isotopiques peuvent s'expliquer par une précipitation en condition de non-équilibre isotopique. Le déséquilibre isotopique est d'autant plus marqué que le gel est rapide, ce qui peut s'appliquer aux profils de sol présentant peu de particules fines et caractérisés par de faibles teneurs en eau.

Les calcites secondaires présentent un maximum de 5 lamines distinguées par leur morphologie, leurs caractéristiques chimiques et isotopiques. Les conditions de milieu permettant la précipitation (température, production biogénique, présence de roches-mères carbonatées) peuvent être définies par les teneurs isotopiques moyennes. Selon les activités radiocarbone, les différentes étapes de la précipitation peuvent être reliées à l'Holocène pour les phases externes et au Pléistocène tardif pour les phases les plus internes des néogénèses les plus anciennes. Tous les profils peuvent avoir commencé à fonctionner à des périodes différentes de l'Holocène eu égard à leurs teneurs en carbone-13 et à leurs activités carbone-14. La corrélation existant entre les activités en ^{14}C et les teneurs en ^{13}C des carbonates témoigne probablement de la mise en place progressive au cours de l'Holocène d'une pédogénèse active sur les différents profils, après déglaciation et cryofracturation des roches nouvellement exposées. Le début du fonctionnement des profils en tant que milieu de précipitation de carbonates secondaires varierait d'un site à l'autre, tous positionnés différemment dans le fjord.

L'ensemble de cette étude, portant sur la dynamique des solutions en zone non saturée sous climat périglaciaire et sur les mécanismes conduisant à la précipitation des carbonates secondaires par effet de froid, a permis de proposer un modèle conceptuel de processus géochimiques actuels se produisant dans les formations superficielles soumises à un cycle gel-dégel annuel. Les calcites pédogénétiques, dont le mécanisme de précipitation a été étudié en laboratoire naturel au Spitzberg, intègrent de façon discontinue différentes périodes de cristallisation datant du Quaternaire récent, période durant laquelle il a largement été montré dans la littérature que le climat avait changé. Ce travail montre que les carbonates chimiques précipités par effet de froid peuvent être de bons enregistreurs des conditions de milieu et indirectement des conditions climatiques si les mécanismes qui conduisent à leur précipitation sont reconnus. Les activités radiocarbone peuvent être interprétées en terme d'âges si la géochimie du carbone du système est comprise. Le système étudié au Spitzberg a probablement enregistré différentes périodes d'avancées glaciaires. Les phases de glaciation ou de refroidissement conduisant au gel continu des

sols doivent être marquées par une réduction voire une absence de croissance cristalline. Au contraire, les optimums climatiques sont très probablement des périodes de croissance cristalline, de circulations hydriques, de développement de sols avec installation de matière organique.

RÉFÉRENCES

- Anderson (D.M.), Morgenstern (N.R.), 1973. « Physics, chemistry and mechanics of frozen ground : a review ». In *Permafrost North American Contribution to the 2nd conference*, Washington D.C., *Natl. Acad. Sci.* : 257-288.
- Burton (J.A.), Slim (R.C.), Stichler (W.P.), 1953. « The distribution of solute in crystal grown from the melt. Part 1 ». *J. of Chem. Phys.* 21 (11) : 1987-1991.
- Clark (I.D.), Lauriol (B.), 1992. « Kinetic enrichment of stable isotopes in cryogenic calcites ». *Chemical Geology* (Isotope Geoscience Section), 102 : 217-228.
- Courty (M.A.), Marlin (C.), Dever (L.), Vachier (P.), Tremblay (P.), 1994. « The properties, genesis and environmental significance of calcitic pendants from High Arctic (Spitzbergen) ». *Geoderma*, 61 : 71-102.
- Fontes (J.-Ch.), Moussie (C.), Pouchan (P.), Weidmann (M.), 1973. « Phases humides au Pléistocène supérieur et à l'Holocène dans le sud de l'Afar ». *C.R.A.S.*, 277 : 1973-1976.
- Forman (S.L.), Miller (G.H.), 1984. « Time dependent soil morphologies and pedogenic processes on raised beaches, Bröggerhalvöya, Spitzbergen, Svalbard archipelago », *Arctic and Alpine Research*, 16 (4) : 381-394.
- Hallet (B.), 1976. « Deposit formed by subglacial precipitation of CaCO_3 ». *Geol. Soc. of Am. Bull.* 87 : 1003-1015.
- Jame (Y.W.), Norum (D.I.), 1980. « Heat and mass transfer in a freezing porous medium ». *Water Res. Res.* 16 (4) : 811-819.
- Leuenberger (M.), Siegenthaler (U.), Langway 5C.C.), 1992. « Carbon isotope composition of atmospheric CO_2 during the last ice age from an Antarctic ice core », *Nature*, 357 : 488-490.
- Leung (W.K.S.), Carmichael (G.R.), 1984. « Solute redistribution during normal freezing ». *Water, Air and Soil Pollution*, 21 : 141-150.
- Marlin (C.), 1991. *Étude du transfert des solutés et des interactions eaux-roches en zone non saturée sous climat périglaciaire – presque île de Brögger (Svalbard)*. Thèse de 3^e cycle. Université Paris-Sud.
- Marlin (C.), Dever (L.), Vachier (P.), Courty (M.A.), 1993. « Variations chimiques et isotopiques de l'eau du sol lors de la reprise en gel d'une

- couche active sur permafrost continu (presqu'île de Brögger, Svalbard) ». *Canadian Journal of Earth Sciences*, 30 : 806-813.
- Marlin (C.), Courty (M.A.), 1996. « Geochemistry and micromorphology of calcitic pendants from the Kongsfjord (Spitzbergen) ». En préparation pour *Quaternary Research*.
- Mook (W.G.), 1980. « On the carbon isotope fractionation during precipitation of calcium carbonate with ^{14}C ». *Proc. Symp. Advisory Group Meeting, Vienna*, pp. 213-225.
- O'Neil (J.R.), 1968. « Hydrogen and oxygen isotope fractionation between ice and water ». *J. Phys. Chem.* 72 (10) : 3683-3684.
- Shackleton (N.J.), 1974. « Attainment of isotopic equilibrium between ocean water and the benthonic foraminifera genus *Uvigerina* : isotopic changes in the ocean during the last glacial ». *Coll. Int. CNRS*, 219 : 203-209.
- Sletten (R.), 1988. « The formation of pedogenetic carbonates on Svalbard : the influence of cold temperature and freezing ». *V Conference on Permafrost, Trondheim*. pp. 467-472.
- Van Vliet-Lanoé (B.), 1985. *Frost effects in soils. Soils and quaternary landscape evolution*. pp. 117-158.

Origin and age of deep waters of the Paris Basin
*Origine et âge des eaux profondes du bassin de Paris
par l'utilisation des traceurs chimiques et isotopiques*

J.-M. MATRAY AND L. CHERY

ABSTRACT – The origin and age of deep waters of the Paris Basin are considered on the basis of chemical and isotopic analyses carried out on almost 150 water samples collected from geothermal wells, oil wells, and Middle Jurassic and Late Triassic aquifers. The studies reveal that currently only Cl, Br, ^2H and ^{18}O species are present in the three aquifers, although one of the original waters was previously enriched in oxygen-18 probably due to a temperature effect. The combination of Cl/Br ratios and stable isotopes reveals the complex origin of these aqueous solutions that result from the mixing of two distinct secondary brines formed by the dissolution of Triassic salt by meteoric water. The first brine was derived from an ancient meteoric water that had undergone oxygen-18 enrichment. The second brine has the same origin as the first, but its isotopic composition has remained constant since infiltration. The evolution of these waters within the framework of the geological history of the Paris Basin suggests that the first generation of brine is sequential to exposure of the reservoir rocks in the east at the beginning of the Cenozoic, and that it is older than the general cooling of the basin at the end of the Oligocene. Vertical fluid transfer along faults also took place during this period which also explains the presence of hydrocarbons and late carbonate cements in the Dogger aquifer. The maximum outcropping in the east initiated the formation of the second brine which mixed with the already existing brine, traces of which can only be detected in the deepest parts of the Triassic aquifers. The addition of meteoric water, unaffected by salt dissolution, is responsible for the present salinity distribution in the three aquifers.

Keywords: Paris Basin, deep aquifers, Triassic, Rhaetian, Middle Jurassic, hydrochemistry, isotope geochemistry, sedimentary brines, residence time, paleocirculations.

*

RÉSUMÉ – L'origine et l'âge des eaux profondes du bassin de Paris est discutée à partir d'analyses chimiques et isotopiques effectuées sur près de 150 échantillons d'eau produits par les puits géothermiques, pétroliers et d'eau souterraine du Jurassique moyen (Dogger, Fig. 1) et du Trias supérieur (Keuper et Rhétien, Fig. 2).

Les études effectuées montrent que seules les espèces Cl, Br, ^2H et ^{18}O sont actuellement conservées dans les trois aquifères étudiés bien que l'oxygène-18 ait connu dans le passé un enrichissement dans l'une des eaux originelles sous l'effet probable de la température (Fig. 3 et 4). Ces espèces sont donc des traceurs d'origine et peuvent aider à reconstruire l'évolution de ces eaux. Les isotopes stables révèlent que toutes les eaux étudiées sont le résultat du mélange d'eaux d'origine météorique plus ou moins enrichies en isotopes lourds alors que les rapports Cl/Br montrent une salinité acquise par dissolution d'évaporites marines contenant des inclusions de solutions-mères du sel (Fig. 5).

Ce résultat implique nécessairement l'existence de transferts verticaux entre les aquifères du Trias et celui du Dogger. Les rapports isotopiques du chlore des eaux du Dogger sont dans la moyenne de ceux du Trias (Fig. 6) et prouvent que ces transferts se sont effectués sans fractionnement isotopique au travers des 450 m d'argiles qui séparent les réservoirs. Un transport advectif rapide des saumures triasiques vers l'aquifère du Dogger peut seul expliquer l'absence de fractionnement et suggère donc le transfert des fluides à la faveur de failles. Un schéma hydrologique général est ainsi proposé pour expliquer l'origine des eaux profondes du bassin de Paris (Fig. 7).

Les rapports Cl/Br couplés aux isotopes stables montrent l'origine complexe de ces solutions aqueuses qui seraient le résultat du mélange de deux saumures secondaires distinctes formées par la dissolution de sel triasique avec des eaux météoriques. La première saumure serait issue d'une ancienne eau météorique ayant subi un enrichissement en oxygène-18 dans le passé. La seconde saumure aurait une origine identique à la précédente mais avec une composition isotopique inchangée depuis l'infiltration.

Corrélée à l'histoire géologique du bassin de Paris, cette évolution des eaux suggère que la première génération de saumure est consécutive à l'affleurement des réservoirs à l'est dès le début du Cénozoïque et est antérieure au refroidissement général du bassin à la fin de l'Oligocène. C'est également au cours de cette période étendue que se seraient effectués les transferts verticaux de fluides par faille et qui seraient à l'origine de la présence d'hydrocarbures et de ciments carbonatés tardifs dans le Dogger.

Le surélévation maximal des affleurements à l'est, aurait initié la formation de la seconde saumure qui se mélangerait avec celle déjà en place et dont la trace n'est plus visible que dans la partie la plus profonde des aquifères trias-

siques. Des apports météoriques non affectés par la dissolution de sel, c'est-à-dire par le sud pour le Trias, expliquent la distribution actuelle des salinités dans les trois aquifères.

Le schéma d'écoulement actuel du Dogger (Fig. 8) permet d'estimer à environ 1 Ma le temps de transfert dans l'aquifère en dehors de la zone centrale perturbée pour laquelle un temps de résidence plus long est probable. Ce résultat montre que les méthodes de datation directes par les radio-isotopes ^3H et ^{14}C se révèlent inadaptées dans le cas des eaux profondes du bassin de Paris et ne sont applicables qu'aux fluides de bordure.

Mots clés : bassin de Paris, aquifères profonds, Trias, Rhétien, Jurassique moyen, hydrochimie, géochimie isotopique, dépôts salés, temps de résidence, paléocirculations.

*

INTRODUCTION

In order to reconstruct the history of deep waters in a sedimentary basin, it is necessary to study the mixing poles that make up the present fluid. Generally, this involves the search for preserved chemical and isotopic species, i.e. species whose concentration has only been modified by the mixing itself.

Formation waters of the deep aquifers in the Paris Basin have been extensively studied due to their association with hydrocarbons, their use as a low-enthalpy geothermal resource, and their potential for subsurface storage of gas. Three deep aquifers have been studied in particular: the Dogger comprising Middle Jurassic marine carbonates, and the Keuper and Rhaetian Late Triassic fluviatile sandstones.

This paper is a synthesis of all studies relative to the origin of the water from these three aquifers. It discusses the application of geochemical tracers and shows to what extent these can be used to constrain the origin, paths and modes of transfer, and the residence time of waters in deep aquifers of a sedimentary basin.

THE AQUIFERS

The Paris Basin is an intracratonic basin 600 km in diameter, containing a sediment pile almost 3 km thick. It is a structural depression formed at the end of the Oligocene, the tectonic deformation of which led to the exposure of rocks of Middle Jurassic (Dogger) age in the east and south, and of Late Triassic (Keuper and Rhaetian) age in the east. However, the first uplift of outcrops is estimated to have taken place in the east at the very beginning of the Cenozoic.

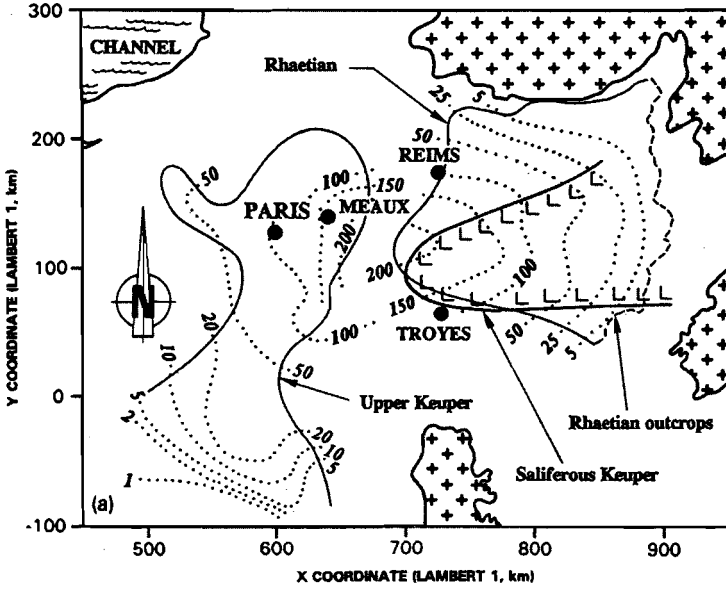


FIGURE 1.

Extension of the Late Triassic aquifers with isosalinity curves (dotted lines).

Extension des aquifères du Trias supérieur avec courbes d'isosalinité (traits pointillés).

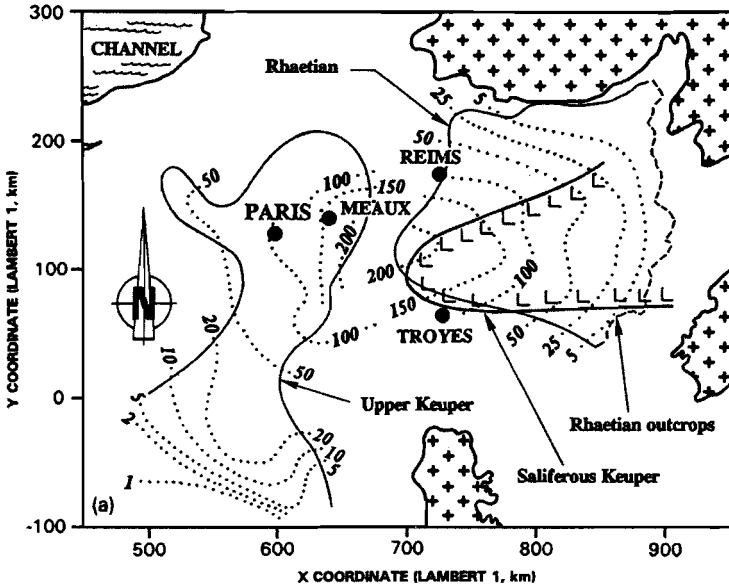


FIGURE 2.

Extension of the Middle Jurassic aquifer with isosalinity curves (dotted lines).

Extension de l'aquifère du Jurassique moyen avec courbes d'isosalinité (traits pointillés).

Keuper deposits form the central and southern parts of the basin and are essentially composed of fluviatile sandstone, clay and dolomite, with an average thickness of 100 m. Their lateral equivalent is a bedded halitic complex which is the only saliferous complex in the basin, apart from another smaller, older complex. The Rhaetian sandy and clayey reservoir overlies this saliferous interval.

The Dogger is a 300 m thick carbonate unit, sealed above and below by Callovian and Liassic clays which are 450 m thick in the centre of the basin.

Liassic clays are the source rocks for the hydrocarbons in the three aquifers studied.

Aqueous solutions associated with these aquifers are highly concentrated. Their salinity ranges from a few hundred mg.l^{-1} along the edge of the aquifers to 175 g.l^{-1} for the Keuper, 220 g.l^{-1} for the Rhaetian, and 35 g.l^{-1} for the Dogger. Maximum values are found in the deepest parts of the aquifers.

SAMPLING AND ANALYSIS

Specific samples for chemical and isotopic analysis of water and gas were collected in 120 wells for the Dogger, 20 for the Keuper, and 12 for the Rhaetian. The sampling and analysis procedures are described by Rojas *et al.* (1989) for geothermal fluids and by Matray *et al.* (1993), Fontes and Matray (1993a) and Worden *et al.* (1994) for petroleum fluids. Most chemical and isotopic analyses were carried out according to conventional methods. Representative samples of the three reservoirs were analysed in more detail; for example, stable isotope analysis of chlorine at the University of Utrecht using the Kaufmann (1984) method.

THE SEARCH FOR PRESERVED SPECIES

A preserved chemical or isotopic species is one whose concentration has not been modified by thermodynamic exchange reactions, kinetics, or biophysico-chemical processes related to transportation, radioactive decay, bacterial activity, etc. Only a mixing of fluids can change their concentration. Such species can thus be used to estimate the number of poles in the final mixture and to define the origins of the fluid.

Geochemical studies of deep fluids reveal that waters of the Middle Jurassic and Late Triassic have chemical components that are generally either constrained by equilibrium with mineral or gaseous phases, or under the influence of bacterial metabolism (Michard and Bastide, 1988; Fouillac *et al.*, 1990; Matray *et al.*, 1993; Worden *et al.*, 1994). Although disagreement exists regarding the phases that constrain the geochemical system, it is accepted that Cl and Br are the only truly preserved species. Their relationship can therefore be used as a mixing tracer and to reveal the sources of chlorides. In this manner,

at least four sources of chlorides have been identified for the Dogger aquifer, three for the Rhaetian and six for the Keuper. This clearly demonstrates the complexity of the deep fluids and the difficulties involved in understanding their origin.

Of all isotopic species, stable water isotopes are probably the only ones that show a certain degree of preservation. In many basins, however, the isotopic composition of fluids is modified by isotopic exchanges with minerals or other fluids (gas, hydrocarbons). This is especially true for isotopic exchanges between oxygen isotopes and sedimentary rocks because the minerals that make up these rocks represent an important supply of oxygen atoms. These exchanges take place under the combined effects of temperature, a long residence time and a low water/rock ratio. For the deep aquifers of the Paris Basin, the ^{18}O contents of the least-concentrated solutions of the Middle Jurassic and the Late Triassic do not correlate with reservoir temperatures (Fig. 3). This indicates that the ^{18}O content of these solutions is not influenced by exchanges with minerals.

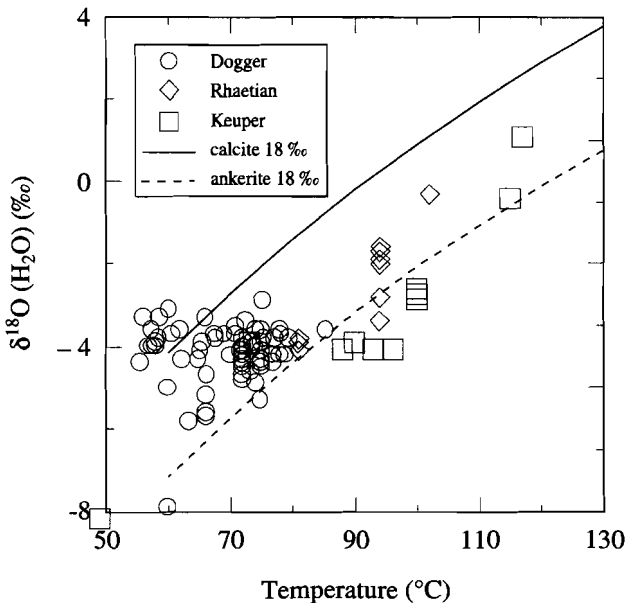


FIGURE 3.

Relationship between $\delta^{18}\text{O}_{\text{H}_2\text{O}}$ and reservoir temperature for all the fluids studied, with carbonate/water equilibrium curves for the late diagenetic species of the aquifers.

Relation entre $\delta^{18}\text{O}_{\text{H}_2\text{O}}$ et la température des réservoirs pour l'ensemble des fluides étudiés avec courbes d'équilibre carbonates/eau pour les espèces diagenétiques tardives des aquifères étudiés.

Furthermore, the low gas/water ratios recorded in these fluids exclude any enrichment by exchange with dissolved gases (Matray *et al.*, 1993, Worden *et al.*, 1994). As water is the main reservoir of hydrogen atoms, it is likely that exchanges between hydrogen isotopes and minerals (or other fluids) are even more limited than for oxygen.

In conclusion, stable water isotopes are the species preserved throughout the Dogger, as well as in the part of the Keuper where concentrations are the weakest, i.e. less than 90 g.l^{-1} total salinity. For higher salinities, ^{18}O enrichment is observed that is as much as 4‰ in the Keuper and Rhaetian aquifers, unlike deuterium, which remains relatively constant around $-25 \text{‰} \pm 5$. For the most-concentrated solutions of the Keuper and Rhaetian aquifers, the ^{18}O contents fall in the field of the Paleogene (65-25 Ma) late diagenetic carbonates observed in the three reservoirs (Worden *et al.*, 1994). The similarity between the oxygen-18 contents and salinities (in equivalent NaCl) of the mother solutions of these carbonates and of the most-concentrated current brines, leads to the assumption that the latter are residual solutions of the precipitations (Spötl *et al.*, 1993; Worden *et al.*, 1994). However, the deposits formed at temperatures 20 to 30°C higher than present temperatures, indicating a former oxygen-18 enrichment under a higher temperature effect. Thus, the relationship observed between ^{18}O and temperature for the brines is one of mixing rather than current exchange.

ORIGIN OF THE WATER

Determination of a water's isotopic composition is the most important factor for identifying its origin (Kharaka and Carothers, 1986).

The isotopic contents of the Dogger aquifer show identical behaviours, attributed to the preservation of these tracers. Two zones are distinguished by plotting isotopic content against chlorides (Fig. 4):

- 1) 0 to 5 g.l^{-1} : The isotopic contents correlate with chlorinity, indicating mixing between one pole with a concentration of 5 g.l^{-1} and up to several other diluting poles, the most impoverished of which is identical to the current meteoric pole (Dever *et al.*, 1990).
- 2) 5 to 20 g.l^{-1} : The isotopic contents show no correlation with chlorides. Two processes can explain such behaviour. The first is dilution of a concentrated pole by meteoric water of the same isotopic composition. The second suggests that this concentrated pole is sufficiently diluted so that its isotopic composition is no longer perceptible in the mixture. In both cases, the diluting solution is one devoid of dissolved salts and corresponds to a palaeo-meteoric water with a composition of about -4‰ oxygen-18 and -33‰ deuterium. For the concentrated solution, the generally accepted hypothesis in the past was that of seawater preservation. This explained,

in particular, the remarkable concordance between salinities in the central part of the aquifer and the seawater. However, isotopic data show that this hypothesis is not plausible because the Dogger waters have isotopic contents much lower than the variation range generally accepted for the isotopic composition of seawater during the Phanerozoic (Sheppard, 1986). In addition, the Dogger solutions show an enrichment in Br compared to seawater.

Oxygen and hydrogen isotopes show a different behaviour for the Late Triassic aquifers. Deuterium contents are relatively constant and only slightly higher than those for the Jurassic. In contrast, oxygen-18 contents have an excellent positive correlation with chlorides, attributed to specific mixing of each aquifer due to the current preservation of isotopic ratios. This result implies the presence of two groups of Triassic brine as well as diluting solutions. The most-concentrated brine was formed during a period favourable to isotopic enrichment under a high-temperature effect implying an initial fluid with an isotopic composition of about -23‰ deuterium and -3.5‰ oxygen-18. The second brine did not undergo isotopic enrichment and its isotopic composition is identical to the palaeo-meteoric water found in the most-concentrated Dogger solutions. This palaeo-meteoric water could be partially responsible for the general dilution observed in these aquifers.

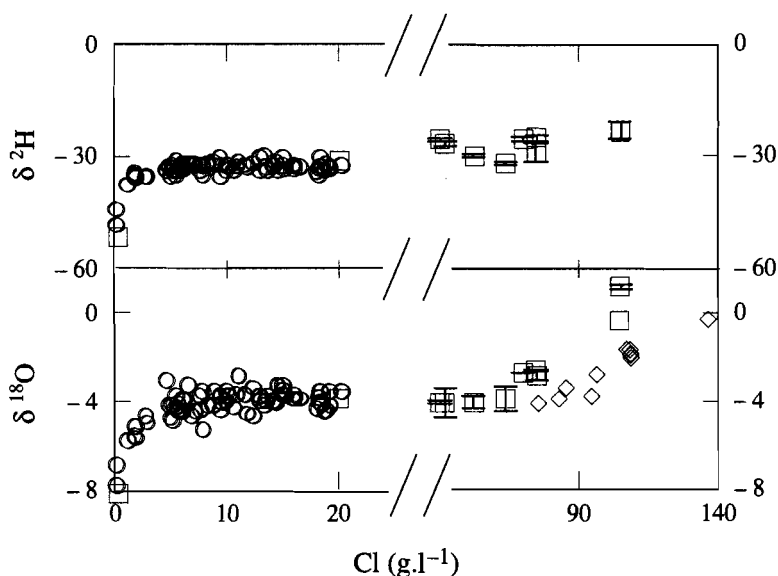


FIGURE 4.

Relationship between heavy isotope contents and chlorinity for deep waters of the Dogger (circles), Rhaetian (rhombi) and Keuper (squares) aquifers.

Relations entre les teneurs en isotopes lourds et la chlorinité pour les eaux profondes des aquifères du Dogger (cercles), Rhétien (losanges) et Keuper (carrés).

ORIGIN OF THE CHLORINITY

As the chlorine in these aqueous solutions could not have been derived from seawater, three possible hypotheses remain: the concentration of solutes on a clayish membrane by filtration, the contribution of an evaporite mother brine, and the dissolution of evaporites. Representative points of the three aquifers studied are shown on the Cl/Br vs. Cl diagram (Fig. 5).

The Cl/Br weight ratios of the Rhaetian aquifer are highly impoverished in bromine compared to seawater, which is characteristic of brines formed by halite dissolution. This is not surprising, considering the position of the reservoir in relation to the Late Keuper halite.

The problem is more delicate for the Dogger and Keuper fluids. The fact that the Dogger and Keuper aquifers have identical Cl/Br ratios excludes the hypothesis of saline filtration which is known to enrich the residual solution

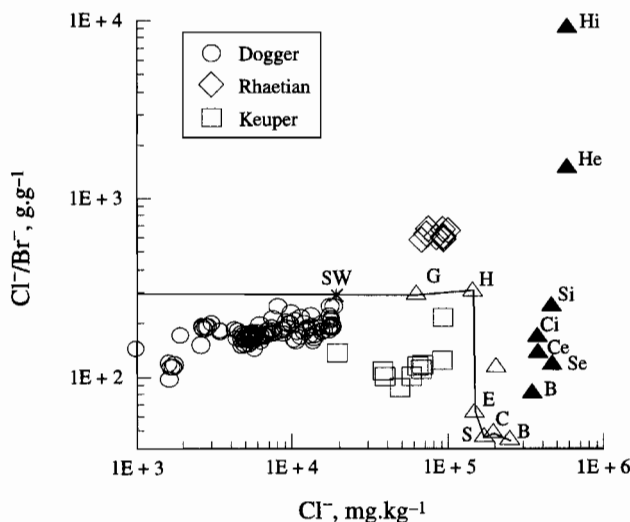


FIGURE 5.

Distribution of Cl and Br contents in aqueous solutions from the Dogger (circles), Rhaetian (rhombi) and Keuper (squares) aquifers with recognized domains of primary chlorinated evaporites (solid triangles: H halite, S sylvite, C carnallite and B bischofite) at the beginning (i) and the end (e) of precipitation, and the dilution/evaporation curve of seawater (SW) at the beginning of salt precipitation (empty triangles: H halite, E epsomite, S sylvite; C carnallite and B bischofite).

Distribution des teneurs en Cl et Br dans les solutions aqueuses du Dogger (cercles), Rhétien (losanges) et Keuper (carrés) avec domaines reconnus des évaporites primaires chlorurées (triangles pleins avec H halite, S sylvite, C carnallite et B bischofite) en début (i) et fin (e) de précipitation et courbe de dilution/évaporation de l'eau de mer (SW) au début de la précipitation des sels (triangles évidés avec H halite, E epsomite, S sylvite, C carnallite et B bischofite).

in Br (Kharaka and Berry, 1973). Dilution of a primary marine brine (evaporated seawater) is also improbable because this does not explain the high Br contents and Cl/Na molar ratios between 1.2 and 1.3 observed for the Dogger and Keuper fluids.

The third hypothesis is that of the dissolution of highly recrystallized evaporites which releases bromine into the solutions (Land and Prezbindowski, 1981). Brines trapped in the Keuper salt have been sampled and analysed (Fontes and Matray, 1993b). They have an average Br/Cl activity ratio equal to the majority of the Dogger and Keuper solutions, i.e. of the order of $4.453 \cdot 10^{-3}$ ($\log a_{\text{Br}^-}/a_{\text{Cl}^-} = -2.35$). According to Stoessel and Carpenter (1986), the Br content of salt at thermodynamic equilibrium with these trapped brines should be approximately 70 ppm. For the Keuper salt, this value is 130 ppm on average (Geisler, 1979). The difference reflects the state of non-thermodynamic equilibrium of the Br content of salt compared to that of the trapped brines, despite evidence of recrystallization, hence, recrystallization can only be partially responsible for the high Br contents in the waters. The only remaining hypothesis is that of a mixing between a dissolution brine (secondary brine) and an evaporated seawater (primary brine). By studying the trapped brines in the Keuper salt, the evaporation stage reached by this primary brine was estimated to be an evaporated seawater that precipitated potassic and magnesian salts (Fontes and Matray, 1993b). However, such salts are currently absent, implying important leaching of the halitic deposits. Using mass balance, it is estimated that approximately 99 % of the Cl was derived from the secondary brine and only 1 % from the primary brine. Consequently, vertical transfer of Triassic brines must have occurred in the Dogger.

EVIDENCE OF VERTICAL TRANSFER

Much evidence of vertical transfer exists. The most obvious is the presence of diagenetic carbonate minerals in the Dogger, whose mother solutions, trapped in fluid inclusions, have salinities (in equivalent NaCl) of the order of those measured in the most-concentrated current brines of the Triassic (Worden *et al.*, 1994).

Stable chlorine isotopes provide further evidence of vertical fluid transfer (Fig. 6).

In sedimentary domains, chlorine isotopes essentially fractionate during transport processes, such as diffusion and ultrafiltration. Advective transport does not modify the ratio (Kaufmann *et al.*, 1988). The $\delta^{37}\text{Cl}$ values measured in Dogger waters are abnormally negative for a marine chlorine, but correspond to those observed in the Keuper and Rhaetian waters. This reveals that the origin of the chlorine in the Dogger waters is Triassic, and suggests advective

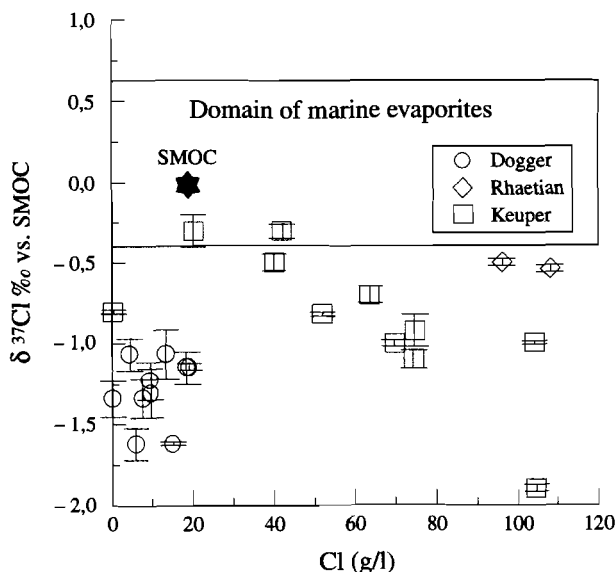


FIGURE 6.

Relationship between $\delta^{37}\text{Cl}$ values and chloride content for aqueous solutions of the Dogger (circles), Rhaetian (rhombi) and Keuper (squares) aquifers.

Relations entre les valeurs de $\delta^{37}\text{Cl}$ et la teneur en chlorures pour les solutions aqueuses du Dogger (cercles), Rhétien (losanges) et Keuper (carrés).

tive transfer via fractures. The fact that no relationship is observed for chloride content between the Dogger fluids supports the hypothesis of multiple transfer in various places.

Other evidences of vertical advective movement exist among which the presence of oil in the Dogger which can be also explained by the transfer of hydrocarbons from Triassic reservoirs via faults (Poulet and Espitalié, 1987).

The excess of helium-3 compared to in-situ production in the Dogger aquifer has been attributed to the addition of helium of crustal origin, and thus to vertical fluid transfer from the basement (Marty *et al.*, 1993).

A schematic hydrologic model may be proposed to account for the origin of deep formation waters in the Paris Basin (Fig. 7).

REGIONAL FLOW AND AGE OF THE FLUIDS

Triassic aquifers

Due to the lack of reliable hydraulic test data and the confidentiality of oil exploration results for the Triassic aquifers, only indirect estimations of brine transit times could be attempted. The meteoric origin of these brines neces-

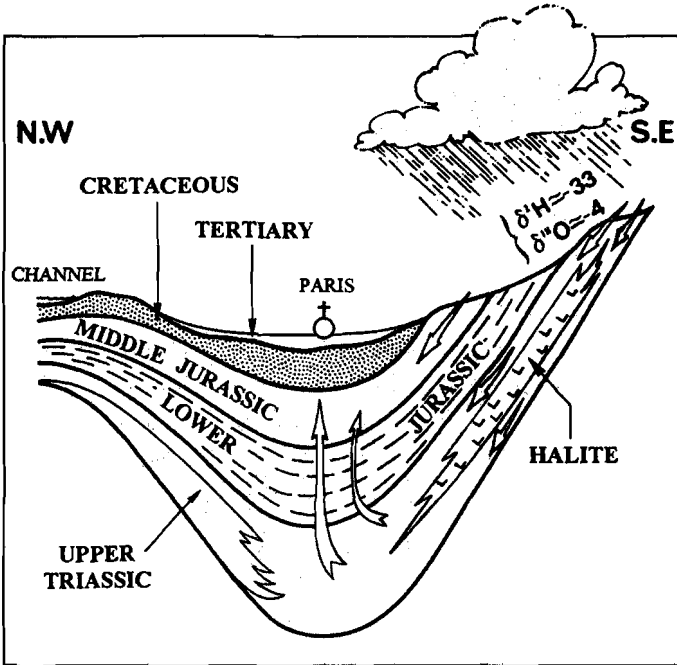


FIGURE 7.

Schematic diagram showing the hydrologic model proposed by Matray *et al.* (1994) to explain the origin of the deep formation waters from the Paris Basin.

Diagramme schématique montrant le modèle hydrologique général proposé par Matray et al. (1994) pour expliquer l'origine des eaux profondes du bassin de Paris.

sarily implies formation consecutive to the first uplift of exposed rocks 65 Ma ago. Furthermore, the study of stable water isotopes has revealed at least two series of brines.

The first, formed during a period of high geothermal gradient, is responsible for the main late diagenetic mineralizations observed in the deep reservoirs (Worden *et al.*, 1994). This period inevitably ended with maximum uplift of the outcrops at the end of the Oligocene (25 Ma).

The formation of a second series of brines followed, reaching a maximum in the Miocene, and possibly still continuing. The strong dilutions observed along the rim of the Triassic aquifers reflect a supply of meteoric water (without evaporite dissolution) via outcrops for the Rhaetian and probably via the overlying aquifers for the Keuper. These diluted, tritium-free fluids should be analysed using the carbon-14 method; such analysis is superfluous for brines with a residence time of more than a million years.

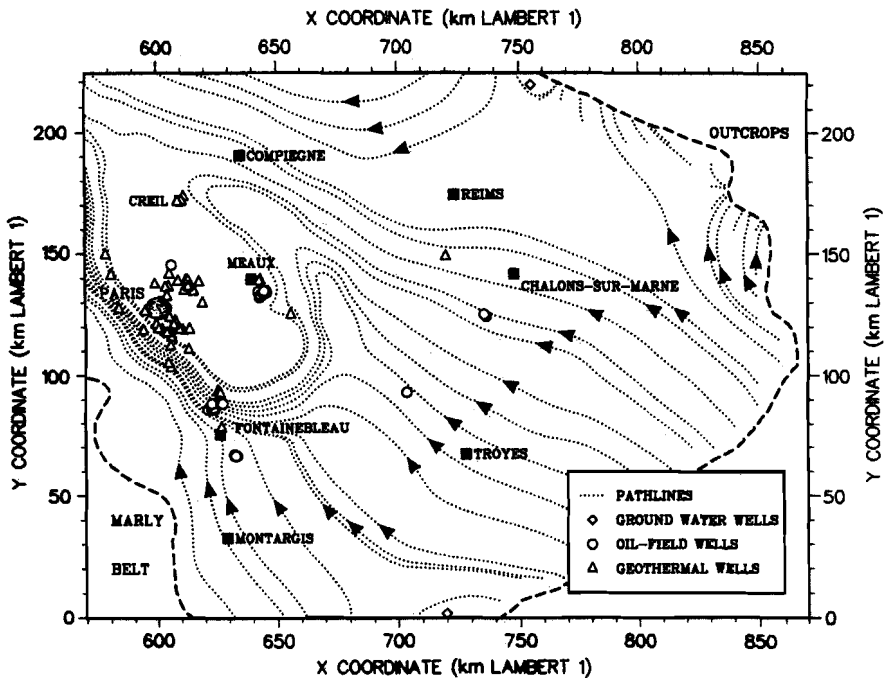


FIGURE 8.

Flow pattern with current lines calculated using the density approach for the Dogger aquifer (after Menjot *et al.*, 1993, in Matray *et al.*, 1994).

*Schéma d'écoulement avec lignes de courant issues de l'approche densitaire dans l'aquifère du Dogger (d'après Menjot *et al.*, 1993 in Matray *et al.*, 1994).*

Dogger aquifer

Hydraulic test data from geothermal wells have allowed Menjot and his co-authors to establish a flow model that is concordant with the distribution of chemical and thermal variables (Menjot *et al.*, 1993). Results of the simulation which are shown in Figure 8 take into account the effects of density in the flow formulation and reveal a major disturbance in the centre of the aquifer which is attributed to a marked lateral density variation and a varying dip of the layers.

In this disturbed zone, lines of equal hydraulic load are no longer systematically orthogonal to current lines where density effects become important. This is particularly the case along the northwest rim of the central depression to the north of Paris where the saline solution is denser and cannot ascend the slope, creating a zone where velocity is almost zero.

This rim is delimited by the high production of sulphides attributed to bacterial sulphate reduction in a confined environment (Fouillac *et al.*, 1990). Another consequence is that lines of initially parallel current have the tendency to deflect around the maximum salinity zone.

Outside the disturbed zone, isodensity and density hypotheses are equivalent and the average calculated Darcy velocity is of the order of 0.05 m.yr.^{-1} (Menjot *et al.*, 1993), which corresponds to a residence time in the aquifer of the order of 1 Ma for a water infiltrated at the eastern rim and an average porosity of 15%. In the disturbed zone, the fluids must be older because they contain a large proportion of older Triassic brine.

About 15 geothermal Dogger waters have previously been analysed by standard ^{14}C methods (Rojas *et al.*, 1989). Recorded activities indicate contamination by atmospheric CO_2 . After correction for this contamination, activity is almost 0%, i.e. almost at the detection limit of the tool, which gives ages of more than 45,000 years, concordant with ages calculated by hydrodynamic modelling.

Twenty kilometres from the outcrops, ^{14}C analyses have provided maximum age estimations of Holocene, with high transfer velocities of the order of 2 m.yr.^{-1} that reflect a high hydraulic gradient (J.-Ch. Fontes, pers. comm.).

The carbon-14 tool used for this type of carbonate aquifer does not allow a proper age evaluation. Dissolved inorganic carbon is subject to mixing-exchange processes with the matrix, without taking into account the possible mixing of water within the reservoir. Uncertainty regarding the age increases as the fluid path becomes more complex. Dating by chlorine-36 has also been attempted for some deep fluids from the centre of the basin. Measured ratios (with uncertainty levels between 18 and 60%) are between 0 and 10×10^{-15} , and probably correspond to secular equilibrium ratios of Triassic chlorinated evaporites, which would confirm the salt analysis.

CONCLUSION

Taking into account geological and hydrodynamic studies, geochemical study of deep fluids of the Paris Basin allows several conclusions to be drawn concerning the origin and evolution of the fluids:

- (1) Cl, Br, ^{18}O and ^2H are currently preserved in the aquifers and their contents can thus be used to reconstruct the evolution of the waters. These waters are the result of a mixing of waters that are different for each aquifer.
- (2) The study of water isotopes reveals a meteoric origin for all components and the Cl/Br ratios reflect chlorine released from Triassic evaporites.
- (3) The combination of chemical and isotopic tracers indicates that the aqueous solutions of these three aquifers are the result of mixing between two secon-

dary brines formed by the dissolution of Triassic evaporites by meteoric waters with meteoric waters unaffected by salt dissolution. The first brine is affected by the temperature effect on oxygen-18 which reveals a Paleogene origin (65 Ma – 25 Ma). Vertical transfer of this brine via faults explains the presence of saline solutions, hydrocarbons and carbonate cements in the younger aquifers. These flow transfers also explain the excess of helium of mantle origin, and the presence of dissolved chlorine impoverished in ^{37}Cl in the Dogger. The second brine, with an isotopic composition unaffected by temperature effects, is Neogene and may currently still be continuing. It mixed with the brine already present, traces of which are only found in the deepest parts of the aquifers. The general dilution of all the aquifers by meteoric waters unaffected by salt dissolution explains the current salinity distribution in the aquifers.

- (4) The current flow pattern of the Dogger provides an estimation of approximately 1 Ma for the transfer time in the aquifer outside the central zone, which is hydrodynamically disturbed by the presence of dense fluids and the varying dip of the aquifer. As a result, velocity is almost zero in this sector, which has a tendency to reduce flow to the outlet in the northwest.
- (5) Direct radio-isotope dating methods are unsuitable for deep fluids with ages of much more than 50,000 years. Nevertheless, they give an estimation of transfer velocities along the rim of the basin and provide data on the origin of dissolved chlorides and carbonates. In the vicinity of the exposures, these tools confirm the origin and velocity of the supply source.
- (6) Combined use of chemical and isotopic tracers is essential for reconstructing circulation in deep sedimentary aquifers. However, such techniques can only provide partial information on the age and origin of fluids, and must, where possible, be coupled with hydrogeological studies.

REFERENCES

- Dever (L.), Marlin (C.), Vachier (P.), 1990. "Teneurs en ^2H , ^{18}O , ^3H et en chlorures des pluies dans le Nord-Est de la France (Châlons-sur-Marne) : relation avec la température et l'origine des masses d'air". *Geodinamica Acta* 4, 3 : 133-140.
- Fontes (J.Ch.), Matray (J.M.), 1993a. "Geochemistry and origin of formation brines from the Paris Basin. Part 2: Saline solutions associated with oil fields". *Chem. Geol.* 109 : 177-200.
- Fontes (J.-Ch.), Matray (J.M.), 1993b. "Geochemistry and origin of formation brines from the Paris Basin. Part 1: Brines associated with Triassic salts". *Chem. Geol.* 109 : 149-175.

- Fouillac (C.), Fouillac (A.M.), Criaud (A.), 1990. "Sulphur and oxygen isotopes of dissolved sulphur species in formation waters from the Dogger geothermal aquifer, Paris Basin, France". *Appl. Geochem.* 5, 4 : 415-427.
- Geisler (D.), 1979. "Problèmes posés par la géochimie du brome dans les niveaux salifères du Keuper inférieur Lorrain". *Sci. Terre* 23, 2 : 23-38.
- Kaufmann (R.S.), 1984. Chlorine in groundwater : stable isotope distribution. Ph. D. Thesis, University of Arizona, Tucson, 137 p.
- Kaufmann (R.S.), Long (A.), Campbell (D.J.), 1988. "Chlorine isotope distribution in formation waters, Texas and Louisiana". *Amer. Assoc. Petrol. Geol. Bull.* 72 : 839-844.
- Kharaka (Y.K.), Berry (F.A.F.), 1973. "Simultaneous flow of water and solutes through geological membranes – I. Experimental investigation". *Geochim. Cosmochim. Acta* 37 : 2577-2603.
- Kharaka (Y.K.), Carothers (W.W.), 1986. "Oxygen and hydrogen isotope geochemistry of deep basin brines". In *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry* (P.Fritz and J.-Ch.Fontes eds), Vol. 2, *The Terrestrial Environment B*, Chap. 8, pp. 305-360. Elsevier, Amsterdam.
- Land (L.S.), Prezbindowski (D.R.), 1981. "The origin and evolution of saline formation water, lower Cretaceous carbonates, South Central Texas". In W. Back and R. Létolle (Guest-Editors), *Symposium on Geochemistry of Groundwater – 26th International Geological Congress. J. Hydrol.* 54 : 51-74.
- Marty (B.), Torgersen (T.), Meynier (V.), O’Nions (R.K.), de Marsily (G.), 1993. "Helium isotope fluxes and groundwater ages in the Dogger aquifer, Paris Basin". *Water Resour. Res.* 29, 4 : 1025-1035.
- Matray (J.M.), Fouillac (C.), Worden (R.H.), 1993. "Thermodynamic control on the chemical composition of fluids from the Keuper aquifer of the Paris Basin". In *Geofluids’93: Contributions to an International Conference on fluid evolution, migration and interaction in rocks* (eds J.Parnell, A.H. Ruffell, N.R. Moles) Torquay, U.K. : 12-16.
- Matray (J.M.), Lambert (M.), Fontes (J.-Ch.), 1994. "Stable isotope conservation and origin of saline waters from the Dogger aquifer of the Paris Basin, France". *Appl. Geochem.* 9 : 297-309.
- Menjot A., Lambert M. and Matray J.M., 1993. "Flow formation water in the Jurassic of the Paris Basin and its effects". *Phil. Trans. R. Soc. Lond.* A 344 : 159-169.
- Michard (G.), Bastide (J.P.), 1988. "Étude géochimique de la nappe du Dogger du Bassin Parisien". *J. Volcanology Geothermal Res.* 35 : 151-163.
- Poulet M., Espitalié J., 1987. "Hydrocarbon migration in the Paris basin". In *Migration of hydrocarbons in sedimentary basins* (ed B. Doligez) Éditions Technip, Paris, 131-171.

- Rojas (J.), Giot (D.), Le Nindre (Y.M.), Criaud (A.), Fouillac (C.), Brach (M.), Menjoz (A.), Martin (J.C.), Lambert (M.), 1989. "Caractérisation et modélisation du réservoir géothermique du Dogger, bassin parisien, France". Rapport final CCE, EN 3G-0046-F(CD), n° BRGM R 30 IRG SGN 89.
- Sheppard (S.M.F.), 1986. "Characterization and isotopic variations in natural waters". In (J.W. Valley, H.P. Taylor, J.R. O'Neil eds.) *Reviews in Mineralogy* vol. 16. Stable isotopes in high temperature geological processes: 165-180.
- Spötl C., Matter A., Brevart O., 1993. "Diagenesis and pore water evolution of the Keuper reservoir, Paris Basin (France)". *J. Sedim. Petrol.* 63 : 909-928.
- Stoessel (R.K.), Carpenter (A.B.), 1986. "Stoichiometric saturation tests of $\text{NaCl}_{1-x}\text{Br}_x$ and $\text{KCl}_{1-x}\text{Br}_x$ ". *Geochim. Cosmochim. Acta* 50 : 1465-1474.
- Worden (R.H.), Brach (M.), Coleman (M.), Fouillac (C.), Lambert (M.), Marty (B.), Matray (J.M.), Menjoz (A.), Pinti (D.), Rojas (J.), Sambet (G.), Walgenwitz (F.), 1994 - Geochemical studies of rocks and fluids to give predictive modelling of the permeability distribution in sedimentary basins. Final Report. EC Contract JOUF-0016-C.

DEUXIÈME PARTIE

PART 2

Paléohydrologie
et géochimie des sédiments

*Paleohydrology
and sediment geochemistry*

Isotopes in global change science :
from isotope analytics to Earth system research

*Les isotopes pour l'étude du changement
du système Terre*

H. OESCHGER

ABSTRACT – The aim of this paper is to emphasize some of the studies of Jean-Charles Fontes and his role in our scientific community.

Isotopes represent a powerful tool for the understanding of the Earth's past environment and defining the envelope of natural environmental variability within which we can assess anthropogenic impact on the Earth's biosphere, geosphere and atmosphere. The reconstruction impacts of past climatic change on the Earth's system are a basis to validate models of the possible impacts of future climate change. Oceanic sediments, polar ice caps, continental sedimentary sequences and groundwater are archives of past climate. Their quantitative study is developed within the IGBP (International Geosphere-Biosphere Program) – Pages project, which strongly emphasizes an optimum use of isotope tools.

Keywords : past global changes, isotopes, polar ice, ocean, continent, atmosphere

*

RÉSUMÉ – Je souhaite illustrer ici quelques études réalisées par Jean-Charles Fontes et souligner le rôle qu'il a tenu dans notre communauté scientifique. Les isotopes représentent un outil puissant pour comprendre l'évolution naturelle de l'atmosphère, de la biosphère et de la géosphère, et estimer l'impact de l'activité anthropique sur le système Terre. L'étude de la variabilité climatique sur des périodes de temps plus longues que celles recouvertes par les enregistrements instrumentaux est indispensable pour valider les modèles prédictifs du climat. Les sédiments océaniques, les glaces polaires, les séquences sédimentaires continentales et les eaux souterraines détiennent les

archives du passé. Leur analyse quantitative fait l'objet du programme international Géosphère-Biosphère PIGB-PAGES dans lequel l'outil isotopique doit être optimisé.

Mots clés : changement global dans le passé, isotopes, glace polaire, océan, continent, atmosphère.

*

INTRODUCTION

Some decades ago a number of physicists and chemists, involved in isotope analysis, realized the great potential of the application of natural and cosmic ray produced isotopes to Earth system studies. Indeed, many discoveries in this field have only been possible thanks to the use of these techniques. Important knowledge on Earth system processes we owe to studies of high resolution records from the polar ice caps, from sea and lake sediments, but also other natural continental archives. Jean-Charles Fontes belonged to this group of scientists. He was especially interested in studying the continental aspects of the water cycle which are an important factor the Earth system, but also for the living conditions of the population in great parts of the globe.

He found considerable changes in the water cycle through time, often in connection with global climatic change. This knowledge provides an important basis for projections of changes in the water cycle into the future, as a consequence of the human induced global warming.

In the frame of Global Change science, it is not sufficient to know what happened during the 150 year period of instrumental measurements. Many phenomena which might become important in the future did only show up during much longer periods of time, as the ones which J.-Ch. Fontes and his collaborators studied.

For this reason, the IGBP decided to conduct a Core Project Past Global Changes (Pages). Paleo-research provided invaluable and often unexpected information on Earth system processes. Of special value for these studies in many cases are the isotope results. Since several years, a group of paleo-scientists, among which the new Director of the IAEA Isotope Laboratory, J.-Ch. Fontes, had the opinion that in Global Change science in general the use of the isotopes is by far not fully exploited. Together with J.-Ch., a meeting was planned, to stimulate the use of the isotopes in the water cycle and after the death of J.-Ch. Fontes, a meeting on this topic was successfully conducted in January, 1995, close to Bern, the meeting was organized by WMO, IAEA, PAGES and IAHS, with observers of WCRP and IGBP. A team has been formed which aims at up-dating and extending the Global Network for Isotopes in

Precipitation (GNIP) and inspiring a more intensive use of isotopes information in Global Change science.

The aim of this paper is to emphasize some of the studies of Jean-Charles Fontes which I remember especially well and also to show that both of us independently tried to develop a concept of Earth System Research based on new analytical tools and modeling experiments. Jean-Charles passed away exactly during the period when we jointly intended to give to this field of science a new momentum basing on methods and ideas which promise to produce exciting scientific results, but have not been fully recognized and exploited by the large scientific community involved in Earth System and Global Change Research.

^{14}C AND ^{39}Ar AGES OF GROUNDWATER

Jean-Charles Fontes was a good friend of mine and of my collaborators at the Physics Institute of the University of Bern. In 1992 I had to retire as director of the Laboratory for Climate and Environmental Physics and I was moved when I heard that Jean-Charles contemplated being my successor.

I believe that J.-Ch. and myself had a somewhat similar career. He started as a chemist, I as a physicist. We both were initially interested in analytics, in measuring natural radioactivity at very low concentrations. He used and perfected liquid scintillation counting for natural ^{14}C measurements, whereas I tried to construct proportional gas counters with as low as possible backgrounds.

I remember an interesting event on the occasion of the IAEA Conference on "Isotope Techniques in Groundwater Hydrology" in 1974 in Vienna. At the end of the 60ies my collaborator H.H. Loosli succeeded to measure ^{39}Ar in atmospheric Ar and also in Ar extracted from groundwater. Until then many age determinations on groundwater based on ^{14}C had already been made and the ages were considered to be very close to the mixing ages of the groundwater and not afflicted with problems. At this conference H.H. Loosli showed a set of ^{39}Ar groundwater ages which mostly were much younger than the corresponding ^{14}C ages. I mentioned in the discussion that one should really look into the problem of a possible artificial ageing of $^{14}\text{C}/\text{C}$ in groundwater due to the interaction of the dissolved carbon with the surface of the aquifer.

Several laboratories began to look deeper into these questions raised. J.-Ch. tried to resolve the problem by developing quantitative models for the interaction of the dissolved carbon with carbonate on the surface of the aquifer and the effects on ^{14}C and ^{13}C . This enabled to estimate possible deviations of the ^{14}C ages. I was very much impressed by J.-Ch. attempts to tackle this problem. Simultaneously H.H. Loosli continued his ^{39}Ar measurements and to our surprise he also determined ^{39}Ar ages younger than zero, in spite of the

fact that only negligible amounts of ^{39}Ar were produced by the nuclear weapon tests, not enough to influence the atmospheric $^{39}\text{Ar}/\text{Ar}$ ratio.

The problem was resolved: indeed the original $^{14}\text{C}/\text{C}$ in groundwaters often gets diluted by “older” carbon, but also ^{39}Ar ages can differ from the real groundwater ages due to the admixture of ^{39}Ar produced underground by (n,a) and (n,p) reactions.

This was a typical event in science: from initial consternation about the discrepancy of scientific results to a real step forward.

PALEOSTUDIES IN THE OCEANS, ON THE POLAR ICE CAPS AND ON THE CONTINENTS

Whereas J.-Ch. Fontes was interested in hydrological and in general more continental applications of isotopes, I early was confronted with the CO_2 problem.

In 1958 I had the chance to measure the ^{14}C age of the bicarbonate extracted from deep water of the Pacific Ocean and together with Hans E. Suess and G. Bien in their laboratory in La Jolla, California. We obtained values of the order of 1500 yrs for the difference between the apparent ages of the deep Pacific Water and that of the mixed surface layer. This information we used in 1974 when we developed the Box-Diffusion-Model (Oeschger et al., 1975) for the uptake of excess CO_2 by the ocean. We had a strong confidence in the validity of this model and were already at that time convinced that due to the rising greenhouse effect mankind would one day be confronted with a drastic climatic change in the next century. Indeed, if the emissions of CO_2 and other greenhouse gases would follow the Business as Usual Scenario of the IPCC Report (1990), the greenhouse forcing in the next century would increase to ca. $10 \text{ W}/\text{m}^2$ with the consequence of a global warming of ca. 4 to 5°C , i.e. of the order of a glacial to interglacial transition. A decrease of the emissions by a factor of 2 until the middle of next century (similar to scenario D in IPCC 1990) would lead to a stabilisation of the greenhouse forcing at the level of $4 \text{ W}/\text{m}^2$ corresponding to a global temperature increase of 2°C . This appeared to us as the best still possible limitation of the greenhouse excursion of the Earth.

Our laboratory in the late 50ies and early 60ies became interested in extracting the Earth system information contained in natural ice from the Alps and from the polar ice caps. Indeed many interesting observations were obtained from studies of ice and ocean sediments. From the ocean sediment information it was possible to study the reaction of the system to the orbital forcing. The ice core studies, thanks to the high resolution, enabled the detection of

unexpected high frequency climatic events and changes in the atmospheric composition related to climatic changes.

These and other information indicated that beside the physical processes also chemical and biological processes play an important role in the behavior of the Earth System (E.S.). In 1986 the International Council of Scientific Unions (ICSU) decided to conduct the International Geosphere-Biosphere Programme (IGBP) to supplement the World Climate Research Programme (WCRP) which essentially concentrates on the physical processes in the E.S. Since the beginning of the IGBP I had the chance to be a member of its committees and the possibility to emphasize the need to conduct a paleo programme. Around 1990 the Special Committee of the IGBP then decided to conduct a core project Past Global Changes (Pages)

J.-Ch. Fontes and his colleagues studied the water cycle, chemical processes (solution, paragenesis and diagenesis) and fundamentals regarding production and behavior of radionuclides (Fontes, 1994). In the following a short overview on his results and visions is given.

Of special interest for him was the water cycle: he studied the isotopic tracing of meteoric water in Europe, Africa and South America and analysed the relation to the origin of the water. Particular emphasis he gave to the interaction of water with the soil, especially also in arid areas. These studies were often linked to problems of water resources. Very important are his studies related to the evaporation and evapotranspiration of water. In Atmospheric General Circulation Models a weak point is the behavior of water over the continent. The question may be posed whether in these models use is made of the information obtained by isotope studies, like those by J.-Ch. and his collaborators. They provide results which often could not have been obtained by any other method.

In the past years J.-Ch. became very much interested in paleo-hydrology and attempted to link his results to the evolution of global climate. In one of his papers (Gasse *et al.*, 1994) an evidence regarding the arid-humid transition in the Sahara and the Sahel during the last deglaciation is discussed. At the time of the Last Glacial Maximum, the Sahara and Sahel regions of North Africa were extremely dry. Records of rainfall show that, during the subsequent deglaciation, the transition from arid to humid conditions in these regions occurred synchronously in two main steps. Comparison with other records of paleoclimate in Europe and the North Atlantic Ocean shows that common factors controlled changes in ocean and atmosphere dynamics during the deglaciation. Impressive in this paper is the broad use of mineralogical and biological parameters, including if possible isotopic measurements.

This paper illustrates the link between ocean ice and continental paleo-records. Only if PAGES succeeds to coordinate the information from those different paleo-records an optimum contributions to Global Change Research will be possible.

WHY ARE STUDIES OF THE PAST SO IMPORTANT FOR GLOBAL CHANGE SCIENCE ?

In the following a few examples are given, why the Pages core project is so important in the frame of Global Change Science:

— The present Earth' system is already in a deviated state compared to pre-industrial conditions, due to human emissions which became effective in the 19th century. Continuous, high precision measurements of CO₂ started only in 1958 and of the other gases even a dozen years later; earlier sporadic measurements are difficult to interpret. The reconstruction of the pre-industrial concentrations and the early increases of these gases was possible by the measurement of the gas composition of the air occluded in natural ice of known age.

— Climate shows a natural variability consisting of red noise, but also of internal quasi-oscillations like the ENSO events, the North Atlantic and the Monsoonal variations. How are these phenomena influenced by climatic change? To answer this question one needs to study the climate variability during longer time periods which also cover larger natural climate changes, than those offered by the instrumental records.

— Reconstructions of external forcings, like those due to solar variability and volcanic eruptions, together with their effects on climate enable the study of climate sensitivity over large periods of time and the build up of confidence in our understanding of the climate system.

— Based on results from such studies, one can, within some limits, estimate how climate would have developed during the industrial time without the human impact. This then would enable to disentangle from the actual evaluation of climate the effects of the human impact on the system.

The reconstructed impacts of past climatic change on ecosystems and on fluvial systems, as well as on sea level, are a basis to validate models of the possible impacts of future climate change.

— In the past there have been natural greenhouse gas variations which constituted a feedback during climatic changes, like the glacial-interglacial transitions. The data show that these variations of the greenhouse effect probably contributed to the climatic coupling between the hemispheres during the glacial cycles. To understand the greenhouse gas climate variations, i.e. the full physical-chemical-biological interplay during these fluctuations, is one of the big challenges of Global Change Science.

— In the records of the past unexpected events have been found. As an example, during the last glacial and perhaps also during the Eemian interglacial a bistable climatic system dominated the processes in the North Atlantic region. These events had drastic impacts on large regions of the globe. This discovery could mean that in order not to induce climatic changes with immense consequences one not only needs to keep the rate of increase of the greenhouse forcing below a certain limit. Also the absolute value of the forcing should remain below a threshold value above which the system would switch into another state.

INITIATIVES TO ENLARGE THE USE OF ISOTOPES IN GLOBAL CHANGE RESEARCH

PAGES is charged with providing a quantitative understanding of the Earth's past environment and defining the envelope of natural environmental variability within which we can assess anthropogenic impact on the Earth's biosphere, geosphere and atmosphere (Pages, 1994). Fig. 1 gives an overview on the Pages Project Organization.

In the frame of FOCI 1 and 2 the history of the variability of the global climate and environment will be reconstructed, aiming at an integrated high resolution description of the Earth system during the past 2000 years and with lower resolution during the past few glacial-interglacial cycles. The work performed by J.-Ch. Fontes and his colleagues will be of a special value for the Afro-European transect PEP – 3, but methods he developed during the past decades will in general help to increase the standard of continental paleo-reconstructions.

In all these projects we emphasize an optimum use of isotope tools. Especially in Focus 5 Pages hopes for a strong collaboration with the Isotope Hydrology Section of the IAEA and started early contacts with their team.

In April 1993 a meeting on "Isotope Techniques in the Study of Past and Current Environmental Changes in the Hydrosphere and the Atmosphere" was held in Vienna. Many papers presented at this conference demonstrate the great potential of environmental isotope studies to investigate past and present Earth's system changes. A more formal integration of the IAEA / WMO network on Isotopes in Precipitation and of the most valuable work of the Isotope Hydrology Section of the IAEA into the Global Change Research became a must.

On December 13 and 14, 1993 a planning meeting for PEP III, directed by F. Gasse was held at the Pages CPO in Bern. J.-Ch. Fontes the new director of the Isotope Hydrology Section of the IAEA attended this meeting and demonstrated much interest. He made valuable suggestions and gave an excellent

presentation on the use of natural isotopes in the frame of this project. He had to leave early, I brought him to the elevator, we expressed our satisfaction about the fledgling collaboration.

A few weeks later Jean-Charles Fontes died. We all were shocked but felt strongly that we have to continue this work in his spirit.

Soon after the funeral planning of a “Workshop on Tracing Isotopic Composition of Past and Present Precipitations - Opportunities for Climate and Water Studies” began. The workshop was successfully held on January 23 to 25, 1995 near Bern, organized by the WMO, IAEA, PAGES and IAHS. Recommendations, aimed at strengthening the operation of the IAEA / WMO Global Network “Isotopes in Precipitations” (GNIP), and a wider and more efficient use of the existing set of isotope data were made.

We believe that Jean-Charles Fontes would have been satisfied with this activity and as a dedicated group we will do our best to help isotope science lead to the so badly needed rapid progress in Earth system science.

REFERENCES

- Fontes, J. -Ch., 1994. *Jean-Charles Fontes: Titres et Travaux*, Université de Paris-Sud, unpublished.
- Gasse, F., Tehet, R., Durand, A., Gibert, E. & Fontes, J.-Ch., 1990. “The arid-humid transition in the Sahara and the Sahel during the last deglaciation”. *Nature*, 346: 141-146.
- IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change), 1990. *Climate Change: the IPCC Scientific Assessment*, J.T. Houghton, G.J. Jenkins and J.J. Ephraums (eds). Cambridge University Press, Cambridge, UK.
- Oeschger, H., Siegenthaler, U., Schotterer, U., Gugelmann, A., 1975. “A box diffusion model to study the carbon dioxide exchange in nature”. *Tellus* 27: 168-192.
- Pages Project Status And Work Plan (1994-1998).
- Past Global Changes (PAGES), a Core Project of the International Geosphere-Biosphere Programme (IGBP), November 1994.

PAGES PROJECT ORGANISATION

- FOCUS 1 Global Paleoclimate and Environmental Variability**
Activity 1.1: PEP – 1 The Americas transect
Activity 1.2: PEP – 2 Austral-Asian transect
Activity 1.3: PEP – 3 Afro-European transect
Activity 1.4: The Oceans
- FOCUS 2 Paleoclimate and Environmental Variability in Polar Regions**
Activity 2.1: Arctic Programme
Activity 2.2: Antarctic Programme
- FOCUS 3 Human Impacts on Past Environments**
Activity 3.1: Human Impacts on Fluvial Systems
Activity 3.2: Human Impacts on Terrestrial Ecosystems
- FOCUS 4 Climate Sensitivity and Modelling**
Activity 4.1: Climate Forcing and Feedbacks
Activity 4.2: Climate Model – Data Intercomparisons
- Focus 5 Cross – Project Analytical and Interpretative Activities**
Activity 5.1: Chronological Advances
Activity 5.2: Development of New Climatic or Environmental Proxies
Activity 5.3: International Paleodata System (w/WDC-A)
Activity 5.4: Regional, Educational and Infrastructure Efforts (w/START, IAI)

Paléolacs et paléoclimats aux pourtours
de l'océan Indien occidental depuis 25 ka BP

*Palaeolakes and palaeoclimates in the circum
Western Indian Ocean since 25 ka BP*

F. GASSE, L. BERGONZINI, F. CHALIÉ, E. GIBERT,
M. MASSAULT ET F. MÉLIÈRES

RÉSUMÉ – Plusieurs enregistrements lacustres de régions tropicales des deux hémisphères (Tibet, Ethiopie, Tanganyika, Madagascar) illustrent la spécificité des réponses régionales au changement des facteurs forçants du climat. Après avoir rappelé la méthodologie et les techniques utilisées, on résume les faits recensés dans les quatre régions. Les variations hydroclimatiques s'expliquent en partie par le facteur insolation. Les sites considérés enregistrent tous un déficit hydrologique annuel moyen pendant le Dernier Maximum Glaciaire, fait attendu des changements des paramètres orbitaux en hémisphère nord, et attribuable aux conditions thermiques glaciaires qui régissent la température de surface des océans et la teneur de l'atmosphère en vapeur d'eau en hémisphère sud. D'autres causes sont à rechercher pour rendre compte des variations post-glaciaires à très court terme affectant de larges domaines géographiques.

Mots clés : Afrique, Tibet, paléohydrologie, paléomousson, lac, Quaternaire supérieur.

*

ABSTRACT – Several lacustrine records from tropical regions of both Hemisphere (Tibet, Ethiopia, Tanganyika, Madagascar) illustrate the specificity of regional response to changes in the major forcing factors of the global climate system. Methodology and techniques are first briefly described. We then summarize major environmental changes recorded in the four regions considered. Hydroclimatic variations are partly explained by insolation forcing.

All sites register a mean annual hydrological deficit during the Last Glacial Maximum, as expected from orbital forcing in the Northern Hemisphere, but not in the Southern Hemisphere. Glacial climatic boundary conditions, i.e. lower tropical sea surface temperature and related availability in atmospheric moisture should be considered as the major cause. Other mechanisms have to be searched to account for short-term post-glacial variations that affect large geographical areas.

Keywords: Africa, Tibet, palaeohydrology, palaeomonsoon, lake, Late Quaternary.

*

Abridged English Version

INTRODUCTION

Causes and mechanisms of climate-induced hydrological fluctuations, that should be considered for water resource management and for prediction of long-term waste depository behaviour (Fontes, 1994), can only be approached through palaeohydrological research. Groundwaters may preserve a record of paleoclimates through their solutes, stable isotope and noble gas contents (e.g. Fontes, 1981; Fontes *et al.*, 1991, 1993a, b; Andrews *et al.*, 1994). Most of the available palaeohydrological records derive, however, from lake sediments which register environmental changes in both the lake and its catchment area. Palaeohydrological records may help to understand climate change and to test confidence on how hydrological and climate predictive models are able to simulate conditions which differ from the present-day ones.

This paper deals with lakes from tropical-subtropical regions which respond to global climate change by large fluctuations of their hydrological budget. Climate of the regions considered (Tibet, NE and SE Africa, Madagascar; Fig. 1) depends primarily on the seasonal migration of the InterTropical Convergence Zone (ITCZ), and on differential heating of land and Indian Ocean surfaces during the summer of both hemisphere, and related ocean-land pressure gradients which drive the low altitude monsoonal circulation. Our case studies exemplify the response of specific regions to change in solar radiation and to glacial/interglacial boundary conditions over the past 25-30 ka BP.

METHODS

Our approach is largely based on concepts developed in the PALHYDAF Program (PALEOHYDROlogy in AFrica, e.g. Fontes and Gasse, 1987, 1991a, b; Gasse and Fontes, 1992), and in the IGBP-PAGES-PANASH project (PAleoclimates of the Northern And Southern Hemispheres; Bradley *et al.*, 1995).

- *Select lake systems sensitive to climate change.* Lakes considered here are mainly supplied by surface water and respond without delay to environmental changes in their catchment.
- *Focus on continuous records,* derived from sediment cores.
- *Control chronology.* Our records are mainly supported by ^{14}C ages, the possible distortions of which in continental records have been thoroughly discussed by J.-Ch. Fontes (Fontes and Garnier, 1979; Fontes *et al.*, 1983, Durand *et al.*, 1984; Fontes, 1992, 1994; Gasse and Fontes, 1992 and Fontes *et al.*, 1993c, 1996).
- *Reconstruct past hydrological conditions.* Attention was paid to: (i) water-level fluctuations of closed lakes, related to the Precipitation-Evaporation (P-E) balance of the basin; (ii) mineralogy and stable isotope of authigenic mineral species. Carbonate ^{18}O contents may inform on changes in the P-E balance of closed lakes, or on the mean isotopic composition of rainfall in the catchment of open lakes with rapid throughflow (Siegenthaler *et al.*, 1984; Gonfiantini, 1986; Gasse *et al.*, 1987; Talbot, 1990; Gasse and Fontes, 1992; Fontes *et al.*, 1991, 1993d, 1996); (iii) diatoms, which allow salinity, pH and ionic composition of palaeowaters to be estimated (e.g. Gasse and Tekaiia, 1983; Roux *et al.*, 1991; Fritz *et al.*, 1991; Gasse *et al.*, 1995); (iv) palaeovegetation cover, which largely controls water, salt, isotope, and solid inputs to the lake.
- *Interpret hydrological signals in terms of palaeoclimate.* This step requires to: (i) ensure the role of climate on hydrological changes, through geological and hydrogeological investigation. Whenever possible, records from independent hydrological systems were compared, and consistency between hydrological and pollen records was controlled; (ii) transfer hydrological variables in palaeoclimatic parameters. Different types of proxies can sometimes be combined to simulate climate conditions compatible with palaeoproxies.

RECORDED HYDROLOGICAL AND CLIMATIC CHANGES

We refer to cited references for detailed results and discussion.

Northern hemisphere : Western Tibet

Western Tibet is currently a cold dry desert ($P \approx 60 \text{ mm.an}^{-1}$), outside of the Indian monsoon influence. Our data derive from two independent lake systems, the closed Sumxi-Longmu Co basin ($34^{\circ}30'N$, $80^{\circ}23'E$, 5058-5008 m; Gasse *et al.*, 1991; Fontes *et al.*, 1993d; Van Campo and Gasse, 1993; Avouac *et al.*, 1996), and the Bangong Lake system ($33^{\circ}40'N$, $79^{\circ}00'E$, 4241 m) which has been open during most of the Holocene period (Fontes *et al.*, 1995; Van Campo *et al.*, 1996; Fan *et al.*, 1996; Gasse *et al.*, 1996). Hydrological records from both lake systems appear extremely consistent when interpreted in terms of palaeoclimate, and fully agree with pollen data.

Our results document a lacustrine episode dated at 28.5 ka at its base (Th/U dating; Causse *et al.*, 1995), which preceded an emersion phase attributed to the Last Glacial Maximum (LGM). After the LGM (Fig. 2), a first warm/wet pulse at ≈ 12.7 ka BP was followed by a recessional event centered on 10.5 ka BP. The largest, abrupt environmental change occurred at $\approx 10-9.5$ ka BP, and led to conditions warmer and wetter than those of today until $\approx 6.3-6.0$ ka BP. The 10-6 ka interval is, however, interrupted by a marked dry spell at $\approx 8.0-7.7$ ka BP. A general trend towards aridity established after 6.3-6.0 ka BP and culminated at 4-3 ka BP. Minor oscillations are observed during the Late Holocene.

Northern hemisphere : NE Africa

Well-documented environmental changes over the region (e.g. Street-Perrott *et al.*, 1989) are exemplified here with Lake Abhe ($11^{\circ}05'N$, $41^{\circ}50'E$, 240 m). Lake Abhe depends on the Ethiopian Plateau, which receives heavy summer monsoon rainfall, through the Awash River (FAO, 1973; Coopération Hydrogéologique Allemande, 1982). The lake is currently shrinking and hyperalkaline. Ancient shorelines, sedimentology, diatom and isotopic studies (Fontes and Pouchan, 1975; Gasse, 1977; Fontes *et al.*, 1980, 1985) have provided a Late Pleistocene-Holocene record (Fig. 3).

Lake Abhe reached a very high level and its maximum water-dilution from 29 to 23 ka BP. Hyperarid conditions established after 19 ka BP. Lake-level has been at least as low as today from ≈ 17 to 10 ka BP. There is no evidence that Lake Abhe rose before 10 ka BP, but scattered data from neighbouring basins (Williams *et al.*, 1977) and the Lake Ziway-Shalla record (Ethiopian Rift, Gasse and Street, 1978) show the return of humid conditions over the region by 13-11 ka BP. Lake Abhe filled up rapidly at ≈ 10 ka BP. Two low salinity, high stands culminated from ≈ 9.4 to 8.3 ka BP, and 7 to 6 ka BP, respectively. They are separated by a regression around 8-7.5 ka BP. A 4-3 ka BP arid interval is followed by oscillations of minor amplitude.

By combining the water and salt balance equations, an attempt was made (unpubl.) to simulate hydroclimatic conditions which may account for the large, dilute early Holocene lake. Palaeodata at ≈ 9 ka BP are compatible with a 6 times increase in total water input to the lake, equivalent to an increase in mean efficient rainfall (P-E) over the whole catchment of 75 mm a^{-1} .

Southern hemisphere: the Tanganyika basin

Lake Tanganyika ($3^{\circ}20'-8^{\circ}45'S$, $30^{\circ}45'-31^{\circ}20'E$, 773 m) and its catchment are submitted to a long single rainy season during Austral summer. Rainfall on, and evaporation from the lake surface are the main components of the lake hydrological budget (55 % of the inputs and 95 % of the outputs, respectively). The lake is presently open on the Zaire River through the small Lukuga River.

In the lake southern basin (Fig. 4), sedimentology, diatom and pollen records (Tiercelin *et al.*, 1988; Gasse *et al.*, 1989; Vincens *et al.*, 1993) document a lake-level lower than that of today during the Glacial period, with a very low level (-300 , -400 m) centered at 18 ka BP. A positive water balance re-established at ≈ 16 ka BP, with a rapid water-level rise from ≈ 14 to 13 ka BP, the present-day level being reached at -12.7 ka BP. Pollen-inferred temperatures (T) and precipitation (P) suggest that, from 18-16 ka BP, $T = -4.4 \pm 2.2^{\circ}\text{C}$, and $P = -13 \pm 10\%$, compared to modern values (Chalié, 1995; Fig. 4).

We tentatively applied (Bergonzini *et al.*, in press) a hydrological and energy budget model (e.g. Kutzbach, 1980 ; Benson, 1981) that we first tested on the modern system, to the LGM situation as deduced from proxies. From our LGM simulation, from estimated precipitation (P) and evaporation (E), (P-E) in the catchment is about -40% compared to modern values.

Southern hemisphere: Madagascar

Our results (Gasse *et al.*, 1994; Sifeddine *et al.*, 1995; Van Campo and Gasse, 1995; Fig. 5) derive from a small, freshwater crater lake, Tritrivakely ($19^{\circ}47'S$, $46^{\circ}55'E$, 1778 m), on the central Plateau of Madagascar. Heavy Austral monsoon rains fall in summer. Winter is cool and dry.

The major climatic event is a large post-glacial warming between 14.4 and 9 ka BP, with two major steps at 14.4 and 12.8 ka BP documented by the pollen record (Fig. 5d). Maximum temperature and dryness is observed, as in the northern hemisphere, between ≈ 4 and 3.5 ka BP. Besides these major events, the hydroclimatic evolution is complex. Long-term positive shifts in the frequency of aerophilous diatom and of pollen elements of open vegetation reflect aridity trends from ≈ 28 to 20.5, and from ≈ 15 to 7 ka BP when summer insolation decreased. Other diatom groups predominate in phase with woody pollen elements which are interpreted as reflecting rainfall of the

monsoon type. Permanent shallow lake conditions with intense biological activity are recorded before 28 ka BP, from 20 to 19, and around 14.5-14, 13.5-12.8, and 3 ka BP. A temporary lake occupied the core site from \approx 28 to 25, 18 to 14.5 (LGM), and after 4.5 ka BP, suggesting strong seasonal hydrological fluctuations. This agrees with maximum insolation seasonal contrasts during the LGM and the Late Holocene period. Environmental conditions differ, however, between these two periods. Organic matter of aquatic-subaquatic origin accumulated rapidly after 4 ka BP. During the LGM, extremely low mean sedimentation rate, low content in poorly preserved organic matter, and sediment oxidation indicate that the crater was commonly dry or nearly so. This implies mean annual rainfall lower than that of today.

DISCUSSION

In the northern hemisphere, major hydrologic changes recorded in Tibet and East Africa are attributed to the Indian monsoon variability, and agree with marine records from northern Indian Ocean (Duplessy, 1982; Van Campo, 1986; Clemens and Prell, 1990; Sirocko *et al.*, 1993). Changes in summer insolation largely account for this variability (*cf.* Kutzbach and Street-Perrott, 1985; COHMAP Members, 1988; Clemens *et al.*, 1991). Solar forcing does not explain, however, pulses in monsoon strengthening at \sim 13-12.5, \sim 10-9.5, and 7.5-7 ka BP, as observed in northern tropical lakes (Gasse and Van Campo, 1994) or in the Arabian Sea (Sirocko *et al.*, 1993; Sirocko, 1994), nor the dry spells which punctuate the Holocene at 8-7.5, and 4-3 ka BP, the former being also recorded in the Asian monsoon domain (Zhou *et al.*, 1995; Wang, 1995). Other causes, e.g. changes in atmospheric greenhouse gas content, should explain these abrupt changes.

In the southern hemisphere, orbital forcing may partly account for the Madagascar record. However, other mechanisms should explain the hydrological deficit observed during the LGM in Madagascar and in the Tanganyika basin. In both regions, the re-establishment of a positive mean annual water balance after the LGM occurred in phase with a rapid warming between \approx 14.5 and 9 ka BP. This suggests that glacial/interglacial boundary conditions play an important role on the southern hemisphere tropical climates. Although CLIMAP (1981) suggested that Sea Surface Temperatures (SSTs) in the tropical oceans were similar to those of today, controversial recent data show lower LGM-SSTs in the tropics (Anderson and Webb, 1993; Duplessy, pers. comm.). Lower SSTs should be responsible for lower amount of water vapour in the atmosphere and reduced precipitation on the tropics under Earth's glacial boundary conditions.

*

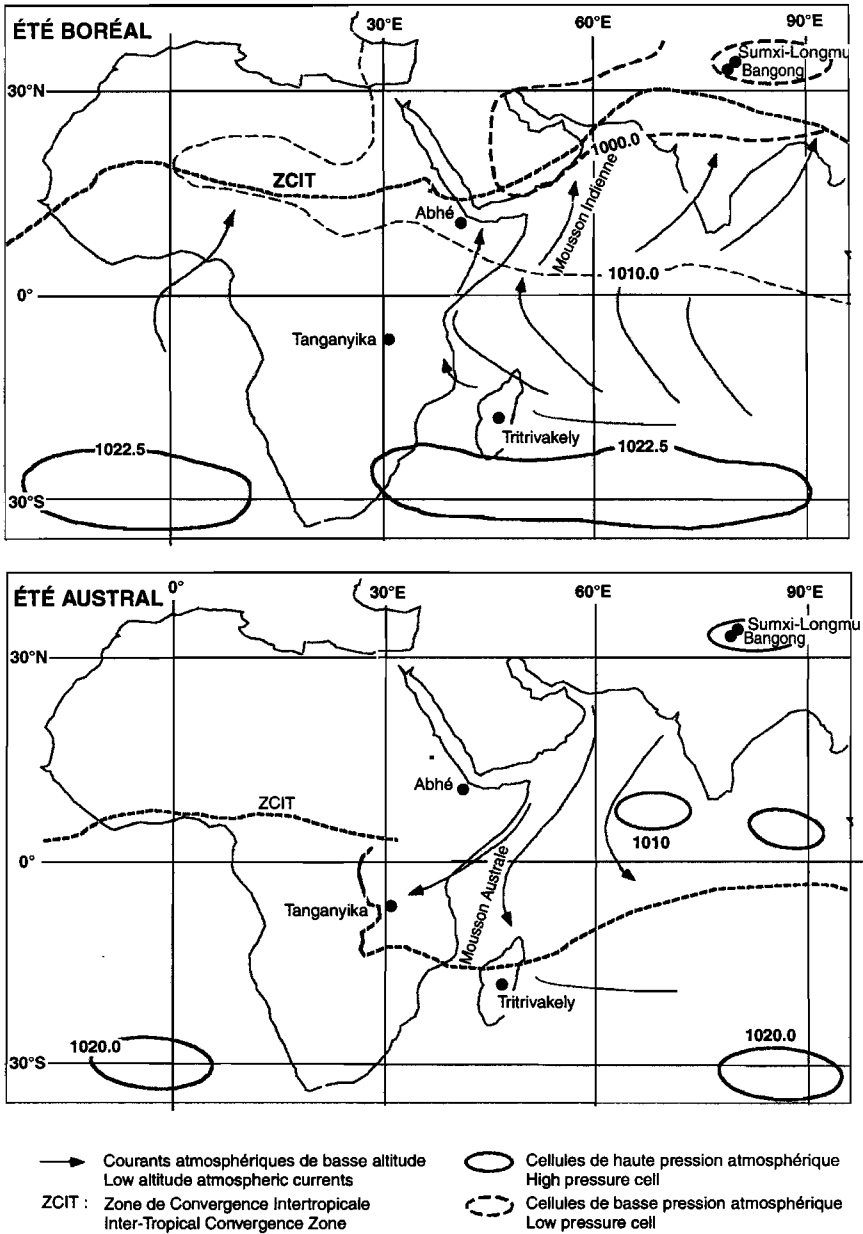


FIGURE 1.

Carte de localisation des sites considérés, et leur situation par rapport aux courants atmosphériques de basse altitude (d'après Fontaine, 1991).

Location map of sites considered, related to low altitude atmospheric currents (after Fontaine, 1991).

Version française

INTRODUCTION

Les conditions hydrologiques sur les continents, qui dépendent avant tout du climat, représentent un des facteurs primordiaux régissant l'activité humaine. Voici 9 000 à 5 000 ans, les civilisations néolithiques s'épanouissaient au cœur d'un Sahara vert où une multitude de lacs exprimait la remontée des aquifères induite par des précipitations accrues. À cela se superposent des variations de plus courte durée, telles que les deux dernières décennies de sécheresse au Sahel. La compréhension des mécanismes et des causes des fluctuations hydrologiques est indispensable pour une bonne gestion des ressources en eaux ou pour la prévision du comportement à long terme des sites de stockage de substances nocives (Fontes, 1994). Elle implique l'étude du passé. Les données paléohydrologiques du Quaternaire supérieur constituent des archives de la variabilité naturelle de l'environnement. Les eaux souterraines détiennent une certaine mémoire des paléoclimats consignée dans leurs teneurs en éléments dissous d'origine météorique, en isotopes lourds et en gaz rares, et informent en particulier sur l'origine de la vapeur d'eau et les paléotempératures (cf. Fontes, 1981; Fontes *et al.*, 1991; 1993a, b; Andrews *et al.*, 1994).

La plupart des données paléohydrologiques disponibles sont toutefois issues de séquences sédimentaires lacustres qui enregistrent les fluctuations du bilan Précipitation-Évaporation (P-E) du système lacustre (lac et bassin versant). Ainsi, la lecture des archives paléohydrologiques peut contribuer à mieux comprendre les processus des changements du climat et à estimer la fiabilité des modèles prédictifs, hydrologiques et climatiques.

Cet article se propose d'illustrer les variations hydrologiques et climatiques de régions tropicales ou subtropicales qui répondent au changement climatique global par des fluctuations de grande amplitude de leur bilan hydrologique : le Tibet occidental, l'Afrique nord-orientale (Éthiopie), l'Afrique sud-orientale (bassin du Tanganyika) et Madagascar (Fig. 1). Ces régions, sous la dépendance climatique de l'océan Indien occidental, sont liées par la migration saisonnière du Front de Convergence Intertropicale, de 25 °N en été boréal à 15-16 °S durant l'été austral. En été boréal, l'échauffement rapide du Plateau Tibétain par rapport à l'océan Indien engendre un gradient de pression dans les basses couches de l'atmosphère (basse pression sur l'Asie, pression relativement élevée sur l'océan). Il en résulte le flux de mousson indienne, ou mousson du SW, qui apporte de fortes précipitations estivales sur de larges portions de l'Asie et sur l'Afrique tropicale nord-orientale. En été austral, le gradient de pression Asie-océan Indien s'inverse. Les masses d'air humides

de l'océan Indien pénètrent, par les vents de N ou NW, sur les terres échauffées d'Afrique sud-tropicale et de Madagascar. C'est la « mousson d'été austral ». Deux facteurs principaux déterminent les variations à long terme (10^5 - 10^3 ans) de la mousson: le forçage orbital (en particulier les fluctuations de la précession des équinoxes qui régissent les contrastes saisonniers dans les deux hémisphères) et l'effet des conditions de surface de la Planète entre périodes glaciaires et périodes interglaciaires (Overpeck *et al.*, 1996).

Nous résumons ici les principaux changements hydroclimatiques au cours des 25 derniers millénaires que nos études ont permis de déceler. Nos données illustrent la réponse spécifique des régions considérées aux changements planétaires du climat. Les fluctuations du contraste saisonnier de la radiation solaire, et le passage des conditions thermiques glaciaires aux conditions interglaciaires jouent, comme attendu, un rôle déterminant sur les climats tropicaux.

MÉTHODOLOGIE

La démarche adoptée s'appuie largement sur les concepts développés par J.-Ch. Fontes dans le programme PALHYDAF (PALéoHYDrologie en AFRIQUE) (Fontes et Gasse, 1987, 1991a, b; Gasse et Fontes, 1992), et le projet IGBP-PAGES PANASH (PAleoclimates of the Northern And Southern Hemispheres) articulé autour de transects continentaux Pôle-Équateur-Pôle (PEP) (Bradley *et al.*, 1995).

Chaque étude a fait l'objet de publications, dans lesquelles sont détaillées la présentation des méthodes et l'interprétation des indicateurs paléohydrologiques spécifiques à chaque site. Seules les principales étapes de notre démarche sont évoquées ci-dessous.

Des systèmes hydrologiques sensibles au changement du climat.

Les lacs considérés sont principalement alimentés par le ruissellement superficiel et les précipitations sur la surface du lac. Ainsi répondent-ils rapidement aux variations de l'environnement sur leur bassin par des changements de bilans hydrique, salin et isotopique.

Des enregistrements continus

C'est là une des conditions nécessaires pour estimer l'amplitude des changements et pour comparer entre eux les enregistrements. Les données présentées dérivent de l'analyse de carottes lacustres, souvent complétée par l'étude de coupes à l'affleurement et de paléorivages.

Une chronologie contrôlée

La chronologie des séquences étudiées est essentiellement basée sur des âges radiocarbone. Les multiples causes de distorsion des âges ^{14}C en milieu

continental ont été rigoureusement discutées par J.-Ch. Fontes (Fontes et Garnier, 1979 ; Fontes *et al.*, 1983 ; Durand *et al.*, 1984 ; Fontes et Gasse, 1989 ; Fontes, 1992 ; Gasse et Fontes, 1992 ; Fontes *et al.*, 1993 c, 1996). La chronologie ^{14}C des sédiments lacustres, spécifique au site, doit être validée par des critères sédimentologiques, géochimiques et isotopiques. Une des principales difficultés rencontrées dans les séries dépourvues de restes de végétaux à photosynthèse aérienne, cas fréquent en régions désertiques, est le possible vieillissement du Carbone Inorganique Total Dissous (CITD) des eaux lacustres. Ce vieillissement peut être dû à une alimentation par des eaux souterraines anciennes, à l'oxydation de la matière organique des sédiments libérant du CO_2 ancien, à la dissolution de roches carbonatées du bassin versant, à des apports de CO_2 crustal, ... Il engendre des âges ^{14}C de la fraction authigène des sédiments supérieurs aux âges réels. Ce cas fut observé au lac Bangong (Tibet) où une correction des effets de vieillissement, basée sur l'étude géochimique et isotopique du système calco-carbonique des eaux actuelles et des sédiments, a pu être proposée (Fontes *et al.*, 1996).

Reconstitution des conditions hydrologiques

Aucun signal paléohydrologique n'est univoque. Plusieurs types d'indicateurs ont donc été étudiés parallèlement et confrontés. Les plus importants d'entre eux sont brièvement présentés ci-dessous.

Niveaux lacustres

La reconstitution des variations de niveau des lacs fermés, qui reflètent les changements de P-E sur le système lacustre, est parfois possible en combinant l'étude d'anciennes lignes de rivage et de profils sédimentaires prélevés à différentes altitudes sur le fond du bassin. Peu de sites se prêtent cependant à une estimation continue et quantifiée de la paléobathymétrie.

Minéralogie et isotopes stables

La composition en isotopes stables des espèces minérales précipitées dans les eaux d'un lac informe sur les conditions régnant au moment de la précipitation, si tant est qu'aucun effet diagénétique n'ait perturbé le signal. L'attention porte ici sur les teneurs en ^{18}O des carbonates, dont l'interprétation a fait l'objet de nombreuses publications (*cf.* Siegenthaler *et al.*, 1984 ; Gonfiantini, 1986 ; Gasse *et al.*, 1987 ; Talbot, 1990 ; Gasse et Fontes, 1992 ; Fontes *et al.*, 1993d, 1996). Dans les lacs fermés, la teneur en ^{18}O reflète principalement le rapport entre les flux entrant et l'évaporation. Dans les lacs ouverts, à taux de renouvellement élevé, situés sous climat froid ou tempéré,

la valeur de $\delta^{18}\text{O}$ peut être considérée comme représentative de la composition isotopique moyenne des précipitations sur le bassin versant, modulée par les effets de la température des eaux lacustres. C'est le cas du lac Bangong (Tibet) à l'Holocène inférieur et moyen.

Diatomées

Le mode de vie des espèces dominantes dans les assemblages fossiles informe sur le type d'habitat et, dans les cas favorables, sur la profondeur des eaux (cf. Gasse *et al.*, 1989; Barker *et al.*, 1994). Des fonctions de transfert basées sur un référentiel actuel permettent de reconstituer la conductivité ou la salinité, le pH, et la composition ionique des eaux (cf. Gasse et Tekaiia, 1983; Fritz *et al.*, 1991; Roux *et al.*, 1991; Gasse *et al.*, 1995).

Paléovégétation sur le bassin versant

La paléovégétation régit l'évapotranspiration, le stockage des eaux dans les sols, la pédogenèse, le ruissellement et l'érosion. Elle gère donc les apports en eau, en solutés et en suspension au lac. Au-delà des informations climatiques régionales directement fournies par la palynologie, la connaissance du couvert végétal sur le bassin versant conduit à une meilleure compréhension du système lacustre.

Interprétation climatique des paléodonnées hydrologiques

Contrôle climatique des variations hydrologiques

Décrypter les facteurs hydrologiques locaux susceptibles d'avoir biaisé le signal climatique exige une connaissance approfondie de la géologie et de l'hydrogéologie du bassin. Cette démarche est particulièrement importante dans les régions où des événements volcano-tectoniques ont pu modifier de façon significative le réseau hydrographique (Tibet, Afrique de l'Est). La comparaison de plusieurs enregistrements dérivant de systèmes hydrologiques indépendants dans une région donnée aide à s'affranchir de cette difficulté. La cohérence entre fluctuations hydrologiques et palynologiques assure le rôle déterminant du climat sur l'évolution du lac.

Reconstitution des paramètres paléoclimatiques

Les relations entre les variables climatiques, les bilans hydrique, salin et isotopique et la biocénose d'un lac sont complexes. Dans les cas où les données disponibles le permettent, nous avons tenté de combiner les équations de bilans hydrique et salin d'un lac (Abhé), ou de bilans énergétique et hydrique d'un bassin (Tanganyika), pour simuler les variables paléohydrologiques et paléoclimatiques compatibles avec les faits observés.

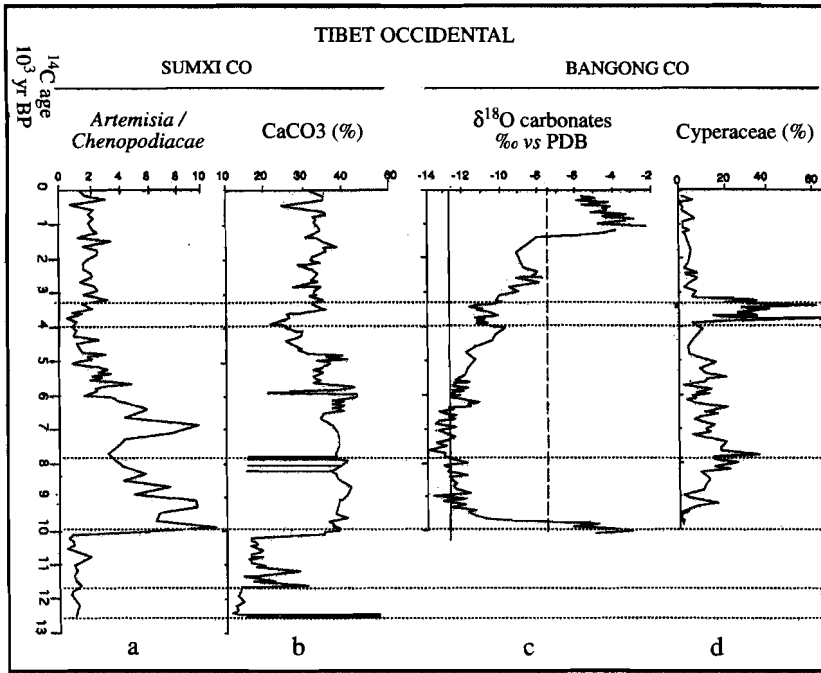


FIGURE 2.

Tibet occidental.

(a, b) : carotte de Sumxi Co. (a) : rapport des fréquences polliniques de *Artemisia* (A), plante steppique, et *Chenopodiaceae* (C), plante désertique. Le rapport A/C est un indice d'humidité (sol ou atmosphère). (b) : teneur en carbonates. Les fortes teneurs (Mg-calcite) sont attribuées à une pédogenèse renforcée (épisodes humides et chauds). La calcite détritique prédomine pendant les épisodes à faible teneur en carbonates (< 20 %), qui reflètent des conditions arides. (c, d) : carotte de Bangong Co. (c) : teneur en ^{18}O des carbonates inorganiques authigènes, considérée comme reflétant la teneur isotopique moyenne des précipitations sur le bassin pendant le stade d'ouverture. (d) : fréquences des pollens de *Cyperaceae*. Les fortes fréquences (> 20 %) traduisent l'installation d'un marécage au site de carottage (bas niveau lacustre). Voir références dans le texte.

Western Tibet.

(a, b) : Sumxi Co core. (a) : *Artemisia/Chenopodiaceae* pollen ratio, an index of air/soil moisture. (b) : Carbonate contents. High contents (with authigenic, high-Mg calcite predominant) are attributed to enhanced pedogenesis and thus to wet, warm episodes. Detrital calcite predominates over authigenic calcite during episodes with low carbonate contents (< 20 %), which reflect arid conditions. (c-d) : Bangong Co core. (c) : Content of ^{18}O in authigenic inorganic carbonates, corrected from the proportion of aragonite and calcite. The $\delta^{18}\text{O}$ values is regarded as reflecting mean isotopic composition of rainfall in the catchment during period of opening of the lake system. (d) : *Cyperaceae* pollen frequencies. High frequencies (> 20 %) reflect very shallow conditions at the core site. See references in text.

VARIATIONS HYDROLOGIQUES ET CLIMATIQUES RECENSÉES

Nous résumons ici les faits majeurs, illustrés pour chacun des sites par les variations d'un ou plusieurs paramètres les plus représentatifs des changements reconnus.

Hémisphère Nord : le Tibet occidental

Le Tibet occidental est actuellement à l'écart de la mousson indienne. C'est un désert froid où tombent de rares pluies convectives estivales ($< 60 \text{ mm a}^{-1}$). L'étude pluridisciplinaire de séquences sédimentaires (minéralogie, isotopes stables, microorganismes aquatiques, pollen) fut conduite sur deux systèmes hydrologiques indépendants, Sumxi Co-Longmu Co (Co signifie lac), système fermé, et Bangong Co, ouvert sur le bassin de l'Indus lorsque sa balance hydrique est excédentaire.

Sumxi Co ($34^{\circ}30'N$, $80^{\circ}23'E$, 5058 m) est un lac d'eau douce sans exutoire de surface, alimenté par des eaux de fonte de glaciers. Le lac voisin Longmu (5008 m), hypersalé, dépend d'une source vraisemblablement résurgente de Sumxi. Nos résultats (Gasse *et al.*, 1991 ; Fontes *et al.*, 1993d ; Van Campo et Gasse, 1993 ; Avouac *et al.*, 1996) s'appuient sur l'analyse d'une carotte (10,5 m, 12,7 ka BP) prélevée à Sumxi et de nombreux affleurements, et sur l'étude d'anciens rivages qui montrent que Sumxi et Longmu ont formé un lac unique fermé, d'au moins 160 m de profondeur, à l'Holocène inférieur et moyen. Bangong Co ($33^{\circ}40'N$, $79^{\circ}00'E$, 4241 m) est une longue vallée ennoyée, recevant, dans sa partie orientale, deux cours d'eau descendant de hauts reliefs enneigés, et une rivière drainant une série de marécages salés (cf. Tagutagion) tributaires de résurgences karstiques. Une carotte de 12,4 m a fourni un enregistrement holocène continu (Fontes *et al.*, 1996 ; Fan *et al.*, 1996 ; Gasse *et al.*, 1996 ; Van Campo *et al.*, 1996). L'exutoire de Bangong, actuellement clos, fut fonctionnel entre $\approx 9,6$ et 2 ka BP.

Bien que les signaux paléohydrologiques diffèrent entre les bassins de Sumxi-Longmu Co (système fermé) et Bangong Co (système ouvert), leur interprétation en terme de paléoclimat est très cohérente, et en parfait accord avec les données polliniques. Un épisode lacustre daté vers sa base de 28,5 ka (âges U/Th) est recensé en un site aujourd'hui émergé (Tagutagion ; Causse *et al.*, 1995). Il est suivi d'une période d'émersion attribuée au Dernier Maximum Glaciaire (DMG). Après le DMG, nos résultats, concordants avec les grandes tendances climatiques mises en évidence plus à l'Est (Seling Co, Gu *et al.*, 1993 ; Lac Qinghai, Lister *et al.*, 1991), montrent la complexité de la période post-glaciaire (Fig. 2). Une première pulsation humide est enregistrée vers 13-12 ka BP, suivie d'un retour à des conditions arides centrées sur 10,5 ka BP. Un climat plus chaud et plus humide que l'actuel s'établit rapi-

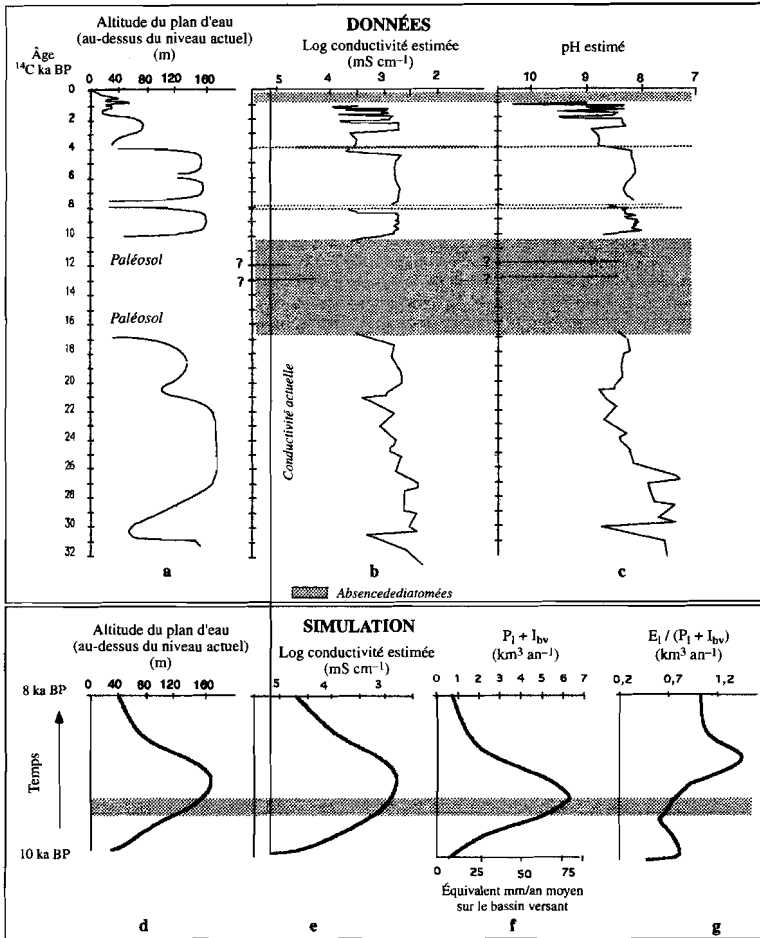


FIGURE 3.

Lac Abhé.

(a-c) : Paléodonnées. (a) Fluctuations du niveau lacustre. (b, c) : Fluctuations de la conductivité (b) et du pH (c) des eaux, reconstituées à partir des diatomées. (d-g) : Résultats d'une simulation des variations du niveau lacustre (d), de la conductivité (e), et de paramètres hydroclimatiques (f, g) compatibles avec les paléodonnées; P_1 = précipitation sur la surface du lac; E_1 = évaporation de la surface du lac; I_{bv} = somme des apports en eau du bassin versant, bande grisée: valeurs de P_1 , E_1 et I_{bv} constantes. (a) : d'après Gasse et Street, 1978; autres : inédits.

Lake Abhe.

(a-b) : Proxy data. (a) : Lake-level fluctuations. (b-c) : Diatom-inferred water conductivity and pH. (d-g) : Results from a simulation experiment for inferring lake-level fluctuations (d), conductivity (e) and hydroclimatic parameters (f, g) compatible with proxy data; P_1 = precipitation on the lake surface; E_1 = evaporation from the lake surface; I_{bv} = total water supplies from the catchment area; dashed band : constant P_1 , E_1 et I_{bv} values. (a) : after Gasse and Street, 1978; others : unpublished.

dement vers 10-9,5 ka BP, et se maintient jusque vers 6,3-6,0 ka BP. Il est attribué à la pénétration de la mousson indienne sur le Tibet occidental. L'intervalle 10-6 ka BP est toutefois interrompu par une phase sèche, brève mais marquée, autour de 8,0-7,7 ka BP. Les données polliniques ainsi que les teneurs en ^{18}O des carbonates de Bangong, alors bassin ouvert, indiquent que les pluies de mousson ont atteint leur intensité maximale entre 9,0 and 8,7 ka BP, et entre 7,5 et 6,3 ka BP. Une tendance générale vers l'aridité s'amorce à $\approx 6,3-6,0$ ka BP et culmine entre ≈ 4 et ≈ 3 ka BP, suivie de plusieurs oscillations de faible ampleur.

La pénétration de la mousson indienne sur le Tibet occidental à l'Holocène inférieur et moyen est en accord avec les attendus du forçage orbital du climat. Les brèves pulsations sèches recensées restent inexécutées.

Hémisphère Nord : Afrique orientale

Les changements environnementaux reconnus en Afrique nord-orientale, dans l'ensemble cohérents (*cf.* Street-Perrott *et al.*, 1989), sont illustrés ici par l'histoire du lac Abhé (11°05'N, 41°50'E, 240 m; Fig. 3), très comparable à celle du bassin de Ziway-Shalla dans le Rift Ethiopien (Gasse et Street, 1978).

Abhé, au cœur du désert Afar, est le lac terminal de la rivière Awash qui s'écoule du plateau Éthiopien. Son bassin versant (76 000 km²) s'étend entre 2 400 et 240 mètres d'altitude. La mousson estivale représente l'essentiel des précipitations moyennes annuelles, qui décroissent de 1 250 à 250 mm a⁻¹ du Plateau aux alentours du lac (moyenne pour le bassin versant : 600 mm a⁻¹); inversement, l'évapotranspiration potentielle (Et) croît de 700 à 1200 mm a⁻¹ (FAO, 1973; Coopération Hydrogéologique Allemande, 1982). Le lac est aujourd'hui hypercalin (pH: 11; salinité: 160 g l⁻¹) et en voie d'assèchement. Les pertes en eau sont principalement dues à l'évaporation, malgré des infiltrations non négligeables (Fontes *et al.*, 1985; Gasse et Fontes, 1989).

Les variations du niveau lacustre sont reconstituées à partir de l'étude sédimentologique et diatomologique de dépôts carottés en bordure du lac, de sections à l'affleurement, et d'anciens rivages (Gasse, 1991). L'application des fonctions de transferts basées sur les diatomées (ce travail), et l'analyse isotopique des carbonates holocènes (Fontes et Pouchan, 1975; Fontes *et al.*, 1980, 1985) informent sur la paléochimie des eaux.

Une période aux eaux très hautes et à faible salinité s'observe entre ~ 29 et 23 ka BP. Après quelques oscillations de faible ampleur, les conditions arides du DMG s'établissent après 19 ka BP. Un paléosol à restes de graminées indique un niveau au moins aussi bas qu'aujourd'hui entre ≈ 17 et ≈ 10 ka BP. Rien ne prouve que le lac Abhé soit remonté antérieurement à 10 ka BP (hormis peut-être à l'occasion de deux brèves oscillations indiquées par des deux niveaux à diatomées intercalés dans le paléosol), mais quelques

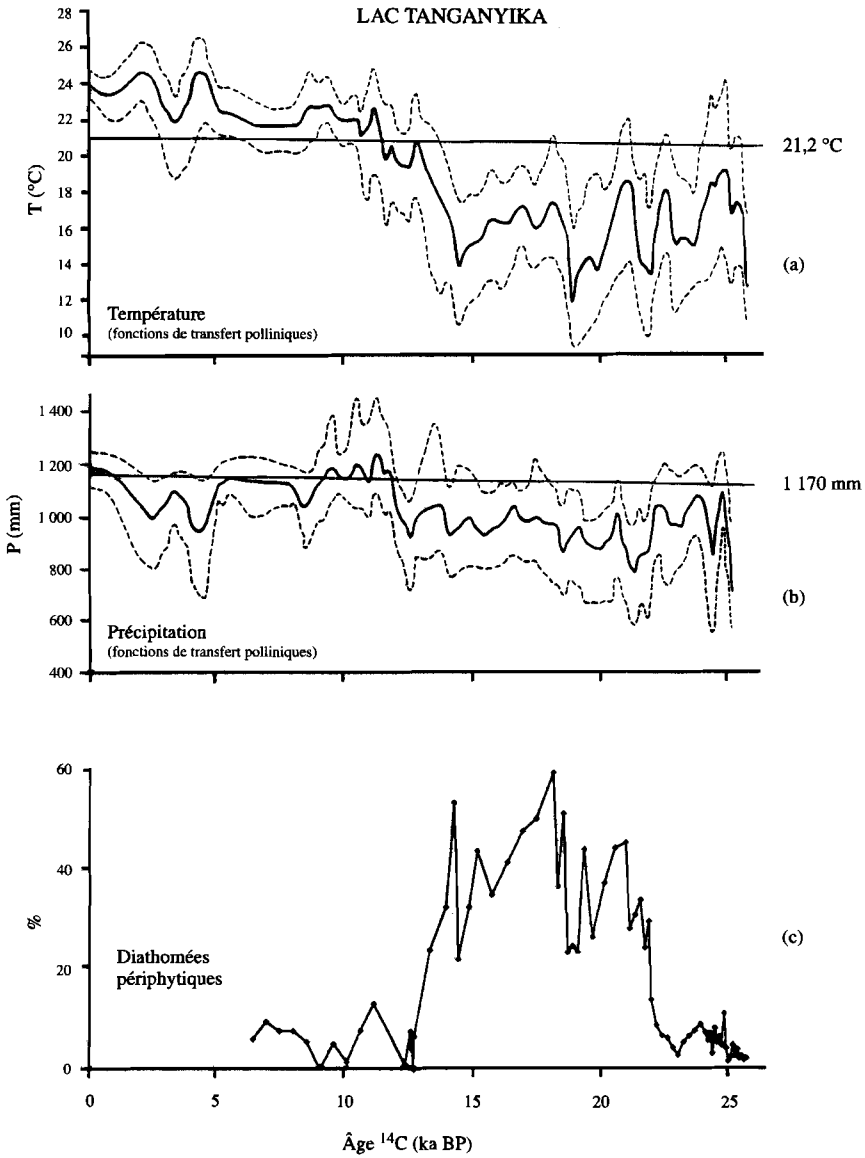


FIGURE 4.

Bassin du lac Tanganyika.

(a, b) : Fluctuations des paléo-températures (a) et -précipitations (b), reconstituées à partir des pollens. (c) : variations de la fréquence totale des diatomées littorales. Voir références dans le texte.

Tanganyika basin.

(a, b) Pollen-inferred fluctuations in (a) paleo-temperature and (b) -precipitation. (c) : Changes in total frequency of littoral diatoms. See references in text.

données obtenues sur des bassins voisins montrent le retour des conditions humides en Afar dès 13 et 11,5-11 ka BP (Williams *et al.*, 1977). Le bassin du lac Abhé se remplit rapidement vers 10 ka BP. Deux épisodes de haut niveau lacustre (+ 160 m, 5 500 km²), aux eaux peu évaporées, s'observent entre 10 et 4 ka BP et culminent l'un entre $\approx 9,4$ et 8,3 ka BP, l'autre entre 7 et 6 ka BP. Ces épisodes sont séparés par une importante régression centrée sur 8,0-7,5 ka BP. La période 4-3 ka BP est aride. L'Holocène supérieur connaît plusieurs oscillations positives d'amplitude mineure.

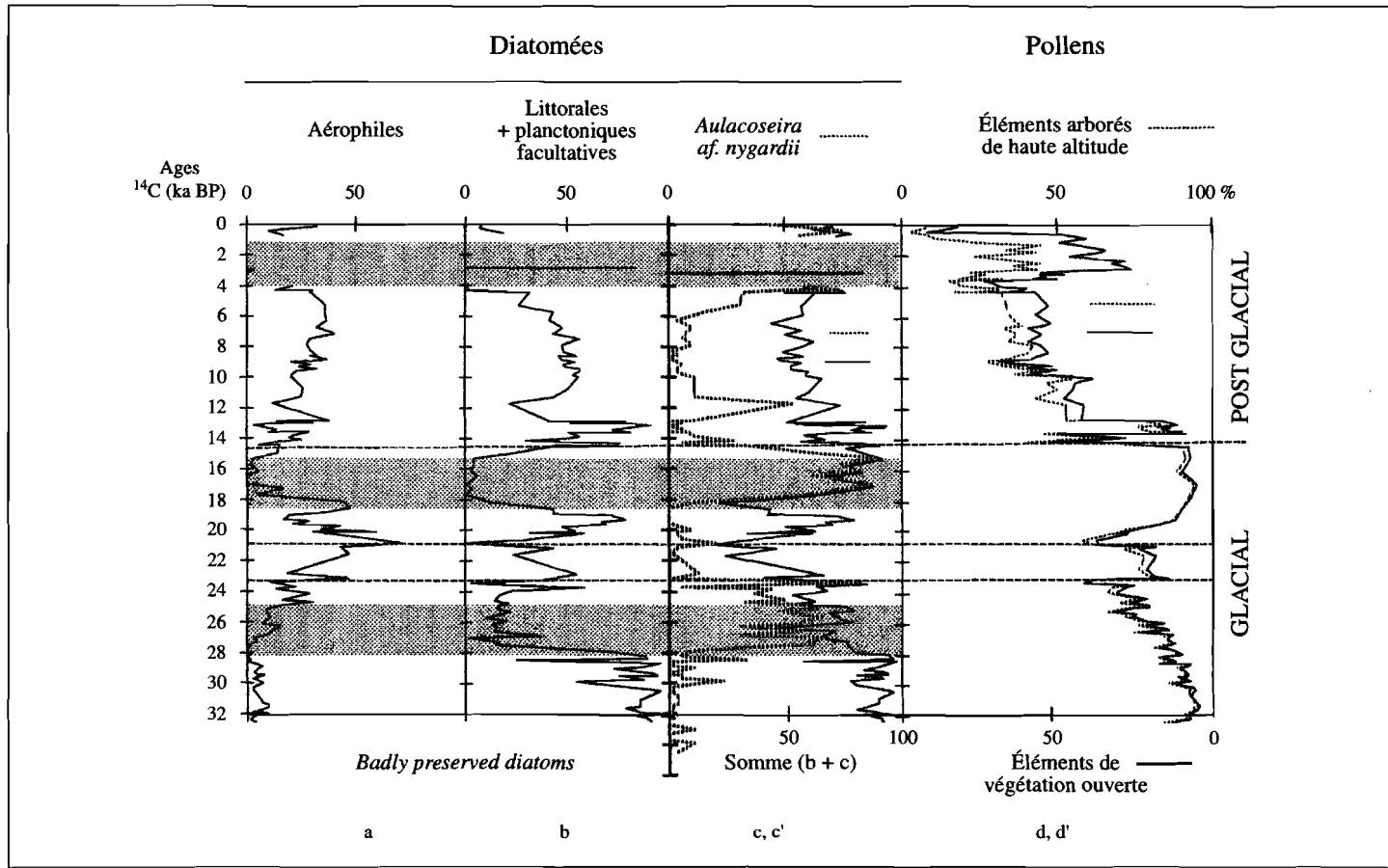
La combinaison des équations de bilans hydrique et salin du lac a permis une simulation des conditions passées. La mise en place d'un grand lac holocène (400 m, conductivité : $\approx 500 \mu\text{S cm}^{-1}$) à partir des conditions hydroclimatiques actuelles, est compatible avec une augmentation des apports (de surface et souterrains) d'un facteur 6 (Fig. 3d-f), équivalent à une augmentation du bilan P-E moyenné sur l'ensemble du bassin versant d'environ 75 mm a⁻¹, soit + 25 % par rapport à l'Actuel.

Comme le Tibet, l'Afrique nord-orientale paraît répondre aux variations de l'insolation estivale liées aux oscillations des paramètres orbitaux, qui n'expliquent pas, néanmoins, les variations abruptes et de courte durée.

Zone sub-équatoriale sud : le bassin du Lac Tanganyika

Le lac Tanganyika (3°20'-8°45'S, 30°45'-31°20'E, 773 m), avec un bassin versant de 238 700 km² et une profondeur de 1 470 m, s'étend sur 32 600 km². La majeure partie du bassin est soumise à une longue saison des pluies durant l'été austral. Les précipitations moyennes annuelles y sont estimées à 1 000 mm a⁻¹. Les précipitations sur la surface du lac (55 % des apports) et l'évaporation (95 % des pertes) sont les deux paramètres majeurs du bilan hydrique du lac. Les deux rivières affluentes principales sont la Rusizi, exutoire du lac Kivu, et la Malagarasi qui draine les plateaux tanzaniens. Le lac a actuellement un petit exutoire, la rivière Lukuga, tributaire du fleuve Zaire.

Les variations hydrologiques et climatiques au cours des derniers 26 000 ans dans le bassin sud sont bien documentées par l'étude pluridisciplinaire de plusieurs carottes. La sédimentologie (Tiercelin *et al.*, 1988) et la composition des assemblages de diatomées (Fig. 4; Gasse *et al.*, 1989) montrent, après un niveau lacustre plus bas qu'aujourd'hui entre 26 et 21 ka BP, un large épisode régressif (- 400, - 300 m par rapport au niveau actuel) centré sur 18 ka BP. Le lac était alors fermé. Une balance hydrique positive se rétablit dès 16 ka BP. Une remontée rapide du plan d'eau s'amorce vers 14 ka BP, et le niveau est voisin de l'Actuel vers 12,7 ka BP. Le lac s'ouvre à nouveau. Les données polliniques de plusieurs carottes (Vincens *et al.*, 1993) furent interprétées en termes de variables climatiques quantifiées par application de fonctions de calibration (Chalié, 1995). Par comparaison avec les valeurs



actuelles, les températures estimées (Fig. 4) indiquent un refroidissement pendant la période glaciaire atteignant $4,4 \pm 2,2$ °C entre ≈ 18 et 16 ka BP. Les conditions thermiques post-glaciaires s'instaurent entre 14,5 et 9 ka BP. Les valeurs de précipitation déduites des assemblages polliniques montrent une diminution de 13 ± 10 % pendant la période glaciaire. Une augmentation rapide de la pluviosité vers 12,5 ka BP conduit à des valeurs supérieures à l'Actuel entre 12 et 9 ka BP, et des phases plus sèches sont identifiées autour de 8 ka BP et entre $\approx 4,5$ et 3 ka BP.

L'application d'un modèle de bilan hydrique et énergétique du système lacustre (lac et bassin versant), dans lequel les pertes par évaporation sont estimées à partir du bilan radiatif du lac et des terres (Kutzbach, 1980; Benson, 1981), permet de proposer des valeurs d'évaporation et de précipitation compatibles avec le bas niveau des eaux observé pendant le DMG (Bergonzini *et al.*, sous presse). Pour l'Actuel, le modèle montre un excellent accord entre valeurs simulées et valeurs observées. On applique ensuite le modèle au DMG en changeant les valeurs de plusieurs paramètres entrée (surfaces du lac et du bassin versant, température, albedo) estimées à partir des données paléohydrologiques et palynologiques. La simulation indique, pour le DMG et par rapport à l'Actuel, une diminution des précipitations et de l'évaporation conduisant à une diminution du bilan P-E d'environ 40 % sur le bassin versant.

◀ FIGURE 5.

Lac Tritrivakely.

(a-c) Diatomées. Fréquences totales des espèces : (a) aérophiles-acidophiles (*Pinnularia* spp., *Eunotia* spp. principalement), indicatrices d'un milieu subaérien. (b) littorales et planctoniques de milieu aquatique permanent, neutre (*Fragilaria elliptica*, *Gomphonema* spp., *Cymbella* spp., *Aulacoseira ambigua* principalement) ; (c) *Aulacoseira* af. *nygardii*, abondante dans des lacs temporaires des plateaux malgaches pendant les phases de mise en eau. (c') : somme de (b + c). (d, d') Pollens : le sommet de la carotte (500 ans) est biaisé par l'action anthropique ; (d) Fréquence des éléments polliniques arborés de haute altitude, essentiellement marqueurs des conditions thermiques ; (d') Éléments polliniques de végétation ouverte, indicateurs de conditions climatiques sèches. Courbes polliniques : E. Van Campo, comm. pers. 1995. Autres : inédites.

Lake Tritrivakely.

(a-c) Diatoms. Total frequencies of (a) aerophilous, acidophilous species (*Pinnularia* spp., *Eunotia* spp. mainly), indicators of subaerial, ombrophilous conditions; (b) littoral and planctonic species of circumneutral, permanent shallow waterbody (*Fragilaria elliptica*, *Gomphonema* spp., *Cymbella* spp., *Aulacoseira ambigua* mainly); (c) *Aulacoseira* af. *nygardii*, common in temporary lakes of the Madagascar Plateaux during the wet season; (c') sum of (b + c). (d, d'): Pollen. The core top (< 500 yrs) is biased by human impact; (d) High altitude woody elements, indicators of cool conditions; (d') Open vegetation elements, indicators of dry conditions. Pollen: E. Van Campo, pers. comm. 1995; Others: unpublished.

L'évolution hydroclimatique du bassin du Tanganyika ressemble à celle des lacs nord-tropicaux. Ceci ne saurait être mis au compte des seuls facteurs orbitaux. La reprise des précipitations efficaces est en phase avec un réchauffement rapide lors de la dernière déglaciation.

Hémisphère sud. Madagascar

Nos résultats reposent sur l'étude de carottes (Gasse *et al.*, 1994 ; Sifeddine *et al.*, 1995) prélevées dans un petit lac de cratère des hauts plateaux de Madagascar (lac Tritrivakely ; 19°47'S, 46°55'E, 1778 m).

La région est soumise à un climat tropical montagnard (précipitation moyenne : 1 500 mm a⁻¹) avec un été chaud à pluies de mousson australe violentes, et un hiver frais et sec. Tritrivakely, directement alimenté par les pluies, sans exutoire de surface et aux eaux diluées (conductivité : 20 à 200 µS cm⁻¹, pH : 5,5-6), est colonisé par les macrophytes (Cyperaceae). Sa profondeur moyenne varie de ≈ 0,1 à plusieurs mètres selon les saisons et les années.

Le principal événement climatique recensé est le réchauffement post-glaciaire ample et rapide entre 14,4 et ≈ 9 ka BP, qui se manifeste par le déclin en deux étapes principales (14,4 et 12,8 ka BP) du pollen des plantes arborées de haute altitude (Fig. 5d). Par ailleurs, le maximum de température et d'aridité est enregistré par les assemblages polliniques sur un court intervalle de temps entre 4 et 3,5 ka BP.

Hormis ces changements majeurs, l'évolution de la végétation et du milieu aquatique est complexe. L'abondance des diatomées aérophiles, acidophiles (Fig. 5a) traduit un milieu ombrophile à déficit hydrique annuel permanent. La fréquence de ces espèces tend à croître, bien que de façon non linéaire, entre 27 et 20,5 ka BP, et entre ≈ 15 et 7 ka BP, en phase avec des augmentations de la fréquence des éléments polliniques de végétation ouverte (Fig. 5d') qui traduisent une tendance à l'aridité régionale. C'est ce qu'on pouvait attendre des effets des changements de l'insolation sous ces latitudes. Les phases à végétation arborée dominante, interprétées comme des épisodes à pluies de type mousson (Van Campo et Gasse, 1995), correspondent à deux types de milieux aquatiques. Un lac permanent peu profond à intense productivité algaire est enregistré par un groupe de diatomées littorales ou planctoniques (Fig. 5b) nettement dominantes avant 28 ka BP, vers 20-19, 14,5, 13,5-12,8 et 3 ka BP. Ce type de milieu traduit un bilan hydrique moyen annuel positif, que l'on attribue à de faibles pertes par évaporation car il est associé aux éléments polliniques arborés de haute altitude, indicateurs d'une température moyenne annuelle plus basse qu'aujourd'hui (Fig. 5d). Le deuxième type de milieu est enregistré par la dominance d'*Aulacoseira af. nygardii* (Fig. 5c), espèce de pleine eau aux frustules généralement mal préservés, et caractérisé

par des traces d'oxydation dans les sédiments. Ces faits traduisent la mise en place d'un plan d'eau libre suivie d'une régression pouvant conduire à l'assèchement. Ceci suggère des événements pluvieux violents suivis d'une phase d'évaporation. Ces conditions prédominent entre 28 et 25, 18 et 14,5 et après 4,5 ka BP. Au DMG et à l'Holocène supérieur, les forts contrastes saisonniers de l'insolation peuvent rendre compte d'un milieu très fluctuant à l'échelle de l'année, avec remplissage du bassin lors des fortes pluies estivales, comme cela s'observe actuellement. Les conditions climatiques de ces deux périodes sont toutefois bien différentes. Si, depuis 4 ka BP, le bilan P-E annuel du lac permet le maintien d'un marécage très productif à fort taux d'accumulation organique, le milieu était trop souvent asséché au DMG pour qu'un tel écosystème existât. En témoignent une vitesse de sédimentation moyenne très faible suggérant de brèves lacunes sédimentaires, une faible teneur en matière organique mal préservée et l'oxydation des sédiments. Le DMG est donc caractérisé par un bilan hydrique moyen déficitaire par rapport à l'Actuel, malgré un refroidissement réduisant les pertes par évaporation. Ceci implique une pluviosité annuelle inférieure à celle de l'Actuel.

Les conditions hydrologiques du lac Tritrivakely paraissent résulter des effets combinés des changements saisonniers de l'insolation et des conditions thermiques régionales (avec un réchauffement, ample et non linéaire, entre 14,4 et 9 ka BP). Contrairement à ce que l'on pourrait directement attendre du facteur orbital, le lac est quasiment à sec pendant le DMG, et connaît des épisodes aux eaux permanentes pendant la dernière déglaciation.

DISCUSSION

En hémisphère nord, les grands changements hydrologiques observés au Tibet et en Afrique nord-orientale sont attribués aux variations d'intensité de la mousson indienne, et paraissent en bon accord avec les données déduites des carottes marines dans l'océan Indien nord (Duplessy, 1982 ; Van Campo, 1986 ; Clemens et Prell, 1990 ; Sirocko *et al.*, 1993). Les fluctuations de l'insolation d'été sur l'hémisphère nord en sont largement responsables (*cf.* Kutzbach et Street-Perrott, 1985 ; COHMAP Members, 1988 ; Clemens *et al.*, 1991). La mousson indienne, très faible pendant le DMG en réponse à une insolation d'été minimale, est intensifiée entre ~ 13 et 6-5 ka BP. Cependant, le seul forçage orbital n'explique pas les changements abrupts et apparemment synchrones enregistrés dans les lacs nord-tropicaux (*cf.* Gasse et Van Campo, 1994) et les séquences à haute résolution de la Mer d'Arabie (carotte 74KL ; Sirocko *et al.*, 1993 ; Sirocko, 1994). Après le DMG, le renforcement de la mousson du SW s'établit par pulsations, vers \approx 13-12,5 ka BP, \approx 10-9,5 ka BP, et 7,5-7 ka BP, la seconde étant de beaucoup la plus impor-

tante. Les phases les plus humides se situent entre $\approx 9,5$ et 8 ka BP, et entre ≈ 7 et 6 ka BP. Ces pulsations sont séparées par des retours vers des conditions de type glaciaire. Le premier (11-10 ka BP) paraît synchrone du Dryas Récent, épisode froid des hautes latitudes nord. Le second, centré sur 8-7,5 ka BP, semble en phase avec un épisode d'affaiblissement de la mousson asiatique, qui dérive de l'océan Pacifique, mis en évidence sur le plateau des Loess de Chine (Zhou *et al.*, 1995) et en mer de Chine (Wang, 1995). À l'Holocène moyen et supérieur, la mousson indienne répond à l'atténuation progressive de l'insolation estivale en s'affaiblissant. Les enregistrements lacustres témoignent d'un épisode d'aridité maximale entre 4 et 3 ka BP. Les brèves phases sèches observées à 11-10, 8-7,5 et 4-3 ka BP, à large extension géographique et qui interviennent sous des conditions paléoclimatiques générales (insolation, extension des glaces) très différentes, peuvent avoir des causes diverses, dont des changements de teneur de l'atmosphère en gaz à effet de serre, associés aux conditions de surface des terres tropicales (*cf.* Gasse et Van Campo, 1994). Notons l'existence d'un épisode sec (et chaud) entre 4 et 3,5 ka BP en hémisphère sud, bien identifié à Madagascar.

En hémisphère sud, on attendrait, du seul forçage orbital, des valeurs de P et de P-E élevées pendant le DMG (période d'insolation d'été austral maximale), et une tendance vers l'aridité entre 15 et 9 ka BP. Cet attendu s'accorde avec les observations au lac Malawi (Finney *et al.*, 1993), haut pendant le DMG et en régression à l'Holocène inférieur. L'enregistrement de Madagascar s'explique aussi pour une large part par les variations des paramètres orbitaux. Toutefois, le facteur insolation ne rend pas compte, à Madagascar comme au Tanganyika, d'un déficit hydrique annuel moyen au DMG. Par ce fait, les enregistrements de l'hémisphère sud ressemblent à ceux de l'hémisphère nord, mais le rétablissement d'un bilan hydrique positif y paraît antérieur, et associé à un réchauffement ample et rapide que la palynologie situe entre 14,5-14 et ≈ 9 ka BP. Les variations des précipitations sur les continents sud-tropicaux seraient ainsi liées aux conditions thermiques glaciaires/interglaciaires planétaires, et pourraient dépendre de la température de surface de l'océan Indien tropical. Les données de CLIMAP (1981) suggèrent, pour le DMG, des températures de surface des océans tropicaux voisines des températures actuelles. Ces données sont controversées par des travaux récents (Anderson et Webb, 1993) qui indiquent des températures plus faibles qu'aujourd'hui. Un réchauffement s'observe dans les eaux de surface du Canal du Mozambique entre 14,5 et 14 ka BP (J.-C. Duplessy, comm. pers.), en phase avec le retour de conditions favorables à la vie aquatique à Madagascar. Ainsi, les tropiques sud répondraient au changement entre conditions glaciaires et interglaciaires à la surface du globe, qui régit l'évaporation sur l'océan et la teneur de l'atmosphère en vapeur d'eau.

REMERCIEMENTS

Ces travaux ont été réalisés dans le cadre du GdR-CNRS 970 « Paléohydrologie et Paléoclimatologie continentales », en étroite collaboration avec le centre ORSTOM de Tananarive et le Laboratoire de Recherche sur les Environnements Aquatiques (Tananarive) pour le site de Madagascar. Les lacs tibétains ont été étudiés dans le cadre d'un projet franco-chinois CNRS-Academia Sinica. Les carottes du Tanganyika furent prélevées par ELF-Aquitaine, et étudiées *pro parte* avec le support du Programme National d'Étude de la Dynamique du Climat (CNRS). Nous remercions C. Hillaire-Marcel et J.-C. Duplessy pour les commentaires portés au manuscrit.

RÉFÉRENCES

- Andrews (J.N.), Edmunds (W.M.), Smedley (P.L.), Fontes (J.-Ch.), Fifield, L.K. & Allan (G.L.), 1994. « Chlorine-36 in groundwater as a palaeoclimatic indicator : the East Midlands Triassic Sandstone aquifer (UK) ». *Earth and Planetary Science Letters*, 122 : 159-171.
- Anderson (D.M.) & Webb (R.S.), 1993. « Ice-age Tropics revisited ». *Nature*, 367 : 23-24.
- Avouac (J.P.), Dobremez (J.F.) & Bourjot (L.), 1996. « Palaeoclimatic interpretation of a topographic profile accross middle Holocene shorelines of Longmu Co (Western Tibet) ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 120 : 93-104.
- Barker (P.), Roberts (C.N.), Lamb (H.F.), Vander Kaars (S.) & Ben Kaddour (A.), 1994. « Interpretation of Holocene lake-level change from diatom assemblages in Lake Sidi Ali, Middle Atlas, Morocco ». *J. Paleolimnology*, 12 : 223-234.
- Benson (L.V.), 1981. « Paleoclimatic significance of lake level fluctuations in the Lahontan basin ». *Quat. Res.*, 16 : 390-403.
- Bergonzini (L.), Chalié (F.) & Gasse (F.), 1997. « Paleoevaporation and Paleoprecipitation in the Tanganyika basin at 18,000 years BP inferred from hydrology and vegetation praxies ». *Quat. Res.*, sous presse.
- Bradley (R.S.), Dodson (J.), Duplessy (J.-C.), Gasse (F.), Liu (T.S.) & Markgraf (V.), 1995. PANASH IGBP-PAGES Report. Chap. I. Panash Science and Implementation Plan, Pages Series 95-1 : 1-22.
- Causse (C.), Arnold (M.), Fehri (A.), Gibert (E.), Fan Hui & Gasse (F.), 1995. « Discrepancies between ^{14}C and Th/U chronologies in lacustrine sediments : examples of potential climatic misinterpretation from Lake Tagutagion (Western Tibet) ». *Abstracts of the XIVth INQUA Congress 3-10/08/95, Berlin*.

- Chalié (F.), 1995. « Paléoclimats du bassin Tanganyika Sud au cours des 25 derniers mille ans : reconstitution quantitative par le traitement de données polliniques ». *C.R. Acad. Sci. Paris*, série 2, 320(3) : 205-208.
- Clemens (S.) & Prell (W.L.), 1990. « Late Quaternary forcing of Indian Ocean Summer – Monsoon winds : a comparison of Fourier model and circulation model results ». *J. Geophysical Res.*, 96 : 268-270.
- Clemens (S.), Prell (W.L.), Murray (D.), Shimield (G.) and Weedon (G.), 1991. « Forcing mechanisms of the Indian ocean monsoon ». *Nature*, 353 : 720-725.
- CLIMAP Project Members, 1981. « Climate : Long-range Investigation, Mapping and Prediction Seasonal reconstruction of the earth's surface at the last glacial maximum ». *Geological Society America. Map Chart Series, MC-36*.
- COHMAP Members, 1988. « Climatic changes of the last 18,000 years : observations and model simulations ». *Science*, 241 : 1043-1052.
- Coopération Hydrogéologique Allemande. 1982. Inventaire et mise en valeur des ressources en eau de la république de Djibouti. Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Hanovre. 5 volumes.
- Duplessy (J.-C.), 1982. « Glacial to interglacial contrasts in the Northern Indian Ocean ». *Nature*, 295 : 494-498.
- Durand (A.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Icole (M.) & Lang (J.), 1984. « Le nord-ouest du lac Tchad au Quaternaire : étude de paléoenvironnements alluviaux, éoliens, palustres et lacustres ». *Paleoecology of Africa (and the surrounding islands)*, 16 : 215-243.
- Fan Hui, Gasse (F.), Huc (A.), Li Yuanfang, Sifeddine (A.) & Soulié-Märsche (I.), 1996. « Holocene environmental changes in Bangong Co basin (Western Tibet). Part 3 : Biogenic remains ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 120 : 65-78.
- FAO, 1973. « Investigation of geothermal resources for power development. Geology, geochemistry and hydrology of hot springs of the East African Rift system within Ethiopia ». *Technical Report prepared for the Imperial Ethiopian Government*, 1-275.
- Finney (B.P.), Johnson (T.C.) & Scholtz (C.A.), 1993. « Late-Quaternary water level changes of Lake Malawi ». In *The Limnology, Climatology and Paleoclimatology of the East African lakes*, Johnson, T.C. & Odada, E. (Eds), Gordon & Breach Publishers.
- Fontaine (B.), 1991. *Étude comparée des moussons indienne et ouest africaine*. Centre Rech. Climatol., Univ. Bourgogne, CNRS, Dijon, 1, 233 p. ; 2, 278 p.

- Fontes (J.-Ch.) & Pouchan (P.), 1975. « Les cheminées du lac Abbé (TFAI) : stations hydroclimatiques de l'Holocène ». *C.R. Acad. Sci. Paris*, Série D, 280 : 383-386.
- Fontes (J.-Ch.) & Garnier (J.M.), 1979. « Determination of the Initial ^{14}C Activity of the Total Dissolved Carbon: a review of the existing models and a new approach ». *Water Resources Research*, 15, 2 : 399-413.
- Fontes (J.-Ch.), Pouchan (P.), Saliège (J.F.) & Zuppi (G.M.), 1980. « Environmental isotope study of groundwater systems in the Republic of Djibouti ». In : *Arid Zone Hydrology : Investigations with Isotope Techniques*, IAEA, Vienna, 237-262.
- Fontes (J.-Ch.), 1981. Groundwater dating. In “*Guide Book of Isotope Hydrology*”, Tech. Rep. Ser., 91, IAEA, Vienna, 285-317.
- Fontes (J.-Ch.), Coque (R.), Filly (A.) & Mamou (A.), 1983. « Paléohydrologie isotopique de l'Oued El Akarit (Sud Tunisie) au Pléistocène supérieur et à l'Holocène ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 43 : 41-61.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Callot (Y.), Plaziat (J.C.), Carbonel (P.), Dupeuple, (P.A.) & Kaczmarzka (I.), 1985. « Freshwater to marine-like environments from holocene lakes in Northern Sahara ». *Nature*, 317 (6038) : 608-610.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1987. « Programme PALHYDAF : État d'avancement, janvier 1987. Premier méridien : Sud-Tunisie/Sud-Niger ». *Géodynamique*, 2 (2) : 139-142.
- Fontes (J.-Ch.) & Gasse (F.), 1989. « On the age of humid Holocene and Late Pleistocene phases in North Africa. Remarks on “Late Quaternary climatic reconstruction for the Maghreb (North Africa)” by P. Rognon ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 70 : 393-398.
- Fontes (J.-Ch.) & Gasse (F.), 1991a. « PALHYDAF (PALaeoHYDrology in Africa) program : objectives, methods, major results ». *Palaeoclimatol., Palaeogeog., Palaeoecol.*, 84 : 191-215.
- Fontes (J.-Ch.) & Gasse (F.), 1991b. « Chronology of the major Late Quaternary palaeohydrological events in NW Africa : PALHYDAF results ». *Hydrobiologia*, 214 : 367-372.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), Guerre (A.), Edmunds (W.M.) & Travi (Y.), 1991. « Palaeorecharge by the Niger River (Mali) deduced from groundwater geochemistry ». *Water Resources Research*, 27 (2) : 199-214.
- Fontes (J.-Ch.), 1992. « Chemical and isotopic constraints on ^{14}C dating of groundwater ». In : *Radiocarbon after Four Decades*, R.E. Taylor, A. Long and R.S. Kra (Eds.), Springer-Verlag, Berlin, 242-261.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.) & Gasse (F.), 1993a. « Conditions climatiques du retour humide à l'Holocène sur l'Afrique sub-saharienne ». Abstract IAEA-SM-329, 123-124.

- Fontes (J.-Ch.), Stute (M.), Schlosser (P.), Broecker (W.S.), 1993b. « Aquifers as Archives of Paleoclimate ». *Eos, Transactions, American Geophysical Union.*, 74 (2): 21-22.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), Causse (C.) & Gibert (E.), 1993c. « A comparison of ^{14}C and Th/U ages on continental carbonates ». *Radiocarbon*, 34 (3): 602-610.
- Fontes (J.-Ch.), Mélières (F.), Gibert (E.), Liu (Q.) & Gasse (F.), 1993d. « Stable isotope and radiocarbon balances of two Tibetan Lakes (Sumxi Co, Longmu Co) from 13,000 yr B.P. ». *Quat. Sci. Rev.*, 12: 875-887.
- Fontes (J.-Ch.), 1994. Isotope palaeohydrology and the prediction of long-term repository behaviour. *Terra Nova Abstracts*, 6 (1): 20-35.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.) & Gibert (E.), 1996. « Holocene environmental changes in Lake Bangong basin (Western Tibet). Part 1: Chronology and stable isotopes of carbonates of a Holocene lacustrine core ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol. Palaeoecol.*, 120: 25-48.
- Fritz (S.C.), Juggins (S.), Battarbee (R.W.) & Engström (D.R.), 1991. « Reconstruction of past changes in salinity and climate using a diatom-based transfer function ». *Nature*, 352: 1771-1781.
- Gasse (F.), 1977. « Evolution of Lake Abhe (Ethiopia and T.F.A.I.) from 70,000 B.P. ». *Nature*, 2 (5589): 42-45.
- Gasse (F.) & Street (F.A.), 1978. « Late Quaternary lake-level fluctuations and environments of the Northern rift valley and Afar region (Ethiopia and Djibouti) ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 24: 279-325.
- Gasse (F.) & Tekaiia (F.), 1983. « Transfer functions for estimating paleoecological conditions (pH) from East African diatoms ». *Hydrobiologia*, 103: 85-90.
- Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), Plaziat (J.C.), Carbonel (P.), Kaczmarska (I.), de Dekker (P.), Soulié-Märsche (I.), Callot (Y.) & Dupeuble (P.A.), 1987. « Biological remains, geochemistry and stable isotopes for the reconstruction of environmental and hydrological changes in the Holocene Lakes from North Sahara ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 60: 1-46.
- Gasse (F.), Lédée (V.), Massault (M.) & Fontes (J.-Ch.), 1989. « Water-level fluctuations of Lake Tanganyika in phase with oceanic changes during the last glaciation and deglaciation ». *Nature*, 342: 57-69.
- Gasse (F.), & Fontes (J.-Ch.), 1989. « Palaeoenvironments and palaeohydrology of a tropical closed lake (L. Asal, Djibouti) since 10,000 yr B.P. ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 69: 67-102.
- Gasse (F.), 1991. « Tectonic and climatic controls on lake distribution and environments in Afar from Miocene to present ». *Am. Ass. Petro. Geologist., Mem.*, 50: 19-41.

- Gasse (F.), Arnold (M.), Fontes (J.-Ch.), Fort (M.), Gibert (E.), Huc (A.), Li Bingyan, Li Yuanfang, Liu Qing, Mélières (F.), Van Campo (E.), Wang Fubao & Zhang Qingsong, 1991. « A 13,000 yr climate record from Western Tibet ». *Nature*, 353 : 742-745.
- Gasse (F.) & Fontes (J.-Ch.), 1992. « Climatic changes in Northwest Africa during the last deglaciation (16-7 ka B.P.) ». NATO ASI Series, *The Last Deglaciation : Absolute and Radiocarbon Chronologies*, E. Bard and W.S. Broecker (Eds), Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 12 : 295-325.
- Gasse (F.), Cortijo (E.), Disnar (J.R.), Ferry (L.), Gibert (E.), Kissel (C.), Laggoun-Defarge (F.), Lallier-Vergès (E.), Miskovsky (J.C.), Ratsimbazafy (B.), Ranaivo, F., Tucholka, P., Saos (J.L.), Sifeddine (A.), Taieb (M.), Van Campo (E.) & Williamson (D.), 1994. « A 36 kyr environmental record in the Southern Tropics : Lake Tritrivakely (Madagascar) ». *C.R. Acad. Sci. Paris*, série 2, 318 (II) : 1513-1519.
- Gasse (F.) & Van Campo (E.), 1994. « Abrupt post-glacial climate events in West Asia and North Africa monsoon domains ». *Earth and Planetary Science Letters*, 126 : 435-456.
- Gasse (F.), Juggins (S.) & Ben Khelifa (L.), 1995. « Diatom-based Transfer Functions for Inferring Hydrochemical Characteristics of African Palaeolakes ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 117 : 31-54.
- Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), Van Campo (E.) & Wei Keqin, 1996. « Holocene environmental changes in Bangong Co basin (Western Tibet.). Part 4 : Discussion and conclusion ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 120 : 79-92.
- Gonfiantini (R.), 1986. « Environmental isotopes in lake studies ». In : Fritz P. and Fontes J.-Ch. (Eds), *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry, "The Terrestrial Environment"*, Elsevier, Amsterdam, vol. 2(B) : 113-168.
- Gu Zhaoyan, Liu Jiagi, Yuan Baoyin, Liu Tunsheng, Liu Rongmo, Liu Yu & Zhang Guangzu, 1993. « The changes in monsoon influence in the Qinghai-Tibetan Plateau during the past 12,000 years. Geochemical evidence from the L. Selin sediments ». *Chinese Science Bulletin*, 38 (1) : 61-64.
- Kutzbach (J.E.), 1980. « Estimates of past climate at Palaeolake Chad, North Africa, based on a hydrological and energy-balance model ». *Quat. Res.*, 14 : 210-223.
- Kutzbach (J.E.) & Street-Perrott (F.A.), 1985. « Milankovitch forcing of fluctuations in the level of tropical lakes from 18 to 0 kyr BP ». *Nature*, 317 : 130-134.
- Lister (G.S.), Kelts (K.), Zao (C.K.), Yu (J.K.) & Niessen (K.), 1991. « Lake Qinghai, China : closed basin lake levels and the oxygen isotope record

- for Ostracoda since the latest Pleistocene ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 84 : 141-162.
- Overpeck (J.), Anderson (D.), Trumbore (S.) & Prell (W.), 1996. « The southwest Indian monsoon over the last 18,000 years ». *Climate Dynamics*, 12 : 213-225.
- Roux (M.), Servant-Vildary (S.) & Servant (M.), 1991. « Inferred ionic composition and salinity of a bolivian Quaternary lake, as estimated from fossil diatoms in the sediments ». *Hydrobiologia*, 210 : 3-18.
- Siegenthaler (U.), Eicher (U.), Oeschger (H.) & Dansgaard (W.), 1984. « Lake sediments as continental $\delta^{18}\text{O}$ records from the Glacial/Post Glacial transition ». *Annals of Glaciology*, 5 : 149-152.
- Sifeddine (A.), Laggoun-Defarge (F.), Lallier-Vergès (E.), Disnar (J.R.), Williamson (D.), Gibert (E.) & Gasse (F.), 1995. « La sédimentation organique, indicateur de changements de paléoenvironnements en milieu tropical au cours des 36 000 dernières années (le lac Tritrivakely, Madagascar) ». *C.R. Acad. Sci. Paris*, série 2, 321 : 385-391.
- Sirocko (F.), Sarnthein (M.), Erlenkeuser (H.), Lang (H.), Arnold (M.) & Duplessy (J.-C.), 1993. « Century-scale events in monsoonal climate over the past 24,000 years ». *Nature*, 364 : 322-324.
- Sirocko (F.), 1994. *Abrupt change in monsoonal climates evidence from the geochemical composition of Arabian Sea sediments*. Habilitation Thesis, University of Kiel, 161 p.
- Street-Perrott (F.A.), Marchand (D.S.), Roberts (N.) & Harrison (S.P.), 1989. « Global lake-level variations from 18,000 to 0 years ago: a palaeoclimatic analysis ». In : *United States Department of Energy Eds.*, Washington, USA, n° DOE/ER/60304-H1, 1-213.
- Talbot (M.R.), 1990. « A review of the palaeohydrological interpretation of carbon and oxygen ratios in primary lacustrine carbonates ». *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 80 : 261-279.
- Tiercelin (J.J.), Mondeguer (A.), Gasse (F.), Hillaire-Marcel (C.), Hoffert (M.), Larque (P.), Lédée (V.), Marestang (P.), Ravenne (C.), Raynaud (J.F.), Thouveny (N.), Vincens (A.) & Williamson (D.), 1988. « 25 000 ans d'histoire hydrologique et sédimentaire du lac Tanganyika, Rift Est-africain ». *C. R. Acad. Sci. Paris*, série 2, 307 : 1375-1382.
- Van Campo (E.), 1986. « Monsoon fluctuations in two 20,000 yr BP oxygen-isotope/pollen records off Southwest India ». *Quat. Res.*, 26 : 376-388.
- Van Campo (E.) & Gasse (F.), 1993. « Pollen- and diatom-inferred climatic and hydrological changes in Sumxi Co Basin (Western Tibet) since 13,000 yr BP. » *Quat. Res.*, 39 : 300-313.

- Van Campo (E.), Cour (P.) & Hang Sixuan, 1996. « Holocene environmental changes in Bangong Co basin (Western Tibet). Part 2 : the pollen record ». *Palaeogeog., Palaeoclimatol., Palaeoecol.*, 120 : 49-64.
- Van Campo (E.) & Gasse (F.), 1995. « A 36 ka diatom and pollen record from the Southern Tropics : lake Tritrivakely, Madagascar ». *Abstracts of the XIVth INQUA International Congress*, 3-10 août 1995, Berlin, p. 282.
- Vincens (A.), Chalié (F.), Bonnefille (R.), Guiot (J.) & Tiercelin (J.-J.), 1993. « Pollen-derived rainfall and temperature estimates from lake Tanganyika and their implication for Late Pleistocene water levels ». *Quat. Res.* : 40 (3) : 343-350.
- Wang Pinxian, 1995. « Major environmental events in the China seas since 20,000 years ». *Abstracts of the XIVth INQUA International Congress*, 3-10 août 1995, Berlin, p. 293.
- Williams (M.A.J.), Bishop (P.M.), Dakin (F.M.) & Gillespie (R.), 1977. « Late Quaternary lake-levels in Southern Afar and the adjacent Ethiopian Rift ». *Nature*, 267 : 680-690.
- Zhou Weijian, Donahue (B.J.), An Zhisheng, Jull (A.J.T.), Porter (S.C.), Stuiver (M.), Li Xiaoqiang, Matsumoto (E.) & Dong Guangrong, 1995. « Oscillation of the monsoon climate in China during the Younger Dryas interval ». *Abstracts of the XIVth INQUA International Congress*, 3-10 août 1995, Berlin, p. 315.

Chronologie (^{14}C et Th/U) des épisodes humides
majeurs du Quaternaire récent au Sahara :
sites choisis du programme PALHYDAF

*Radiocarbon and Th/U chronologies
of humid episodes of Late Quaternary from Sahara:
Selected sites of PALHYDAF Programme*

K. ZOUARI, É. GIBERT ET C. CAUSSE

RÉSUMÉ – Les reconstitutions paléoclimatiques depuis le dernier interglaciaire obtenues dans le cadre du programme PALHYDAF, en Afrique boréale, reposent sur l'analyse pluridisciplinaire de séquences sédimentaires continues prélevées dans des sites choisis en fonction de critères d'exploitation et de validation optimales des données attendues. L'établissement d'un cadre chronologique validé est considéré comme la clé de ce type de reconstitution. Les principaux résultats du programme PALHYDAF présentés ici concernent les deux phases humides majeures centrées autour de 90-100 and 130-140 ka et qui pourraient correspondre aux optima climatiques définis par la climatos-tratigraphie océanique. Un des nouveaux résultats est la mise en évidence en Tunisie, d'une période humide, sans doute d'intensité fluctuante, autour de *ca.* 20-40 ka.

Mots clés : paléoclimatologie, paléohydrologie, radiochronologie, Quaternaire supérieur, PALHYDAF.

*

ABSTRACT – Paleoclimatic reconstructions from the Last Interglacial period inferred from PALHYDAF results in Boreal Africa, lie on pluridisciplinary studies of continuous lacustrine sequences cored on selected sites, in order to acquire the most valuable and reliable data. This implies the establishment of reliable chronological frameworks. Major results of the PALHYDAF program presented in this paper document the two main humid phases centered at

ca. 90-100 and 130-140 ka which could be related to climatic optima defined by the oceanic climatostratigraphy. A new result is the evidence of one humid period probably marked by several dry/wet spells at around 20-40 ka, in southern Tunisia.

Keywords: paleoclimatology, paleohydrology, radiochronology, Late Quaternary, PALHYDAF.

*

Abridged English Version

INTRODUCTION

As proposed in 1984 by Fontes and Gasse, PALHYDAF program (PALaeo-HYDrology in AFRICA) aims to reconstruct climatic variation in Africa (north of the Equator) since the Last Interglacial, from pluridisciplinary studies of sedimentary sequences along two meridian transects (Fig. 1 ; Fontes and Gasse, 1986, 1991).

The selection of sampled sites lies on basic constraints : endoreic basins, with low hydraulic gradient, located on permeable substratum, free of tectonic or volcanic activities, and in carbonated catchment areas. Environmental reconstructions in terms of global climate need a well-certified chronological framework, after discussion of possible causes of age distortion (Fontes and Gasse, 1992). We present here a review of chronological data from some PALHYDAF sites, with addition of new dates in order to complete first conclusions.

SELECTED SITES

On the east transect, the south Tunisia offers two sites representative of hydrological budget during the Late Quaternary. They correspond respectively to Wadi el Akarit and Chotts El Fejej and Jerid (Fig. 2) which present various lacustrine deposits as clay, carbonate, gypsum, and peatbog sediments, interbedded in fluvial or eolian detrital-rich sequences. Tunisian Chott deposits are particularly rich in shell accumulations. Faunal and microfloral assemblages including molluscs, ostracods and diatoms, allow reconstructions of salt balances which fluctuated from fresh water to sea water salinity (Gasse *et al.*, 1987).

From northern Niger, quaternary deposits of Adrar Bous Site located near the Air Heights correspond to shell-free clayish sands and diatomites, sometimes calcareous. Chronological data were obtained on impure carbonates or organic matter and conduct to the interpretation of hydrodynamic parameters of the shallow aquifer (Dubar, 1988).

In northern Algeria, the sebkha Mellala, fed by groundwaters registers without delay rainfall variations on the Atlasian ranges. Sediments consist in the alternation of gypsum and shell-rich carbonated sequences in which stoichiometric calcite characterises high water levels (Gibert *et al.*, 1990).

Quaternary lacustrine relicts were also found in southern Algeria, at Kadda (Erg Chech) and Azzel Matti (Tanezrouft) sites. If shell-rich sediments of Azzel Matti define a reliable Th/U chronology, Kadda carbonates constituted by several crystallisation phases gave questionable ages.

CHRONOLOGICAL DATA

A. Basic requirements for dating validation

The validation of ^{14}C ages on both inorganic carbonates and organic matter requires : (i) equilibration of TDIC (Total Dissolved Inorganic Carbon) with atmospheric CO_2 , (ii) authigeny of dated materials and (iii) absence of post-sedimentary recrystallisation. If the age consistency with stratigraphy and the agreement between ages obtained on various materials from one specific level are considered as positive criteria, they cannot demonstrate the validity of the chronology. Comparison with an other independent chronometer remains necessary (Talbot and Kelts, 1986; Causse *et al.*, 1988; Zouari, 1988; Fontes *et al.*, 1993, 1995).

The original cause of Th/U disequilibrium is high solubility of uranium and insolubility of thorium in natural waters. Thus the validity of Th/U dating mainly depends on preservation of initial U content (or early diagenetic U content for organic carbonates), and generally on closed system conditions, as for radiocarbon dating, with special attention for impure carbonates (Causse, 1992 and Causse *et al.*, 1993). A frequency histogram of Th/U ages will be more representative than isolated results as the best validation corresponds to age consistency for several samples from one geological feature.

B – Discussion of chronological results

1) *Late Glacial and Holocene phases*. – Distortion between apparent and real radiocarbon ages on modern material such as Gastropods and aquatic plants are clearly illustrated in Wadi el Akarit (see Table, after Zouari, 1988). The establishment of a correction model results in agreement between ^{14}C and Th/U ages for fossil material. In other cases, direct consistency between these two dating methods were obtained notably on deposits from northern Algeria and Niger. These results evidenced that return to humid conditions occurred in two steps, at about 14 ka BP and 9.5 ka BP as observed in northern Algeria. In southern Tunisia only the second step was recorded.

2) *Late Pleistocene*. – Numerous ^{14}C ages previously comprised between 20 and 40 ka BP (Page, 1972; Richards and Vita-Finzi, 1982; Ben Oueddou

et al., 1986; Zouari, 1988) gave older Th/U ages (Causse *et al.*, 1989 and new data here reported). However, eight shell samples from Sidi Ali Bou Lafi Site, near Tozeur (Tunisia) provide almost similar ^{14}C and Th/U ages (Figs. 4 and 5) for the 20-40 ka period. Without any assumption on the extension of water bodies developed at that time, conditions wetter than today have provoked groundwater rises (Fontes and Gasse, 1991) and, at least in southern Tunisia, the establishment of *quasi* permanent lakes or ponds.

From two Th/U isochron methods (Hillaire-Marcel and Causse, 1989; Ludwig and Titterton, 1994) two distinct humid phases at 90-100 and 130-150 ka are recorded from tunisian chott area (Figs. 4 and 5). Despite of lower correlation, identical Th/U calculations have lighted one or two humid pulses in northern Sahara, between 80 and 100 ka (Causse *et al.*, 1988; Gibert, 1989). Lacustrine sediments of Adrar Bous could have also registered this 80-100 ka phase. As apparent ages are not in agreement with the stratigraphy, it has been assumed that the sediments represent the end member of the mixing of concretions due to an old humid event and a more recent crystallization phase (Fig. 3; Fontes and Gasse, 1991). The 130-140 ka period has only been recognised in southern Tunisia. Although the Th/U measurements were performed by alpha mass spectrometry producing ages with large error bars, both the high correlation indices and well-defined slope of isochrons could indicate strictly clued ages, related to a relatively short humid phase. These data are well correlated with those previously obtained in Wadi Shati area (Gaven *et al.*, 1981).

3) Middle Pleistocene – The three alpha spectrometric ages around 200 ka obtained in southern Tunisia have to be considered with caution because they are close to the practical limit of the method. Nevertheless, a sample of *Ostrea stentina* close to secular equilibrium according to alpha spectrometry, gave an age equal to 206 ± 12 ka by TIMS (analyse performed at GEOTOP, Montréal, in collaboration with B. Ghaleb). This sample is probably an equivalent of the 35 ka ^{14}C -dated sample of Richards and Vita-Finzi (1982).

Variations of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratios indicative of different initial conditions as well as geological settings preclude the calculation of an isochron and limit the significance of these data. Although a Middle Pleistocene age has already been cited in Egypt (Szabo *et al.*, 1989), the existence of this humid episode has to be assessed.

CONCLUSION

PALHYDAF results have evidenced that a chronology validation firstly requires a geochemical control of radiometric data of each specific method. Causes of age distortion in continental sediments are various, such as hard water effect, groundwater supplies, and post-sedimentary recrystallisation

and/or contamination. Each geological sample has thus to be considered as a complex geochemical system.

Major results of the PALHYDAF program concern the timing of climatic events such as the return to humid conditions at 14 ka BP during the Late Glacial period and dry/wet oscillations in good agreement with the European climatostratigraphy during the Holocene, on the northern and southern margins of the Sahara. The two major humid phases centred around 90-100 and 130-140 ka, could be related to climatic optima defined by the marine climatostratigraphy. A new result is the evidence of one humid period probably marked by several dry/wet spells at around 20-40 ka, producing at least in southern Tunisia *quasi* permanent water bodies.

*

Version française

INTRODUCTION

Proposé dès 1984 par J.-Ch. Fontes et F. Gasse, le programme PALHYDAF (PALéoHYDrologie en AFrique) avait pour objectif la reconstitution des variations climatiques en Afrique boréale, depuis le dernier interglaciaire, à partir d'études pluridisciplinaires du contenu sédimentaire de sites répartis au long de deux transects méridiens (Fig. 1). Ces sites ont été choisis en fonction de critères d'exploitation et de validation optimales des résultats analytiques attendus (Fontes et Gasse, 1986 et 1991).

Les sites d'étude relèvent de bassins sédimentaires fermés, susceptibles de conserver les séquences sédimentaires les plus complètes. Ils sont caractérisés par un faible gradient hydraulique de façon à limiter les apports détritiques grossiers. Ils reposent sur un substratum perméable, bien drainé, où le développement des biomarqueurs ne peut être entravé par les effets de sursature. Ils se situent dans des bassins versants riches en carbonates dont la présence en solution favorise la précipitation de carbonates (chimiques et biogènes) authigènes, matériaux particulièrement propices aux analyses géochimiques (isotopes stables du carbone et de l'oxygène) et chronologiques (^{14}C et Th/U). Enfin la proximité de fractures profondes ou d'appareils volcaniques a été évitée de façon à s'affranchir d'apports de CO_2 d'origine profonde qui altérerait la traduction des mesures d'activité radiocarbone en données chronologiques justes.

La finalité de ce type de reconstitution est l'interprétation des variations observées en terme de paramètres du climat global, de façon à tester les modèles climatiques et paléoclimatiques, ce qui ne prend un sens que dans un cadre chronologique soigneusement validé (Fontes et Gasse, 1992). En raison des distorsions toujours possibles entre une mesure de radiocarbone, ou celle d'un

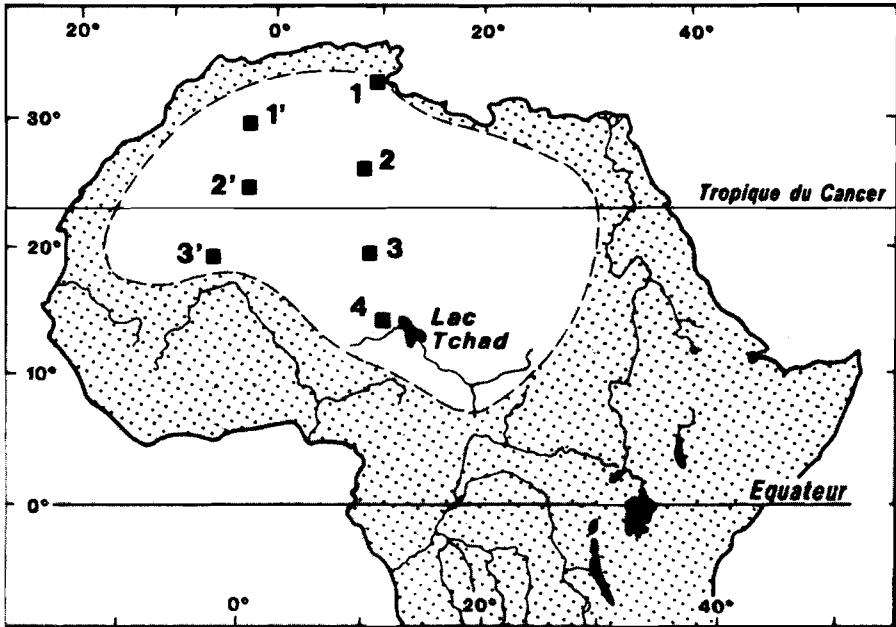


FIGURE 1.

Localisation des sites du programme PALHYDAF, le long de deux transects méridiens, et dans une zone d'endoréisme dont les contours actuels sont indiqués par une ligne discontinue (d'après Fontes et Gasse, 1991).

Location map of PALHYDAF sites, along two meridian transects, and in endoreic area delineated by a dotted line (from Fontes and Gasse, 1991).

rapport d'activité $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$, et la donnée chronologique correcte attendue, il n'est pas tenu compte de données isolées ou de simples catalogues de données non analysées en fonction d'un contexte géochimique défini (cf. Fontes et Gasse, 1989, pour une critique de collections non synthétiques de données disparates). Nous présentons donc ici un bilan des données chronologiques produites dans le cadre du programme PALHYDAF auxquelles nous associons quelques données nouvelles aux fins de comparaison et de validation.

PRÉSENTATION DES SITES ÉTUDIÉS

A. Transect Est (17-34,5°N; 8-11°E)

1) Secteur 1 : Sud Tunisie

Localisation des sites et données sédimentologiques

Les deux sites choisis pour cette étude, la basse vallée de l'oued el Akarit et la région des chotts (Fig. 2), sont représentatifs des conditions de bilan hydrologique dans le sud tunisien au cours du Quaternaire supérieur.

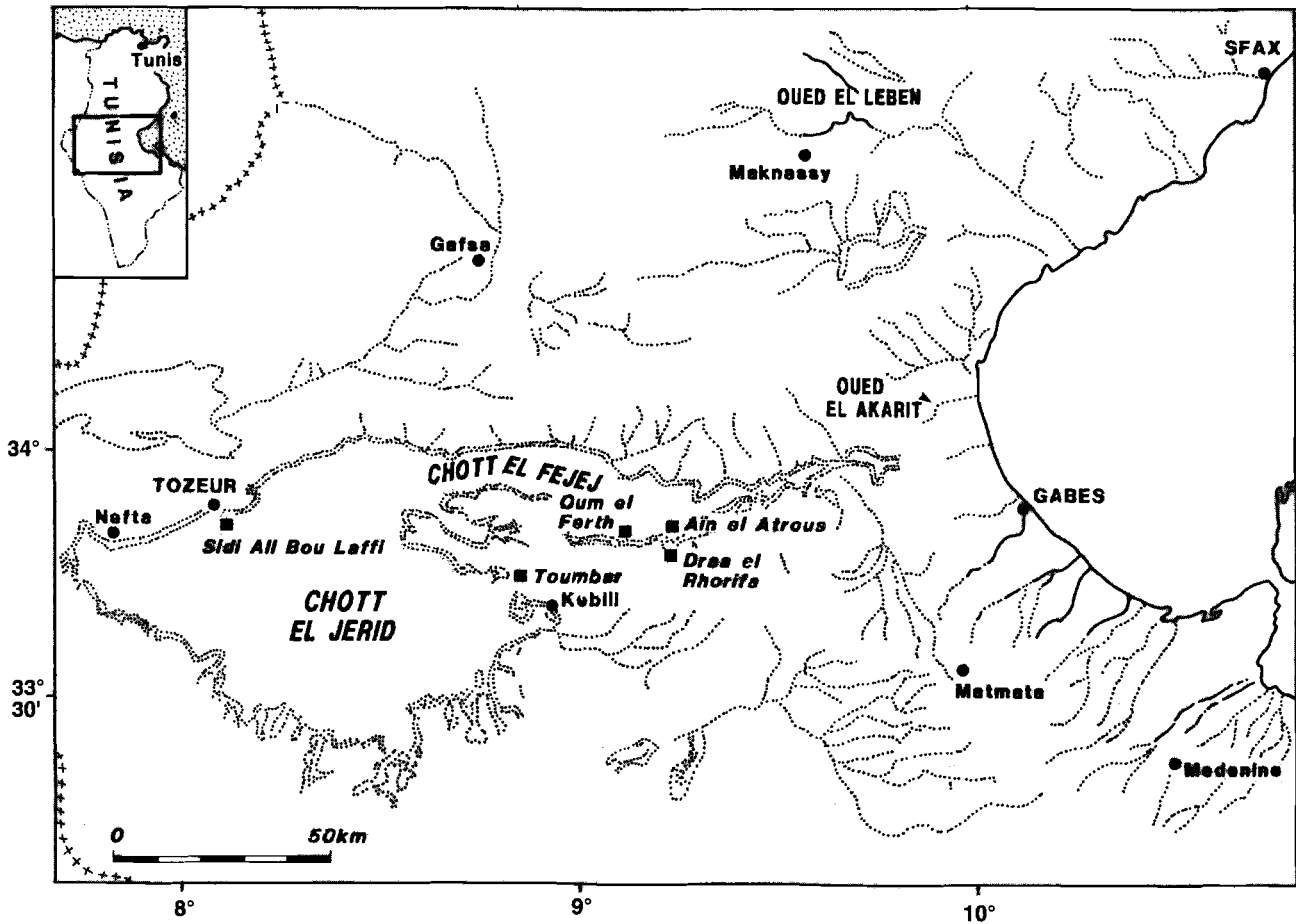
Sur le site de l'oued el Akarit, le Quaternaire affleure en discontinuité sur treize mètres d'épaisseur environ. Les dépôts, riches et diversifiés, renferment également des industries préhistoriques variées : acheuléen, moustérien et industrie à lamelles (Gobert *et al.*, 1952 ; Coque, 1962 ; Ben Oueddou *et al.*, 1986). Les échantillons ont été collectés à partir des coupes affleurant sur plus de dix mètres d'épaisseur sur les berges de l'oued et deux carottages continus ont été réalisés à l'amont (23,7 m) et à l'aval (20 m) de son cours permanent. Ces sondages montrent des dépôts fins reflétant plusieurs épisodes lacustres ou palustres (silts argileux, carbonates, tourbes, gypse) séparés par des phases d'apport détritique (dépôts fluviaux ou éoliens).

Les chotts du sud tunisien (Djerid et Fedjej), situés dans une vaste structure synclinale bordée par plusieurs reliefs, correspondent à la zone de décharge des grandes nappes sahariennes. Il s'agit aujourd'hui d'une des parties les plus arides de la Tunisie (pluviosité moyenne annuelle de l'ordre de 130 mm ; température moyenne mensuelle allant de 25 à 40 °C et évaporation de l'ordre de 2 500 mm/an), caractérisée par des témoins lacustres très importants, dont l'altitude peut atteindre 45 m (Fig. 2). Ces dépôts jalonnent des paléorivages témoignant de l'ennoyage graduel du bassin. Ils sont carbonatés, sablo-argileux ou sablo-gypseux, plus ou moins cristallisés et oxydés, parfois riches en galets et graviers émoussés, et contiennent souvent des lumachelles. La macrofaune est essentiellement constituée de Lamellibranches (*Cerastoderma glaucum* nombreux, à valves souvent entières et parfois en connexion, et *Ostrea stentina*, généralement non en place, repris dans des dépôts plus récents sous forme de valves épaisses et plus ou moins roulées) et Gastéropodes (*Hydrobia*, *Melanoides tuberculata*, *Melanopsis praemorsa*, *Potamides conicus*, *Cerithium rupestre*) indiquant des fluctuations importantes de la salinité du milieu. La microfaune et la microflore confirment ces variations. Depuis des eaux douces à oligosalines, dans lesquelles ont pu se développer les diatomées *Melanosira granulata*, *Fragilaria brevistriata*, ou l'ostracode *Candona sp.*, l'évaporation a conduit à des eaux dont la salinité était proche de celle de l'eau de mer, et où ont pu se développer des foraminifères tel *Ammonia tepida*, des diatomées telle *Synedra tabulata*, des ostracodes tel *Cyprideis torosa* (Gasse *et al.*, 1987).

2) Secteur 3 : Nord Niger

Localisation des sites et données sédimentologiques

En bordure nord-est du massif de l'Aïr, les reliefs à morphologie annulaire de l'Adrar Bous présentent des dépôts quaternaires, pauvres en macrofossiles, dans des dépressions fermées. L'abondance des vestiges archéologiques a justifié plusieurs études dont le cadre chronologique restait à préciser (Williams *et al.*, 1987 ; Roset, 1983 et 1987).



Les carottages (5 à 7,5 m de profondeur) réalisés dans ce secteur montrent une sédimentation plus ou moins fine, dépourvue de macrofossiles. On relève la présence de sables argileux, de diatomites parfois calcaires et riches en biomarqueurs divers (diatomées, ostracodes, charophytes) et de calcaires dont la fraction inférieure à 80 micromètres représentée par des rhomboèdres automorphes de calcite serait authigène (Dubar, 1988).

Les données chronométriques ont été obtenues sur carbonates impurs (U/Th) et sur carbonates ou matière organique (^{14}C) à partir des séquences 85/S1 et 86/S5 (Fig. 3). Ces résultats ont permis de proposer une interprétation des paramètres hydrodynamiques de la nappe dans une région qui reçoit actuellement moins de 50 mm/an de précipitations annuelles, et où le niveau piézométrique est inférieur à la profondeur maximale atteinte par les carottages.

B. Transect Ouest (25-32 °N ; 5 °W-2 °E)

Secteurs 1' et 2' : Algérie (Sahara nord-occidental)

Localisation des sites et données sédimentologiques

Dans le nord de l'Algérie, la sebkha Mellala est une dépression fermée, d'origine éolienne, essentiellement alimentée par la remontée de la nappe phréatique, elle-même en continuité hydraulique avec les aquifères sous-jacents, à la faveur de failles verticales. Cette situation particulière fait de ce bassin un enregistreur fidèle des fluctuations des précipitations dans les zones de recharge des nappes, *i.e.* les zones du M'zab et de l'Atlas.

Les échantillons collectés par sondages et sur des buttes témoins correspondent à des successions de zones gypsifères et de niveaux plus carbonatés, généralement associés à des développements coquilliers (*Cyprideis torosa*, *Potamides conicus* et *Cerastoderma glaucum*). Des analyses au microscope électronique à balayage ont révélé la présence de carbonates authigènes dans la fraction inférieure à 80 micromètres. Ces carbonates évoluant de l'aragonite à la calcite fortement magnésienne et à la calcite stoechiométrique ont mis en évidence des cycles complexes de mise en eau-assèchement (Gibert *et al.*, 1990).

Dans le sud de l'Algérie, les sites de Kadda et de l'Azzel Matti, situés respectivement dans l'Erg Chech et sur le Tanezrouft, correspondent à des accumulations de dépôts lacustres quaternaires dans des zones aujourd'hui hyper arides. Ces formations sont composées d'alternances marno-calcaires

◀ FIGURE 2.

Localisation des sites du secteur 1 (sud tunisien) :
Oued el Akarit et région des chotts.

Location of southern tunisian sites, sector 1:
Wadi el Akarit and Chott Region.

et sableuses. Le site de l'Azzel Matti présente des niveaux coquilliers relativement abondants sur lesquels ont été effectuées les mesures chronométriques. À l'inverse les sédiments de Kadda, dépourvus de macrofossiles mais plus riches en matière organique, présentent plusieurs phases de cristallisation carbonatée superposées, ce qui a rendu l'interprétation de la chronologie difficile.

DONNÉES CHRONOLOGIQUES

A. Principes de validation des données radiométriques

1) *Datation radiocarbone*

La validité des âges ^{14}C obtenus tant sur la matière organique que sur les carbonates inorganiques ou biogènes, collectés dans les sédiments lacustres ou palustres, repose essentiellement sur trois conditions : (i) équilibre du CITD (Carbone Inorganique Total Dissous) et du réservoir atmosphérique, (ii) authigénie du matériau daté, et (iii) absence de cristallisation post-sédimentaire. Généralement, la preuve du respect de ces conditions ne peut être directement établie. En effet, un déséquilibre actuel entre le CITD et le réservoir atmosphérique conduit à un vieillissement aléatoire des âges (Zouari, 1988; Fontes *et al.*, 1995) ; des recristallisations aragonite-aragonite, indécélables, ne peuvent être écartées en milieu riche en magnésium (Causse *et al.*, 1988) ; enfin, la part allochtone d'un matériau reste bien souvent soit difficilement observable soit difficilement quantifiable (Talbot et Kelts, 1986 ; Fontes *et al.*, 1993). La concordance des âges obtenus sur matière organique et inorganique d'un même échantillon ainsi que la cohérence avec la position stratigraphique restent des critères positifs mais non des preuves de validité d'une chronologie. En fait, une comparaison directe avec un chronomètre indépendant est nécessaire.

2) *Datation par le déséquilibre Th/U*

En raison de la solubilité de l'uranium et de l'insolubilité du thorium dans les eaux naturelles, cause originelle du déséquilibre Th/U, la validité des âges obtenus par la mesure de ce déséquilibre repose essentiellement sur la constance du stock initial d'uranium, ou de la quantité fixée dès les premiers stades de la diagenèse (cas des carbonates organiques).

Les critères de clôture du système géochimique sont donc proches de ceux qui ont été évoqués ci-dessus, les phénomènes de recristallisation et diagenèse post-sédimentaire étant tout à fait rédhibitoires (Causse *et al.*, 1993). À cet égard, un histogramme de fréquence des âges apparents est plus représentatif de la chronologie qu'un tableau de résultats individuels, le meilleur critère de validité restant la convergence des âges obtenus pour un ensemble d'échantillons relevant d'une même formation géologique.

Dans les sédiments lacustres, la présence fréquente de carbonates impurs, à composante détritique mécaniquement indissociable, impose l'utilisation de méthodes isochrones pour le calcul du temps de résidence de l'uranium dans la seule phase authigène (*cf.* Causse, 1992, pour une revue de ces méthodes).

B. Discussion des résultats : essai de reconstitution des phases humides

1) Phases tardiglaciaire et holocène

Les cas de distorsion importante entre âge apparent ^{14}C et âge vrai sont parfaitement illustrés par les échantillons vivants de gastéropodes (*Melania*, *Melanopsis* et *Hydrobia*) et de plantes aquatiques (*Potamogeton*) de l'oued el Akarit (mission 1987), qui tous ont livré des âges apparents égaux ou supérieurs à 10 000 ans BP (tableau ci-dessous).

Teneurs isotopiques de coquilles et végétaux vivants de l'oued el Akarit
Isotopic contents of living shells and plants from wadi el Akarit

Matériel	^{13}C (‰)	^{14}C (%)	Âges apparents
<i>Melanoïdes</i>	- 5,66	25,0 ± 1,5	11 100 ± 500
<i>Hydrobia</i>	- 4,66	29,0 ± 1,6	9 950 ± 440
<i>Melanopsis</i>	- 3,78	19,3 ± 0,9	13 230 ± 380
<i>Potamogeton</i>	- 15,00	15,5 ± 0,7	15 000 ± 390
CITD de la nappe	- 8,56 à - 12,17	9,5 ± 0,4	18 500 ± 500

Ceci a permis d'établir un modèle de correction des âges apparents, prenant en compte l'apport du carbone ancien dissous dans les nappes profondes (Fontes *et al.*, 1983 et Zouari, 1988). Après correction, les âges ^{14}C et Th/U se sont avérés concordants et en position stratigraphique.

Toutefois, la concordance directe entre les deux types de chronologie a été obtenue sur les sites algériens de la sebkha Mellala (Gibert *et al.*, 1990; Fontes *et al.*, 1992) ou encore sur la partie supérieure des sondages de l'Adrar Bous au Niger (Dubar, 1988; Fontes et Gasse, 1991).

Pour la partie nord du transect ouest, le retour des conditions humides au Tardiglaciaire serait intervenu il y a 14 000 ans environ, pour une brève période de 2 000 ans. Une deuxième phase humide apparaît dès 9 500 ans BP et culmine vers 8 400 ans BP. En Tunisie, seule cette deuxième phase a été mise en évidence vers 11 000 ans. Cette période humide s'achèverait vers 3 000 ans BP (Zouari, 1995).

2) Pléistocène supérieur

Problème de l'existence de pulsations humides vers 20-40 ka

Parmi les nombreux âges ^{14}C compris entre 20 et 40 ka BP (Page, 1972 ; Richards et Vita-Finzi, 1982 ; Ben Oueddou *et al.*, 1986 ; Zouari, 1988), un grand nombre a livré des âges U/Th beaucoup plus anciens (Causse *et al.*, 1989 et nouveaux résultats ci inclus). Par exemple, des âges isochrones [$^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$]-[$^{234}\text{U}/^{232}\text{Th}$] proches de 33 et 38 ka ont été obtenus sur échantillons totaux de sédiments argilo-carbonatés provenant des sondages 85/S1 et 86/S5 de l'Adrar Bous (Dubar, 1988), tandis que ces mêmes niveaux livraient des âges ^{14}C apparents plus récents (Fig. 3), et en discordance stratigraphique.

Cependant, huit échantillons provenant du site de Sidi Ali Bou Lafi, près du village de Tozeur (Fig. 2) livrent des âges individuels ou des âges isochrones U/Th (Figs 4 et 5) proches des âges ^{14}C obtenus sur deux d'entre eux : 27,8 ($\pm 0,88$) et 33,8 ($\pm 0,11$) ka BP. Ces résultats suggèrent fortement que des spécimens de *Melania tuberculata* et *Melanopsis praemorsa* ont pu se développer vers 20 à 40 ka (Chkir *et al.*, 1995). Sans que l'on puisse juger de l'importance et de l'extension des lacs (ou des mares) dans lesquels ont vécu ces organismes, il semble que la remontée des eaux souterraines liée à cette pulsation humide (Fontes et Gasse, 1991) ait conduit à l'établissement de plans d'eau quasi permanents, au moins dans le sud tunisien.

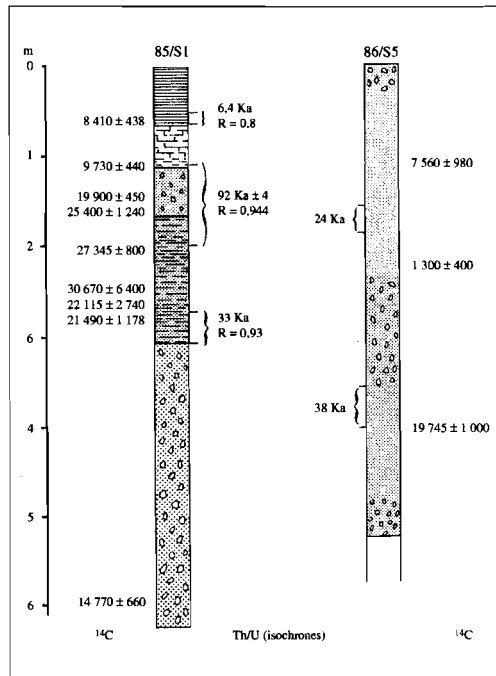


FIGURE 3.

Données chronologiques ^{14}C et Th/U et séquences stratigraphiques de deux sondages de l'Adrar Bous (Nord-Niger).

Description, ^{14}C and Th/U chronologies of two cores from Adrar Bous sector (Northern Niger).

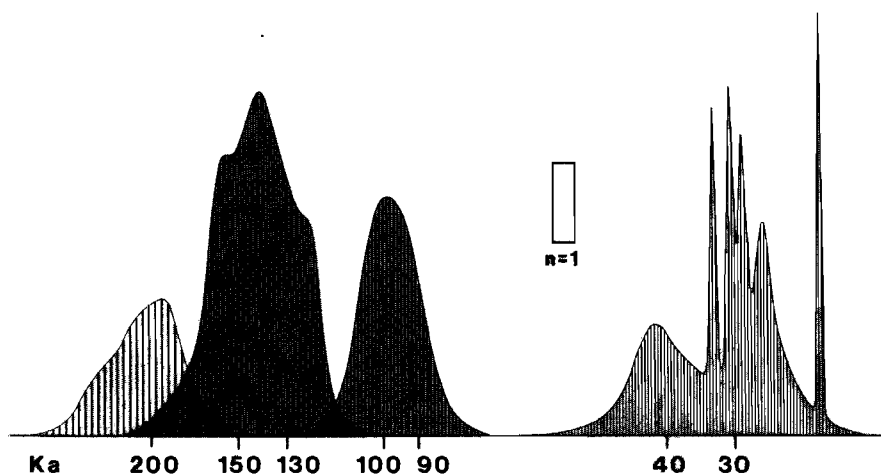


FIGURE 4.

Histogramme de fréquence des âges apparents U/Th (corrégés de l'éventuelle contribution en thorium détritique) des échantillons provenant des chotts tunisiens. Chaque âge est représenté par la distribution gaussienne de la valeur de son rapport d'activité $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ ($\pm 3\sigma$). On remarque la grande précision des analyses par spectrométrie de masse obtenues pour quelques échantillons de la phase pléistocène la plus récente.

Frequency histograms of Th/U apparent ages (corrected for detrital thorium) from tunisian chott deposits. Each single age is represented by gaussian distribution of its $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ activity ratio ($\pm 3\sigma$). High precision of TMS analyses is obvious for some youngest Late Pleistocene samples.

Les phases humides majeures autour de 90-100 ka et 130-140 ka

Pour les chotts sud-tunisiens, la distribution des âges, corrigés de l'éventuelle contribution en thorium détritique, observée sur l'histogramme de fréquence (Fig. 4), montre l'existence de deux phases humides distinctes, apparemment centrées autour de 90-100 ka et 130-150 ka. Pour chacun de ces épisodes le calcul des corrélations isochrones (*e.g.* Hillaire-Marcel et Causse, 1989) a livré des âges de 97 et 137 ka, avec des coefficients de corrélation respectivement égaux à 0,999 et 0,997. Une confirmation de ces résultats a été obtenue par l'application des équations proposées par Ludwig et Titterington (1994 ; *cf* Zouari *et al.* 1996).

Pour le Sahara nord-occidental, sur le site de l'Azzel Matti, les mêmes calculs ont livré un âge isochrone égal à 92 ka, avec une corrélation toutefois inférieure (Causse *et al.*, 1988). Sur le site de Kadda, deux sédiments carbonatés suggèrent une (ou deux?) phase de mise en eau de la région entre 80 et 100 ka.

Cette phase humide serait également représentée au Nord Niger, où un âge isochrone obtenu sur des carbonates impurs (92 ± 4 ka, $R = 0,944$) en serait le témoin. Il est également possible que cet âge ne représente qu'une moyenne entre une phase plus ancienne et une reprise de cristallisation plus récente, ce qui a par ailleurs été évoqué pour rendre compte des âges isochrones à 38, 33 et 24 ka obtenus pour d'autres niveaux des sondages 85/S1 et 86/S5 (Fontes et Gasse, 1991). Ceci est en outre la seule explication possible de la discordance observée entre la stratigraphie et la chronologie ^{14}C (Fig. 3).

La phase antérieure, centrée autour de 130-140 ka, ne serait présente que dans les chotts du sud tunisien. Les mesures du déséquilibre $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ ayant été obtenues par spectrométrie alpha, leur précision laisse une large incertitude de détermination de l'âge recherché. Cependant, le calcul de l'âge isochrone livre un coefficient de corrélation élevé ($R = 0,997$) et une pente étroitement déterminée : $0,77 \pm 0,03$, ce qui relèverait d'une faible dispersion des âges vrais de ces échantillons, et par suite de la faible durée de la phase humide correspondante.

À l'est des régions relevant du programme PALHYDAF, le sud libyen avait déjà révélé l'existence de grands lacs développés autour de 90 et 130 ka (Gaven *et al.*, 1981).

3) *Pléistocène moyen*

En ce qui concerne les âges proches de 200 ka, obtenus sur quatre échantillons seulement prélevés dans des buttes-témoins des chotts sud-tunisiens, il importe de remarquer que les erreurs statistiques de comptage sont ici très élevées, traduisant l'approche des limites de la spectrométrie alpha pour cet âge.

Toutefois, un échantillon d'*Ostrea stentina* récemment analysé par spectrométrie de masse à thermo-ionisation a livré un âge égal à 206 ± 12 ka (analyse réalisée au GEOTOP, Montréal, en collaboration avec B. Ghaleb). Par spectrométrie alpha, cet échantillon n'avait livré que des rapports d'activité proches de l'équilibre, avec une contribution non négligeable en thorium détritique, d'où le maintien de l'hypothèse de R. Coque (1962) de remaniement de dépôts crétacés (Causse *et al.*, 1991). Il s'agit vraisemblablement d'échantillons équivalents à ceux qui ont livré des âges ^{14}C de 25 et 35 ka BP (Richards et Vita-Finzi, 1982). En fait, les données radiométriques, même parfaitement fiables au plan analytique, sur un tel type d'échantillons ne peuvent être considérées que comme des indications chronométriques à préciser par les mesures de comptage d'ions.

Par ailleurs, il paraît difficile de considérer que les quatre données relatives à un âge pléistocène moyen relèvent d'un même ensemble. L'un des échantillons est manifestement non en place dans la formation sédimentaire.

D'autre part, une donnée géochimique indicatrice du milieu de formation, à savoir le rapport d'activité $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, présente des valeurs très variables : 1,71 ($\pm 0,05$), 1,96 ($\pm 0,04$), 2,33 ($\pm 0,05$) et 1,24 ($\pm 0,02$).

En résumé, si un âge pléistocène moyen a été déjà mentionné en Afrique septentrionale (Szabo *et al.*, 1989), et si nos propres données semblent indiquer des conditions humides autour de 200 ka, il reste à confirmer l'existence et l'importance d'une phase humide au pléistocène moyen.

CONCLUSION

Les travaux réalisés dans le cadre du programme PALHYDAF ont mis en évidence que la validation de toute chronologie, fondement de toute reconstitution paléoclimatologique, passe par un contrôle géochimique systématique des données propres à chaque méthode radiométrique utilisée. Un matériau géologique ne peut pas être considéré comme une source de données numériques directement transformables en conclusions et encore moins en âge de formation mais comme un système géochimique dont il faut décrypter la cohérence. Les cas de distorsion entre âges ^{14}C et Th/U sont fréquents, notamment en cas d'alimentation des lacs par des eaux souterraines anciennes, ou en cas de reprise de cristallisation, même peu importante ou non apparente. En effet, la contamination d'un échantillon d'âge non fini par 1,5 pcm donne un âge apparent ^{14}C égal à 35 ka BP. Pour un âge compris dans un intervalle allant de 30 ka à 150 ka, une variation de 1,5 % du rapport d'activité $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$, par départ ou apport d'uranium, produit une distorsion de l'âge apparent inférieure à la barre d'erreur due aux statistiques de comptage par spectrométrie alpha dans les conditions habituelles de mesure.

Les conclusions paléoclimatiques majeures concernent d'une part la reprise des précipitations au Tardiglaciaire et leur pérennité durant l'Holocène. Si l'absence de séquences sédimentaires complètes n'a pas permis d'en retrouver les premières étapes en Tunisie, elles sont enregistrées dès 14 ka en Algérie septentrionale. Pendant l'Holocène, les fluctuations rapides correspondant à la dernière déglaciation sont en bonne corrélation avec l'évolution climatique européenne.

D'autre part, au Pléistocène supérieur, les deux phases humides majeures recensées autour de 90-100 et 130-140 ka seraient corrélables avec les optima climatiques définis par la climatostratigraphie océanique. Cela avait été également observé au Wadi Shati dans le sud libyen.

Un résultat nouveau est la mise en évidence d'au moins une pulsation humide autour de 20-40 ka dans la partie occidentale des chotts tunisiens, plus importante qu'il n'avait été permis de le supposer (Fontes et Gasse, 1991) et impliquant l'existence de plans d'eau quasi permanents.

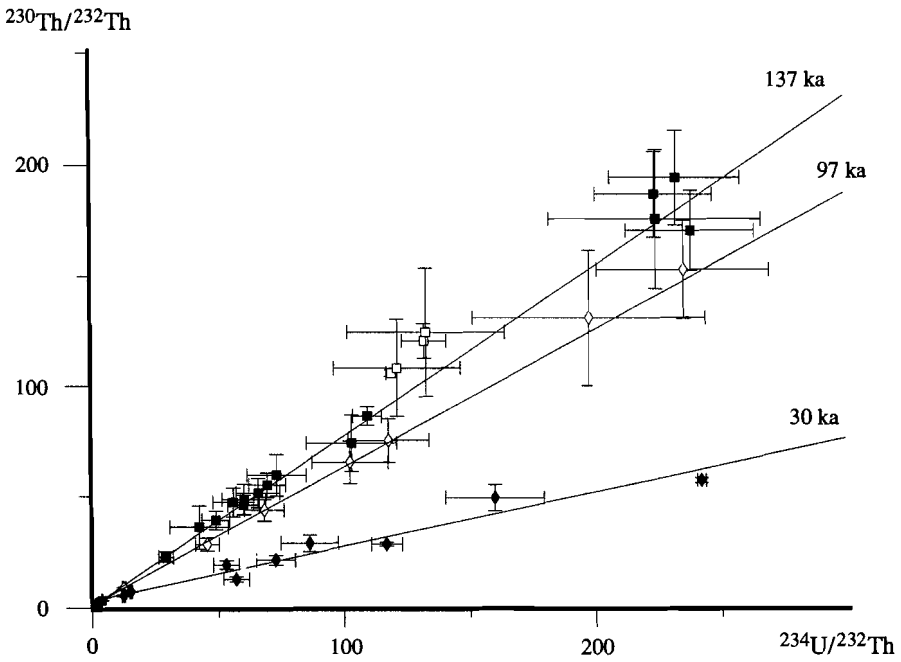


FIGURE 5.

Diagrammes isochrones correspondant aux histogrammes de fréquence de la figure 4. À l'exception de la classe d'âge proche de 200 ka, les groupes définis sont représentés par les corrélations linéaires pondérées des rapports d'activité ($^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$) et ($^{234}\text{U}/^{232}\text{Th}$) affectés des erreurs statistiques de comptage ($\pm 1 \sigma$).

($^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$) vs. ($^{234}\text{U}/^{232}\text{Th}$) diagrams. Weighted correlations ($\pm 1 \sigma$) are represented for three age groups.

RÉFÉRENCES

- Ben Oueddou (H.), Camps (G.), Abderrazak (G.), Majhoub (K.), Zouari (K.), 1986. « Sur les dépôts du Pléistocène supérieur et de l'Holocène de la région des Chotts et de la plaine côtière du Golfe de Gabès (Tunisie) et leur place dans la stratigraphie du Quaternaire ». *C. R. Acad. Sc.*, 302 (Série II, n° 9) : pp. 659-664.
- Ben Oueddou (H.), 1991. *La partie méridionale des steppes tunisiennes : Etude géomorphologique*, Thèse de doctorat d'état. Université de Tunis I, 2 vol., 516 p.
- Causse (C.), Conrad (G.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Gibert (E.), Kassir (A.), 1988. « Le dernier Humide pléistocène du Sahara nord-occidental daterait de 80-100 000 ans », *C. R. Acad. Sc.*, 306 (Série II) : 1459-1464.
- Causse (C.), Coque (R.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Gibert (E.), Ben Oueddou (H.), Zouari (K.), 1989. « Two high levels of continental waters in the southern Tunisian chotts at about 90 and 150 ka ». *Geology*, 17 : 922-925.
- Causse (C.), Coque (R.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Gibert (E.), Ben Oueddou (H.), Zouari (K.), 1991. « Two high levels of continental waters in the southern Tunisian chotts at about 90 and 150 ka ». *Geology*, in Forum section : A reply to Richards and Vita-Finzi comment, 19 : 95-96.
- Causse, (C.), 1992. « Th/U isochron method on "dirty" but closed calcitic system : examples of calcareous concretions », *Geol. Survey of Finland*, Special Paper 15 : 33-39.
- Causse, (C.), Goy, (J. L.), Zazo, (C.), Hillaire-Marcel, (C.) 1993. « Potentiel chronologique (Th/U) de faunes Pléistocènes méditerranéennes : exemple des terrasses des régions de Murcie et Alicante (Sud-Est de l'Espagne) », *Geodinamica Acta*, 6 (2) : 121-134.
- Chkir, (N.), Ben Oueddou (H.), Zouari (K.), Causse (C.), 1995. « Pleistocene humid episodes in southern Tunisia : the Tozeur Site », *XIV International Congress, INQUA 95*, Berlin, Allemagne, p. 48.
- Coque (R.), 1962. *La Tunisie présaharienne, étude géomorphologique*, Lib. A. Colin, Paris, 476 p.
- Dubar (C.), 1988. *Éléments de paléohydrologie de l'Afrique saharienne : les dépôts quaternaires d'origine aquatique du nord-est de l'Aïr (Niger, PALHYDAF Site 3)* ; Thèse Université Paris-Sud, 184 p.
- Fontes (J.-Ch.), Coque (R.), Dever (L.), Filly (A.), Mamou (A.), 1983. « Paléohydrologie isotopique de l'oued el Akarit (Sud Tunisie) au Pléistocène supérieur et à l'Holocène », *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 43 : 41-61.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1986. « PALHYDAF : état d'avancement, novembre 1985 », *INQUA-ASEQUA Symp. Int.*, Dakar, avril 1986, *Changements globaux*

- en Afrique durant le Quaternaire, Passé, Présent, Futur*, Orstom, Bondy, pp. 149-152.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1989. « On the ages of humid Holocene and Late Pleistocene phases in North Africa remarks on "Late Quaternary climatic reconstruction for the Maghreb (North Africa) by P. Rognon" », *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 70: 393-398.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1991. « PALHYDAF (Paleohydrology in Africa) program : objectives, methods, major results », *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 84: 191-215.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1992. « Climatic changes in northwest Africa during the Last Deglaciation (16-7 ka BP) », NATO ASI Series, 12 *The Last Deglaciation : Absolute and Radiocarbon Chronologies* (E. Bard and W.S. Broecker) Springer Verlag Berlin Heidelberg, pp. 295-325.
- Fontes (J.-Ch.), Mélières (F.), Gibert (E.), Liu (Q.), Gasse (F.), 1993. « Stable isotope and radiocarbon balances of two tibetan lakes (Sumxi Co, Longmu Co) from 13,000 BP », *Quaternary Science Reviews*, 12: 875-887.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Gibert (E.), 1995. « Holocene environmental changes in Lake Bangong basin (Wesrtern Tibet). Part 1 : Chronology and stable isotopes of carbonates of a Holocene lacustrine core », *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 120: 25-47.
- Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), Plaziat (J.-C.), Carbonel (P.), Kaczmarska (I.), de Deckker (P.), Soulie-Marsche (I.), Callot (Y.), Dupeuble (P.A.), 1987. « Biological remains, geochemistry and stable isotopes for the reconstruction of environmental and hydrological changes in the Holocene lakes from north Sahara », *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 60: 1-46.
- Gaven, (C.), Hillaire-Marcel, (C.), Petit-Maire, (N.), 1981. « A Pleistocene lacustrine episode in southeastern Libya », *Nature*, 290: 131-135.
- Gibert (E.), 1989. *Géochimie et paléohydrologie des bassins lacustres du nord-ouest saharien (Programme PALHYDAF Secteur 2')*. Thèse Université Paris-Sud, 232 p.
- Gibert (E.), Arnold, (M.), Conrad (G.), De Deckker (P.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Kassir (A.), 1990. « Retour des conditions humides au Tardiglaciaire au Sahara septentrional (Sebkha Mellala, Algérie) », *Bull. Soc. Géol. Fr.*, 8, VI (n° 3: 497-504.
- Gobert (E. G.), 1962. « La préhistoire dans la zone littorale de la Tunisie », *Quaternaria*, 6: 271-307.
- Hillaire-Marcel (C.), Causse, (C.), 1989. « Chronologie Th/U des concrétions calcaires des varves du Lac Glaciaire de Deschaillons (Wisconsinien Inférieur) », *Journal Canadien des Sciences de la Terre*, 26: 1041-1052.

- Ludwig (K.R.), Titterington (D.M.), 1994. « Calculations of $^{230}\text{Th}/\text{U}$ isochrons, ages and errors », *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58 (n° 22) : 5031-5042.
- Page (W.D.), 1972. *The geological setting of the archeological site at Oued el Akarit and the paleoclimatic significance of gypsum soils, southern Tunisia* (thesis) : Boulder, University of Colorado, 111 p.
- Richards (G.W.), Vita-Finzi (C.), 1982. « Marine deposit 35.000-25.000 years old in the Chott Djerid, southern Tunisia », *Nature*, 295 : 54-55.
- Roset (J-P.), 1983. « Nouvelles données sur le problème de la néolithisation du Sahara méridional : Aïr et Ténéré au Niger », *Cah. Orstom*, 13 (2) : 119-142.
- Roset (J-P.), 1987. « Néolithisation, néolithique et post-néolithique au Niger nord-oriental », *Bull. A.F.E.Q.*, pp. 203-214.
- Szabo (B. J.), McHugh (W. P.), Schaber (G. G.), Haynes (C. V. Jr), Breed (C. S.), 1989. « Uranium Series dated authigenic carbonates and Acheulian sites in southern Egypt », *Science*, 243 : 1053-1056.
- Talbot (M. R.), Kelts (K.), 1986. « Primary and diagenetic carbonates in the anoxic sediments of lake Bosumtwi, Ghana », *Geology*, 14 : 912-916.
- Williams (M. A. J.), Abell (P. I.), Sparks (B.W.), 1987. « Quaternary landforms sediments, depositional environments and gastropode isotope ratios at Adrar Bous, Tenere desert of Niger, south-central Sahara ». In : *Desert Sediments : Ancient and Modern*, Frostick and Reid (eds), Geological Society, 295 : 54-55.
- Zouari (K.), 1988. *Géochimie et sédimentologie des dépôts continentaux d'origine aquatique du Quaternaire supérieur du sud tunisien : interprétations paléohydrologiques et paléoclimatiques*. Thèse de doctorat d'État, Université de Paris-Sud, 321 p.
- Zouari (K.), 1995. « Reprise des conditions humides dans le sud-tunisien depuis 11 000 ans BP », *Stable Isotope Technics for Water Resources management Symposium*, I.A.E.A., Vienne, mars 1995.
- Zouari (K.), Causse (C.) Chkir (N.), Ben Ouezdou (H.), Mamou (A.), 1996. « The humid episodes in the Southern Tunisian Chotts during the Upper Quaternary », A two-day International Meeting in Memory of John Napier Andrews, *Hydrogeochemistry : Noble Gases, Stable Isotopes and Radioelements*, April 2-3 1996, Univ. of Reading, Whiteknights, Reading, UK.

La carbonatogenèse bactérienne

Bacterial carbonatogenesis

S. CASTANIER, G. LE MÉTAYER-LEVREL
ET J.-P. PERTHUISOT

RÉSUMÉ – Les différentes voies de formation de carbonates sédimentaires sont présentées et analysées. Les données expérimentales et environnementales indiquent que la carbonatogenèse bactérienne hétérotrophe, avec ses différentes voies métaboliques, est un processus majeur et ubiquiste dans la formation des carbonates. Elles suggèrent en outre que c'est le processus quantitativement dominant et qu'ainsi l'essentiel du carbone des carbonates sédimentaires et diagénétiques est issu de matière organique initiale. Ces conceptions nouvelles posent un certain nombre de questions sur l'interprétation de certaines analyses isotopiques, comme sur celle des formations carbonatées azoïques. Elles replacent enfin la carbonatogenèse bactérienne au cœur des relations historiques entre l'atmosphère, la biosphère et la lithosphère.

Mots-clés : microbiogéologie, bactéries, carbonates, expériences, synthèse.

*

ABSTRACT – Several series of experiments in the laboratory as well as in natural conditions teach that the production of carbonate particles by heterotrophic bacteria follows different ways. The « **passive** » carbonatogenesis is generated by modifications of the medium that lead to the accumulation of carbonate and bicarbonate ions and to the precipitation of solid particles. It is induced by several metabolic pathways which are: i. the ammonification of aminoacids in aerobiosis; ii. the dissimilatory reduction of nitrates in microaerophily; iii. the dissimilatory reduction of sulfates in anaerobiosis. The « **active** » carbonatogenesis is independent of the mentioned metabolic pathways. The carbonate particles are produced by ionic exchanges through the cell membrane following still poorly known mechanisms. Bacterial (non methylo-trophic) methanogenesis and photosynthesis (by cyanobacteria) also may concur to the precipitation of carbonates (autotrophic carbonates). Carbonatogenesis is neither

restricted to particular taxonomic groups of bacteria nor to specific environments so that it has been an ubiquitous phenomenon since Precambrian times.

Carbonatogenesis appears to be the response of heterotrophic bacterial communities to an enrichment of the milieu in organic matter. After a phase of latency, there is an exponential increase of bacterial strengths together with the accumulation of metabolic end-products. These induce a pH increase and an accumulation of carbonate and hydrogenocarbonate ions in the medium. This phase ends into a steady state when most part of the initial enrichment is consumed. Particulate carbonatogenesis occurs during the exponential phase and ends more or less after the beginning of the steady state. The active carbonatogenesis seems to start first. It is followed by the passive one which induces the growth of initially produced particles.

The first solid products of bacterial carbonatogenesis are probably amorphous and appear on the surface of the bacterial bodies as patches or stripes that extend and coalesce until forming a rigid coating. In other cases solid particles are excreted from the cell. All these tiny particles, including more or less calcified cells, assemble into biomineral aggregates which often display «precrystalline» structures. These aggregates grow and form biocrystalline assemblages or build-ups which progressively display more crystalline structures with growth. In numerous cases the bacterial cells tend to arrange themselves into nearly crystalline structures and sometimes into fibroradial fabrics that could prefigure ooids.

The yield of heterotrophic bacterial carbonatogenesis and the amounts of solid carbonates production by bacteria are potentially very high as compared to autotrophic or chemical sedimentation from marine, paralic or continental waters. Furthermore, the bacterial processes are environmentally very ubiquitous; they just require organic matter enrichment. Besides, as far as biodetrital particles are concerned, one must observe that the carbonate shells and tests of organisms are built from their mitochondria (or chloroplasts) activity. These cellular organites are nowadays considered by number of biologists as endosymbiotic bacteria.

Thus, apart from (probably mythical) purely evaporitic and autotrophic ones, all Ca and/or Mg carbonates must be considered as from heterotrophic bacterial origin. By the way, the carbon of carbonates comes from primary organic matter.

Such considerations ask questions about some interpretations from isotopic data on carbonates.

Finally, bacterial heterotrophic carbonatogenesis appears as a fundamental phase in the relationships between atmosphere and lithosphere and in the geobiological evolution of Earth.

Key words : geomicrobiology, bacteria, carbonates, experiments, synthesis.

INTRODUCTION

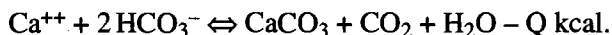
Très tôt dans sa carrière de chercheur, Jean-Charles Fontes a développé les analyses des isotopes (stables et radioactifs) aux carbonates sédimentaires, notamment aux plus récents, pour en tirer des enseignements d'ordre paléoclimatique et, parce qu'ils sont peu susceptibles d'avoir subi des transformations diagénetiques, d'ordre chronologique. Les interprétations des analyses isotopiques des carbonates dépendent évidemment de l'origine de leurs atomes constitutifs notamment du carbone. Plutôt que des isotopes eux mêmes, dont nous ne sommes pas spécialistes, c'est de cette origine que nous nous proposons de discuter ici à la lumière des nouveaux concepts qu'apporte l'étude de la carbonatogenèse bactérienne.

I. LES DIVERSES ORIGINES DES CARBONATES (DE Ca ET Mg)

Bien que l'origine des minéraux carbonatés soit l'objet d'une très abondante littérature, il nous paraît utile d'en faire ici une courte présentation. Les minéraux carbonatés les plus abondants dans la nature actuelle sont la calcite (plus ou moins magnésienne) et l'aragonite auxquels nous limiterons l'essentiel de notre propos. Leur formation résulte de plusieurs types de phénomènes.

A. Précipitation abiogénique

L'équilibre des hydrogénocarbonates est régi par la réaction globale bien connue :



La précipitation abiogénique se produit lorsque la solution vient à saturation, soit par évaporation, soit par abaissement de la pression de CO_2 (éventuellement par abaissement de la pression totale), soit par augmentation de la température (toutes choses égales d'ailleurs dans les trois cas). On peut y ajouter la cristallisation de glace à partir de la solution. On remarquera qu'à l'inverse d'autres solutions salines, le mélange de deux solutions saturées en carbonate donne dans tous les cas une solution sous-saturée, parce que le carbonate de calcium est le moins soluble des sels minéraux de calcium (Reijers et Hsü, 1986). Ceci implique, par exemple, que l'arrivée d'une eau continentale saturée dans la mer (elle aussi saturée) ne provoque aucun précipité de carbonate.

Quelque soit le processus abiogénique mis en jeu, **la production carbonatée est nécessairement limitée par la quantité d'ions carbonate et bicarbonate présents dans le milieu.**

B. Productions biogéniques

1. PRODUCTIONS MINÉRALES D'ANIMAUX OU DE VÉGÉTAUX (EUCARYOTES).

Il s'agit des coquilles, des tests, des carapaces, des spicules, etc. et de toutes les particules carbonatées issues de leur remaniement plus ou moins accentué. Ces éléments forment la **phase « biodétritique et nanobiodétritique »** des roches carbonatées.

2. **PRÉCIPITÉS SOUS L'EFFET DE LA PHOTOSYNTÈSE DES VÉGÉTAUX AQUATIQUES.** Celle-ci soustrait du CO_2 à l'eau du milieu (et à l'atmosphère) et déplace ainsi l'équilibre dans le sens de la précipitation du carbonate. C'est ainsi qu'on explique généralement la formation des tufs calcaires. Remarquons que cet effet est limité aux périodes d'ensoleillement, s'inverse la nuit et reste limité par la teneur du milieu en ions bicarbonate et carbonate. Le rôle fondamental de la photosynthèse reste la production primaire de biomasse.

3. **LES CARBONATES FONGIQUES.** Les champignons sont souvent présents dans les cristaux de carbonates, notamment dans les formations karstiques, mais, si leur rôle architectural et de production de matière organique semble évident, leur rôle direct dans la carbonatogenèse ne semble pas avéré.

4. **LES CARBONATES BACTÉRIENS.** Le monde bactérien (dans son acception ancienne) est susceptible d'effectuer la carbonatogenèse en utilisant diverses voies métaboliques. C'est là une propriété connue depuis bien longtemps même si elle fut souvent l'objet de nombreuses controverses (Drew 1910a et b, 1914; Berkeley, 1919; Kellerman, 1915; Lipmann, 1924; Mollish, 1924; Nadson, 1928).

a. **EN AUTOTROPHIE.** L'autotrophie est effectuée par les bactéries qui tirent leur carbone cellulaire du CO_2 gazeux ou dissous qui lui-même a une origine complexe : atmosphère, respiration, fermentation.

Trois grand groupes de bactéries interviennent :

Les **bactéries méthanogènes non méthylotrophes** qui se rattachent au monde des archéobactéries. Travaillant strictement en **anaérobiose**, elles produisent du CH_4 à partir de CO_2 et de H_2 qu'elles puisent dans leur environnement (Marty, 1983). La méthanogenèse méthylotrophe aboutit aussi à la production de CH_4 mais c'est une voie hétérotrophe indépendante du CO_2 (Marty et Garcin, 1987).

Les **bactéries photosynthétiques dites « anoxygéniques »**, qu'il vaudrait mieux appeler « anoxygénogènes » car elles effectuent une photosynthèse sans production d'oxygène que l'on pourrait qualifier d'ancestrale ou de primitive. Il s'agit des bactéries photosynthétiques vertes ou pourpres, sulfureuses ou non. Les bactéries sulfureuses ont besoin d' H_2S (généralement issu, dans la

nature actuelle, de processus bactériens hétérotrophes anaérobies) qu'elles oxydent en soufre (extra- ou intra-cellulaire). Ces bactéries vivent en **anaérobiose** ou en **microaérophilie** et utilisent principalement les radiations de longueur d'onde 850-1000 nm (bactéries pourpres) et 735-755 nm (bactéries vertes) (Pfennig et Trüper, 1989). Ces bactéries ont évidemment leur activité maximale le jour mais peuvent en avoir pendant les nuits chaudes. Elles possèdent des pigments photosynthétiques particuliers : les bactériochlorophylles.

Les **cyanobactéries** dites « oxygéniques », qu'il vaudrait mieux appeler « oxygénogènes » car elles effectuent une photosynthèse avec production d'oxygène en utilisant principalement les radiations de longueur d'onde 650-685 nm. Elles se différencient des précédentes par la possession de chlorophylle a (Castenholz et Waterbury, 1989).

b. EN HÉTÉROTROPHIE. Les bactéries hétérotrophes tirent leur carbone cellulaire du carbone organique issu initialement de la production primaire.

Toutes les bactéries hétérotrophes n'ont pas la faculté de fabriquer du carbonate solide mais celles qui l'ont effectuent soit une précipitation dite passive, soit une précipitation dite active, soit les deux (Castanier, 1984, 1987 ; Castanier *et al.* 1984, 1986 ; Le Métayer-Levrel, 1993).

1. La précipitation passive

Elle est engendrée par une production d'ions carbonate et hydrogénocarbonate (respiration) qui s'accumulent dans le milieu et ne se produit qu'avec une augmentation du pH.

Elle met en jeu diverses voies métaboliques.

L'ammonification des acides aminés a comme produit final essentiellement NH_4^+ dont la libération dans le milieu en provoque la basification. Cette voie ne fonctionne qu'en présence d'oxygène (**aérobiose**) et de matière organique. Les « espèces » bactériennes capables d'utiliser cette voie métabolique sont très nombreuses.

La réduction dissimilatrice des nitrates produit des composés azotés réduits et aboutit au même résultat. Cette voie fonctionne en présence de matière organique et de nitrate, et lorsque la tension d'oxygène est faible mais non nulle (**microaérophilie**). Les bactéries qui l'effectuent sont aérobies, anaérobies facultatives.

La réduction dissimilatrice des sulfates (sulfato-réduction) ne fonctionne qu'en **anaérobiose** et en présence de matière organique et de sulfate. C'est elle qui, par exemple, est à la base de la formation du gisement de huntite ($\text{CaMg}_3(\text{CO}_3)_4$) et de magnésite de la Sebkh el Melah (Tunisie) (Perthuisot *et al.*, 1990). Elle est l'apanage d'un groupe particulier d'archéobactéries, les bactéries sulfato-réductrices qui sont tuées par l'oxygène. Le produit final

est S^{2-} , qui, en absence de Fe, se combine à H_3O^+ pour donner de l' H_2S qui se dégage en provoquant une basification du milieu.

2. La précipitation active

Elle est indépendante des voies métaboliques décrites ci-dessus et met en jeu essentiellement des phénomènes d'échanges membranaires par le biais des pompes à calcium et magnésium. Ces processus, encore mal connus, n'ont été mis en évidence que chez des bactéries hétérotrophes aérobies (Castanier, 1987) mais il n'est pas exclu qu'ils puissent exister chez les anaérobies.

Il est important de souligner que, hormis en ce qui concerne la sulfato-réduction, on trouve ces processus dans la plupart des groupes taxonomiques de bactéries hétérotrophes et que la carbonatogenèse n'est pas limitée à des familles ou des groupes particuliers de bactéries (Castanier, 1987). Elle caractérise plutôt certaines souches que des espèces (au sens microbiologique du terme et non de son acception linnéenne).

Des considérations précédentes il ressort que les bactéries susceptibles d'effectuer la carbonatogenèse sont :

- 1) taxonomiquement diversifiées ;
- 2) présentes dans presque tous les environnements (sédimentaires et diagénétiques).

La carbonatogenèse bactérienne dépend essentiellement de :

- 1) la disponibilité en CO_2 (autotrophie) ;
- 2) la disponibilité en matière organique (hétérotrophie).

La carbonatogenèse bactérienne autotrophe est restreinte à des environnements très particuliers (zones très confinées du domaine paralytique, lacs salés) et peu nombreux dans la nature actuelle, ou à des fractions des peuplements autotrophes (ex. : nanoplancton cyanobactérien).

La carbonatogenèse hétérotrophe est ubiquiste. La diversité des voies métaboliques mises en jeu et la diversité des espèces bactériennes susceptibles de les utiliser impliquent que la carbonatogenèse bactérienne hétérotrophe est un phénomène très général sur notre planète, à la fois dans l'espace et dans le temps puisque la plupart des groupes de bactéries existent au moins depuis 1,7 à 2 milliards d'années, c'est-à-dire depuis le Protérozoïque inférieur (Schopf *et al.*, 1983). En effet, qu'il y ait de l'oxygène ou pas, ou qu'il soit en concentration très faible, aucune de ces situations n'entrave la carbonatogenèse.

La présence d'eau, fondamentale pour l'activité des bactéries, est aussi une condition importante. Elle assure aussi le flux de nutriments et d'éléments vitaux (matière organique, oxygène, calcium, magnésium, etc.). Cependant, la présence d'eau peut n'être qu'épisodique car toutes les bactéries peuvent

subsister plus ou moins longtemps en état de vie ralentie. En outre, pour un petit nombre de genres, il existe des formes de résistance (spores) qui peuvent persister très longtemps en absence d'eau.

En définitive, la plupart des environnements superficiels de la Terre sont susceptibles d'abriter des populations de bactéries carbonatogènes. C'est évident pour l'ensemble des environnements aquatiques mais aussi pour les sols où la production de calcite bactérienne est un phénomène général (Boquet *et al.*, 1973). On évoquera encore les milieux extrêmes, par exemple, les dunes des pays désertiques à la surface desquelles les bactéries carbonatogènes édifient des croûtes protectrices (Castanier *et al.*, 1989a) ou encore les encroûtements carbonatés, zonaires ou massifs, des pays sub-arides.

La précipitation de carbonates calco-alcalins requiert bien entendu la présence dans le milieu d'ions Ca^{++} ou Mg^{++} ou d'autres cations divalents. Ainsi, une étude microbiologique et sédimentologique du Lac Logipi (Kenya) a permis de montrer que ce lac alcalin, comme sans doute bon nombre de lacs du même type géochimique, doit sa richesse en carbonate dissous à la présence de très abondantes populations de bactéries carbonatogènes (jusqu'à 6.10^8 par ml) dans les eaux comme dans les vases sédimentaires. Cependant, les eaux du lac sont dépourvues d'ions Ca^{++} et Mg^{++} qui restent piégés dans les carbonates pédogénétiques diffus du bassin versant. Il en résulte que la sédimentation dans le lac reste essentiellement zéolithique jusqu'à ce que l'évaporation permette la précipitation de croûtes superficielles de carbonates alcalins, dont le trona ($\text{Na}_2\text{CO}_3, \text{NaHCO}_3, 2\text{H}_2\text{O}$). Dans ce cas, le trona est certes une évaporite mais deux de ses ions constitutifs, le carbonate et le bicarbonate, sont d'origine bactérienne : on peut alors le qualifier de bio-évaporite (Castanier *et al.*, 1993).

II. LA PRODUCTION EXPÉRIMENTALE DE PARTICULES CARBONATÉES PAR LES BACTÉRIES HÉTÉROTROPHES

Le présent propos n'est pas de décrire dans le détail toutes les expériences effectuées au laboratoire mais bien plutôt d'en présenter une synthèse.

A. Les phases de la carbonatogenèse bactérienne en hétérotrophie

Le stimulateur le plus important de la carbonatogenèse bactérienne est la matière organique tant pour une précipitation active que pour une précipitation passive. Dans les expériences avec culture monospécifique, une seule voie métabolique de la précipitation passive est stimulée mais elle peut s'ajouter à la précipitation active. En revanche pour les cultures plurispécifiques plusieurs voies peuvent être mises en jeu dans la mesure où elles sont compatibles avec les conditions microenvironnementales.

1. Expériences en batch avec cultures monospécifiques (Fig. 1)

Les expériences de cultures monospécifiques en batch (c'est-à-dire avec un apport unique de nourriture en début de culture) sont menées pendant 24 h. L'apport massif de matière organique déclenche, après une phase de latence (phase I), la multiplication, d'abord exponentielle puis ralentissante, des bactéries (phase II). Cette phase correspond à l'incorporation massive du carbone de la nourriture métabolisée dans la matière vivante. Elle est suivie d'une phase stationnaire (phase III) où les effectifs bactériens restent constants, l'apparition de nouvelles cellules compensant les disparitions.

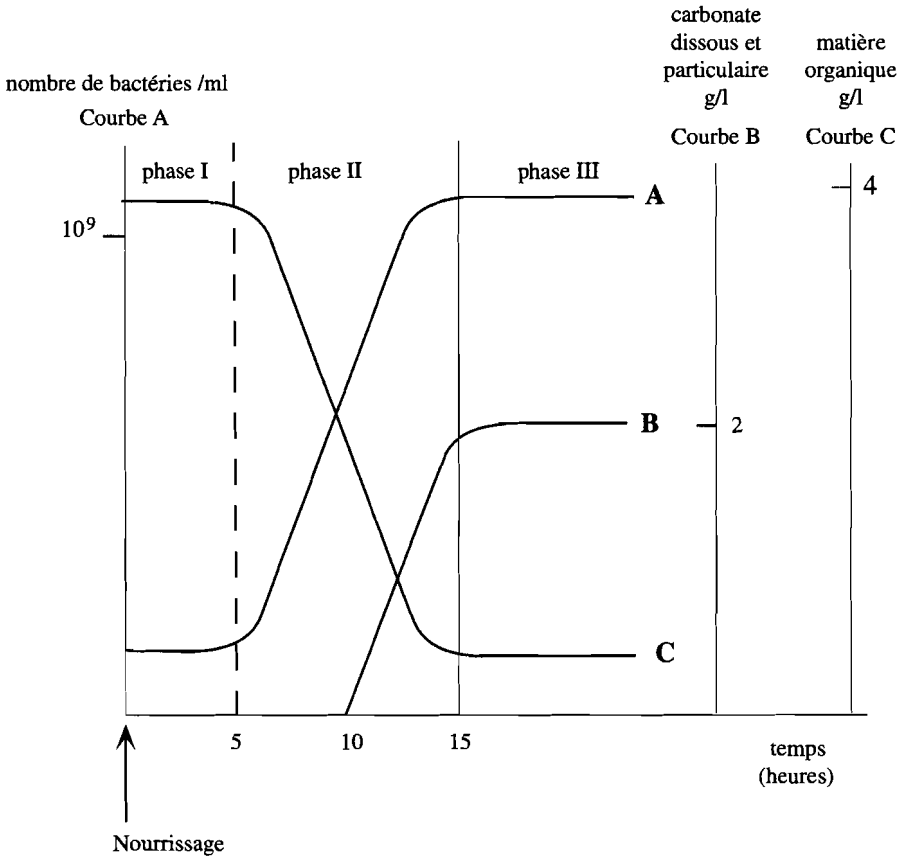


FIGURE 1.

Évolution des effectifs bactériens (A), des teneurs en carbonate (B) et en matière organique nutritive (C) au cours d'une expérience de production de carbonate par une souche pure cultivée en batch.

Evolution of bacterial strength (A), carbonate (B) and nutritional organic matter (C) contents of the medium in an experiment on bacterial carbonatogenesis by a pure strain grown in batch.

La production de carbonates (sous forme dissoute et particulaire) débute au cours de la phase exponentielle de croissance et peut durer éventuellement, pour certaines espèces, jusqu'au début de la phase stationnaire (Le Métayer-Levrel, 1993). Au cours de cette période de carbonatogenèse, le carbone de la nourriture métabolisée sert de moins en moins à la croissance de la biomasse bactérienne et il est de plus en plus minéralisé et rejeté dans le milieu sous forme de carbonate dissous ou particulaire.

La carbonatogenèse apparaît comme la réponse obligatoire de la population bactérienne carbonatogène à un apport en excès de matière organique assimilable. Les expériences montrent que cette réponse est d'autant plus forte que le milieu initial est riche en matière organique et comporte des effectifs bactériens élevés ($> 10^6$ bactéries par ml), ce qui va souvent de pair. Dans les environnements pauvres en effectifs bactériens ($< 10^3$ bactéries par ml), l'apport de matière organique sera totalement et uniquement utilisé pour augmenter ceux-ci.

2. Expériences avec apports successifs en cultures monospécifiques (Fig. 2)

Le principe de l'expérimentation est d'effectuer un apport de matière organique chaque fois que la population bactérienne entre en phase stationnaire. Ces apports périodiques (généralement répartis sur une période de 10 jours) déclenchent les premières fois une petite remontée des effectifs jusqu'à un maximum correspondant à une stabilisation de ceux-ci aux alentours de 10^{10} à 10^{11} bactéries par ml. Ainsi, ces apports successifs contribuent à augmenter la durée globale de la phase de carbonatogenèse et à accroître les effectifs bactériens. La résultante est une intensification de la carbonatogenèse globale.

Ces conditions expérimentales, hormis la monospécificité, se rapprochent des conditions environnementales naturelles. Des apports périodiques de nourriture entraînent obligatoirement une intensification de la carbonatogenèse bactérienne quelles que soient les caractéristiques de l'environnement initial. La réponse carbonatogène des environnements initialement pauvres (en matière organique et en bactéries) ne surviendra qu'après une phase d'enrichissement, dans la mesure où la répétition des apports est suffisante.

3. Cas de cultures de populations plurispécifiques

(en laboratoire et/ou en milieu naturel).

Dans tous les cas étudiés expérimentalement, la carbonatogenèse apparaît là encore comme la réponse des populations bactériennes à un apport de nutriments (Castanier, 1987). On assiste en général dans un premier temps à une croissance très rapide des effectifs bactériens hétérotrophes. Cette phase correspond à l'utilisation des substrats métabolisables principalement pour l'augmentation des effectifs bactériens. Au sein de ceux-ci, ce sont les souches à

Effectifs bactériens
nombre de cellules par ml

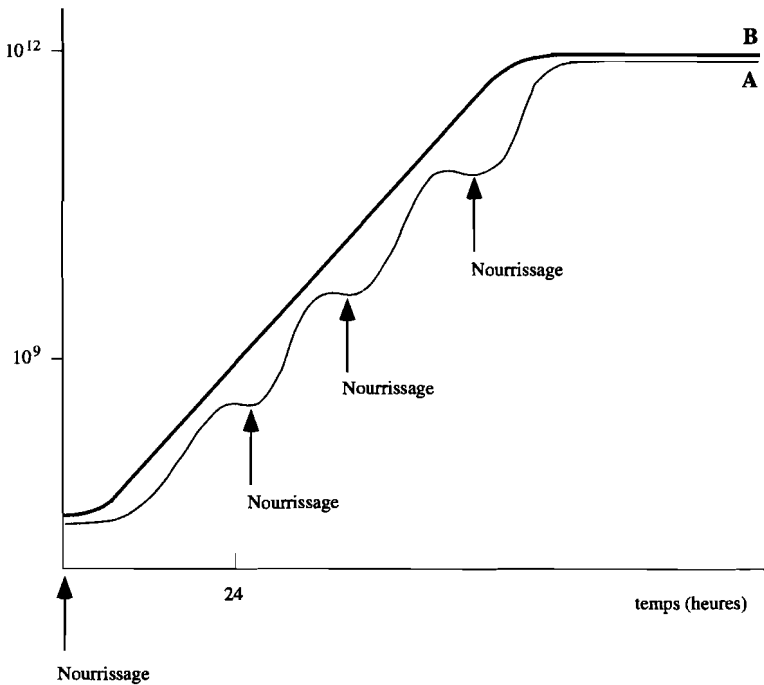


FIGURE 2.

Évolution des effectifs bactériens au cours d'une expérience de production de carbonate par une souche pure avec nourrissages successifs.

A : Courbe expérimentale ; B : Courbe théorique.

Evolution of bacterial strength in an experiment on bacterial carbonatogenesis by a pure strain with sequential feeding.

A : Experimental curve ; B : Theoretical curve.

division rapide qui sont favorisées et qui vont constituer la part dominante de la population dont le comportement devient ainsi identique à celui d'une population monospécifique.

Dans tous les cas, la phase exponentielle se traduit par une production dans le milieu **d'ions carbonates et hydrogénocarbonates** que l'on doit considérer comme les **produits de la minéralisation du carbone organique**.

L'étude des produits solides au MEB aux cours des différentes phases suggère que la carbonatogenèse active intervient la première. La précipitation passive s'enchaîne ensuite en réponse aux modifications subies par le milieu sous l'effet de l'accumulation des produits terminaux du métabolisme. Elle se traduit par le grossissement des particules carbonatées préalablement initiées par la précipitation active.

B. Les productions solides de la carbonatogenèse hétérotrophe

Il est possible d'observer au MEB les produits de la carbonatogenèse en les récupérant, soit au fond des réacteurs soit sur la surface de lames de verre plongées à l'intérieur de ceux-ci (Castanier, 1987).

1. Les premiers produits

Les produits minéraux (généralement calcitiques ou amorphes, beaucoup plus rarement aragonitiques) de la phase initiale de la carbonatogenèse semblent habituellement le fait de la précipitation active : ils sont liés aux corps bactériens eux-mêmes et se présentent d'abord comme des dépôts en forme d'aréoles ou en bandes à la surface de la cellule. La calcification gagne ensuite la totalité de la surface de celle-ci pour former un « cocon » rigide (Pl. I, A à H). À ce stade, la cellule peut encore communiquer avec l'extérieur et/ou avec d'autres cellules du même clone grâce à la présence de pores qui traversent la paroi du cocon (Pl. I, H). Ainsi sont maintenus les échanges gazeux et nutritionnels nécessaires à la vie de la cellule.

Plus ou moins simultanément apparaissent souvent des particules manifestement éjectées des corps bactériens que nous appelons « excréats ». Ces excréats, d'une taille habituelle de 0,1 μm à 1 μm semblent provenir soit de la membrane cellulaire soit de l'intérieur même de la cellule (Pl. I, C à F). Il semble que pour certaines espèces de bactéries, ces phénomènes ne soient pas limités aux corps bactériens individuels et que certains « cocons » de grande taille puisse contenir des essaims bactériens organisés (métaprocaryotes) (Castanier *et al.*, 1994).

Ces productions localisées sur la cellule traduisent l'activité intense de groupes d'ionophores (transporteurs membranaires spécifiques pour les ions).

Dans certaines expériences, notamment celles destinées à produire de la dolomite en milieu enrichi en magnésium (Castanier *et al.*, 1990 a), les premiers produits de la carbonatogenèse bactérienne, calco-magnésiens, se sont révélés amorphes en diffractométrie X (Castanier *et al.*, 1988 ; Perthuisot *et al.*, 1990). Il est vraisemblable, mais non démontré, que même les carbonates calciques de la carbonatogenèse précoce, formés en absence de magnésium, soient eux aussi amorphes : ils ont exactement le même aspect nanoscopique. Cependant il arrive que certains corps bactériens (appartenant à des espèces particulières ?) puissent évoluer rapidement en cristaux de carbonate, prenant alors une allure géométrique (bio-cristal) (Pl. I, E, I).

2. Les structures et assemblages bio-cristallins

La deuxième phase de la carbonatogenèse, passive pour l'essentiel, se traduit par la constitution d'agrégats, que l'on peut qualifier de « bio-minéraux », constitués de corps bactériens calcifiés éventuellement associés à des

excrétats et à des particules minérales informes enveloppées dans un film organique. À ce stade d'évolution des agrégats, on peut souvent y reconnaître déjà une architecture ordonnée de type cristallin ou plutôt « précristallin ». À partir de ces agrégats d'une taille de quelques microns, s'édifient des assemblages « bio-cristallins » dans lesquels l'arrangement des corps bactériens joue d'abord un rôle architectural prépondérant. Par la suite ceux-ci sont intégrés de plus en plus passivement aux édifices cristallins qui acquièrent progressivement leurs formes caractéristiques abiotiques (Pl. II, A à C).

On notera que, dans ces assemblages, les bactéries s'organisent spontanément en réseaux « bio-cristallins » avec des angles plus ou moins constants, en général compris entre 60° et 90°, c'est-à-dire entre le rhombe et le rectangle, ou encore entre les angles de la maille de calcite et ceux de la maille d'aragonite (Pl. I, D). Ainsi, il semble que les populations bactériennes s'adaptent mal aux contraintes cristallographiques des carbonates et qu'elles tendent à maintenir leur propre architecture aussi longtemps qu'elles le peuvent.

On observe aussi des assemblages arbusculaires ou radiaires (Pl. II, E, F), ces derniers pouvant donner naissance à des ooïdes (Castanier *et al.*, 1989b). On notera enfin la fréquence des faces pentagonales des cristaux de calcite et, même si cela n'a aucun rapport *a priori*, il nous plaît de rapprocher ce fait de la structure des tests d'échinodermes et de la forme des entroques.

C. Les données quantitatives sur la carbonatogenèse bactérienne hétérotrophe

La production de carbonates solides dépend essentiellement de la souche ou de la population bactérienne considérées, des conditions environnementales (température, salinité, etc.), de la qualité et de la quantité des nutriments disponibles, et du temps.

À ce jour, parmi les expérimentations effectuées au Service de Microbiogéologie du Laboratoire de Biogéologie de l'Université de Nantes, le record de productivité a été obtenu avec une souche de *Bacillus* sp. sur un milieu de Castanier (1984). On a obtenu **2,4 grammes de carbonate solide (calcite) par litre et par jour** pour un apport de matière organique au réacteur de **4 grammes de matière organique par litre et par jour**, soit un rendement un peu supérieur à 0,5 (poids de carbonate de calcium produit / poids de matière organique fournie). Cette production correspond à environ 880 kg de carbonate par m³ et par an soit, en prenant une densité de 2,7 pour la calcite, une couche de calcaire compact d'environ 32 cm d'épaisseur sur 1 m². Ce chiffre représente la totalité du carbonate de calcium dissous dans une colonne d'eau de mer (normale, actuelle) de 1 m² de section et de 3700 m de hauteur. La précipitation de 32 cm de calcaire sous l'effet de l'évaporation impliquerait

que la fraction d'eau évaporée en un an soit d'environ 70 % du volume initial, soit près de 2600 m.

La production primaire des zones côtières marines, par exemple en Méditerranée, est estimée entre 10 et 400 g de carbone organique par m² et par an pour le phytoplancton et entre 15 et 800 g de carbone organique par m² et par an pour les macrophytes (Frisoni, 1984). Ces chiffres situent la production de matière organique totale schématiquement entre environ 20 et 2 500 grammes par m² et par an. Plus généralement, on peut considérer que la production totale de matière organique depuis les environnements océaniques, vers les environnements côtiers, récifaux puis paraliques varie entre 20 et 10 000 grammes par m² et par an (Basson *et al.*, 1977 ; Allen *et al.*, 1979). Dans de telles conditions, en admettant que toute la matière organique soit métabolisable par les bactéries et en adoptant un rendement de la carbonatogenèse bactérienne de l'ordre de 0,5 (poids de carbonate de calcium produit / poids de matière organique fournie), on peut estimer la sédimentation de carbonate potentielle correspondante entre 10 et 5 000 g par m² et par an, soit une épaisseur de calcaire compact comprise entre environ 0,4 µm et 2 mm.

On doit évidemment s'interroger sur la proportion de la matière organique accumulée dans un environnement donné (sédiment, sol) qui est métabolisable (biodégradable) par les consortiums bactériens de cet environnement et donc susceptible d'être minéralisée en carbonates. En fait, à terme, si les conditions physiques le permettent et si les espèces bactériennes adéquates sont présentes, la totalité de la matière organique peut-être métabolisée et, si certaines souches sont carbonatogènes, minéralisée en carbonates. En effet, toutes les molécules de la matière vivante sont biodégradables et, par ailleurs, les populations bactériennes qui se développent en se nourrissant d'un substrat donné, même à dégradation lente, servent aussi de nourriture aux autres populations.

Ainsi, dans les conditions naturelles, la carbonatogenèse bactérienne hétérotrophe est susceptible de déposer, en 1 million d'années, de 0,4 m (dans les environnements océaniques généralement très pauvres) à 2 000 m de calcaire pur (dans les systèmes paraliques les plus productifs).

Les chiffres précédents ne sont évidemment qu'indicatifs car le rendement de la carbonatogenèse hétérotrophe dépend des conditions du milieu et des souches impliquées. Mais, joints à l'ubiquité des bactéries carbonatogènes, ils impliquent que la **carbonatogenèse bactérienne** est, dans la constitution des formations calcaires dites « azoïques » (c'est-à-dire dépourvues de restes d'organismes visibles), **un processus beaucoup plus probable que la précipitation chimique ou que la précipitation biogénique autotrophe** nécessairement limitées par la teneur du milieu en ions carbonate et bicarbonate. La première requiert, en effet, les conditions très particulières des environnements évaporitiques ou pré-évaporitiques. Dans ces derniers, la production

de matière organique est en général très élevée (Busson et Perthuisot, 1986 ; Perthuisot, 1980, 1989). Ainsi, même dans ce type d'environnement, la part de la précipitation purement chimique des carbonates calco-alcalins ne peut être qu'infime vis-à-vis de la part de la carbonatogenèse bactérienne hétérotrophe. La seconde, limitée par les mêmes facteurs, est surtout productrice de matière organique, susceptible d'être ensuite minéralisée en carbonates. Par exemple, dans les édifices stromatolithiques (*s.l.*), les cyanobactéries cumulent plusieurs fonctions : structuration de l'édifice, nourrissage des populations bactériennes carbonatogènes associées et, accessoirement, production autotrophe de carbonate.

III. L'ORIGINE DU CARBONE DES CARBONATES

De l'ensemble des considérations évoquées ci-dessus il est possible de classer par importance les capacités des différents processus qui concourent à la carbonatogenèse (calco-alcaline) dans la nature actuelle.

La capacité carbonatogénétique de l'**évaporation** (et des autres processus abiotiques) est limitée par la teneur du milieu en ions carbonate et bicarbonate (faible en domaine marin ou paralique) donc en général **faible**.

La capacité carbonatogénétique de l'**autotrophie** (bactérienne et végétale) est limitée par la disponibilité du CO₂ et la teneur du milieu en ions carbonate et bicarbonate.

Il existe cependant, dans la nature actuelle, des environnements riches en ions carbonate et bicarbonate, où les processus ci-dessus sont susceptibles de provoquer une forte précipitation carbonatée. On évoquera par exemple les lacs alcalins des régions équatoriales et tropicales. Rappelons que dans bien des cas, les carbonates dissous sont d'origine bactérienne (*cf. supra*).

La capacité carbonatogénétique de l'**hétérotrophie** bactérienne n'est limitée que par le rendement des souches et la quantité de matière organique disponible ; elle est donc **variable mais potentiellement très forte**.

Un grand nombre de calcaires sont des calcaires coquilliers (au sens large) biodétritiques ou construits. L'origine nano-biodétritique de beaucoup de matrices micritiques ne fait guère de doute et, selon les anciennes conceptions du monde vivant, on ne pourrait attribuer à ces formations une origine bactérienne.

Pourtant, on observera que des bactéries sont susceptibles d'intervenir directement dans la fabrication de certaines parties des coquilles : c'est le cas par exemple pour les pellicules de nacre que les huîtres développent à la surface interne de leur coquille pour en obturer les perforations (Castanier *et al.* 1990 b). Lorsque l'on considère les coquilles ou les tests (externes ou interne) des

animaux et végétaux, il est clair que leur formation est due à l'activité des organites du métabolisme cellulaire de certains groupes de cellules spécialisées, c'est-à-dire des **mitochondries**. Même si la controverse n'est pas close, ces organites cellulaires sont aujourd'hui considérées par bon nombre de cytologistes comme des **bactéries endosymbiotes** obligatoires (Gray, 1983 ; Margulis, 1971 ; Uzzell et Spolsky, 1974, Prescott *et al.*, 1990). De même la photosynthèse des eucaryotes est assurée par des **chloroplastes**, qui sont eux aussi considérés comme des **bactéries endosymbiotes** obligatoires (Margulis, 1968)). Il en irait de même pour les autres organites des cellules eucaryotes (Margulis, 1981 ; Margulis et Sagan, 1989 ; Margulis *et al.*, 1978, 1979).

Si cette théorie est valide – et les arguments cytologiques et biochimiques développés à son appui sont très forts – on doit considérer que la quasi-totalité des carbonates est d'origine bactérienne. En fonction des arguments quantitatifs développés plus haut, elle résulte **pour l'essentiel**, indirectement de la **production de matière organique par autotrophie**, et directement de l'**activité des bactéries carbonatogènes hétérotrophes**. L'évaporation apparaît comme jouant un rôle mineur dans la carbonatogenèse.

Le **carbone des carbonates** sédimentaires et diagénétiques provient donc pour l'essentiel du **carbone de la matière organique** initialement issue de l'autotrophie. Leur oxygène est issu pour une partie (sans doute variable) des **radicaux carboxyle** de la matière organique initiale.

CONCLUSIONS

Des considérations présentées ci-dessus il ressort que, si l'on admet que les plastes et mitochondries des cellules eucaryotes sont des bactéries endosymbiotes, une bonne partie des formations calcaires doit être considérée comme d'origine bactérienne et ceci n'est pas sans incidence sur leur interprétation. Nous en prendrons quelques exemples.

Dans cette contribution à un ouvrage à la mémoire de Jean-Charles Fontes, où l'amitié et le souvenir ont leur sa place, il n'est guère concevable de passer sous silence son domaine de recherches : les isotopes. Les conceptions énoncées ci-dessus, si elles sont valides, ne sont sans doute pas sans incidence sur l'interprétation des mesures isotopiques effectuées sur les carbonates du domaine « supergène ». Nous n'évoquerons que la mesure des âges au ^{14}C . Nonobstant les problèmes éventuels de fractionnement isotopique, de la photosynthèse à la minéralisation, l'âge ^{14}C d'un carbonate sédimentaire d'origine bactérienne est au mieux l'âge « moyen » de la matière organique originelle et non pas nécessairement l'âge du minéral carbonaté. Il y aurait sans doute beaucoup à apprendre de la conjonction d'études microbiogéologiques de production de carbonates et d'analyses isotopiques.

Les vitesses de dépôt des calcaires bactériens sont potentiellement si élevées, qu'il convient de s'interroger sur la signification, en terme de durée, des bancs et des joints de stratification des formations sédimentaires calcaires « azoïques ». Il est possible que dans bien des cas les bancs se déposent très rapidement et que l'essentiel du temps correspondant au dépôt de la formation toute entière soit représenté par les joints de stratification. Par ailleurs, à partir des observations en laboratoire, on imagine assez bien la consistance que doit avoir un sédiment micritique bactérien en cours de formation : il s'agit d'une vase mucilageuse à la fois consistante et fluente. Une telle consistance favorise évidemment les écoulements en masse même sur de très faibles pentes. À cet égard, nous évoquons, parmi beaucoup d'autres, l'exemple du Tithonique (calcaire « azoïque » typique) de la région de Digne, remarquable par ses bancs slumpés. Beaucoup d'inconnues demeurent quant à la genèse des carbonates riches en magnésium. Dans la nature actuelle en tous cas, l'origine bactérienne de certains d'entre eux ne fait guère de doute.

La genèse des formations dolomitiques et magnésitiques fossiles, largement dominantes surtout dans les temps les plus anciens, doit sans doute être envisagée en termes environnementaux : évolution de la pression partielle du CO_2 atmosphérique, et donc de l'importance des environnements anaérobies ; évolution de la chimie des systèmes marins et paraliques ; adaptation des populations bactériennes à ces conditions (importance, par exemple, de la sulfato-réduction). Un énorme travail reste à faire, tant dans l'expérimentation que dans l'observation des objets fossiles à toutes les échelles.

Il semble que certaines séquences d'élaboration de structures bio-minérales calcaires soient caractéristiques des voies métaboliques empruntées par les bactéries carbonatogènes (Castanier, 1987). Il y a là une voie qui pourrait déboucher sur une diagnose paléo-environnementale des formations « azoïques », dans la mesure où les structures syngénétiques nanoscopiques peuvent y être préservées.

La carbonatogenèse bactérienne est une des voies de la minéralisation de la matière organique et fait ainsi office de phénomène épurateur dans les environnements où celle-ci s'accumule. C'est ainsi un agent efficace de limitation des « pollutions » organiques anthropiques ou non. Elle apparaît aussi comme une phase fondamentale de l'évolution biogéologique de notre planète : celle de l'incorporation à la lithosphère du carbone atmosphérique, après sa capture par les maillons autotrophes de la biosphère. Ainsi, l'augmentation de la sédimentation carbonatée au cours des temps géologiques pourrait traduire l'augmentation de la masse de la biosphère. La carbonatogenèse bactérienne hétérotrophe est antagoniste de l'autotrophie de la biosphère dans la mesure où, tout en incorporant du carbone à la lithosphère elle tend à libérer du CO_2

dans l'atmosphère. En effet, soit l'équation chimique simplifiée de l'équilibre des carbonates :



En appliquant cette équation à la carbonatogenèse bactérienne, on voit que des deux atomes de carbone du bicarbonate, issus de la matière organique consommée par les bactéries, l'un rejoint la lithosphère, l'autre l'atmosphère. Ainsi, d'une certaine manière, les bactéries carbonatogènes tentent de recréer un environnement riche en CO_2 , c'est-à-dire les conditions environnementales de leur apparition sur la planète.

RÉFÉRENCES

- ALLEN (G. P.), LAURIER (D.), THOUVENIN (J.), 1979. « Étude sédimentologique du delta de la Mahakam ». *Notes et Mémoires CFP*, 15 : 156 p.
- BASSON (P. W.), BURCHARD (J. E.), HARDY (J. T.), PRICE (A. R. G.), 1977. *Marine life and environments of Saudi Arabia*. Dharan, Aramco, 284 p.
- BERKELEY (C.), 1919. A study of marine bacteria. Straits of Georgia B.C. *Proc. Trans. R. Soc. Can, Ottawa section*, 5 (13) : 15-43.
- BOQUET (E.), BORONAT (A.), RAMOS-COMENZANA (A.), 1973. « Production of calcite (calcium carbonate) crystals by soil bacteria is a general phenomenon ». *Nature*, 246 : 527-529.
- BUSSON (G.), PERTHUISOT (J.-P.), 1986. « La synthèse des données ». *In Les séries à évaporites en exploration pétrolière, I - Méthodes géologiques*, Paris, Technip, 8 : 165-217.
- CASTANIER (S.), 1984. *Étude de l'évolution quantitative et qualitative des populations bactériennes précipitant le carbonate dans différents cas artificiels de confinement réalisés à partir d'eau et de sédiments lagunaires méditerranéens*. Thèse 3^e cycle, univ. Aix-Marseille II, 131 p.
- CASTANIER (S.), 1987. *Microbiogéologie : Processus et modalités de la carbonatogenèse bactérienne*. Thèse Doct. État, univ. Nantes, 541 p.
- CASTANIER (S.), MAURIN (A.), BIANCHI (A.), 1984. « Participation bactérienne à la précipitation du carbonate ». *C.R. Acad. Sc.*, 299 : 1333-1336
- CASTANIER (S.), MAURIN (A.), BIANCHI (A.), 1986. « Évolution des populations bactériennes précipitant le carbonate, avec ou sans alcalinisation du milieu, dans différents cas artificiels de confinement expérimental, d'eau et de sédiment lagunaires méditerranéens ». *In Actes du Deuxième colloque international de Bactériologie Marine*, IFREMER, 3 : 147-157.
- CASTANIER (S.), MAURIN (A.), PERTHUISOT (J.-P.), 1988. « Les Cugnites : carbonates amorphes de Ca et Mg, précurseurs possibles de la dolomite ». *C. R. Acad. Sci.*, 306 (II) : 1231-35.

- CASTANIER (S.), BERNET-ROLLANDE (M.-C.), MAURIN (A.), 1989a. « Microbial fixation of dunes, powers and weaknesses ». *In Past and Future evolution of deserts* actes du colloque IGPM, Cassis : 37.
- CASTANIER (S.), MAURIN (A.), PERTHUISOT (J.-P.), 1989b. « Production microbienne expérimentale de corpuscules carbonatés sphéroïdaux à structure fibro-radiaire. Réflexions sur la définition des ooïdes ». *Bull. Soc. Géol. Fr.*, (8), V : 589-95.
- CASTANIER (S.), MAURIN (A.), PERTHUISOT (J.-P.), 1990a. « A trial to get microbial dolomite in freshwater ». *Geobios*, 23 (1) : 121-128.
- CASTANIER (S.), LE VOT (B.), PERTHUISOT (J.-P.), 1990b. *Les relations lithosphère-biosphère. Évolution biogéologique de la Terre*. Rennes, CRDP, 37 p.
- CASTANIER (S.), BERNET-ROLLANDE (M.-C.), MAURIN (A.), PERTHUISOT (J.-P.), 1993. « Effects of microbial activity on the hydrochemistry and sedimentology of Lake Logipi, Kenya ». *Hydrobiologia*, 267 : 99-112.
- CASTANIER (S.), PERTHUISOT (J.-P.), MAURIN (A.) GÈZE (V.) CAMOIN (G.), 1994. « Colonies bactériennes organisées actuelles. Quelques réflexions sur l'évolution des procaryotes ». *Geobios*, 27 (6) : 645-657.
- CASTENHOLZ (R.W.) et WATERBURY (J.B.), 1989. « Oxygenic Photosynthetic Bacteria » in STALEY (J.T.), BRYANT (M.P.), PFENNIG (N.), HOLT (J.G.), éd. : *BERGEY's manual of systematic bacteriology*, Baltimore, Hong Kong, London, Sydney, Williams & Wilkins, III : 1710-1746.
- DREW (G. H.), 1910a. « The action of some denitrifying bacteria in tropical and temperate seas, and the bacterial precipitation of calcium carbonate in the sea ». *Journ. Mar. Biol. Assoc.*, IX : 142-155.
- DREW (G. H.), 1910b. « On the precipitation of calcium carbonate in the sea by marine bacteria, and on the action of denitrifying bacteria in tropical and temperate seas ». *Journ. Mar. Biol. Assoc.*, IX : 479-523.
- DREW (G.H.), 1914. « On the precipitation of calcium carbonate in the sea by marine bacteria, and on the action of denitrifying bacteria in tropical and temperate seas ». *Publs. Carnegie Inst. Wash.* 182 : Papers from Dept. Mar. Biol., 5 : 1-45.
- FRISONI (G.-F.), 1984. *Contribution à l'étude du phytoplancton dans le domaine paralique*. Thèse Ingénieur-docteur, univ. Montpellier, 171 p.
- GRAY (M.W.), 1983. « The bacterial ancestry of plastids and mitochondria ». *BioScience*, 33 (11) : 693-699.
- KELLERMAN (K. F.), 1915. « Relation of bacteria to deposition of calcium carbonate ». *Geol. Soc. Amer. Bull.*, 26 : p. 58.
- LE MÉTAYER-LEVREL (G.), 1993. *Biominéralisation de surfaces : application à la protection des pierres de taille*. Dipl. Rech. Univ., univ. Nantes, 154 p.

- LIPMANN (C. B.), 1924. « Further studies on marine bacteria with special reference to the Drew hypothesis on CaCO_3 precipitation in the sea ». *Carnegie Inst. Washington Publ.*, 391, 26 : 231-248.
- MARGULIS (L.), 1968. « Evolutionary criteria in Thallophytes : a radical alternative ». *Science*, 161, 1020-1022.
- MARGULIS (L.), 1971. « Symbiosis and evolution ». *Scientific American*, 225 (2) : 49-57.
- MARGULIS (L.), 1981. *Symbiosis in cell evolution*. San Francisco, W.H. Freeman and C^o, 456 p.
- MARGULIS (L.), SAGAN (D.), 1989. *L'univers bactériel*. Paris, Albin Michel, 333 p.
- MARGULIS (L.), TO (L.P.), CHASE (D.), 1978. « Microtubules in prokaryotes ». *Science*, 200 : 118-1124.
- MARGULIS (L.), CHASE (D.), TO (L.P.), 1979. « Possible evolutionary significance of spirochaetes ». *Proc. Roy. Soc. London*, B, 204 : 189-198.
- MARTY (D.), 1983. *Cellulolyse et méthanogenèse dans les sédiments marins*. Thèse Doct. État, univ. Aix-Marseille I, 156 p.
- MARTY (D. G.), GARCIN (J. E.), 1987. « Présence de bactéries méthanogènes méthylotrophes dans les sédiments profonds du Déroit de Makassar (Indonésie) ». *Oceanologica Acta*, 10 : 249-253.
- MOLLISH (H.), 1924. « Uber kalkbacterien und ausere kalkfallende pilze ». *Zentralblatt Bakteriol.*, II, 65 : 130-139
- NADSON (G. A.), 1928. « Beitrag zur Kenntnis der bakterigenen Kalkablagungen ». *Arch. Hydrologie*, 19 : 154-164.
- PERTHUISOT (J.-P.) 1980. « Sites et processus de la formation d'évaporites dans la nature actuelle ». *Bull. Centre Rech. Elf-Aquitaine*, Pau, 4, 1 : 207-233.
- PERTHUISOT (J.-P.), 1989. « Recent evaporites » in SONNENFELD P. and PERTHUISOT J.-P. : *Brines and evaporites*. Washington, 28th Int. Geol. Congress, Short Course in Geology (3) : 65-126.
- PERTHUISOT (J.-P.), CASTANIER (S.) MAURIN (A.), 1990. « La huntite ($\text{CaMg}_3(\text{CO}_3)_4$) de la Sebkha el Melah (Zarzis, Tunisie). Un exemple de microbiodiagenèse carbonatogène ». *Bull. Soc. Géol. Fr.*, Paris, (8), VI, 4 : 657-666.
- PFENNIG (N.), TRÜPER (H.G.), 1989. « Anoxygenic Phototrophic Bacteria ». In STALEY (J.T.), BRYANT (M.P.), PFENNIG (N.), HOLT (J.G.), éd. : *BERGEY'S manual of systematic bacteriology*. Baltimore, Hong Kong, London, Sydney, Williams & Wilkins, III : 1635-1709.
- PRESCOTT (L.M.), HARLEY (J.P.), KLEIN (D.A.), 1990. *Microbiology*. Dubuque, Wm. C. Brown Publishers, 883 p.
- REIJERS (T.J.A.), HSÜ (K.J.), 1986. *Manual of carbonate sedimentology. A lexicographical approach*. London, Academic Press, 302 p.

SCHOPF (J.W.), HAYES (J.M.), WALTER (M.R.), 1983. « Evolution of Earth's earliest ecosystems : recent progress and unsolved problems ». In SCHOPF (W.J.), éd. : *Earth's earliest biosphere. Its origin and evolution*. Princeton University Press, 15 : 361-384.

UZZELL (T.), SPOLSKY (C.), 1974. « Mitochondria and plastids as endosymbionts : a revival of special creation ? » *American Scientist*, 62 : 334-343.

Planche I. Micrographies MEB : Premiers produits solides de la carbonatogenèse (colonies bactériennes développées sur lames de verre ou sur filtre (C et D)). A : Aréoles carbonatées à la surface de corps bactériens de diverses espèces ; B : Bandes carbonatées à la surface de bâtonnets ; C : Bâtonnets partiellement carbonatés (bosses plus opaques) et accumulation d'excrétats ; D : Bâtonnets et coques partiellement carbonatés et accumulation d'excrétats ; E : Excrétats, coques et bâtonnets plus ou moins calcifiés ; F : Bâtonnets encoconnés entourés d'excrétats, coques partiellement calcifiées en cours de division ; G : Bactéries encoconnées. La préparation a fracturé un cocon dont l'ouverture béante souligne la rigidité ; H : Une éraflure dans le recouvrement de bactéries encoconnées permet d'observer les pores à leurs extrémités et des accumulations intracytoplasmiques ; I : agrégats biominéraux et bactéries calcifiées à forme cristalline. ►

Plate I. SEM micrographies : First solid products of carbonatogenesis (bacterial colonies developed on glass slides or filters (C & D)). A : Carbonate areolas at the surface bacterial bodies belonging to different species ; B : Carbonate stripes at the surface of rods ; C : Partially calcified rods (opaque bumps) and excretates accumulation ; D : Partially calcified rods and cocci and excretates accumulation ; E : Excretates, more or less calcified cocci and rods ; F : Cocooned rods surrounded by excretates and partially calcified cocci in division ; G : Cocooned bacteria. One of the coccons was fractured during sample preparation. Its wide opening suggests the rigidity of the cocoon ; H : The bacterial cover of the slide was scratched and the turned over bacteria display their terminal pores, a broken coccon let appear intracellular accumulations ; I : Biomineral aggregates and calcified bacteria with crystalline outlines.

Planche I.

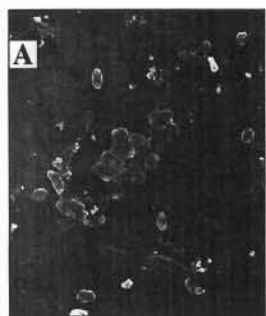
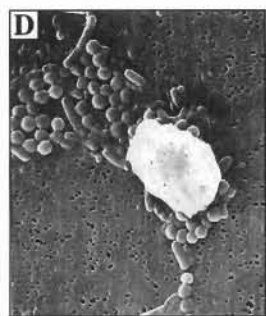
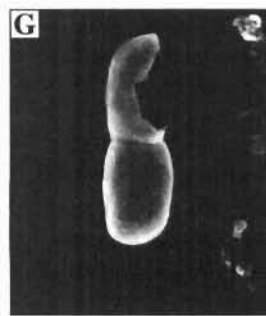
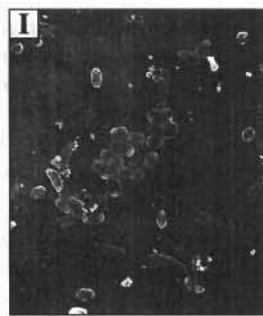
5 μm 5 μm 1 μm 1 μm 5 μm 2 μm 2 μm 4 μm 5 μm

Planche II.

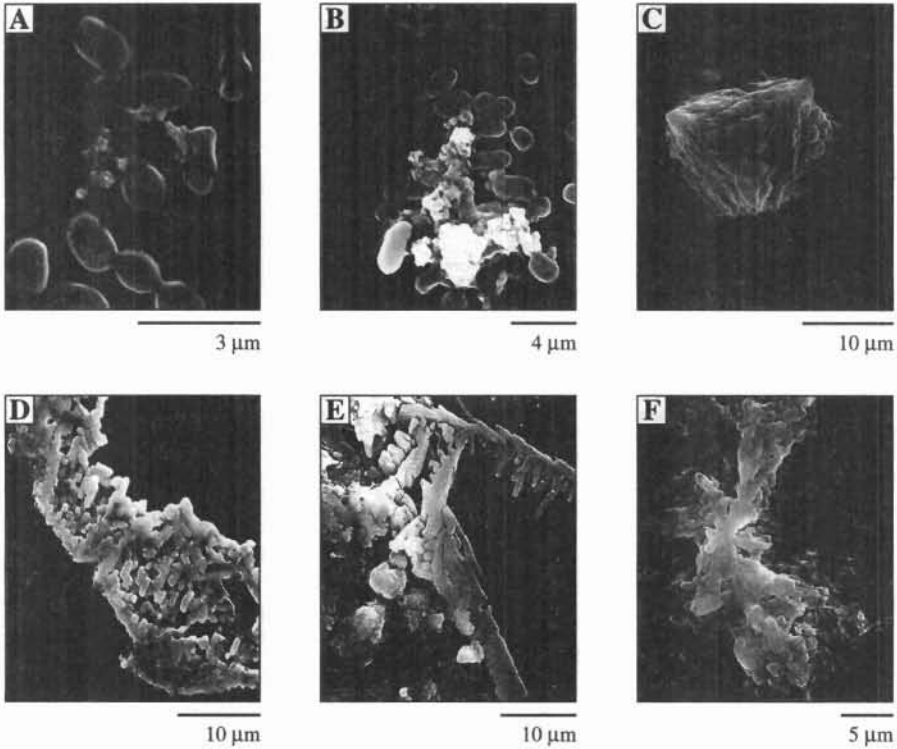


Planche II. Assemblages bactériens carbonatés (développés sur lames de verre). A et B : Assemblages biominéraux peu développés (immatures). Noter l'arrangement des divers objets en systèmes grossièrement triangulaires ; C : Particule biocristalline compacte de section triangulaire ayant poussé à partir des colonies bactériennes développées sur la lame ; D : Arrangement quasi-cristallin de bâtonnets calcifiés ; E : Développement arbusculaire de colonies bactériennes calcifiées ; F : Structure radiaire d'un assemblage biominéral bien développé.

Plate II. Bacterial carbonate assemblages developed on glass slides. A & B : Immature biomineral assemblages. Note the arrangement of objects into triangular systems ; C : Compact biocrystalline particle of triangular shape grown up from the bacterial colonies developed on the slide ; D : Quasi-crystalline arrangement of calcified rods ; E : Arborescent development of calcified bacteria ; F : Radial structure of a well developed biomineral assemblage.

Were the tropics significantly cooler
during the last glacial maximum?

*Des tropiques plus frais qu'aujourd'hui
au dernier maximum glaciaire ?*

M. STUTE

ABSTRACT – A paleotemperature record derived from noble gases dissolved in groundwater indicates that lowland equatorial Brazil has been about 5 °C cooler during the glacial maximum than today. This new evidence contradicts the long-held belief that the tropical regions maintained their warm climate during the last glacial maximum. It appears now that the tropical Americas are characterized by a temperature sensitivity comparable to that in higher latitudes.

Keywords: paleoclimatology, groundwater, hydrology, ice age, noble gases, radiocarbon, paleohydrology.

*

RÉSUMÉ – Un enregistrement des paléotempératures dérivé des gaz nobles dissous dans les eaux souterraines indique que les régions de basse altitude du Brésil équatorial étaient environ 5 °C plus fraîches qu'aujourd'hui pendant le dernier maximum glaciaire. Ainsi, l'Amérique tropicale paraît avoir une sensibilité vis-à-vis des changements de température comparable à celle des hautes latitudes.

Mots clés : paléoclimatologie, eaux souterraines, hydrologie, âge glaciaire, gaz rares, radiocarbène, paléohydrologie.

*

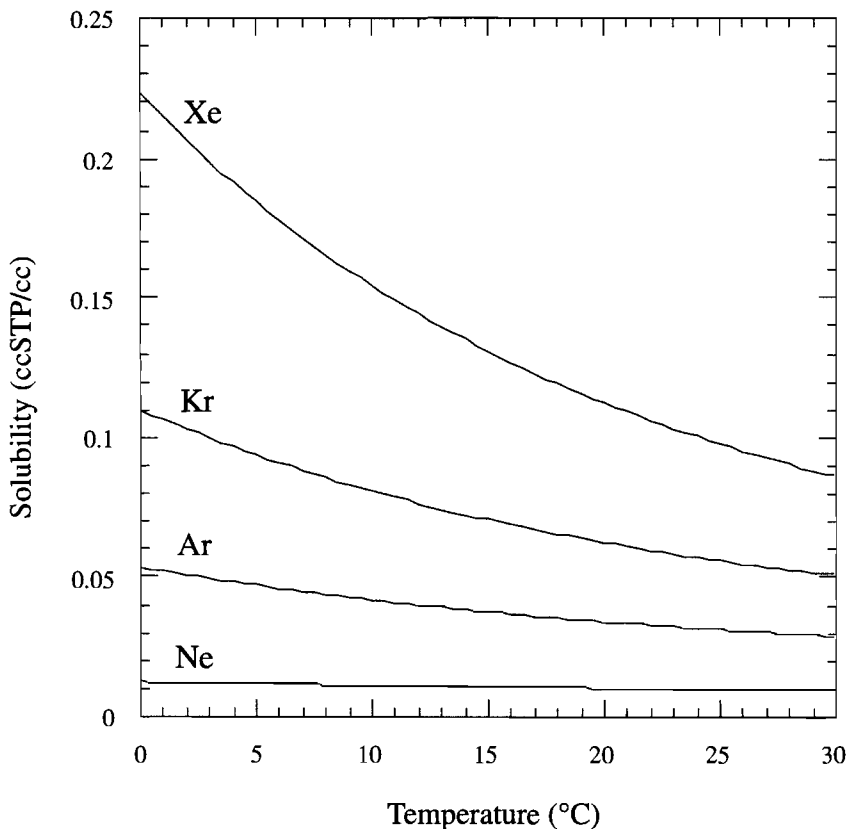


FIGURE 1.

Temperature dependence of the noble gas solubilities in fresh water expressed as Bunsen-coefficients (volume of dissolved gas under standard pressure and temperature per volume of water when equilibrated with the gas at standard pressure).

Relations entre température et solubilité des gaz nobles en eau douce, exprimées par les coefficients de Bunsen (volume des gaz dissous par volume d'eau, sous conditions standard de pression et de température lorsque l'équilibre avec le gaz à pression standard est atteint).

INTRODUCTION

The current notion that glacial temperatures in the tropics were about the same as today rests primarily on paleoceanographic evidence. In the 1970's, a global map of glacial sea surface temperatures was reconstructed, based on faunal abundances in ocean sediment cores (CLIMAP, 1981). The CLIMAP paleotemperature records indicate that tropical sea surface temperatures during the LGM (last glacial maximum) were, at most, 2 °C lower than today. In the mid 1980's, this finding was confirmed by oxygen isotope records obtained from foraminiferas in ocean sediments (Broecker, 1986).

On the other hand, evidence from the tropical Americas shows that the altitude of snow lines and characteristic vegetation zones was about 1 000 m lower during the LGM as compared to today (e.g. Rind and Peteet, 1985; Clapperton, 1993). Recent work on ice cores from tropical Peru reaching back into the last glacial maximum found a strong oxygen isotope ratio signal in glacial ice (Thompson *et al.*, 1995). These data indicate a significant cooling of the tropics at high altitudes (between 2 500 m and 6 000 m), most likely of the order of 5 °C, or even more. Low elevation records of vegetation changes also point to lower glacial temperatures. However, their quantitative interpretation appears to be more difficult than at higher elevation. An increased vertical temperature gradient (lapse rate) during the LGM could possibly reconcile the different degree of cooling of tropical ocean surfaces and high elevation continents. However, it is not clear how the tropical lapse rate could have been changed that much during the last glacial maximum (Rind and Peteet, 1985).

The application of new techniques to reconstruct sea surface temperatures has yielded conflicting results. Sr/Ca and oxygen isotope ratios obtained from corals at Barbados, indicate a temperature change consistent with the continental records (5 °C, Guilderson *et al.*, 1994). However, another technique, using the ratio of large organic molecules (Alkenones) in sediments of the equatorial Atlantic as a paleothermometer, seems to confirm the glacial sea surface temperature reconstructions based on faunal abundances and oxygen isotopes (e.g. Sikes and Keigwin, 1994).

A new continental paleotemperature record has been derived recently from atmospheric noble gases dissolved in glacial groundwaters (Stute *et al.*, 1995b). The study site is located in northeastern Brazil at low elevation (400 m) close to the coast (500 km distance), and therefore fills the gap between high altitude continental and oceanic records.

NOBLE GAS THERMOMETER

The principle of the "noble gas thermometer", first proposed in the early seventies (Mazor, 1972) is based on the temperature dependency of the

solubility of noble gases (neon, argon, krypton, and xenon) in water (Fig. 1, from Stute and Schlosser, 1993). While water percolates through the unsaturated soil zone, gases are continuously exchanged with air. The last equilibration takes place at the water table where the water enters the saturated zone, typically a few meters to several tens of meters below the surface. As a result, noble gas concentrations in groundwater reflect the temperature at the water table. In most cases, the measured noble gas concentrations exceed the ones expected due to solubility equilibrium at the water table. This additional component, termed "excess air" (Heaton and Vogel, 1981), is most likely caused by fluctuations of the water table trapping small air bubbles that are then partially or totally dissolved under increased hydrostatic pressure. Some of this excess air may subsequently be lost by a secondary gas exchange across the water table. The three unknowns, (i) temperature at the water table, (ii) amount of excess air, and (iii) degree of loss of excess air by secondary gas exchange, are obtained in an iterative procedure by optimizing the agreement of the four noble gas temperatures.

It has been demonstrated that in suitable ground water flow systems (aquifers) the measured noble gas concentrations, after subtraction of excess air, closely reflect the mean annual soil temperature at the water table in the recharge area (Stute and Schlosser, 1993).

GROUNDWATER AS AN ARCHIVE OF CLIMATE

Confined aquifers, for example, sandstone layers embedded in clays, appear to be the best paleoclimate archives. Typical flow velocities in confined aquifers are of the order of 1 m/y. Theoretically, a 30 km long aquifer should yield a 30,000 year paleoclimate record. The only reliable tool for dating glacial groundwater, the radiocarbon technique, limits the accessible time scale to about 30,000 years. Groundwater radiocarbon ages are characterized by a typical uncertainty of a few thousand years because carbon dissolved in groundwater is affected by chemical reactions in the aquifer. In addition, small-scale mixing processes smooth the recorded climate signal. However, model calculations and several pilot studies have shown that the last glacial to interglacial climate transition is often well preserved in an aquifer. A multitude of methods has been applied to derive paleoclimate information from this archive (Fontes *et al.*, 1993).

The disadvantages of the noble gas thermometer compared to others used to reconstruct continental climate records, such as, for example, vegetation changes as recorded in lake sediments, are its limited time resolution and dating uncertainty. The advantages are that it is based on a relatively simple physical principle and that the derived temperature reflects (multi-) annual

mean temperatures with a high precision (0.5 to 0.8 °C). Noble gas paleotemperature records have been reconstructed for several sites in Europe, North America, South America and Africa (for a review see: Stute and Schlosser, 1993).

NOBLE GAS PALEOTEMPERATURES FOR BRAZIL

The first noble gas temperature record in the tropics has been derived recently from a confined aquifer in the Maranhão Basin at 41.5 °W (latitude) and 7 °S (longitude) in the central part of the semi-arid Piauí province in northeastern Brazil (Stute *et al.*, 1995b). Excess air in the water samples was found to be fractionated relative to atmospheric air and an optimization procedure was applied. Samples were dated with the radiocarbon technique after correcting for hydrochemical alterations in the aquifer by using a model by Fontes and Garnier (1979). The noble gas temperatures as a function of radiocarbon age cluster in two groups (Fig. 2). The average noble gas temperature of the water samples characterized by radiocarbon ages of less than about 10,000 years and therefore recharged at temperatures very similar to today's, 29.6 ± 0.3 °C agrees well with the mean annual soil temperature in the area, 29.1 ± 1.2 °C (± 0.3 °C is the standard deviation of the mean value, σ/\sqrt{n}). There is evidence based on its helium concentration that the sample in the upper right corner of the plot is much older than the remaining samples suggesting a formation during a warmer period. The difference between the average noble gas temperatures for the present interglacial (radiocarbon age $< \approx 10,000$ years) and the last glacial maximum (radiocarbon age $> \approx 10,000$ years) is 5.4 ± 0.6 °C (for a more detailed discussion of this record, see Stute *et al.*, 1995b).

IMPLICATIONS FOR CLIMATIC CHANGE IN THE TROPICS

The estimate of an ≈ 5 °C cooler climate at the LGM is consistent with the lowering of the snow lines and vegetation zones, and with the oxygen isotope ratios of the ice cores at high elevation in the tropical Americas. It appears that a change in the lapse rate cannot be used anymore to reconcile the different degree of cooling on the continents and the oceans. A cooling by at least 5 °C has also been found at numerous sites in the Americas in a wide belt between a latitude of 40° north and south of the equator. Two of these records (Texas, 29 °N, and New Mexico, 38 °N) were derived from noble gases in groundwater (Stute *et al.*, 1995a). Cooler glacial continental tropics are also consistent with the Sr/Ca and oxygen isotope record derived from corals in Barbados (Guilderson *et al.*, 1994). The combined evidence suggests that during the LGM, the latitudinal temperature gradient had not been increased

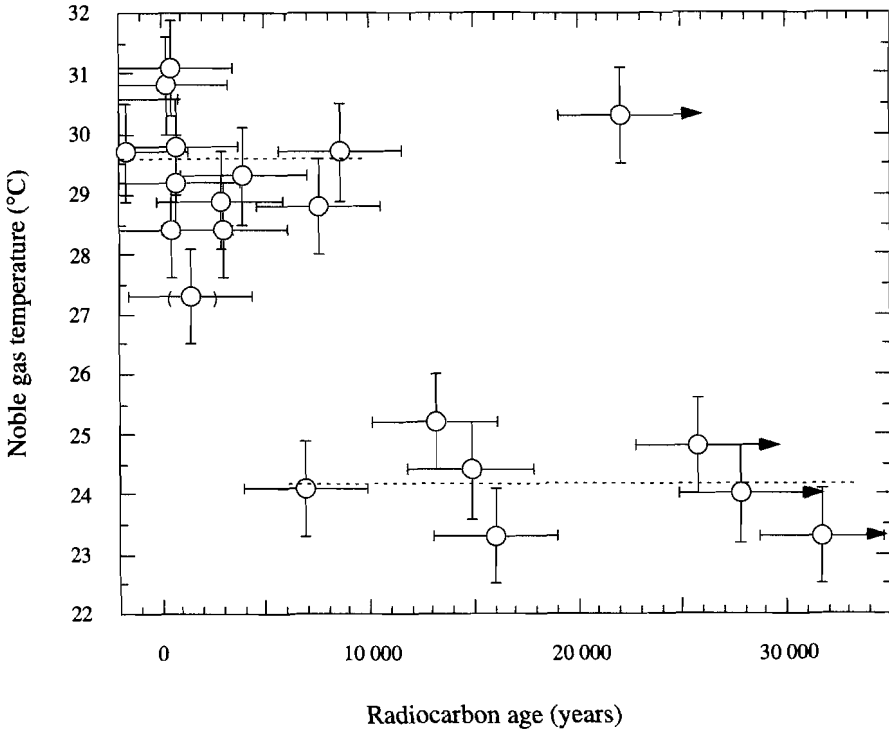


FIGURE 2.

Noble gas paleotemperature record derived from an aquifer in the Piauí province, northeastern Brazil. The arrows identify the samples with a radiocarbon content below the detection limit. Their ages may be higher than indicated.

Paléotempératures estimées à partir des gaz nobles dans un aquifère de la Province de Piauí, Nord-Est du Brésil. Les flèches indiquent les échantillons dont la teneur en radiocarbone est inférieure à la limite de détection. Leur âge peut être supérieur à l'âge indiqué.

as previously believed, but that the tropical and subtropical Americas were uniformly cooler.

If the hypothesis of cooler tropics can be extended to the tropical oceans, our current understanding of how the climate system worked during the glacial period will have to be revised. Current ideas of latitudinal heat transport by the ocean or the atmosphere, for example, would have to be revised. Also, atmospheric general circulation models (GCMs) that are being applied to predict future climate change, have been used to describe the climate during the LGM. Most of these model runs used CLIMAP's sea surface temperatures as a boundary condition and consequently would have to be redone.

However, the serious disagreement between continental and coral records, on one hand, and sea surface temperature records based on faunal abundances, oxygen isotope ratios, and alkenones, on the other hand, remains unresolved and needs to be studied further.

REFERENCES

- Broecker (W.S.), 1986. "Oxygen isotope constraints on surface ocean temperatures". *Quaternary Research*, 26 : 121-134.
- Clapperton (C.M.), 1993. « Nature of environmental changes in South America at the last glacial maximum". *Paleog., Paleoc., Paleoe.*, 101 : 189-208.
- CLIMAP Project Members, 1981. "Seasonal reconstruction of the Earth's surface at the last glacial maximum". *Geol. Soc. Amer.*, Map and Chart Series, 36.
- Fontes (J.-C.), and Garnier (J.-M.), 1979. "Determination of the initial ^{14}C activity of the total dissolved carbon – A review of the existing models and a new approach". *Water Resources Research*, 15 : 399-413.
- Fontes (J.-C.), Stute (M.), Schlosser (P.) and Broecker (W.S.), 1993. "Aquifers as archives of paleoclimate". *EOS*, 74 : 21-22.
- Guilderson (T.P.), Fairbanks (R.G.) and Rubenstone (J.L.), 1994. "Tropical temperature variations since 20,000 years ago: modulating interhemispheric climate change". *Science*, 263 : 663-665.
- Heaton (T.H.E.) and Vogel (J.C.), 1981. "'Excess air' in groundwater". *Journal of Hydrology*, 50 : 201-216.
- Mazor (E.), 1972. "Paleotemperatures and other hydrological parameters deduced from noble gases dissolved in groundwaters, Jordan Rift Valley, Israel". *Geochim. Cosmochim. Acta*, 36 : 1321-1336.
- Rind (D.) and Peteet (D.), 1985. "Terrestrial conditions at the last glacial maximum and CLIMAP sea-surface temperature estimates: Are they consistent?" *Quat. Res.*, 24 : 1-22.

- Sikes (E.L.), and Keigwin (L.D.), 1994. "Equatorial Atlantic sea surface temperatures for the last 30 kyr: A combination of U_{37}^k , $\delta^{18}O$ and formamini-feral assemblage temperature estimates". *Paleoceanography*, 9: 31-45.
- Stute (M.) and Schlosser (P.), 1993. "Principles and Applications of the Noble Gas Paleothermometer. AGU Monograph on 'Climate Change in Continental Isotopic records'", P.K. Swart, K.C. Lohmann, J. McKenzie, and S. Savin, editors, *Geophysical Monograph*, 78: 89-100.
- Stute (M.), Clark J.F.), Schlosser (P.), Broecker (W.S.), and Bonani (G.), 1995a. "A 30,000 year continental paleotemperature record derived from noble gases dissolved in groundwater from the San Juan Basin, New Mexico". *Quatern. Res.*, 43: 209-220.
- Stute (M.), Forster (M.), Frischkorn (H.), Serejo (A.), Clark (J.F.), Schlosser (P.), Broecker (W.S.), and Bonani (G.), 1995b. "Cooling of tropical Brazil ($5^{\circ}C$) during the last glacial maximum". *Science*, 269: 379-383.
- Thompson (L.G.), Mosley-Thompson (E.), and Davis (M.E.), 1995. "Late glacial stage and Holocene tropical ice core records from Huascarán, Peru". *Science*, 269: 46-50.

TROISIÈME PARTIE

PART 3

Production cosmique
et production *in situ*
de radionucléides

*Cosmogenic isotopes
and in situ production
of radio-isotopes*

Le carbone 14 : progrès récents et limitations de la méthode de datation

Carbon 14 Dating: Recent progress and limits of the method

J.-C. DUPLESSY, M. ARNOLD, E. BARD, E. CORTIJO,
L. LABEYRIE, C. LAJ, B. LEHMAN, A. MAZAUD, M. PATERNE,
N. TISNERAT ET L. VIDAL

RÉSUMÉ – La méthode de datation par le carbone 14 a permis l'établissement d'une échelle chronologique du Quaternaire Supérieur et a contribué à la découverte de phénomènes insoupçonnés comme l'existence de variations climatiques abruptes et de grande amplitude pendant la dernière période glaciaire et la déglaciation qui l'a terminée. L'effort continu pour comparer les âges carbone 14 avec les âges calendaires a été maintenant étendu au delà de 30 000 ans, même si le nombre de mesures est encore trop petit pour permettre l'établissement d'une courbe de calibration précise au delà des dix mille dernières années. La comparaison des variations du rapport $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ de l'atmosphère avec celles du champ magnétique terrestre (déduites de l'analyse des carottes de sédiments marins) suggère que les variations de l'activité ^{14}C de l'atmosphère sont dues pour une très large part aux fluctuations de l'intensité du champ magnétique terrestre dans le passé. Plus généralement, ces variations joueraient un rôle majeur dans les variations des teneurs des autres cosmonucléides, comme ^{10}Be , dans les échantillons naturels.

Mots clés : datation, carbone 14, paléoclimatologie, paléocéanographie.

*

Keywords: dating method, radiocarbon, paleoclimatology, paleoceanography.

*

Abridged English version

Carbon-14 is formed by the interaction of cosmic radiation with components of the upper atmosphere. Galactic cosmic protons, which are charged particles, tend to be deviated by the Earth's magnetic field. Those which penetrate the atmosphere generate secondary particles by interaction with atmospheric gases. Secondary neutrons of low energy react with atmospheric nitrogen and generate a new radioactive isotope of carbon, ^{14}C (5730 year half-life). This newly formed carbon isotope reacts quickly with oxygen and is converted into carbon dioxide. This molecule mixes with atmospheric CO_2 , and then participates to all the chemical reactions involving the atmospheric, marine and biospheric components of the carbon cycle. Isotope fractionation occurs during these chemical reactions and, as a result, the $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratio undergoes changes which are twice as large as those affecting the $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratio. Within the exchangeable reservoirs (atmosphere, ocean and biosphere), $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ variations are due either to isotopic fractionation or to radioactive decay.

Anderson and Libby (1947), who discovered radiocarbon, suggested that since plants and animals assimilate carbon dioxide directly or indirectly from the atmosphere, any organism should have approximately the same radioactivity as the atmospheric carbon dioxide during its lifetime. When living organisms die, exchanges no longer occur and the ^{14}C is no longer renewed. Consequently, the radioactivity of the dead organism slowly decays. For most geological and archaeological samples, the age of their death may be calculated from the standard exponential radioactive decay law, assuming that the atmospheric production of radiocarbon has remained constant in the past (Delibrias et Roux, 1975; Valladas *et al.*, 1992). This dating method has been extended to other geological samples, noticeably ocean water which is not fully equilibrated with the atmosphere (Broecker *et al.*, 1960) and groundwaters in which the ^{14}C content of total dissolved CO_2 depends on the relative amount of dissolved atmospheric carbon dioxide and rock carbonate (Fontes and Garnier, 1979).

A new development of the radiocarbon method is Accelerator Mass Spectrometry (AMS) technique, which allows geochemists to measure the $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratio of samples containing only 1 mg carbon. This allows the measurement of a new set of archaeological and geological samples, which could not be analyzed by the conventional method, either because their carbon content was too small or because the samples were too precious to be destroyed for radioactivity measurements (Arnold *et al.*, 1987 ; Duplessy *et al.*, 1986; Fontes, 1992; Fontes et Gasse, 1991; Fontes *et al.*, 1992; 1993a; 1993b; Gasse and Fontes, 1989). In oceanography, AMS has permitted the routine use of radio-

carbon as a tracer of oceanic circulation and has allowed the penetration into the ocean of ^{14}C atoms produced during atmospheric nuclear weapon tests to be measured (Bard *et al.*, 1988).

In addition, significant progress has been made in calibrating the radiocarbon time scale. The increasing number and accuracy of ^{14}C measurements has documented inconsistencies between the calendar age of an object and its ^{14}C age. These inconsistencies are best explained by changes in ^{14}C production due to variations of solar activity and/or changes of the geomagnetic field intensity.

In this paper, we illustrate some recent results derived from the high resolution results of marine paleoclimatologists. Special emphasis will be made on two topics, abrupt climatic change and preliminary results of the extension of the radiocarbon time scale to 30,000 years before present, both of which open new research ways for the future.

CHRONOLOGY OF THE END OF THE LAST GLACIATION

Marine sediments provide continuous records of past climatic changes and may be dated accurately by measuring the $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratio of the dominant species of planktonic foraminifera. Figure 1 compares the age-depth relationship in three cores from the North Atlantic Ocean. Core NA 87-22 (55°30'N, 14°42'W, 2161 m) was collected off Ireland, core CH 69-09 (41°45'N, 47°21'W, 4100 m) was collected off Newfoundland and core SU 90-08 (43°03'N, 30°02'W, 3080 m) was raised from the western flank of the Mid Atlantic ridge. Although the mean sedimentation rates are approximately similar in cores NA 87-22 and CH 69-09, small scale temporal changes in sedimentation rates are so large that these cores cannot be correlated without a continuous series of radiocarbon dates covering the last 45,000 years. When an accurate time scale is used, the $\delta^{18}\text{O}$ benthic records in the three cores may be precisely correlated (Fig. 2), because $\delta^{18}\text{O}$ variations reflect primarily continental ice volume changes. However, the three records exhibit minor, but significant differences, which may be interpreted in terms of deep water temperature variations.

In Figure 2 significant oscillations can be seen between the two major glacial advances corresponding to isotope stages 4 (65,000 years ago) and 2 (18,000 years ago). Significant ice advances occurred 58,000, 45,000, and 35,000 years ago, and were followed by rapid retreat of the glaciers (about 55,000, 43,000, and 33,000 years ago). These minor climatic cycles exhibit the same saw-tooth shape as the major glacial-interglacial cycles of the Quaternary (Broecker and Van Donk, 1970).

ABRUPT CLIMATIC CHANGES

Bard *et al.* (1987) discovered that sea surface temperature (SST) of Portugal increased by more than 10 °C in less than 400 years during the last deglaciation. Figure 3 shows that the warmer waters were also more saline, suggesting that rapid SST variations were associated with the displacement of the front separating warm subtropical waters from cold polar and subpolar waters (Duplessy *et al.*, 1993).

Rapid SST variations were also recorded in the North Atlantic Ocean during the last glaciation (oxygen isotope stages 2-4). The foraminiferal and sedimentological record of core SU 90-08 (Fig. 4) shows that SST variations were closely related to massive iceberg discharges originating from the Laurentide and Scandinavian ice sheets (Heinrich events). Iceberg melting resulted in a major increase in the Ice Rafted Debris (IRD) content of the sediment. Heinrich events are followed by a rapid warming phase, which culminated 2000-3000 years after the end of the IRD pulse. This, in turn, is followed by a slow cooling trend, which ends when a new iceberg discharge takes place. These instabilities of the great continental ice sheets resulted in significant changes in the climate system, notably ice volume variations marked by 0.4‰ changes in the benthic $\delta^{18}\text{O}$ record of North Atlantic sediment cores (Fig. 2). The rapid transfer of the $\delta^{18}\text{O}$ signal from surface to deep waters also indicates that winter convection and surface water sinking were active during Heinrich events, despite the injection of freshwater which decreased the sea surface salinity and tended to stratify the ocean surface. We still do not know the magnitude of the $\delta^{18}\text{O}$ signal in the Pacific and Indian Ocean deep waters, so that it is not yet possible to estimate precisely ice volume changes during the climatic oscillations which developed during isotope stage 3.

Sea surface temperature, salinity and density variations are also apparent during the Holocene (Duplessy *et al.*, 1992). Periods of high surface water density should increase winter convection, active deep water formation, and strong inflow of warm North Atlantic Drift water, which brings heat to the high latitudes alongside western Europe. The detailed record of core NA 87-22 (Fig. 5) exhibits a major warming phase which followed the Younger Dryas cold event. It is followed by a slow cooling trend from 9200 to 7500 yr BP, associated with a salinity decrease, suggesting a reduction of the thermohaline circulation during this period. A climatic optimum is marked by the presence of warm saline waters from 7500 to 4500 yr BP. This warm phase ended in an abrupt surface water temperature, salinity, and density decrease. Gasse and Van Campo (1994) have shown that monsoon intensity variations during the Holocene were in phase with sea surface density variations in the North Atlantic. Additional work is required to determine whether this coin-

vidence is fortuitous or indicates a close linkage between monsoon intensity and oceanic thermohaline circulation.

CALIBRATION OF THE RADIOCARBON TIME SCALE

Dendrochronological studies have confirmed the discrepancy observed in Egyptian samples (Ralph, 1959) and have shown that radiocarbon ages are systematically younger than calendar ages (Suess, 1970; Radiocarbon calibration 1993). Figure 6 shows that the difference between radiocarbon ages and calendar ages increases with time during the Holocene, suggesting that the production of ^{14}C was higher than today.

During the last glaciation, trees were extremely rare in Europe and the dendrochronological calibration of radiocarbon is limited by the availability of fossil trees. A preliminary tree-ring chronology for the last 11,000 years has been proposed by Becker *et al.* (1991). Fossil organic macrorests found in varved lake sediments have been dated by AMS, providing a new approach to extend the radiocarbon calibration. In these studies the calendar time scale relies on varve counting and assumes that the sediment contains an undisturbed record of annual varve deposition. This is rarely the case and significant discrepancies have been found in the calibration of the radiocarbon time scale in this time interval (Hajdas, 1993, Hajdas *et al.*, 1993). The Gif Tandetron was used to calibrate the radiocarbon time scale by analysing macrorests from a continuous sequence of 13,000 annual varves raised from a Polish lake (Goslar *et al.*, 1995). Results suggest that previous chronologies derived from varve studies were erroneous because many annual layers were missing from the record. For example, the fit between oak and pine dendrochronologies proposed by Becker (1991) should be corrected by about 200 years (Fig. 7).

The recent development in U/Th dating by thermal ionization mass spectrometry provides accurate (better than 100 years) calendar ages of corals, that may be independently dated by radiocarbon (Bard *et al.*, 1990; 1993). Figures 7 and 8 show that the calibration of radiocarbon ages may now be extended to the last 30,000 years, although the number of available samples is still too small to generate a continuous curve. This method assumes that the ^{14}C activity difference between atmosphere and surface water has remained constant in the past. This hypothesis is probably correct in well-ventilated low-latitude warm waters where corals live. However Bard *et al.* (1994) demonstrated that the ventilation of high latitude surface water was smaller than today during the Younger Dryas cold event in areas covered at least seasonally by sea ice.

Variations of the Earth's magnetic field intensity can be reconstructed from volcanic rocks and marine sediment magnetization. Although minor discre-

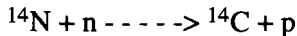
pancies are found among the various records, all agree that the mean intensity of the earth's magnetic field decreased to about half its present value during the last 50,000 years. Figure 9 shows that the resulting changes in ^{14}C production account for most of the difference between the radiocarbon and calendar time scales (Mazaud *et al.*, 1991 ; Laj *et al.*, 1996). If changes of the Earth's magnetic field have been the main factor responsible for the difference between calendar and radiocarbon ages, Figure 9 suggests that radiocarbon ages are too young by about 3000 years during the period 40,000 to 20,000 yr BP. Although ^{14}C cannot be measured accurately in samples older than 45,000 years, the Earth's magnetic field intensity varied continuously in the past. Fig. 10 shows a low resolution record of the earth's magnetic field variations during the last 300,000 years (Lehman *et al.*, 1996), suggesting that these variations are responsible of changes of ^{10}Be production, which account for most of the ^{10}Be flux variations detected by Raisbeck *et al.* (1987) in the Vostok ice core drilled in Antarctica.

*

Version française

INTRODUCTION

Le carbone 14 (^{14}C) est un cosmonucléide produit dans la haute atmosphère sous l'influence du rayonnement cosmique. Les protons cosmiques d'origine galactique sont plus ou moins déviés par le champ magnétique terrestre et ceux qui pénètrent dans l'atmosphère donnent naissance à des neutrons par réaction de spallation sur les atomes de l'air. Ces neutrons à leur tour entrent en collision avec les molécules d'air et perdent de l'énergie. Lorsque celle-ci atteint la valeur de l'énergie thermique des gaz, les neutrons ont une très forte probabilité de réagir sur l'azote de l'air pour donner un proton et un nouvel isotope du carbone, ^{14}C , selon la réaction :



^{14}C est un isotope radioactif qui décroît avec sa période voisine de 5730 ans.

Le maximum de production de ^{14}C est observé entre 15 et 18 km d'altitude. L'isotope ainsi formé s'oxyde très rapidement en gaz carbonique qui se mélange avec celui de l'air et va le suivre dans toutes les réactions de son cycle biogéochimique. On retrouve ainsi du carbone marqué au ^{14}C dans l'atmosphère, l'océan, les êtres vivants continentaux et marins, et leurs squelettes. Au cours des réactions d'échange entre ces divers réservoirs, l'isotope ^{14}C va suivre les autres isotopes du carbone, plus légers, ^{13}C et ^{12}C , mais être affecté de fractionnements isotopiques proportionnels à la différence de masse entre

ces isotopes. C'est pourquoi, les fractionnements isotopiques sur le ^{14}C sont doubles de ceux affectant le ^{13}C . Dans le vaste système échangeable où circule le gaz carbonique, les teneurs en ^{14}C à un instant donné sont donc très proches les unes des autres. Les écarts entre elles s'expliquent essentiellement par les fractionnements isotopiques associés aux réactions d'échange (par exemple au cours des réactions de photosynthèse) et par le temps de résidence du gaz carbonique dans chaque réservoir (par exemple dans les eaux profondes de l'océan mondial).

Anderson et Libby (1947), qui ont découvert le ^{14}C , ont immédiatement réalisé que si le taux de production de ^{14}C était connu et était resté constant dans le passé, il était possible de dater des échantillons géologiques en mesurant leur radioactivité résiduelle. Depuis ces premiers travaux, la méthode de datation par le radiocarbone a connu un essor inégalé en géologie et en archéologie (Delibrias et Roux, 1975 ; Valladas *et al.*, 1992). Les exemples simples de datation ont ensuite été étendus à des cas plus complexes, comme l'âge des eaux souterraines continentales (Fontes et Garnier, 1979) ou celui de l'eau profonde des différents bassins de l'océan mondial (Stuiver *et al.*, 1983), bien qu'elles ne soient pas totalement équilibrées avec l'atmosphère (Broecker *et al.*, 1960). Le développement récent de la spectrométrie de masse par accélérateur et la mise en œuvre du Tandétron, en permettant la mesure de la teneur en ^{14}C de très petits échantillons contenant seulement 1 mg de carbone, a donné un nouvel essor à cette méthode de datation dans tous ses domaines d'application (Arnold *et al.*, 1987 ; Duplessy *et al.*, 1986 ; Fontes, 1992 ; Fontes et Gasse, 1991 ; Fontes *et al.*, 1992 ; 1993a ; 1993b ; Gasse et Fontes, 1989), mais aussi comme traceur de la circulation océanique et de la pénétration dans l'océan du ^{14}C produit au cours des essais nucléaires atmosphériques (Bard *et al.*, 1988).

Parallèlement à la généralisation de l'emploi de la méthode du radiocarbone, les progrès des diverses méthodes radiochronologiques ont contribué à montrer l'ampleur de l'écart entre les âges calendaires et les âges ^{14}C calculés en supposant que la production de cet isotope était restée constante dans le passé. La production de cosmonucléides suit en effet les variations du rayonnement cosmique, de l'activité solaire et du champ magnétique terrestre. Ces deux derniers phénomènes ont reçu de plus en plus d'attention. Même si le flux cosmique reste constant, le vent solaire ralentit les particules du rayonnement cosmique d'énergie inférieure à 2 GeV, les dévie de leur trajectoire et modifie le spectre d'énergie des particules pénétrant dans l'atmosphère terrestre. Lingelfelter et Ramaty (1970) ont ainsi mesuré que le taux de production de ^{14}C avait diminué d'environ 25 % entre le minimum solaire de 1953-1954 et le maximum solaire suivant de 1957-1958. De son côté, le champ magnétique terrestre agit comme un écran pour les particules cosmiques. Les

variations lentes de son intensité s'accompagnent de changements du taux de production de cosmonucléides, celui-ci étant d'autant plus élevé que l'intensité du champ est faible.

Nous allons nous limiter ici à illustrer les résultats récents des recherches que Jean-Charles Fontes appelait avec son ironie coutumière, « le travail d'orfèvre des paléoclimatologues marins ». Celui-ci s'est traduit récemment par la découverte et la quantification des changements climatiques abrupts et une extension de la calibration de l'échelle de temps fournie par ^{14}C , autant de thèmes qui ont ouvert de nouvelles voies de recherche pour les prochaines années.

UNE CHRONOLOGIE CONTINUE DE LA FIN DE LA DERNIÈRE GLACIATION

La dernière période glaciaire qui s'est achevée il y a environ 10 000 ans a été marquée par de nombreuses oscillations climatiques. Des enregistrements continus de cette glaciation sont présents dans les sédiments marins qui présentent le double avantage de contenir un matériel fiable pour les datations et de fournir un enregistrement paléoclimatique précis.

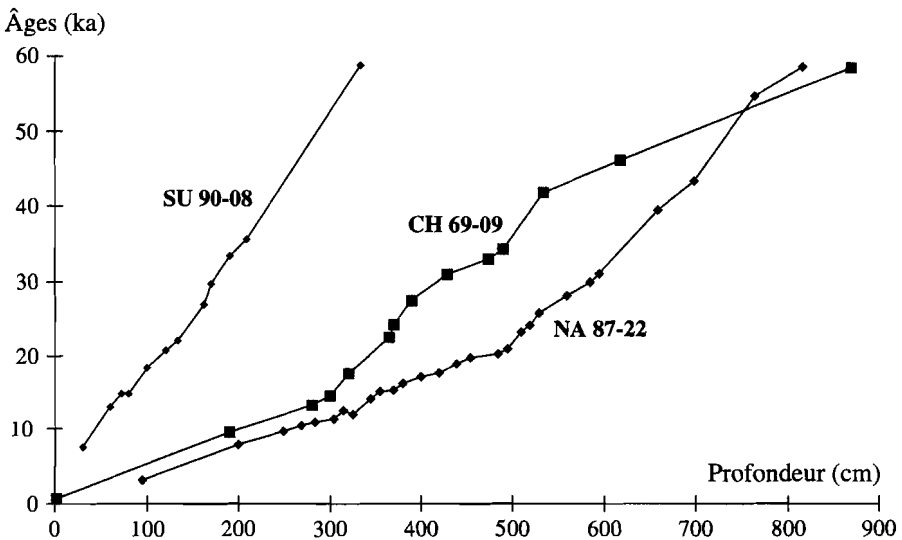


FIGURE 1.

Variation des vitesses de sédimentation dans trois carottes de l'océan Atlantique Nord.
Sedimentation rate variations in three North Atlantic deep sea cores.

La figure 1 compare les variations de l'âge des sédiments de trois carottes prélevées dans l'océan Atlantique Nord, la première, NA 87-22 (55°30'N, 14°42'W, 2161 m) au large de l'Irlande, la seconde CH 69-09 (41°45'N, 47°21'W, 4100 m) au large de Terre-Neuve et la troisième, SU 90-08 (43°03'N, 30°02'W, 3080 m) sur la ride Médio-Atlantique. Leur datation a été effectuée en mesurant, à l'aide du Tandétron, la teneur en ^{14}C des espèces dominantes de foraminifères planctoniques et en tenant compte de l'âge de deux marqueurs datés respectivement de 55 et 59 ka BP (Before Present). Bien que les vitesses de sédimentation moyennes sur 60 000 ans soient assez voisines dans les carottes NA 87-22 et CH 69-09, la figure 1 montre qu'il est impossible de les corrélérer sans une série de datations couvrant continûment les 45 000 dernières années. La figure 2 compare les enregistrements des variations de la composition isotopique des foraminifères benthiques ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$) dans les trois carottes en fonction du temps. La similitude des enregistrements tient au fait qu'ils représentent essentiellement les variations d'un paramètre climatique unique, celles du volume des glaces gelées à la surface des continents. Les écarts entre les courbes reflètent les différences de températures des eaux à la profondeur où les carottes ont été prélevées.

La figure 2 montre que les deux grandes poussées glaciaires correspondant respectivement aux stades isotopiques 4 (culminant vers 65 000 ans) et 2 (dernier maximum glaciaire culminant vers 18 000 ans) ont été séparées par des oscillations importantes reflétant des changements majeurs du climat, de la circulation océanique et du volume des glaces continentales. On peut noter en particulier trois poussées glaciaires vers 58 000, 45 000 et 35 000 ans BP suivies chacune d'une phase de recul marquée vers 55 000, 43 000 et 33 000 ans BP. On retrouve ainsi la forme caractéristique en dents de scie des variations du volume des glaces que l'on peut observer non seulement à l'échelle glaciaire-interglaciaire (Broecker et Van Donk, 1970), mais aussi à l'échelle des fluctuations à l'intérieur même d'une période glaciaire.

DES VARIATIONS CLIMATIQUES RAPIDES ET DE GRANDE AMPLITUDE

Bard *et al.* (1987) ont montré que la fin de la dernière glaciation s'est traduite au large du Portugal par un réchauffement de plus de 10 °C survenu en moins de 400 ans. Ces variations de température sont couplées à des variations de salinité importantes: les eaux les plus chaudes sont aussi les plus salées (Figure 3). Ceci conduit à penser que les variations brutales des conditions hydrologiques sont associées à des déplacements des masses d'eau et que les réchauffements sont en fait la manifestation de l'envahissement du bassin Nord Atlantique par des eaux d'origine subtropicale chaudes et salées.

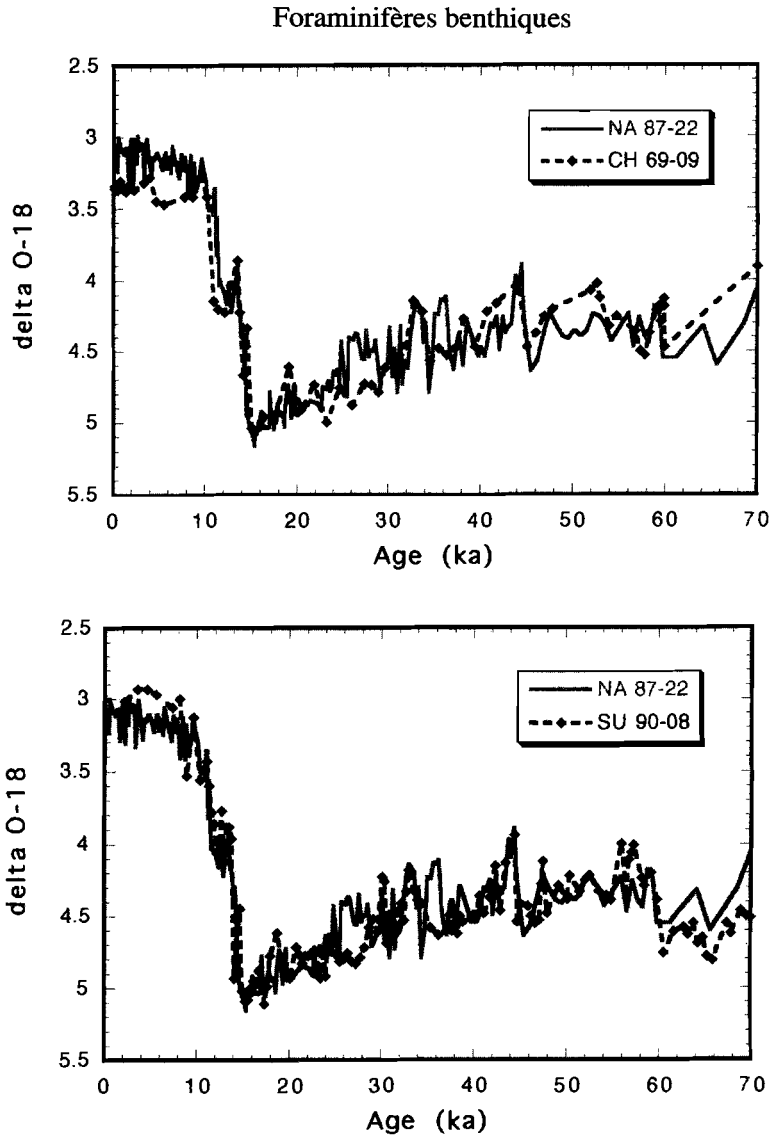


FIGURE 2.

(A) Comparaison des enregistrements isotopiques obtenus sur les foraminifères benthiques des carottes NA 87-22 et CH 69-09.

(B) Comparaison des enregistrements isotopiques obtenus sur les foraminifères benthiques des carottes NA 87-22 et SU 90-08.

(A) Comparison of the benthic isotope records of cores NA 87-22 and CH 69-09.

(B) Comparison of the benthic isotope records of cores NA 87-22 and SU 90-08.

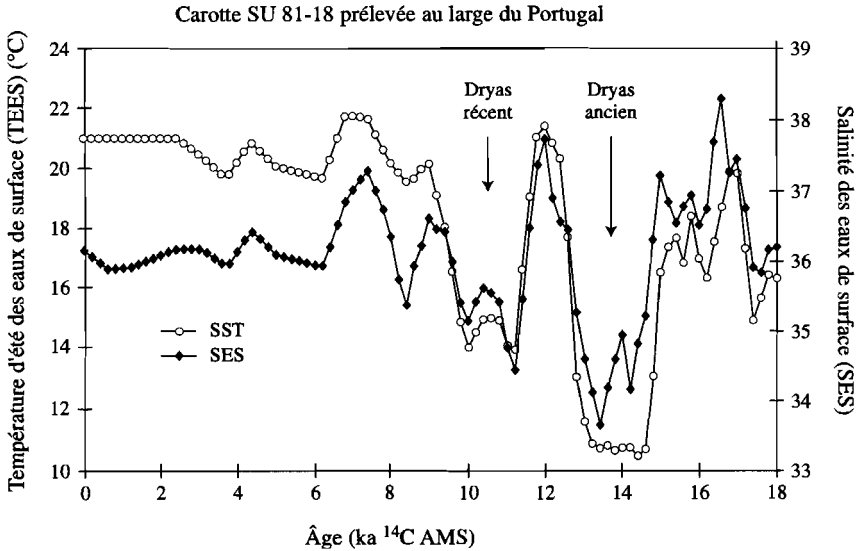


FIGURE 3.

Variation de la température et de la salinité des eaux superficielles de l'océan Atlantique Nord au large du Portugal d'après les analyses isotopiques et micropaléontologiques effectuées sur la carotte SU 81-18 (37°46'N, 10°11'W, 3135 m).

Sea surface temperature and salinity variations off Portugal estimated from isotope and micropaleontological data in core SU 81-18 (37°46'N, 10°11'W, 3135 m).

Au contraire, les phases de refroidissement, comme celle du Dryas Récent, traduisent le retrait des eaux subtropicales et l'avancée des eaux polaires et subpolaires (Duplessy *et al.*, 1993).

Des variations de température rapides et de grande amplitude sont également susceptibles de se développer dans le bassin Nord Atlantique en plein cœur de la glaciation. L'enregistrement micropaléontologique et sédimentologique de la carotte SU 90-08 (Figure 4) montre que les oscillations thermiques de la dernière période glaciaire sont étroitement associées à des débâcles d'icebergs (appelées événements de Heinrich) vêlés par les calottes glaciaires Laurentide et Fennoscandinave. La présence des icebergs a laissé des traces : un lit de sédiments détritiques grossiers caractéristiques du transport par les glaces dérivantes. La fin d'un événement de Heinrich est marquée par un réchauffement rapide qui se poursuit par un refroidissement très progressif, s'étalant sur plusieurs millénaires. Au paroxysme du refroidissement est associée une nouvelle débâcle d'icebergs. Il est à noter que l'événement de Heinrich et le réchauffement rapide qui le suit ont un impact majeur sur le système climatique global. Ils s'accompagnent en général d'une diminution signifi-

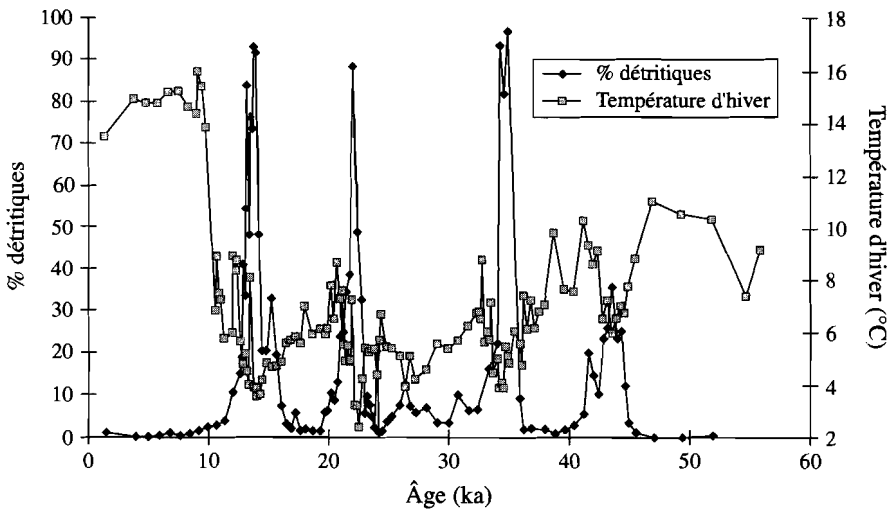


FIGURE 4.

Variation de la teneur en éléments détritiques des sédiments de la carotte SU 90-08 et de la température des eaux superficielles déduite des analyses micropaléontologiques. Les pics d'éléments détritiques correspondent au dépôt d'éléments transportés par les icebergs pendant les périodes les plus froides.

Ice rafted detrital element variations and sea surface temperature estimates from core SU 90-08.

cative de la quantité de glace gelée sur les continents, qui se traduit par une diminution du rapport $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ des foraminifères benthiques profonds de l'océan Atlantique Nord pouvant atteindre 0,4 ‰ (Figure 2). Le transfert rapide vers l'océan profond de la diminution du rapport $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ des eaux superficielles témoigne de la persistance ou au moins du rapide retour des conditions permettant la convection profonde et la plongée des eaux superficielles dans les zones de haute latitude. On ne sait pas encore quelle fraction de ce signal isotopique se retrouve dans les océans Pacifique et Indien, de sorte qu'il n'est pas possible d'évaluer avec précision le volume de glaces passant à la mer à l'occasion d'un événement de Heinrich et du réchauffement qui l'a suivi.

Des variations de température, de salinité et de densité ont pu également être mises en évidence et datées avec précision au cours de l'Holocène (Duplessy *et al.*, 1992). La figure 5 montre l'enregistrement des températures, salinité et densité des 12 000 dernières années dans la carotte NA 87-22. Après le réchauffement qui a mis fin au Dryas Récent, la température des eaux super-

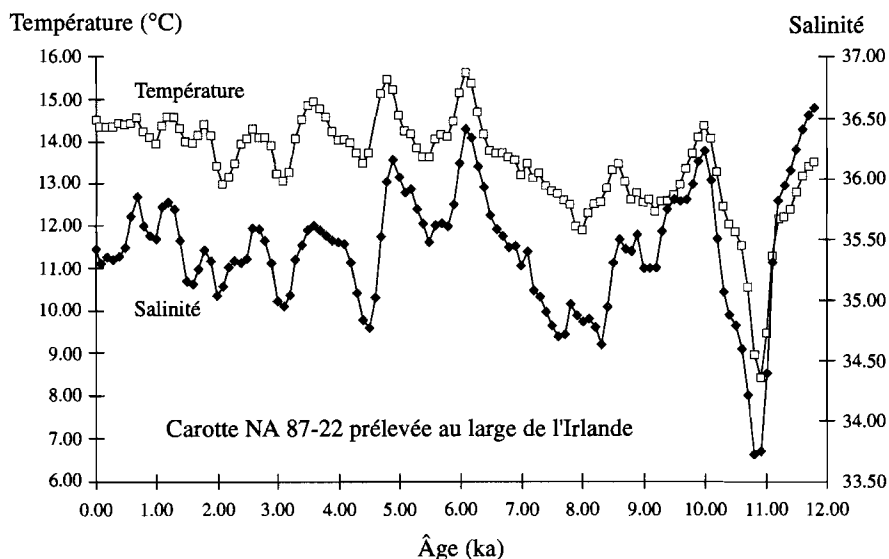


FIGURE 5.

Variation de la température et de la salinité des eaux superficielles de l'Atlantique Nord au large de l'Irlande d'après les analyses isotopiques et micropaléontologiques effectuées sur la carotte NA 87-22. Les variations de température et de salinité pendant l'Holocène sont significatives à l'intérieur de leurs incertitudes respectives ($\pm 1^\circ\text{C}$ et ± 0.5 psu).

Sea surface temperature and salinity variations off Ireland estimated from isotope and micropaleontological data in core NA 87-22. Statistical uncertainty on temperature and salinity are respectively $\pm 1^\circ\text{C}$ and ± 0.5 psu.

ficielles décroît sensiblement de 9 200 à 7 500 ans BP. Simultanément baissent la salinité et la densité des eaux superficielles, ce qui suggère un ralentissement de la circulation thermohaline qui amène un courant d'eaux superficielles chaudes vers les hautes latitudes de l'océan Atlantique Nord. De 7 500 à 4 500 ans BP, les eaux deviennent plus chaudes, plus salées et plus denses, ce qui facilite la convection hivernale. Cet optimum s'achève par une diminution rapide des densités qui ne reprendront jamais les valeurs du milieu de l'Holocène. Gasse et Van Campo (1994) ont remarqué que les périodes pendant lesquelles les eaux superficielles de l'océan Atlantique Nord avaient une faible salinité et une faible densité coïncident avec celles pendant lesquelles la mousson d'été est faible. Il reste à déterminer si cette coïncidence est fortuite ou relève d'un mécanisme complexe liant l'intensité de la mousson à celle de la circulation thermohaline.

LES ÉCARTS ENTRE L'ÉCHELLE CHRONOLOGIQUE CALENDRAIRE ET L'ÉCHELLE RADIOCARBONE

Dès 1959, Ralph démontra que l'âge ^{14}C d'échantillons égyptiens historiquement datés était plus jeune que l'âge calendaire. La réalité de ces écarts fut confirmée par l'étude détaillée du rapport $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ du bois prélevé dans des anneaux d'arbre bien datés par les études dendrochronologiques (Suess, 1970; Radiocarbon Calibration 1993). La calibration la plus récente (Figure 6) montre que la différence entre les âges calendaires et les âges ^{14}C est de plus en plus importante au fur et à mesure que les échantillons sont plus anciens. Ceci indique que la production de ^{14}C était en moyenne plus élevée qu'aujourd'hui. Dans le détail, on observe des variations significatives à plus petite échelle,

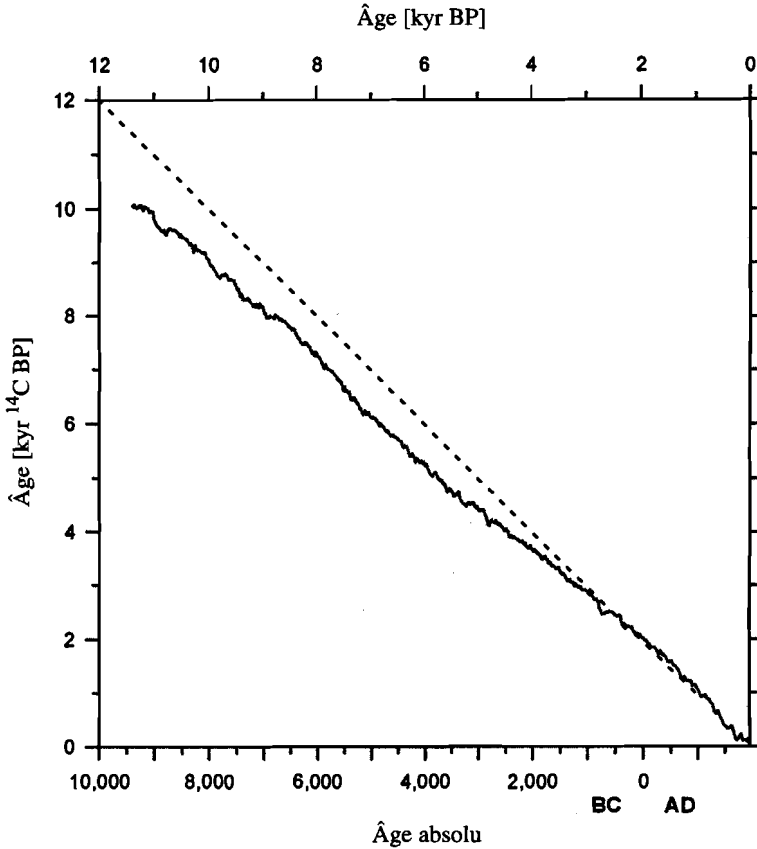


FIGURE 6.

Comparaison des âges ^{14}C d'anneaux d'arbre avec leurs âges calendaires.

Comparison of radiocarbon ages of tree rings with their calendar chronology.

dont certaines se traduisent par des « plateaux » au cours desquels l'activité ^{14}C de l'atmosphère a diminué sensiblement au rythme de la décroissance radioactive de cet isotope. Il existe ainsi des périodes dont la durée a dépassé plusieurs siècles et pendant lesquelles les fossiles ont tous le même âge ^{14}C quel que soit leur âge vrai.

Les calibrations dendrochronologiques sont limitées par la difficulté de trouver des arbres en bon état de conservation plus vieux que dix mille ans. En outre, la fin de la glaciation a profondément modifié la flore des régions actuellement tempérées qui a été profondément affectée par la présence des grands glaciers. C'est ainsi qu'en Europe, ce sont des chênes qui fournissent les séries dendrochronologiques continues des dix mille dernières années ; ils étaient absents antérieurement et les seuls arbres disponibles au cours du Dryas Récent sont des pins. Un raccordement de ces deux séries d'arbres a été proposé par Becker *et al.* (1991), permettant d'étendre la calibration sur les 11 000 dernières années, mais il devra être vérifié par de nouvelles mesures.

Avec les possibilités offertes par la spectrométrie de masse par accélérateur, plusieurs auteurs ont tenté de mesurer l'âge ^{14}C des macrofossiles végétaux prélevés dans les sédiments varvés de différents lac d'Europe. Les varves sont très souvent annuelles, et leur comptage permet d'obtenir un âge absolu du sédiment. Ainsi, plusieurs courbes de calibrations ont-elles été proposées, couvrant essentiellement la période du Dryas Récent et de sa transition avec le Préboréal (Hajdas, 1993, Hajdas *et al.*, 1993). Celles-ci présentent des différences significatives. Le travail réalisé grâce au Tandétron en collaboration avec une équipe de chercheurs polonais a permis d'établir une nouvelle courbe à partir d'échantillons provenant d'un lac de Pologne Centrale, présentant une série pratiquement continue de plus de 13 000 varves annuelles (Goslar *et al.*, 1995). Cette courbe suggère que les différences mesurées sur les autres séries varvées proviennent essentiellement de lacunes de sédimentation, difficiles à mettre en évidence uniquement par l'observation. Elle montre par ailleurs, que le recouvrement des séries dendrochronologiques des pins et des chênes proposées par Becker devrait être vieilli d'au moins 200 ans (Figure 7).

Récemment, une nouvelle méthode a été mise au point pour étendre la comparaison des âges calendaires et ^{14}C . Celle-ci repose sur la comparaison des âges ^{14}C des coraux avec les âges déduits de leur teneurs en ^{238}U , ^{234}U et ^{230}Th (Bard *et al.*, 1990; 1993). La méthode de datation U/Th fournit des âges absolus, indépendants des variations du flux du rayonnement cosmique atteignant la Terre. Le développement de la technique de datation U/Th par spectrométrie de masse a permis d'améliorer considérablement la précision des mesures. Celle-ci est meilleure que 100 ans pour les âges inférieurs à 10 000 ans et meilleure que 200 ans pour des âges inférieurs à 30 000 ans. La différence entre les âges U/Th et ^{14}C fournit donc une estimation de l'écart entre les âges

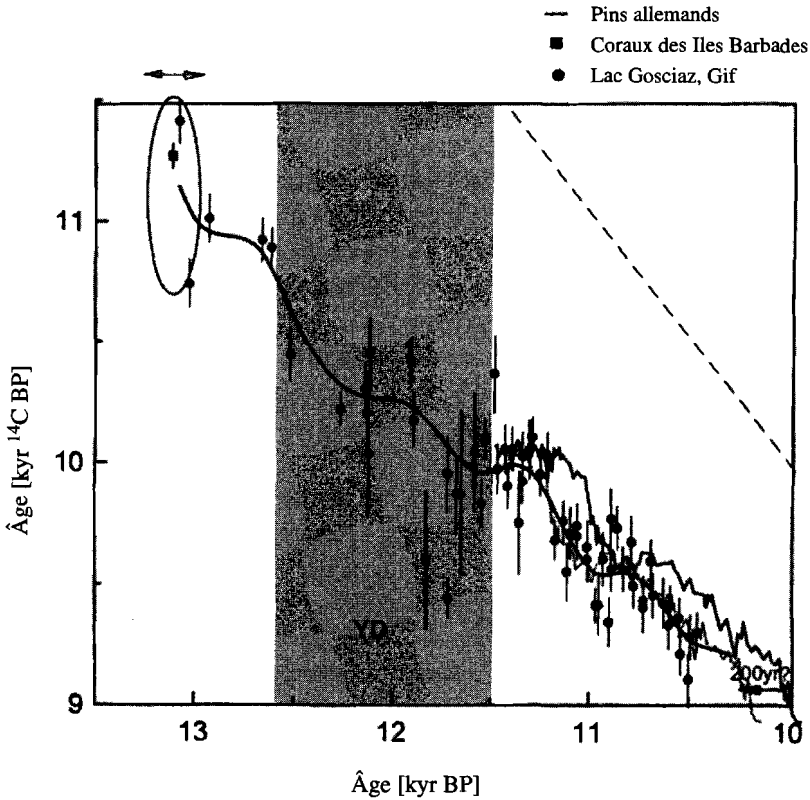


FIGURE 7.

Comparaison des âges ¹⁴C d'échantillons formés pendant la dernière déglaciation avec leurs âges calendaires vrais déduits soit de la méthode dendrochronologique, soit de la datation U/Th des coraux.

Comparison of radiocarbon ages of geological samples deposited during the last deglaciation with their calendar ages derived either from tree ring chronology or from coral U/Th dating.

¹⁴C et les âges vrais, avec une précision de quelques siècles (Figures 7 et 8). Il faut souligner que les eaux superficielles de l'océan ont dans les basses latitudes un âge ¹⁴C de 400 ans et qu'on considère qu'il est resté constant dans le passé. Alors que cette hypothèse est vraisemblable dans les zones où l'océan est resté bien ventilé, elle ne l'est plus dans les zones de haute latitude où l'extension de la glace de mer et les changements de circulation thermohaline provoquent des modifications de ventilation, et donc de teneur en ¹⁴C et d'âge apparent des eaux superficielles (Bard *et al.*, 1994).

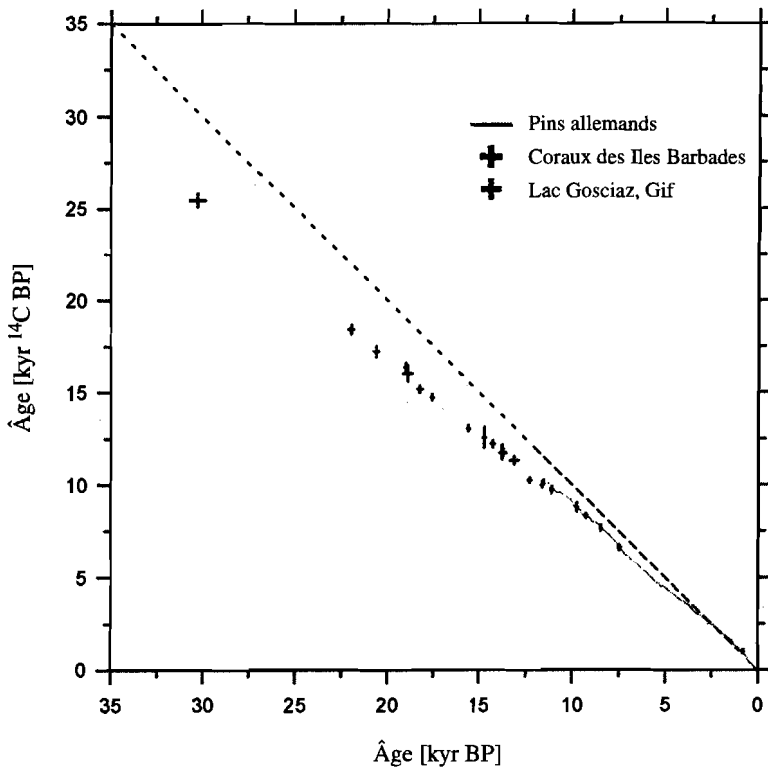


FIGURE 8.

Comparaison des âges ^{14}C d'échantillons formés au cours des 35 000 dernières années avec leurs âges calendaires.

Comparison of radiocarbon ages of geological samples deposited during the last 35,000 years with their calendar ages.

Les écarts entre âges ^{14}C et âges calendaires s'expliquent essentiellement par des fluctuations du taux de production de ^{14}C . Celles-ci résultent pour une large part des variations de l'intensité du champ magnétique terrestre que l'on sait maintenant reconstruire à partir des variations de l'aimantation des sédiments marins et des roches volcaniques. Les courbes obtenues montrent que l'intensité du champ géomagnétique a beaucoup varié, et en particulier que sa valeur moyenne a été deux fois inférieure à celle d'aujourd'hui au cours des derniers 50 000 ans. La production de ^{14}C a alors été plus forte, puisque l'écrantage magnétique était moindre. Mazaud *et al.* (1991), puis Laj *et al.* (1996) ont utilisé une reconstitution des variations de l'intensité du champ

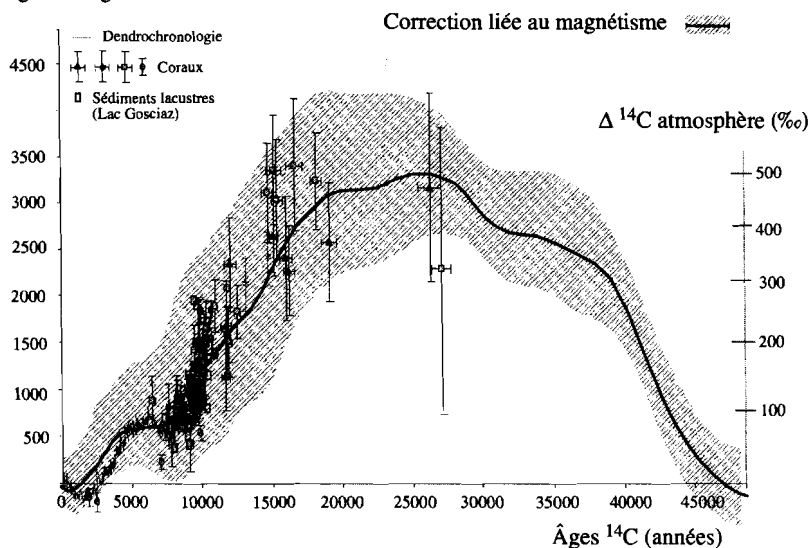
Décalage sur l'âge ^{14}C 

FIGURE 9.

Comparaison de la différence entre les âges vrais (calendaires) et les âges ^{14}C avec celle due aux variations du taux de production de ^{14}C dans l'atmosphère sous l'influence des changements de l'intensité du champ magnétique terrestre. La zone hachurée représente l'incertitude sur la correction d'âge associée à celle sur la détermination de l'intensité du dipôle magnétique.

Difference between calendar ages and radiocarbon ages for geological samples deposited during the last 35,000 years. The solid line is calculated assuming that the difference between calendar and radiocarbon ages is due entirely to changes in the intensity of the earth's magnetic field. The hatched area reflects the uncertainty associated with the determination of past geomagnetic intensity.

géomagnétique pour calculer les variations de la production du ^{14}C au cours des 50 000 dernières années et proposer une estimation de la correction à apporter aux âges ^{14}C . Les résultats obtenus (Figure 9) suggèrent que les âges ^{14}C sont trop jeunes d'environ 3 000 ans entre 20 000 et 40 000 ans BP. L'écart ainsi calculé est très voisin de celui déduit de la calibration des âges ^{14}C par les datations des coraux par la méthode U-Th (Bard *et al.*, 1990).

Ces études ont été récemment étendues aux 300 000 dernières années (Lehman *et al.* 1996). La modulation géomagnétique a également affecté la production des autres isotopes cosmogéniques (^{10}Be , ^{36}Cl ...). La figure 10 montre son impact sur la production primaire de ^{10}Be . L'accroissement de production ainsi calculé pourrait représenter une grande partie des fluctuations du flux de ^{10}Be déduit des analyses effectuées par Raisbeck *et al.* (1987) dans les glaces Antarctiques à Vostok (Mazaud *et al.*, 1994).

Intensité du champ géomagnétique

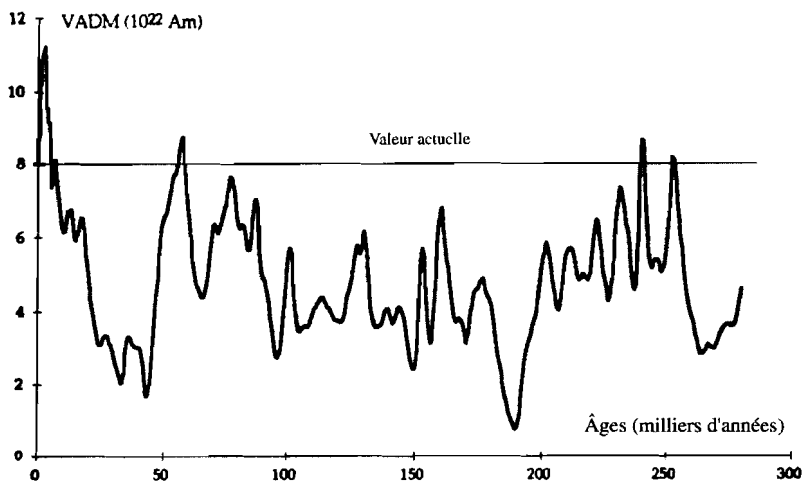
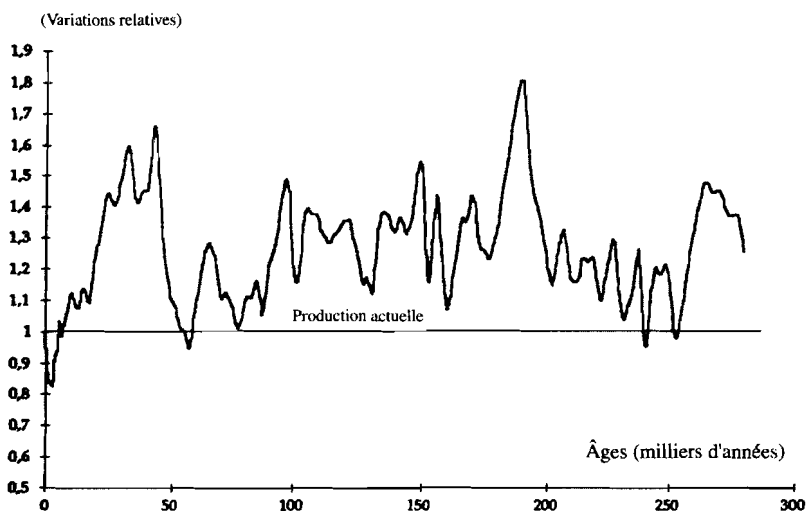
Production de ^{10}Be 

FIGURE 10.

(A) Variations de l'intensité du champ magnétique terrestre déduite de l'analyse d'une carotte prélevée dans l'océan Atlantique Nord au large des Açores.

(B) Variations correspondantes du taux de production de ^{10}Be .

(A) Variation of the earth's magnetic field intensity over the last 280,000 years deduced from the study of a North Atlantic core collected off Azores Islands, and

(B) Resulting variations of ^{10}Be production

REMERCIEMENTS

Ces recherches ont été financées par le CEA, le CNRS (SdU) et l'INSU.

RÉFÉRENCES

- Anderson (E. D.) and Libby (W.F.), 1947. « Natural radiocarbon from cosmic radiation », *Phys. Rev.*, 72 (10) : 931-936.
- Arnold (M.), Bard (E.), Maurice (P.) and Duplessy (J.C.), 1987. « ^{14}C dating with the Gif-sur-Yvette Tandetron Accelerator: status report », *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.* B29 : 120-123.
- Bard (E.), Hamelin (B.), Fairbanks (R. G.), and Zindler (A.), 1990. « Calibration of the ^{14}C timescale over the past 30,000 years using mass spectrometric U-Th ages from Barbados corals », *Nature*, 345 : 405-410.
- Bard (E., Arnold (M.), Fairbanks (R.G.), and Hamelin (B.), 1993. « ^{230}Th - ^{234}U and ^{14}C ages obtained by mass spectrometry on corals », *Radiocarbon*, 35 (1) : 191-199.
- Bard (E.), Arnold (M.), Mangerud (J.), Paterne (M.), Labeyrie (L.), Duprat (J.), Mélières (M.A.), Sonstegaard (E.), and Duplessy (J.C.), 1994. « The North Atlantic atmosphere-sea surface ^{14}C gradient during the Younger Dryas climatic event », *Earth Planet. Sci. Lett.*, 126 : 275-287.
- Bard (E.), Arnold (M.), Maurice (P.) Duprat (J.), Moyes (J.) and Duplessy (J.C.), 1987. « Retreat velocity of the North Atlantic Polar front during the last deglaciation determined by means of ^{14}C accelerator mass spectrometry », *Nature*, 328 : 791-794.
- Bard (E.), Arnold (M.), Ostlund (H. G.), Maurice (P.), Monfray (P.) and Duplessy (J.C.), 1988. « Penetration of bomb radiocarbon in the tropical Indian Ocean measured by means of accelerator mass spectrometry », *Earth Planet. Sci. Lett.*, 87 : 379-389.
- Broecker (W.S.) and Van Donk (J.), 1970. « Insolation changes, ice volume and the ^{18}O record in deep sea cores », *Rev. Geophys. Space Phys.*, 8 : 169-198,
- Broecker (W.S.), Gerard (R.), Ewing (M.), and Heezen (B.C.), 1960. « Natural radiocarbon in the Atlantic Ocean », *J. Geophys. Res.*, 65 : 2903-2931.
- Delibrias (G.) et Roux (C. T.), 1975. « Un exemple d'application des datations radiocarbones à l'interprétation d'une stratigraphie complexe la fouille des ateliers de Plussulien (Côtes du Nord) », *Bull. Soc. Préhistorique Française*, 72 (3) : 78-82.
- Duplessy (J.C.), Arnold (M.), Maurice (P.), Bard (E.), Duprat (J.) and Moyes (J.), 1986. « Direct dating of the oxygen-isotope record of the last deglaciation by ^{14}C accelerator mass spectrometry », *Nature*, 320 : 350-352.

- Duplessy (J. C.), Labeyrie (L.), Arnold (M.), Paterne (M.), Duprat (J.) and van Weering (T. C. E.), 1992. « Changes in surface salinity of the North Atlantic Ocean during the last deglaciation », *Nature*, 358 : 485-488,
- Duplessy (J. C.), Bard (E.), Labeyrie (L.), Duprat (J.) and Moyes (J.), 1993. « Oxygen isotope records and salinity changes in the Northeastern Atlantic Ocean during the last 18,000 years », *Paleoceanography*, 8 : 341-350.
- Fontes (J.-Ch.), 1992. « Geochemical and isotopic constraints on ^{14}C dating of groundwaters », in *Radiocarbon after four decades*, edited by R.E. Taylor, A. Long, and R.S. Kra, Springer Verlag, 242-261,
- Fontes (J.-Ch.) and Garnier (J. M.), 1979. « Determination of the initial ^{14}C activity of the total dissolved carbon : a review of the existing models and a new approach », *Water Res.*, 15, 399-413.
- Fontes (J.-Ch.) and Gasse (F.), 1991. « PALHYDAF (Paleohydrology in Africa) program: objectives, methods, major results », *Palaeogeogr. Palaeoclim., Palaeoecol.*, 84, 191-215.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), Causse (C.), and Gibert (E.), 1992. « A comparison of radiocarbon and U/Th ages on continental carbonates », *Radiocarbon* 34 : 602-610.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), and Andrews (J. N.), 1993a. « Climatic conditions of Holocene groundwater recharge in the Sahel zone of Africa », in *Proceedings of an International symposium on applications of isotope techniques in studying past and current environmental changes in the hydrosphere and the atmosphere*, I.A.E.A., Vienna,
- Fontes (J.-Ch.), Mélières (F.), Gibert (E.), Liu Qing and Gasse (F.), 1993b. « Stable isotope and radiocarbon balances of two Tibetan lakes (Sumxi Co, Longmu Co) from 13,000 BP », *Quat. Sc. Rev.*, 12 : 875-887.
- Gasse (F.) and Fontes (J.-Ch.), 1989. « Paleoenvironments and paleohydrology of a tropical closed lake (lake Asal, Djibouti) since 10,000 yr BP », *Palaeogeogr. Palaeoclim., Palaeoecol.*, 69 : 67-102.
- Gasse (F.) and Van Campo (E.), 1994. « Abrupt post-glacial climate events in West Asia and North Africa monsoon domains », *Earth Planet. Sci. Lett.*, 126 : 435-456,
- Goslar (T.), Arnold (M.) and Pazdur (M.F.), 1995 (sous presse). « The Younger Dryas cold event-was it synchronous over the North Atlantic region? », *Radiocarbon*, 37 (1).
- Hajdas (I.), 1993. *Extension of the radiocarbon calibration curve by AMS dating of laminated sediments of Lake Holzmaar*. PhD dissertation, Swiss Federal Inst. of Tech., Zürich, 147 p.
- Hadjas (I.), Ivy (S.D.), Beer (J.), Bonani (G.), Imboden (D.), Lotter (A.F.), Sturm (M.), and Suter (M.), 1993. « AMS radiocarbon dating and varve

- chronology of Lake Soppensee: 6,000 to 12,000 years BP », *Climate Dynamics*, 9 : 107-116,
- Laj (C.), Mazaud (A.) and Duplessy (J.C.), 1996. « Geomagnetic intensity and ^{14}C abundance in the atmosphere and ocean during the past 50 kyr », *Geophys. Res. Lett.*, 23 : 2045-2048.
- Lehman (B.), Laj (C.), Kissel (C.), Mazaud (A.), Paterne (M.) and Labeyrie (L.), 1996. « Relative changes of the geomagnetic field intensity during the last 280,000 years obtained from piston cores in the Açores area », *Phys. Earth and Planet. Int.*, 93 : 269-284.
- Lingelfelter (R. E.) and Ramaty (R.), 1970. « Astrophysical and geophysical variations in ^{14}C production, In Olson I. U. ed. », *Radiocarbon variations and absolute chronology*, Nobel symposium, John Wiley and sons, New York, 513-537,
- Mazaud (A.), Laj (C.), Bard (E.), Arnold (M.) and Tric (E.), 1991. « Geomagnetic field control of ^{14}C production over the last 80 ky: implication for the radiocarbon time-scale », *Geophys. Res. Lett.*, 18 : 1885-1888.
- Mazaud (A.), Laj (C.) and Bender (M.), 1994. « A geomagnetic modulation for ^{10}Be accumulation in Antarctic ice: implication for ice chronology », *Geophys. Res. Lett.*, 21 : 337-340.
- Radiocarbon Calibration 1993, *Radiocarbon*, 35 (1), 1993.
- Raisbeck (G.M.), Yiou (F.), Bourles (D.), Lorius (C.), Jouzel (J.), and Barkov (N.I.), 1987. « Evidence for two intervals of enhanced ^{10}Be deposition in Antarctic ice during the last glacial period », *Nature*, 326 : 273-277.
- Ralph (E. K.), 1959. « University of Pennsylvania radiocarbon dates », 3, *Am. J. Sci., Radiocarbon Suppl.*, I : 45-58.
- Stuiver (M.), Quay (P. D.) and Ostlund (H. G.), 1983. « Abyssal water carbon-14 distribution and the age of the world oceans », *Science*, 219 : 849-851.
- Suess (H. E.), 1970. « Bristlecone Pine calibration of the radiocarbon time scale 5 200 BC to the present, In Olson I. U. ed. », *Radiocarbon variations and absolute chronology*, Nobel symposium, John Wiley and sons, New York, 303-311.
- Valladas (H.), Cachier (H.), Maurice (P.), Bernaldo de Quiros (F.), Clottes (J.), Cabrera Valdes (V.), Uzquiano (P.), and Arnold (M.), 1992. « Direct radiocarbon dates for prehistoric painting at the Altamira, El Castillo and Niaux caves », *Nature*, 357 : 68-70.

Oklo, Natural Analogue of the radionuclides
migration through the geological barrier
*Oklo, Analogue Naturel de la migration
de radionucléides dans l'environnement*

D. LOUVAT

ABSTRACT – One of the main part of the CEC project “Oklo-Natural Analogue” is devoted to present time migration studies. This part comprises hydrogeology, groundwater chemistry, isotope geochemistry and modelling. Two sites are being investigated: the less perturbed reactor zone of the Oklo mine (OK84 in the southern mine extension of Okélobondo) at around 400 meters depth and the Bangombé reactor zone, sited in a shallow environment 30 km south of Oklo.

The present contribution aims to define regional hydrogeology and hydro-chemistry boundary conditions for the modelling exercise, to assess the present day water-rock interaction in the vicinity of reactor zones, to gather information on the geochemical conditions which allowed the preservation of reactor zones for two billions years, to estimate the uranium migration from the reactor zone in using a natural marker (the depleted $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratio resulting from the fission) and to compare these data with predictive modelling.

Based on the hydrogeological conceptual modelling, we have sampled waters in recharge areas, discharge areas above and below reactors, and in major local aquifers. We have been able to reconstruct the evolution of the groundwaters, in a way which is consistent with the hydrogeology, using major elements and environmental isotopes. Three types of groundwater circulations corresponding to different interaction/transit time within the system can be described. One type is low pH (< 6), poorly buffered, high pCO_2 , low Total Dissolved Salt. It corresponds to shallow waters. Confined waters with high pH (> 8), high alkalinities (> 10^{-3} moles.l $^{-1}$), equilibrium with respect to carbonates and secondary alumino-silicates (kaolinite, low T° adularia and albite, chalcedony) are deep groundwaters from deep pelite horizons or pene-

trating the basement. In between, waters have pH ranging from 6 to 7, alkalinities from 10^{-4} to 10^{-3} moles.l⁻¹, silica content which reflects intense leaching, increase of TDS with increasing pH. These waters which have a tendency to equilibrium with carbonates minerals are intermediate groundwater circulating into the "Complexes" formation.

Water stable isotopes results split the groundwater samples in three groups. One group includes samples from the deeper part of the Okélobondolo mine and a discharge outlet of deep flow lines in Bangombé, which have depleted isotopic contents. Surface and shallow waters which show the highest isotopic content of the set define the second group. Others samples lie along the GMWL between these two end-members. We interpret this difference in water isotopes in terms of different recharge processes. For the surface water group, the main recharge is of local origin at present time. For the isotopically depleted samples, the recharge occurred under cooler climatic conditions than present one.

In Okélobondo, the deep samples are free of atmospheric tritium and the data we have on the radiocarbon content of TDIC give a mean groundwater transit time estimation above 10,000 years. Groundwaters which belong to the group having water isotopic content intermediate between shallow waters and deep waters represent shorter aquifer pathways or mixing between the two end-members.

We have obtained a complete description and understanding of groundwater flow and chemical evolution in Okélobondo and Bangombé, including major element behaviour, redox control and uranium behaviour in groundwaters. One notes the existence of a good agreement between hydrology and hydrochemistry.

Both markers of water origin and water transit time indicate aquifer systems recharged under steady state conditions and having in this point of view, the same boundary conditions. They indicate as well that it is possible to extend the data from the shallow system (Bangombé) to the deeper one (Okélo).

The hydrochemical study validates the hydrological conceptual models of Okélobondo and Bangombé. The fossil reactor zones are sited in a discharge zone of deep flow paths having a mean transit time of some thousands of years. In Bangombé, however, the local hydrodynamical and chemical conditions are strongly influencing the radionuclides migration. The chemical control for the uranium remobilization is clearly local and associated to the occurrence of organic matter within the reaction zone. In Okélobondo, groundwater chemical conditions at the depth of the reaction zone are favourable to the migration of radionuclides. Reducing horizons are evidenced within the aquifer system down-flow the reaction zone. Geochemical markers show that these horizons could have act as chemical trap of dissolved radionuclides.

Given this set of hydrogeochemical data from the OKLO far field programme, it was possible to investigate the existence of a natural tracer of nuclear reaction zones in present-day groundwaters. We have considered $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ as the best tracer, as uranium is soluble in non reducing conditions and is the clearest signature of the effect of nuclear reactions in the reactor core uraninite. Based on hydrogeochemical considerations (degree of groundwater evolution, flowpaths, etc.), we have selected samples for uranium isotopic analyses.

Results of a complete cross-section over the Bangombé reactor zone is presented. Groundwater in contact with depleted uraninite is able to record significant uranium isotopic anomalies, and it is possible to evaluate the zone of influence of reaction zones in a steady-state hydrodynamic situation and to compare it with a predictive modelling exercise.

The combined results of these modelling efforts can be used in a performance assessment context, indicating which hydraulic processes and features are relevant. Among these are : 1) well-defined hydraulic pathways and barriers, 2) velocity distribution (heterogeneity) and associated travel times, and 3) processes governing speciation of solutes. The understanding of these features and processes together with the hydrogeochemical controls will help to explain the transport of elements associated with the reactor zones, such as the distribution of the $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ isotopic ratio, which is the main purpose of this far-field part of the Oklo natural analogue programme.

Keywords: Oklo, Natural Analogue, isotopes hydrology, geochemistry.

*

RÉSUMÉ – La préservation des réacteurs de fission nucléaire fossiles d'Oklo (Gabon) pendant près de deux milliards d'années dans les formations géologiques du Francevillien inférieur suppose une interaction limitée entre les matériaux des zones de réaction et les eaux souterraines. Cette interaction peut être observée et étudiée sur le système hydrogéologique actuel, ce qui offre la possibilité d'analyser et de modéliser le comportement d'un terme source (combustible nucléaire irradié) par rapport aux circulations aquifères établies dans le champ lointain (barrière géologique). Les objectifs du programme d'hydrogéochimie présenté ici étaient d'établir les conditions aux limites et les paramètres à utiliser dans la modélisation de la remobilisation potentielle de matériau de ces zones par les eaux souterraines puis d'étudier par le suivi d'un traceur naturel spécifique des zones de réaction (le rapport $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$) cette remobilisation.

L'étude a été menée simultanément dans deux contextes hydrogéologiques. La mine d'uranium d'Oklo, où la zone de réaction fossile considérée (OK84) est située en profondeur (400 mètres environ sous la surface du sol) sous une

couverture stratigraphique hétérogène. Le modèle hydrogéologique conceptuel construit pour la région d'Oklo place le réacteur fossile OK84 en zone de décharge des eaux souterraines. La profondeur du site et son environnement hydrogéochimique sont, dans ce cas, proche de la situation d'un stockage géologique. On a étudié parallèlement un deuxième site, le site de Bangombé, à 30 km au sud d'Oklo, où la zone de réaction est située près de la surface (une dizaine de mètres sous la surface du sol) toujours en contexte de décharge des eaux souterraines. Sur ce site, des circuits aquifères plus courts et dégagés de toute perturbation liée à l'exploitation minière, peuvent être échantillonnés au plus près de la zone de réaction et permettre une modélisation mieux contrainte de l'effet de l'interaction eau-roche de basse température sur le transport actuel de radionucléides.

L'étude chimique des eaux souterraines met en évidence l'importance du mécanisme de confinement et classe les circulations aquifères en fonction de leur degré d'évolution chimique : 1) des eaux à faible pH (< 6), faibles teneurs ioniques, représentant des circulations superficielles dans les niveaux d'altérites d'Oklo et de Bagombé ; 2) des eaux à fort pH (> 8), forte alcalinité ($> 10^{-3}$ M) et fortes teneurs ioniques (Na^+), ayant atteint l'équilibre par rapport aux minéraux carbonatés et tendant à s'équilibrer avec les alumino-silicates, collectées dans les horizons les plus profonds du système aquifère d'Oklo et témoignant de circulations profondes s'équilibrant en milieu silicaté ; 3) des eaux à pH compris entre 6 et 8, ayant des alcalinités de 10^{-4} à 10^{-3} M, des teneurs ioniques augmentant avec le pH et une tendance à l'équilibre par rapport aux minéraux carbonatés, représentant des circulations de type intermédiaire entre les circulations superficielles et les circulations profondes. Ces eaux sont prélevées à Oklo dans les niveaux du toit de la formation uranifère (niveau des « Complexes »). Certains échantillons, prélevés dans la zone générale de décharge d'Okélobondo intègrent des circulations profondes et des circulations intermédiaires venant des Complexes.

L'étude des isotopes du milieu de l'eau et des sels dissous, qui permet de remonter à l'origine de la recharge et à son temps de transit dans l'aquifère, montre que les eaux les plus confinées ont le temps de transit le plus long et procèdent d'une paléorecharge. L'étude paléohydrologique met en évidence la permanence de la recharge au moins sur les 20 000 dernières années.

Les résultats chimiques et isotopiques valident les modèles hydrogéologiques conceptuels d'Oklo et Bagombé et fixent les conditions aux limites de la modélisation du transport de soluté. La modélisation du transport autour de la zone de réaction de Bagombé doit prendre en compte la dynamique locale des eaux souterraines conditionnée par une recharge récente empruntant des circuits courts et se mélangeant au flux régional. Le contrôle chimique du transport est lui clairement local et associé à la présence de matière orga-

nique dans la zone de réaction ; à Oklo, les flux souterrains au niveau des zones de réaction, sont potentiellement remobilisateurs de radionucléides (conditions oxydantes). Des horizons réducteurs sont mis en évidence dans le système aquifère en aval des zones de réaction. Des indices géochimiques montrent que ces horizons ont pu fonctionner comme pièges à radionucléides transportés en solution.

Le rapport isotopique $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ a été considéré comme traceur car l'uranium est relativement soluble dans les eaux peu réductrices d'Oklo et il s'agit de la signature géochimique la plus tangible des zones de réaction. À Bagombé, la distance pour laquelle on détecte la migration actuelle de l'uranium appauvri venant de la zone de réaction dans les eaux souterraines est restreinte à une dizaine de mètres autour de cette zone. L'injection de ces données dans un modèle de simulation du transport de soluté permettra de quantifier ces distances.

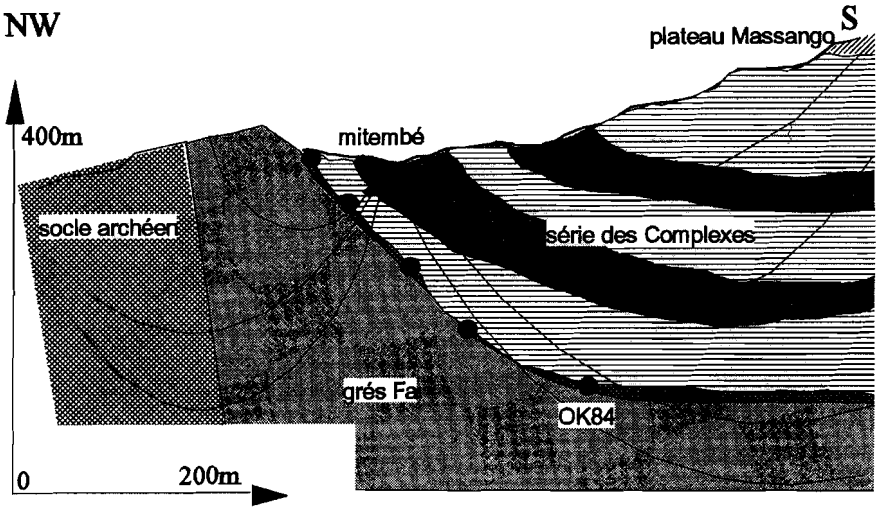
Mots clés : Analogue Naturel, géochimie isotopique, isotopes du milieu, hydrogéologie, Oklo.

*

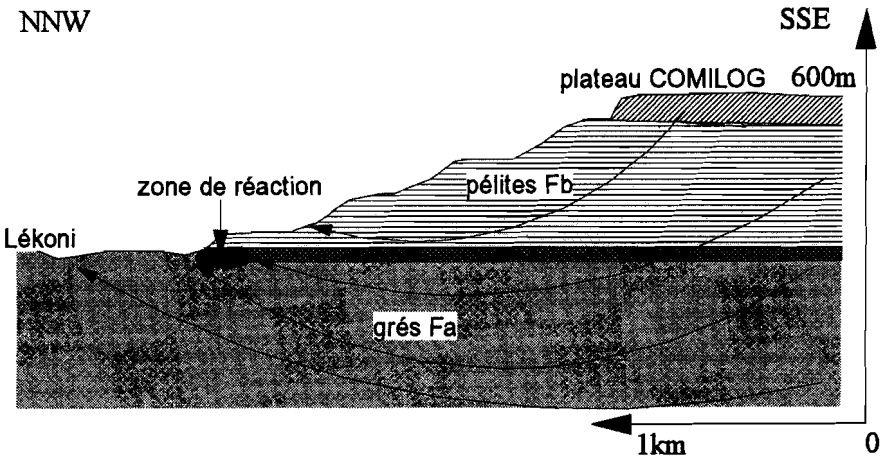
INTRODUCTION AND AIMS

To evaluate quantitatively the long term environmental impact of a geological radioactive waste disposal, geologists invented the Natural Analogue Methodology. Natural systems and processes similar to those that will occur in radioactive waste disposal, are studied as long term natural experiments and used as test-beds for repository performance assessment models.

Among several geological sites where natural analogue studies were developed, Oklo is the only one in which fission products and transuranium elements ever naturally occurred, due to the existence of natural nuclear fission reactors (Bodu *et al.*, 1972). After many studies devoted to nuclear reactor physics (see a synthesis by Naudet, 1991), the interest for applications to nuclear waste disposal problems has progressively increased (Cowan, 1975, Hagemann and Roth, 1978, Brookins, 1981, Curtis *et al.*, 1983). Despite the fact that important quantities of fission products remained within a geological environment over a long period of time, Oklo was never considered as representative of a typical waste disposal site at the global scale. The analogy is rather considered for retention and migration mechanisms in the geosphere of non reprocessed spent fuel components (uraninite, fission products and actinide decay products). Many aspects of the evolution of the Oklo reactors are now studied in this respect through the European Commission Oklo Natural Analogue Project (Von Maravic, 1992, Chapuis and Blanc, 1992) which is



Schematic hydrogeological cross-section over the Okélobondo Site.
Coupe hydrogéologique schématique du site d'Okélobondo.



Schematic hydrogeological cross-section over the Bagombé Site.
Coupe hydrogéologique schématique du site de Bagombé.

FIGURE 1.
(from Gurban *et al.*, 1994)

co-ordinated by the French Atomic Energy Commission (CEA) and groups several research institutes of European Union member states.

The present contribution which aims to illustrate the use of Isotope Hydrology in the field of the geological disposal of radioactive waste, is based on the far-field part of the Oklo Natural Analogue Project. The far-field study was launched in order to gather information on the hydrogeological and chemical conditions which allowed the preservation of the ore and reactors for almost two billion years and to use these observations and data to test models for performance assessment of nuclear waste repositories.

The reported results on regional hydrogeology and hydrochemistry: present day water-rock interaction, estimation of the uranium migration from reactor zone, using the depleted $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ isotopic ratio resulting from nuclear fission which provides a natural tracer of reactor zone material migration in groundwaters, are entirely based on papers from Toulhoat *et al.* (1994) and Louvat *et al.* (1995).

GEOLOGY AND HYDROLOGICAL CONCEPTUAL MODELS

The Oklo uranium mine is located on the territory of the Gabonese Republic, in the southeastern province of Haut-Ogooué. The project investigations are concentrated in two main areas, the Okélobondo mine, southern extension of the Oklo mine, near the city of Mounana, and the Bagombé site near the city of Moanda, 30 kilometers south of Mounana.

The uranium deposits at Oklo/Okélobondo and Bangombé occur in the basal stratigraphic unit of the Francevillian Sedimentary Series of Lower Proterozoic age (2150 Ma) which lie unconformably on the Archean basement (2700 Ma). The basal formation (FA) is 500-1000 m thick and consists of interbedded sandstones and conglomerates. The uranium mineralisation at the studied sites is lying at the top of FA formation and has been dated to around 2000 Ma. The reactor zones are contained within these uranium deposits. The FA formation is overlain by the FB formation which is dominated by black shales (Gauthier-Lafaye *et al.*, 1989).

The two sites investigated for this study are a deep one, Okélobondo (400 m below the surface) that offered the possibility to study the transfer of reactor zone product elements over a 400 m vertical distance through a very heterogeneous stratigraphy and a shallow one, Bagombé (12 m below the surface), representing a more homogeneous stratigraphy but being much more altered.

Hydrogeological conceptual model of Okélobondo

The geological cross-section and the topographical relief suggest two possible flow paths: 1) a flow path at depth emanating from the eastern recharge

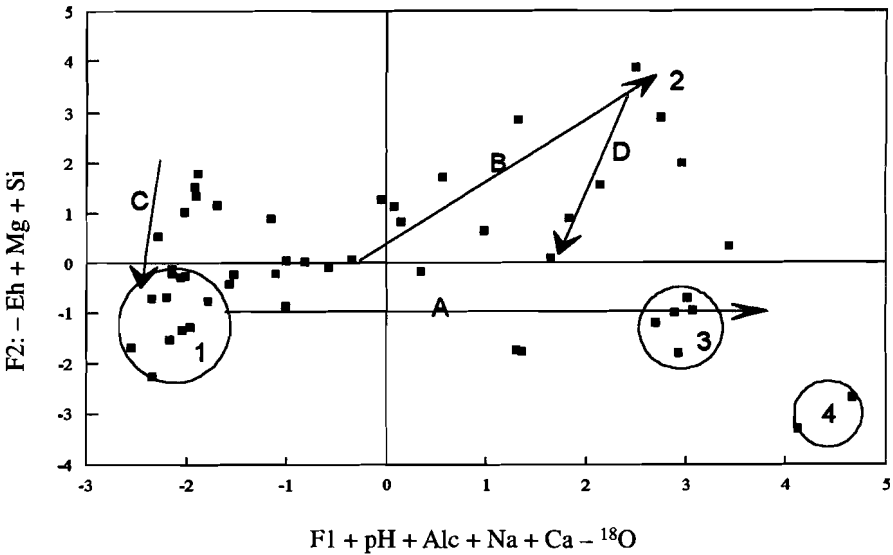


FIGURE 2.

Plot of the 2nd vs 1st factors of the PCA • groups: 1, surface and shallow waters; 2, waters from the Fb formation at Okélobondo; 3 and 4, waters from the deep part of the Okélobondo system (3: FA formation and 4: p1 pelites) • trends: A, confinement; B, evolution within the FB Complexes formation; C and D, redox effect at Bagombé (C) and Okélobondo FB formation (D).

Facteurs 1 et 2 de l'ACP • Groupe 1 : eaux de surface et superficielles ; Groupe 2 : eaux de la formation FB à Okélobondo ; Groupes 3 et 4 : eaux de la partie profonde du système d'Okélobondo (3: formation FA et 4: pélites P1) • Tendence A: confinement; Tendence B : évolution dans la formation des complexes FB ; Tendances C et D : effet redox à Bagombé (C) et dans la formation FB à Okélobondo (D).

zone and discharging along the Mitembe River valley (which is the local drainage system), with the likelihood of interacting with the mineralised layer and reactor zone OK84; 2) another deep flow path fed from the fault zone west of the Mitembe reaching the same discharge area after passing through the FA sandstones (Figure 1, from Gurban *et al.*, 1994). The preliminary modelling shows that the OK84 area is located below the discharge area confluence. The flow is directed upwards which facilitates water ascending from depth to have been in contact with the reaction zone; the area is a mixing zone between two types of deep-derived waters, one originating from the schisto-dolomitic sandstone formations, the other from the Archean bedrock and FA basement sandstones.

Hydrogeological conceptual model of Bangombé

The reactor zone is located at a depth of approximately 12 m, at the foot of a plateau, which corresponds with the local drainage of the area, the Lekoni River. The topographical relief suggests a groundwater flow in a north-east direction, water infiltrating on the plateau (named COMILOG Plateau) is assumed to discharge, due to the strong geological contrast, at the foot of the plateau and further downstream depending on the point of recharge (Figure 1, from Gurban *et al.*, 1994). As in Okélobondo, the preliminary modelling shows that the reactor zone, situated in the discharge area of the domain, is interesting for the study of radionuclide transport in the far field: water recharged on the COMILOG plateau discharges at the mineralisation and further downstream.

EVOLUTION OF GROUNDWATERS

Using the hydrogeological conceptual modelling, groundwaters have been sampled in recharge areas, discharge areas above and below reactors, and in major local aquifers. The access to the groundwaters is good in Bamgombé, in the mine and in the Oklo quarry, and poor in the "Complexes" series (FB formation at Oklo). Nevertheless, it was possible to reconstruct the evolution of the groundwaters, in a way which is consistent with the hydrogeology, using major elements and environmental isotopes.

Based on the statistical treatment of the data (Figure 2), two major guides are considered to evaluate groundwater evolution : 1) progressive acquisition of solutes by water/rock interaction and subsequent re-equilibration with secondary minerals, and 2) redox evolution and redox-sensitive element behaviour (Fe, U).

Water/rock interaction

Confinement is the most important mechanism: the dissolution of minerals from host rocks progressively increases pH, alkalinity, and major cations (Na, K, Mg, Ca). A good correlation with pH and depth is found (Figure 3). The progress of water/rock interaction for major silicates is clear: most waters plot in the kaolinite field, confined waters from the FA formation plot on the limit between low temperature K-feldspar and kaolinite, confined water from p1 pelites (basal FB) plots in the area corresponding to an equilibrium with both K feldspar and albite (Figure 4). In the last case, most major elements would be controlled by a secondary mineral assemblage (Grimaud *et al.*, 1990), although the presence of these minerals should be checked in aquifer fractures. From Figure 5, we can observe a very good agreement between the conceptual hydrogeological model and the evolution of waters as shown by Na concentrations: most Na rich waters (confined waters) are found in the discharge area

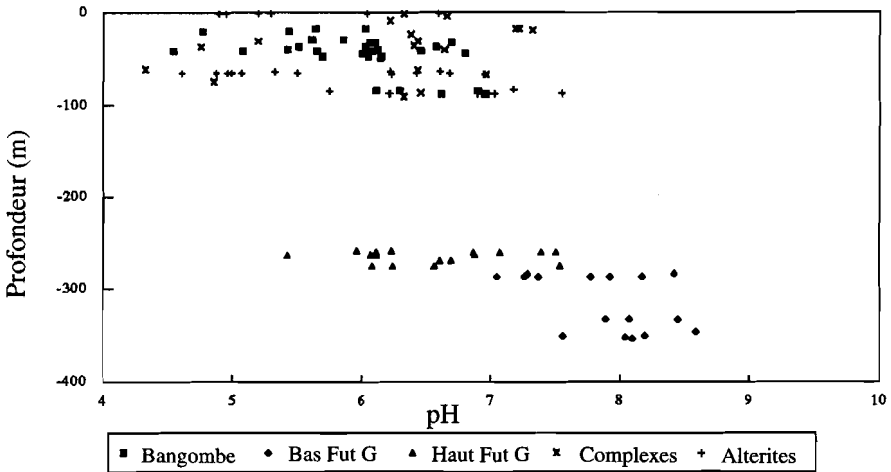


FIGURE 3.

Groundwater pH vs depth of sampling.

pH des eaux en fonction de la profondeur de prélèvement.

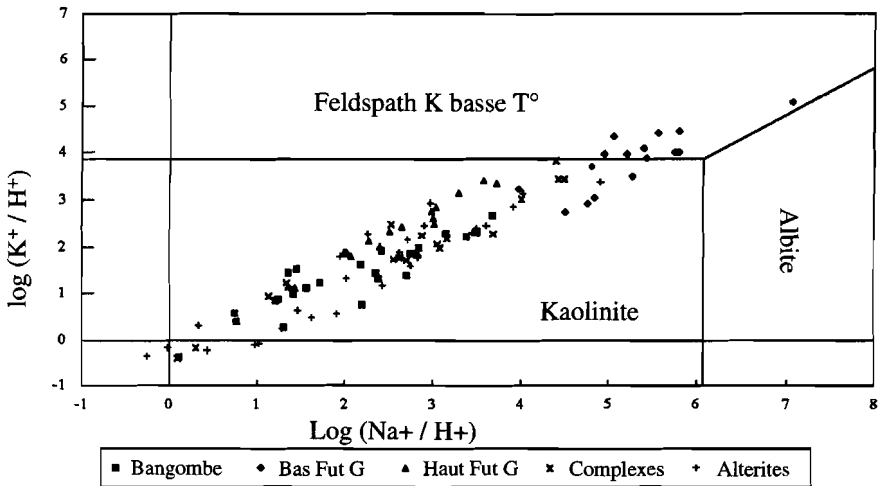


FIGURE 4

Activity diagram with phase boundaries; confined water from FA and P1 pelite formations are referenced as "bas Fut G" on the diagram.

Diagramme d'activité avec limites des phases; les eaux confinées des formations FA et pélites P1 sont notées « bas Fut G » dans le diagramme.

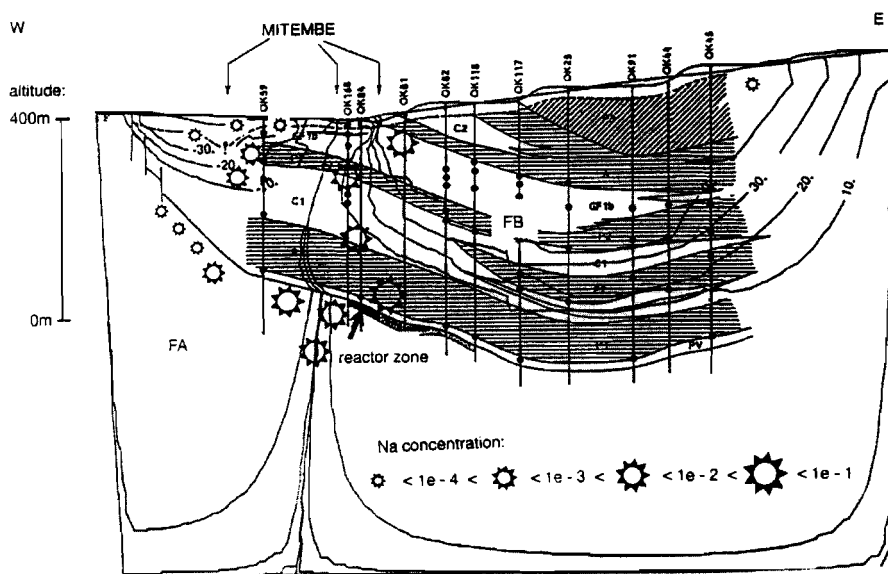


FIGURE 5 (Toulhoat *et al.*, 1994).

Cross-section through OK84. Steam lines are computed with the code METIS using piezometric and permeability measurements. Dissolved Na contents (mole.l^{-1}) are plotted at the level of the sampling points. Waters with high Na content plot on the longest flow lines.

Coupe de OK84. Les lignes de courant sont calculées par le logiciel METIS à partir des mesures de piézométrie et de perméabilité. Les teneurs en Na dissous (mole.l^{-1}) sont mentionnées au niveau des points de prélèvement. Les eaux à haute teneur en Na se situent sur les lignes de flux les plus longues.

under the Mitembe river, Na-rich waters correspond to the longest stream lines calculated by the computer code.

Redox evolution

In most aquifer systems, reducing waters are generally found in the deepest and most confined parts. This is not the case here: the Eh values are scattered, and are not correlated with depth or confinement (Figure 6). The most reducing waters are found in organic matter-bearing aquifers, such as P2 pelites, whereas deep and chemically confined waters such as in deep FA horizon reach rather high Eh values (300 to 400 mV). The redox is controlled by an equilibrium between Fe(II) (dissolved iron, some times in equilibrium with siderite) and Fe(III), as $\text{Fe}(\text{OH})_3$, ferrihydrite. This tendency is a rather general observation in many aquifers devoid of sulphides (Beucaire and Toulhoat,

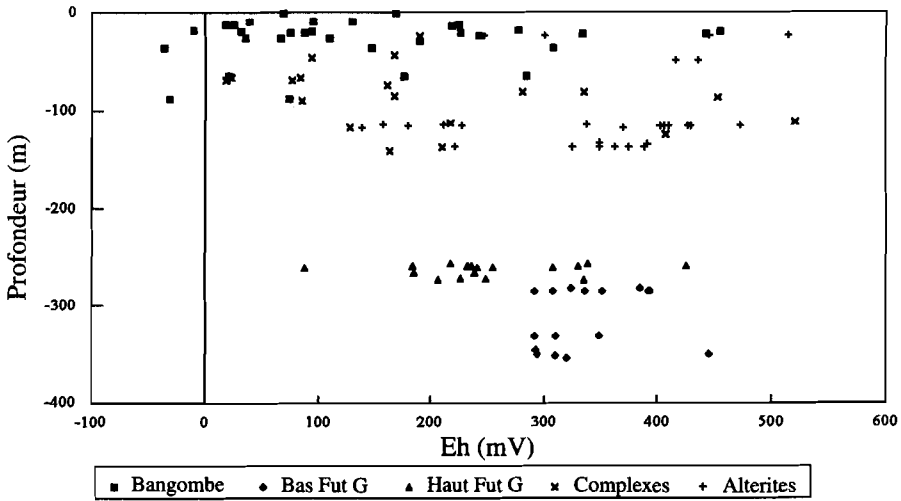


FIGURE 6.

Groundwater Eh vs depth of sampling.

Eh des eaux en fonction de la profondeur de prélèvement.

1987, Grenthe *et al.*, 1992). This kind of lithological control of Eh is very important for the migration of redox-sensitive elements such as uranium. Consequently, some deep discharging waters carrying dissolved uranium (possibly from the reactor zones) could precipitate uranium when traversing organic-matter rich formations during their ascent towards the surface.

Conclusion on groundwater chemistry

Three types of groundwater circulations corresponding to different water-rock interaction/transit time within the system can be described.

— The first type is low pH (< 6), poorly buffered, high $p\text{CO}_2$, low Total Dissolved Salt. It corresponds to shallow waters.

— Confined waters with high pH (> 8), high alkalinities (> 10^{-3} mole.l⁻¹), equilibrium with respect to carbonates and secondary aluminosilicates (kaolinite, low temperature adularia and albite, chalcedony). These waters are deep groundwaters from deep pelite horizons or penetrating the basement.

— In between, waters having pH ranging from 6 to 7, alkalinities from 10^{-4} to 10^{-3} mole.l⁻¹, silica content which reflects intense leaching, increase of TDS with increasing pH. These waters which have a tendency to equilibrium with carbonate minerals are intermediate groundwater circulating into the “Complexes” formation (FB at Oklo-Okélobondo).

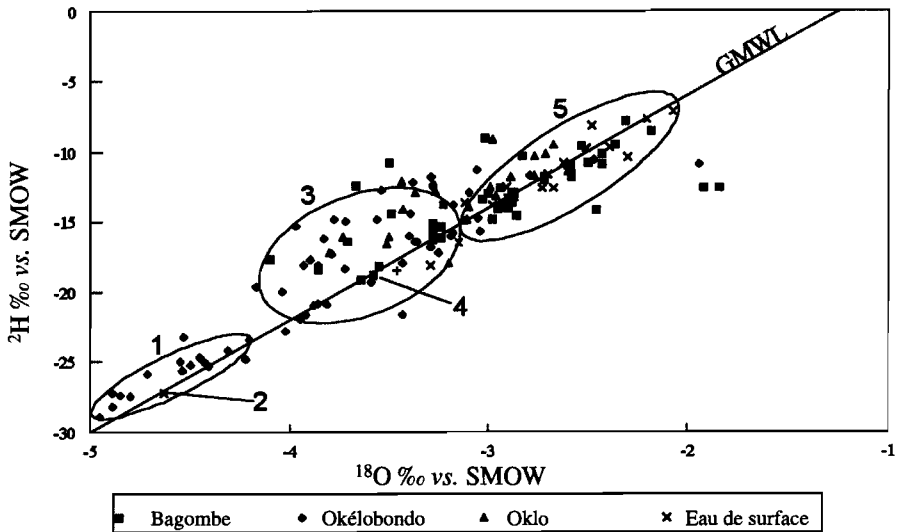


FIGURE 7.

Plot of the stable isotope content of groundwater • groups: 1, samples from the deeper horizon of the Okélobondo system (FA and p1 formations); 2, deep discharge at Bagombé; 3, samples from FB formation at Oklo and Okélobondo; 4, BAX01; 5, surface and shallow waters at Okélobondo and Bagombé.

Teneurs en isotopes stables des eaux souterraines • Groupes: 1, eaux des horizons les plus profonds du système d'Okélobondo (formation FA et pélites p1); 2, décharge profonde à Bagombé; 3, eaux de la formation FB à Oklo et Okélobondo; 4, BAX01; 5, eaux de surface et superficielles à Okélobondo et Bagombé.

GROUNDWATER ORIGIN AND DYNAMIC

The isotope contents of groundwater recharged under the present conditions are set with respect to the isotopic content of regional atmospheric precipitation. The variation of tritium content in precipitation since its increase from surface thermonuclear tests has been reconstructed on the basis of existing records from the IAEA-WMO network in Equatorial Africa (IAEA, 1992). ^3H content of the present recharge is taken at 5.5 ± 0.8 TU. The stable isotope contents of river and spring water are taken as representative of those of precipitation and identified as the present recharge end-member (Figure 7).

Groundwater origin

Water stable isotopes results split the groundwater samples in three groups. One group includes samples from the deeper part of the Okélobondo system and a discharge outlet of deep flow lines in Bagombé, which have depleted isotopic contents. Surface and shallow waters which show the highest isoto-

pic content of the set define the second group. Samples from the "Complexes" (FB) system at Okélobondo and the deepest sampling point of Bagombé (BAX01) lie along the GMWL between these two end-members (Figure 7). This difference in water isotopes is interpreted in terms of difference in the origin of the groundwater recharge. For the surface water group, the main recharge is of local origin at present time. For the isotopically depleted samples, the recharge occurred either under cooler climatic conditions than present one or on recharge area higher than those of the surface water group. The present altitude effect on the water stable isotopes content has been investigated over the studied area. A depletion effect in the ^{18}O content of -0.2‰ per 100 meters of elevation has been measured. This value is rather low but comparable to other observations in this region (Fontes and Olivry, 1976). Considering this value, there are no differences in the altitude of the catchment basins within the studied area which can account for the isotopic depletion of the deep groundwaters. This depletion therefore results from recharge processes under cooler climatic conditions than present one.

Groundwater dynamic

In Okélobondo, the deep samples are free of atmospheric tritium. Shallow waters have tritium content between 5 and 6 TU reflecting present recharge conditions and short transit time. Samples coming from boreholes sited into the "Complexes" formation have an intermediate tritium content between 5 TU (shallow waters) and 0 TU (deep situation).

The transit time estimation based on radiocarbon content of TDIC for deep samples, OK3 and OKH3, give respectively 11200 ± 1800 and 21700 ± 1700 years. Groundwaters which belong to the group having water stable isotopes and tritium content intermediate between shallow waters and deep waters represent shorter aquifer pathways or mixing between the two end-members.

Water samples coming from the OK84 reaction zone (OKH1e and OKH2e, parts of boreholes above packers intervals) show very high tritium content (above 27 TU) with respect to other samples in this zone. This content results from the *in situ* production of tritium generated via the secondary neutron flux produced by the alpha emissions from the uranium mineralization.

In Bagombé, BAXO4 and BAXO3 represent recent local recharge. At the opposite, BAXO1, which is tritium free, represents aquifer circulation extending to the recharge area on the plateau and therefore represents longer transit time. The mean transit time calculated for BAXO1 from TDIC radiocarbon data is 6300 ± 1800 years. The other samples may reflect a mixing of these two types of recharge within the discharge zone.

Paleohydrological information

In site characterization, paleohydrological reconstruction improves the robustness of boundary conditions used in flow-mass transport modelling. However as pointed out by Fontes *et al.* (1993), various processes tend to smooth recorded climate fluctuations in aquifers. Therefore, for low-frequency climate signals, as it is the case in Equatorial region, the use of groundwater as archives of climate is limited. Owing to that, the approach used in this study is rather to verify the consistency of groundwater isotopes evolution with respect to already existing paleoclimate reconstruction for Equatorial Africa.

In Figure 8, estimated transit time based on $^{14}\text{C}_{\text{T DIC}}$ content of 3 samples representing 3 different flow-lines are plotted *versus* their water stable isotopes content. The longest transit time calculated, the lower ^{18}O content is. These data are compared with mean air temperature on the Chaillu massif, estimated during the last glacial maximum and measured today (Maley and Elenga, 1993). Two air temperature reconstructions for Equatorial Africa, based on statistical treatment of fossil pollen records (Bonnefille *et al.*, 1990; Vincens *et al.*, 1993), have been added in Figure 8 for comparison to the Chaillu situation.

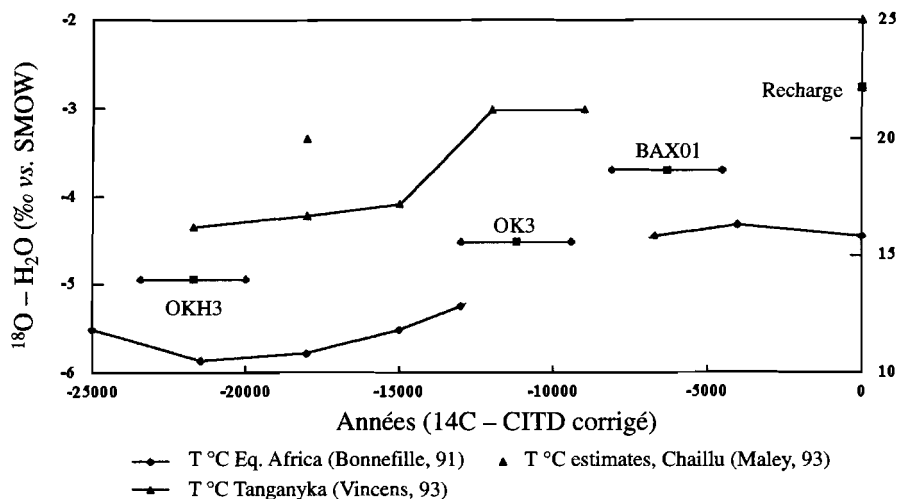


FIGURE 8.

Comparison of groundwater isotope content evolution with time in Okélobondo and Bagombé aquifer systems and mean air temperature reconstruction for Equatorial Africa.

Comparaison de l'évolution au cours du temps des teneurs en isotopes des eaux des systèmes aquifères d'Okélobondo et de Bagombé et de la reconstitution de la température moyenne de l'air pour l'Afrique équatoriale.

The mean isotope/temperature gradient that can be estimated for the Oklo region, since the cooling related to the last glacial maximum, is of 0.5‰/1 °C and is consistent to what is estimated for other intertropical regions (Stute, these proceedings). Taking into account the aquifer dispersion, the ^{18}O evolution within the aquifer systems of Okélobondo and Bagombé is consistent with temperature evolution over time.

CONCLUSION ON CONCEPTUAL HYDROLOGICAL MODELS

A complete description and understanding of groundwater flow and chemical evolution in Okélobondo and Bagombé, including major element behaviour, redox control and uranium behaviour in groundwaters has been obtained. One notes the existence of a good agreement between hydrology and hydrochemistry.

Both markers of water origin and water transit time indicate aquifer systems recharged under steady state conditions and having, in this point of view, the same boundary conditions. They indicate as well that it is possible to extend the data from the shallow system (Bagombé) to the deeper one (Okélobondo).

The hydrochemical study validates the hydrological conceptual models of Okélobondo and Bagombé. The fossil reactor zones are sited in a discharge zone of deep flow paths having a mean transit time of some thousands of years.

In Bagombé, however, the local hydrodynamical and chemical conditions are strongly influencing the radionuclides migration. The chemical control for the uranium remobilisation is clearly local and associated to the occurrence of organic matter within the reaction zone.

In Okélobondo, groundwater chemical conditions at the depth of the reaction zone are favourable to the migration of radionuclides. Reducing horizons are evidenced within the aquifer system down-flow the reaction zone. Geochemical markers show that these horizons could have act as chemical trap of dissolved radionuclides.

U ISOTOPES RATIO AS TRACER OF REACTOR LEACHING

Given this set of hydrogeochemical data from the Oklo far-field programme, it was possible to investigate the existence of a natural tracer of nuclear reaction zones in present-day groundwaters. $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ has been considered as the best tracer, as uranium is soluble in non reducing conditions and is the clearest signature of the effect of nuclear reactions in the reactor core uraninite. In addition, ^{235}U and ^{238}U both initiate their respective radioactive decay chains. Therefore, alpha recoil or any geochemical perturbation which are encountered using ^{234}U and ^{238}U cannot be considered. Samples selection for uranium isotopic analyses, has been based on hydrogeochemical considerations (degree of groundwater evolution, flowpaths, etc.).

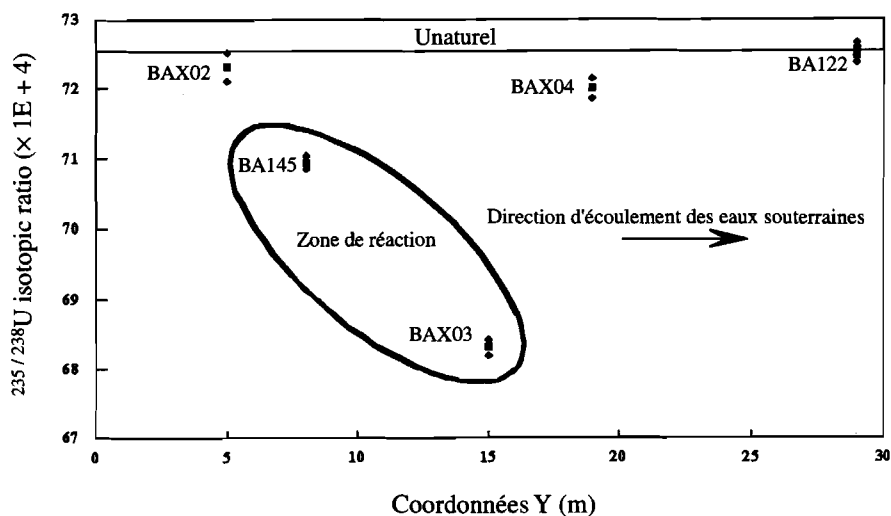


FIGURE 9.

Evolution of the $^{235}/^{238}\text{U}$ ratio of dissolved uranium over a cross section through the Bagombé reaction zone. Waters sampled in boreholes BA145 and BAX03, drilled through the reaction zone show a depleted U isotopic ratio. Up-flow, sample from BAX02 borehole shows a natural U isotopic ratio. Down-flow, the influence of the reaction zone on U isotopic ratio can still be recorded in BAX04 but not in BA122.

Évolution du rapport $^{235}/^{238}\text{U}$ de l'uranium dissous sur une section de la zone de réaction de Bagombé. Les eaux prélevées dans les sondages BA145 et BAX03, forés dans la zone de réaction, montrent un rapport isotopique de l'uranium appauvri. En amont, l'eau du forage BAX02 montre un rapport isotopique naturel. En aval, l'influence de la zone de réaction sur le rapport isotopique de l'uranium en solution peut encore être détectée sur BAX04, mais non sur BA122.

Results of a complete cross-section over the Bangombé reactor zone is presented in Figure 9. Groundwater in contact with depleted uraninite (BAX03 situation) is able to record significant uranium isotopic anomalies, and it is possible to evaluate the zone of influence of reaction zones in a steady-state hydrodynamic situation and to compare it with a predictive modelling exercise (Gurban *et al.*, 1995).

The combined results of these modelling efforts can be used in a performance assessment context, indicating which hydraulic processes and features are relevant. Among these are: 1) well-defined hydraulic pathways and barriers, 2) velocity distribution (heterogeneity) and associated travel times, and 3) processes governing speciation of solutes. The understanding of these features and processes together with the hydrogeochemical controls help to

explain the transport of elements associated with the reactor zones, such as the distribution of the $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ isotopic ratio, which is the main purpose of this far-field part of the Oklo natural analogue programme.

IN MEMORIAM

“Predictive modelling of flow-mass transport is, when unconstrained by data, often worse than no model at all”: this statement from Jean-Charles Fontes (1994) is nowadays common sense. However, the complete integration of information provided by natural geochemical tracers to constraint modelling has requested from Isotope Hydrologists constant efforts and demonstrations. The recognition of Isotope Hydrology as a necessary step in site characterization for geological radioactive waste disposal results from the strong involvement of few people, and among them Jean-Charles Fontes, to promote it in that particular field of application. The Isotope Hydrology part of the methodological approach used in this study represents, to a large extent, the lessons that I learnt during ten years of scientific collaboration with Jean-Charles Fontes and for which I wished to pay him this tribute.

REFERENCES

- Beaucaire (C.) and Toulhoat (P.), 1987. “Redox chemistry of uranium and iron, radium geochemistry, and uranium isotopes in the groundwaters of the Lodève Basin, Massif Central, France”. *Appl. Geochem.*, 2: 417-426.
- Bodu (R.), Bouzigues (H.), Murin (N.) and Pfiffelmann (J.P.), 1972. “Sur l’existence d’anomalies isotopiques rencontrées dans l’uranium du Gabon”. *C.R. Acad. Sci.*, 275D, 1731.
- Bonnefille (R.), Roeland (J.C.) et Guiot (J.), 1990. *Nature*, 346: 6282, 347-349.
- Brookins (D.G.), 1981. “Alkali and alkaline earth element studies at Oklo”. In: *Scientific Bases for Nuclear Waste Management*. III. J.G. Moore ed. Plenum Press, New York, pp. 275-282.
- Chapuis A.M. and Blanc (P.L.), 1992. “Oklo, natural analogue for transfer processes in a geological repository: an overview”. *Oklo working Group Meeting, proceedings of the 2nd joint CEC-CEA progress meeting*, 6-7 April 1992. EUR Rep. 14877 EN. pp. 9-13.
- Cowan (G.A.), 1975. “Migration paths for Oklo reactor products and application to the problem of geological storage of nuclear wastes”. *IAEA-SM-204, International Atomic Energy Agency*, Paris, France, pp. 693-699.
- Curtis (D.B.), Benjamin (T.M.), and Gancarz (A.J.), 1983. “The Oklo reactors: Natural analogs to nuclear waste repositories”. LA-UR-81-3/83. *Los Alamos National Lab. Report*.

- Fontes (J.-Ch.) et Olivry (J.C.), 1976. "Premiers résultats sur la composition isotopique des précipitations de la région du Mont Cameroun". *Cah. Orstom, Sér. Hydrol.*, 13 : 179-194.
- Fontes (J.-Ch.), Stute (M.), Schlosser (P.) and Broeker (W.), 1993. "Aquifers as Archives of Paleoclimate". *American Geophysical Union*, 74-02 : 21-22.
- Fontes (J.-Ch.), 1994. "Isotope paleohydrology and the prediction of long-term repository behaviour". *Terra Nova*, 6 : 20-36.
- Gauthier Lafaye (F.), Weber (F.) and Ohmoto (H.), 1989. "Natural Fission reactors of Oklo". *Econ. Geol.*, 84 : 2286-2295.
- Grenthe (I.), Stumm (W.), Laaksoharju (M.), Nilsson (A.C.), and Wikberg (P.), 1992. "Redox potentials and redox reactions in deep groundwater systems". *Chem. Geology*, 98 : 131-151.
- Grimaud (D.), Beaucaire (C.) and Michard (G.), 1990. "Modelling of the groundwaters in a granite system at low temperature: the Stripa groundwaters (Sweden)". *Appl. Geochem.*, 5 : 515-525.
- Gurban (I.), Ledoux (E.) and Winberg (A.), 1994. "Caractérisation et modélisations des migrations à distance des zones de réaction: Synthèse des investigations hydrogéologiques réalisées sur les sites d'Okélobondo et Bagombé". *Rapport final, contrat CCE "Oklo-Analogue naturel"*, 35 p.
- Gurban (I.), Ledoux (E.), Madé (B.), Salignac (A.-L.) and Winberg (A.), 1995. "Hydrodynamic modelling of flow and solute transport in Okélobondo and Bangombé". *Proc. Oklo Final meeting*, Paris, June 1995. *In Press*.
- Hagemann (R.), Roth (E.), 1978. "Relevance of the studies of the Oklo nuclear reactors to the storage of radioactive wastes". *Radiochim. Acta*, 25 : 241.
- International Atomic Energy Agency, 1992. "Statistical treatment of data on environmental isotopes in precipitation". *Technical Report Series n° 331*. IAEA, Vienna. 781 p.
- Louvat (D.), Toulhoat (P.) and Smellie (J.), 1995. "Caractérisation et modélisations des migrations à distance des zones de réaction: Synthèse des investigations hydrogéochimiques réalisées sur les sites d'Okélobondo et Bagombé". *Rapport final, contrat CCE "Oklo-Analogue naturel"*, 60 p.
- Maley (J.) et Elenga (H.), 1993. *Veille Climatique Satellitaire*, Orstom Ed., 46 : 51-63.
- Naudet (R.), 1991. *Oklo, des réacteurs nucléaires fossiles – Étude physique*. Coll.CEA, Eyrolles, Paris, 685 p.
- Stute (M.), 1997. "Where the tropics significantly cooler during the last glacial maximum ?", in *Hydrologie et géochimie isotopique*, Paris 1997, Orstom, 308 p. (cf. p. 219).
- Toulhoat (P.), Gallien (J.P.), Louvat (D.), Moulin (V.), L'Henoret (P.), Guerin (R.), Ledoux (E.), Gurban (I.), Smellie (J.A.T.) and Winberg (A.), 1994. "Preliminary studies of groundwater flow and migration of uranium

isotopes around the Oklo natural reactors". *Proceedings of the 4th International Conference on the Chemistry and Migration of Actinides and Fission Products in the Geosphere*. Charleston, 12-17 décembre 1993. 383-390.

Vincens (A.), Chalié (F.), Bonnefille (R.), Guiot (J.) et Tiercelin (J.J.), 1993. *Quaternary Res.* 40 : 343-350.

Von Maravic (H.) (1992) Foreword. "Oklo Working Group Meeting", *Proceedings of the 2nd joint CEC-CEA Progress Meeting*, Brussels, 6-7 April 1992. EUR Rep. 14877 EN. pp. III.

Travaux
de Jean-Charles Fontes

Jean-Charles Fontes
bibliography

Les travaux de Jean-Charles Fontes

L'œuvre de Jean-Charles Fontes est celle d'un naturaliste au sens authentique du terme. Il a donc mis en œuvre une réelle pluridisciplinarité au service de la compréhension de la nature dans toute sa complexité. Il écrivait, en conclusion de sa *Notice de titres et travaux* : « Le goût des phénomènes et des objets naturels me garda dans le domaine des Sciences réputées conjecturales, avec toutefois le très ferme souhait de pouvoir leur consacrer le plus possible d'approche déterministe... Je rends grâce à la Géochimie de m'avoir procuré la satisfaction de ce goût et la réalisation de ce souhait ».

Ses travaux ont été et resteront une référence pour ses nombreux élèves, ses collaborateurs et la communauté scientifique. La somme de ses publications, dont nous avons tenté de rassembler la liste ci-après, illustre la variété des sujets et des problèmes abordés dans le contexte de domaines thématiques, géographiques, hydrologiques et climatiques divers, tant dans les conditions actuelles que dans le passé et notamment au cours du Quaternaire récent.

Christiane Causse et Françoise Gasse

1962

Dubois (R.), Fontes (J.-Ch.), 1962. « Sur le Crétacé supérieur du Dévoluy (Hautes-Alpes) et ses relations avec les régions voisines ». *Bull. Soc. Géol. de France*, 7 (IV) : 607-611.

1963

Bowen (R.), Fontes (J.-Ch.), 1963. « Paléotempératures indiquées par l'analyse isotopique de fossiles du Crétacé inférieur des Hautes-Alpes (France) ». *Experientia*, XIX : 1-8.

Fontes (J.-Ch.), Glangeaud (L.), Gonfiantini (R.), Tongiorgi (E.), 1963. « Composition isotopique et origine des eaux et gaz thermaux du Massif Central ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 256 : 472-474.

Fontes (J.-Ch.), Gonfiantini (R.), Tongiorgi (E.), 1963. « Composition isotopique et origine de la série évaporitique du bassin de Paris ». *C.R. Som. Séances Soc. Géol. de France*, 3 : 92-95.

Fontes (J.-Ch.), Mercier (J.), Sigal (J.), 1963. « L'Aptien-Albien dans le massif du Dévoluy ». *Mémoire B.R.G.M. Colloque sur le Crétacé inférieur*, 34 : 747-752.

Fontes (J.-Ch.), Sornay (J.), 1963. « Quelques considérations paléogéographiques et paléontologiques sur le Nécomien du Dévoluy (Hautes-Alpes) ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 254 : 4319-4321.

Gonfiantini (R.), Fontes (J.-Ch.) 1963. « Oxygen isotopic fractionation in the water of crystallization of gypsum ». *Nature*, 200 (4907) : 644-646.

1965

Fontes (J.-Ch.), 1965. « Fractionnement isotopique dans l'eau de cristallisation du sulfate de calcium ». *Geologische Rundschau*, 55 : 172-178.

Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.) Marcé (A.), 1965. « Some results of oxygen isotope studies of marine waters ». In *Stable Isotopes in Oceanographic Studies and Paleotemperatures*, Spoleto, Ed. E. Tongiorgi, 131-141.

Fontes (J.-Ch.), Marcé (A.), Létolle (R.), 1965. « Analyse isotopique de l'oxygène en géologie. Problèmes techniques ». *Rev. Géogr. Phys. Géol. Dyn.*, VII (2) : 123-133.

Létolle (R.), Marcé (A.), Fontes (J.-Ch.), 1965. « Un spectromètre de masse pour mesure de précision des abondances isotopiques de l'oxygène et du carbone ». *Bull. Soc. Franç. Minér. Crist.*, LXXXVIII : 417-421.

- Létolle (R.), Fontes (J.-Ch.), Tivollier (J.), Blondeau (A), Pomerol (C.), 1965. « A tentative interpretation of oxygen isotope analysis of tertiary mollusks of the Paris basin ». In *Stable Isotopes in Oceanographic Studies and Paleotemperatures*, Spoleto, Ed. E. Tongiorgi, 213-222.

1966

- Conrad (G.), Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), Roche (M.), 1966. « Étude isotopique de l'oxygène des eaux de la région de la Haute Saoura (Sahara Nord-Occidental) ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 262 (D) : 1058-1061.
- Fontes (J.-Ch.), 1966. « Intérêt en géologie d'une étude isotopique de l'évaporation. Cas de l'eau de mer ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 263 (D) : 1950-1953.
- Fontes (J.-Ch.), Gauthier (J.), Kulbicki (G.), 1966. « Paramètres isotopiques et géochimiques du gypse parisien (étude préliminaire) ». *C.R. Som. Séances Soc. Géol. France.*, 3 : p. 119.
- Fontes (J.-Ch.), Nielsen (H.), 1966. « Isotopes de l'oxygène et du soufre dans le gypse parisien ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 262 (D) : 2685-2687.
- Fritz (P.), Fontes (J.-Ch.), 1966. « Fractionnement isotopique pendant l'attaque acide des carbonates naturels. Rôle de la granulométrie ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 263 (D) : 1345-1348.

1967

- Fontes (J.-Ch.), Fritz (P.), Gauthier (J.), Kulbicki (G.), 1967. « Minéraux argileux, éléments-traces et compositions isotopiques ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ et $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) dans les formations gypsifères de l'Eocène supérieur et de l'Oligocène de Cormeilles-en-Parisis ». *Bull. Centre Rech. Pau-SNPA*, 1 (2) : 315-366.
- Fontes (J.-Ch.), Gonfiantini (R.), 1967. « Comportement isotopique au cours de l'évaporation de deux bassins sahariens ». *Earth and Planetary Science Letters*, 3 (3) : 258-266.
- Fontes (J.-Ch.), Gonfiantini (R.), 1967. « Fractionnement isotopique de l'hydrogène dans l'eau de cristallisation du gypse ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 265 (D) : 4-6.
- Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), Olive (Ph.), Blavoux (B.), 1967. « Oxygène-18 et tritium dans le bassin d'Evian ». *Isotopes in Hydrology*, IAEA, Vienna, 401-415.
- Glangeaud (L.), Blavoux (B.), Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), Olive (Ph.), 1967. « Utilisation des méthodes isotopiques dans l'étude des eaux minérales ». *La Presse Thermale et Climatique*, 2^e trimestre, 1-4.

1968

- Duplax (S.), Fontes (J.-Ch.), Fritz (P.), Sélo (M.), 1968. « Connaissance du gypse parisien. Contribution sédimentologique ». *Rev. Géogr. Phys. Géol. Dyn.*, X (1) : 27-33.
- Fontes (J.-Ch.), 1968. « Le gypse du Bassin de Paris. Historique et données récentes ». *Mémoire du B.R.G.M., Colloque sur l'Eocène*, 58 : 361-386.
- Fontes (J.-Ch.), Gonfiantini (R.), 1968. « Comportement isotopique au cours de l'évaporation de deux bassins sahariens (erratum) ». *Earth and Planetary Science Letters*, 3 (4) : 386.

1969

- Fontes (J.-Ch.), Gohau (G.), 1969. « Deux siècles de querelle autour de l'origine du gypse parisien ». *Revue Science Progrès "La Nature"*, Dunod, Paris, 3413 : 336-340.
- Fontes (J.-Ch.), Kulbicki (G.), Létolle (R.), 1969. « Les sondages de l'atoll de Mururoa : aperçu géochimique et isotopique de la série carbonatée ». *Cahiers du Pacifique*, 13 : 69-73.
- Fontes (J.-Ch.) Lucas (J.), 1969. « Contribution de la géochimie à l'étude de l'Eocène du Bassin de Paris ». *Mémoire du B.R.G.M., Colloque sur l'Eocène*, 69 : 341-348.
- Fontes (J.-Ch.), Maglione (G.), Roche (M.A.), 1969. « Données isotopiques préliminaires sur les rapports du lac Tchad avec les nappes de la bordure nord-est ». *Cahiers Orstom, série Hydrologie*, VI (1) : 17-34.
- Glangeaud (L.), Fontes (J.-Ch.), 1969. « La paléoclimatologie du Quaternaire ; avant-propos ». *Rev. Géogr. Phys. Géol. Dyn.*, Num. spéc. Travaux du 8^e congrès de l'Union Internationale pour l'Étude du Quaternaire, 11 (3) : 249-250.

1970

- Artru (Ph.), Faure (H.), Fontes (J.-Ch.), Gauthier (J.), Kulbicki (G.), 1970. « Résultats préliminaires de l'étude géochimique de sédiments du Quaternaire Supérieur de la Sebkhah de Ndrhamcha (Mauritanie) ». *Bull. Assoc. Séd. Fr.*, 12 p.
- Bortolami (G.), Fontes (J.-Ch.), Panichi (C.), 1970. « Hydrogéologie isotopique de la plaine de Venise. Premiers résultats et perspectives ». *Convegno Internazionale Sulle Acque sotterranee*, Palermo, 797-803.
- Conrad (G.), Fontes (J.-Ch.), 1970. « Hydrologie isotopique du Sahara Nord-Occidental ». *Isotope Hydrology*, A.I.E.A., Vienna, 405-419.

- Faure (H.), Fontes (J.-Ch.), Gischler (C.E.), Mook (W.G.), Vogel (J.C.), 1970. « Un exemple d'étude d'hydrogéologie isotopique en pays semi-aride, le bassin du lac Tchad ». *Journal of Hydrology*, 10 : 141-150.
- Fontes (J.-Ch.), Fritz (P.), Létolle (R.), 1970. « Composition isotopique, minéralogique et genèse des dolomies du Bassin de Paris ». *Geochim. Cosmochim. Acta*, 34 (3) : 279-294.
- Fontes (J.-Ch.), Gonfiantini (R.), 1970. « Composition isotopique de la vapeur d'eau atmosphérique dans la région du lac Léman ». *Earth and Planetary Science Letters*, 7 : 325-329.
- Fontes (J.-Ch.), Gonfiantini (R.), Roche (M.A.), 1970. « Deutérium et oxygène-18 dans les eaux du lac Tchad ». *Isotope Hydrology*, A.I.E.A., Vienne, 387-404.
- Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), Mélières (F.), 1970. « Étude isotopique des faciès du Cocobeach supérieur du Gabon et du Congo ». *Rap. SNPA*, VI : 19 p.
- Fontes (J.-Ch.), Maglione (G.), Roche (M.A.), 1970. « Éléments d'hydrologie isotopique dans le bassin du lac Tchad ». *Peaceful uses of atomic energy in Africa*, A.I.E.A., Vienne, 209-219.

1971

- Fontes (J.-Ch.), 1971. « Un ensemble destiné à la mesure de l'activité du radio-carbone naturel par scintillation liquide ». *Rev. Géogr. Phys. Géol. Dyn.*, XIII (1) : 67-86.
- Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), Faure (H.), Elouard (P.), 1971. « Paléoclimatologie isotopique et paléoécologie du littoral holocène de Mauritanie ». *Quaternaria*, XIV : 209-210.
- Fontes (J.-Ch.), Perthuisot (J.P.), 1971. « Faciès minéralogiques et isotopiques des carbonates de la Sebkhah el Melah (Zarzis, Tunisie) : les variations du niveau de la Méditerranée orientale depuis 40 000 ans ». *Rev. Géogr. Phys. Géol. Dyn.*, XIII (4) : 299-314.

1972

- Bricout (J.), Fontes (J.-Ch.), Merlivat (L.), 1972. « Sur la composition en isotopes stables de l'eau des jus d'oranges ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 274 (D) : 1803-1806.
- Conrad (G.), Fontes (J.-Ch.), 1972. « Circulations, aires et périodes de recharge dans les nappes aquifères du Nord-Ouest saharien : données isotopiques (^{18}O , ^{13}C , ^{14}C) ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 275 (D) : 165-168.
- Fontes (J.-Ch.), 1972. « Quelques aspects isotopiques du cycle des eaux naturelles ». European Molecular Biology Organization, Colloque International *Isotopes de l'Oxygène*, CEA, CEN, Cadarache, 197-225.

- Fontes (J.-Ch.), Bortolami (G.), 1972. « Subsidence of the area of Venice during the past 40,000 years ». Consiglio Nazionale delle Ricerche, Laboratorio per lo studio della dinamica delle grandi masse, *Techn. Rep.*, Venezia, 24 : 1-11.
- Fontes (J.-Ch.) Létolle (R.), Nesteroff (W.D.), 1972. « Les forages DSDP en Méditerranée (Leg. 13) : reconnaissance isotopique ». In *The Mediterranean Sea*, Part II, D.J. Stanley Ed. Dowden, Hutchinson et Ross Inc., Stroudsborg, Pa., 671-680.

1973

- Blavoux (B.), Fontes (J.-Ch.), Jacob (P.), Létolle (R.), 1973. « Recherches hydrochimiques et isotopiques sur les systèmes aquifères du massif du Mont-Dore ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Société Géologique de France, p. 83.
- Bortolami (G.), Fontes (J.-Ch.), Markgraf (V.), Saliège (J.F.), 1973. « Land, sea and climate in the high adriatic area during Late Pleistocene and Holocene ». *9th Congress International Union for Quaternary Research Abstracts*, University of Canterbury, Christchurch, New Zealand, 9 : 35.
- Bortolami (G.), Fontes (J.-Ch.), Panichi (C.), 1973. « Isotopes du milieu et circulations dans les aquifères du sous-sol vénitien ». *Earth and Planetary Science Letters*, 19 (2) : 154-167.
- Bortolami (G.), Fontes (J.-Ch.), Panichi (C.), 1973. « Résultats préliminaires sur les teneurs en isotopes de l'environnement et circulation dans les aquifères du sous-sol vénitien ». Consiglio Nazionale delle Ricerche., Laboratorio per studio della dinamica delle grandi masse, *Techn. Rep.*, Venezia, 35 : 1-20.
- Bricout (J.), Merlivat (L.), Fontes (J.-Ch.), 1973. « Sur la composition en isotopes stables de l'eau des jus de pommes ». *Industries Alimentaires et Agricoles*, 90^e année, 1 : 1-4.
- Fontes (J.-Ch.), Bortolami (G.), 1973. « Subsidence of the Venice area during the past 40,000 year ». *Nature*, 244 (5415) : 339-341.
- Fontes (J.-Ch.), Lagny (P.), 1973. « Aperçu géochimique et isotopique sur la genèse des faciès dolomitiques liés aux surfaces d'émergence du Trias moyen dans la région de Sappada (Belluno, Italie) ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Société Géologique de France, p. 187.
- Fontes (J.-Ch.), Lepvrier (C.), Mélières (F.), Pierre (C.), 1973. « Le grand épisode évaporitique méditerranéen au Miocène supérieur : prémices géochimiques, minéralogiques et isotopiques d'une étude ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Société Géologique de France, p. 188.

- Fontes (J.-Ch.), Lepvrier (C.), Mélières (F.), Pierre (C.), 1973. « Isotopes stables dans les carbonates évaporitiques du Miocène supérieur de Méditerranée occidentale ». In *Messinian events in the Mediterranean*, Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen, Amsterdam, 91-100.
- Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), 1973. « Approche géochimique et isotopique des conditions de diagenèse et d'épigenèse des carbonates sur un atoll dolomitisé (Mururoa) ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Société Géologique de France, p.189.
- Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), Nesteroff (W.D.), Ryan (W.B.F.), 1973. « Oxygen, carbon, sulfur and hydrogen stable isotopes in carbonate and sulfate mineral phases of neogene evaporites, sediments and in interstitial waters ». *Initial reports of the Deep Sea Drilling Project*, Washington U.S. Government Printing Office, XIII : 788-795.
- Fontes (J.-Ch.), Moussié (C.), Pouchan, (P.), Weidmann (M.), 1973. « Phases humides au Pléistocène supérieur et à l'Holocène dans le sud de l'Afar (TFAI) ». *C.R. Acad. Sc., Paris*, 277 (D) : 1973-1976.
- Fontes (J.-Ch.), Perthuisot (J.P.), 1973. « Climatic recorder for the past 50,000 years in Tunisia ». *Nature*, 244 (135) : 74-75.

1974

- Bortolami (G.), Fontes (J.-Ch.), 1974. « Idrogeologia isotopica in un sistema multifalce : la pianura veneta ». Consiglio Nazionale delle Ricerche, Laboratorio per lo studio della dinamica delle grandi masse, *Techn. rep.*, Venezia, 82 : 1-15.
- Bricout (J.), Fontes (J.-Ch.), Merlivat (L.), 1974. « Detection of Synthetic Vanillin in Vanilla Extracts by Isotopic Analysis ». *Journal Assoc. Official Analytical Chemists*, 57 : 713-715.
- Bricout (J.), Fontes (J.-Ch.), 1974. « Distinction analytique entre sucre de canne et sucre de betterave ». *Ann. Fals. Exp. Chim.*, 716 : 311-315.
- Bricout (J.), Fontes (J.-Ch.), Merlivat (L.), 1974. « Sur la composition en isotopes stables de l'eau des jus de raisins ». *Connaissance de la vigne et du vin*, 2 : 161-169.
- Carbonnié (M.), Deicha (G.), Fontes (J.-Ch.), Labourguigne (J.), Le Calvez (Y.), Mégnien (Cl.), Pomerol (Ch.), Renard (M.), Sabouraud (C.), 1974. « Compte-rendu des discussions sur l'origine du gypse Ludien ». *Bull. Inf. des Géologues du Bassin de Paris*, 41 : 67-68.
- Fontes (J.-Ch.), 1974. « Échange de vues sur quelques aspects des évaporites "avant-propos" ». *Rev. Géogr. Phys. Géol. Dyn.*, XVI (2) : 147-150.

- Fontes (J.-Ch.), 1974. « L'enfoncement de Venise : méthodes modernes d'investigation ». *Le courrier du CNRS*, 11 : 39-44.
- Fontes (J.-Ch.), 1974. « Le dossier du gypse parisien. Essai critique sur la notion de faciès ». *Bull. Inf. des Géologues du bassin de Paris*, 41 : 7-14.
- Fontes (J.-Ch.), Bortolami (G.-C.), 1974. « Évolution des confins adriatiques septentrionaux au Pléistocène supérieur et à l'Holocène ». CNRS, Colloque International. *Les Méthodes quantitatives d'étude des variations climatiques au cours du Pléistocène*, 155-161.
- Fontes (J.-Ch.), Fritz (P.), 1974. « Isotope Hydrology 1974 – A review of the IAEA Symposium on Isotope Techniques in Groundwater Hydrology ». *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 26 : 1-8.
- Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.) Rognon (P.), 1974. « Variations hydrologiques et extension des lacs holocènes du désert Danakil ». *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.*, 15 : 109-148.
- Gonfiantini (R.), Conrad (G.), Fontes (J.-Ch.), Sauzay (G.), Payne (B.R.), 1974. « Étude isotopique de la nappe du Continental Intercalaire et de ses relations avec les autres nappes du Sahara septentrional ». *Isotope Techniques in Groundwater Hydrology*, IAEA, Vienna, 1 : 227-241.
- Lesaint (C.), Merlivat (L.), Bricout (J.), Fontes (J.-Ch.), Gautheret (R.), 1974. « Sur la composition en isotopes stables de l'eau de la tomate et du maïs ». *C.R. Acad. Sc., Paris*, 278 (D) : 2925-2930.
- Zuppi (G.M.), Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), 1974. « Isotopes du milieu et circulations d'eaux sulfurées dans le Latium ». *Isotope Techniques in Groundwater Hydrology*, IAEA, Vienna, 1 : 341-361.

1975

- Bricout (J.), Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), Merlivat (L.), Mariotti (A.), 1975. « Essai de caractérisation de certaines substances organiques et minérales par leur composition en isotopes stables ». *Isotope ratios as pollutant source and behaviour indicators*, IAEA, Vienna, 359-372.
- Bricout (J.), Fontes (J.-Ch.), Merlivat (L.), 1975. « Sur la composition en isotopes stables de l'éthanol ». *Industries alimentaires et agricoles*, 92^e année, 4 : 375-378.
- Fontes (J.-Ch.), 1975. « Exemples d'utilisation des isotopes stables de l'oxygène et de l'hydrogène en hydrogéologie ». *Colloques A.T.P. Hydrogéologie*, CNRS, 11 p.
- Fontes (J.-Ch.), 1975. « Why Venice is sinking ? » *Courrier du CNRS. English Edition*, 2 : 13-19.
- Fontes (J.-Ch.), Bortolami (G.C.), 1975. « Évolution des confins adriatiques septentrionaux au Pléistocène supérieur et à l'Holocène ». *Les méthodes*

- quantitatives d'étude des variations du climat au cours du Pléistocène*, Colloques internationaux du CNRS, Paris, 129 : 155-161.
- Fontes (J.-Ch.), Desforges (G.), 1975. « Oxygen-18, carbon-13 and radiocarbon as indicators of a Würmian cold and deep diagenesis in western mediterranean carbonate sediments ». *IX^e Congrès International de Sédimentologie*, Nice, 29-39.
- Fontes (J.-Ch.), Lagny (P.), 1975. « Aperçu géochimique et isotopique sur la genèse des faciès dolomitiques liés aux surfaces d'émersion du Trias moyen dans la région de Sappada (Belluno, Italie) ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Montpellier, Société Géologique de France, p. 187.
- Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), 1975. « ¹⁸O et ³⁴S in the upper Bartonian gypsum deposits of the Paris Basin ». *Chemical Geology*, 18 : 285-295.
- Fontes (J.-Ch.), Mélières (F.), Pierre (C.), 1975. « Deux voies de dolomitisation associées aux séquences évaporitiques : arguments isotopiques et minéralogiques ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Montpellier, Société Géologique de France, p. 152.
- Fontes (J.-Ch.), Molinari (J.), 1975. « Reconnaissance du bassin supérieur du Rio Abaucan (Province de Catamarca, République Argentine) ». *Rev. Géogr. Phys. Géol. Dyn.*, XVII (5) : 483-496.
- Fontes (J.-Ch.), Pouchan (P.), 1975. « Les cheminées du lac Abbé (TFAI) : stations hydroclimatiques de l'Holocène ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 280 (D) : 383-386.
- Gubler (Y.), Arbe (F.), Arthaud (F.), Desprairies (P.), (Dubois (P.), Freydet (P.), Fontes (J.-Ch.), Gigot (P.), Kandel (C.), Masse (P.), Masson (P.), Sittler (C.), Schuler (M.), Toura (J.C.), Triat (J.M.), Trichet (J.), Truc (G.), 1975. « Dynamique des dépôts dans un bassin sédimentaire continental : exemple d'un bassin paléogène de Haute Provence (Manosque, Forcalquier, Apt, Cavaillon) ». *Extraits des publications du Congrès, IX^e Congrès International de Sédimentologie*, Nice, 1-5.
- Pierre (C.), Létolle (R.), Fontes (J.-Ch.), 1975. « Oxygène-18 et soufre-34 dans les sulfates évaporitiques messiniens du domaine méditerranéen ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Montpellier, Société Géologique de France, p. 294.

1976

- Fontes (J.-Ch.), 1976. *Isotopes du milieu et cycles des eaux naturelles : quelques aspects*. Thèse de doctorat d'État, Université Pierre et Marie Curie, Paris VI, 208 p.
- Fontes (J.-Ch.), 1976. « Les isotopes du milieu dans les eaux naturelles ». *La Houille Blanche*, 34 : 205-221.

- Fontes (J.-Ch.), 1976. « Utilisation des isotopes du milieu en hydrologie ». *Images des Sciences de la Terre, de l'Océan et de l'Espace*, Suppl. au n° 20 du Courrier du CNRS, 53-57.
- Fontes (J.-Ch.), Garnier (J.M.), 1976. « Correction des activités apparentes en ^{14}C du carbone dissous : estimation de la vitesse des eaux en nappes captives ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Paris, Société Géologique de France, 4 : p. 170.
- Fontes (J.-Ch.), Launay (J.), Monzier (M.), Récy (J.), 1976. « Genetic hypothesis on the ancient and recent reef complexes in New Caledonia ». *Géodynamique du Sud-Ouest Pacifique*, Nouméa, Éditions Technip, Paris, 27/8-2/9, 289-299.
- Fontes (J.-Ch.), Letolle (R.), 1976. « ^{18}O and ^{34}S in the upper Bartonian gypsum deposits of the Paris Basin ». *Chem. Geol.*, 18 (4) : 285-295.
- Fontes (J.-Ch.), Olivry (J.C.), 1976. « Gradient isotopique entre 0 et 4 000 m dans les précipitations du Mont Cameroun ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Paris, Société Géologique de France, p. 171.
- Fontes (J.-Ch.), Olivry (J.C.), 1976. « Premiers résultats sur la composition isotopique des précipitations de la région du Mont Cameroun ». *Cahiers Orstom, série Hydrologie*, XIII (3) : 179-194.
- Fontes (J.-Ch.), Pierre (C.), Chamley (H.), Clauer (N.), Dunoyer de Segonzac, (G.), Mélières (F.), 1976. « Étude sédimentologique et isotopique d'évaporites messiniennes de Méditerranée ». *C.R. A.T.P. Géodynamique*, Montpellier-I.
- Fontes (J.-Ch.), Zuppi (G.M.), 1976. « Isotopes and water chemistry in sulphide-bearing springs of Central Italy ». *Interpretation of Environmental Isotope and Hydrochemistry Data in Groundwater Hydrology*, IAEA, Vienna, 27-31 : 143-158.
- Pierre (C.), Fontes (J.-Ch.), 1976. « Cristallisation du gypse et réaction isotopique de l'oxygène : intérêt pour la reconstitution des paléomilieus ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Paris, Société Géologique de France, p. 330.
- Zuppi (G.M.), Fontes (J.-Ch.), 1976. « Adaptation du géothermomètre isotopique $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ aux systèmes redox clos ; application aux circuits hypothermaux d'Italie centrale ». *Réunion Annuelle des Sciences de la Terre*, Paris, Société Géologique de France, (4) : 172.

1977

- Blanc (P.), Chaix (L.), Fontes (J.-Ch.), Létolle (R.), Olive (P.), Sauvage (J.), 1977. « Étude isotopique préliminaire de la craie lacustre des grands marais de Genève ». *Arch. Sci. Genève*, 30 (3) : 421-431.

- Bortolami (G.), Fontes (J.-Ch.), Zuppi (G.M.), 1977. « Hydrogeology and hydrogeochemistry of the Mount Blanc Massif ». *5th European Colloquium of Geotechnology, Cosmochronology and Isotope Geology*, Pise, Abstract.
- Bortolami (G.C.), Fontes (J.-Ch.), Markgraf (V.), Saliège (J.F.), 1977. « Land, Sea and climate in the Northern Adriatic region during the Late Pleistocene and Holocene ». *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.*, 21 : 139-156.
- Fontes (J.-Ch.), Garnier (J.M.), 1977. « Determination of the initial ^{14}C activity of the Total Dissolved Carbon. Age estimation of waters in confined aquifer ». *Proceed. 2nd Intern. Symp. on Water Rock Interactions*, Strasbourg, *Sci. Géol.*, 363-376.
- Fontes (J.-Ch.), Launay (J.), Monzier (M.), Recy (J.), 1977. « Genetic hypothesis on the ancient and recent reef complexes in New Caledonia ». *International symposium on geodynamics in South-West Pacific*, 289-299.
- Fontes (J.-Ch.), Olivri (J.C.), 1977. « Composition isotopique des précipitations de la région du Mont Cameroun ». *Cahiers Orstom, série Hydrologie* : 1-28.

1978

- Fontes (J.-Ch.), 1978. « Hydrogéologie : un champ privilégié pour l'utilisation de la technique des isotopes du milieu. Implications de l'Hydrogéologie dans les autres Sciences de la Terre ». *I.H.E.S. Symposium, Montpellier, Mémoire hors série CERGH, USTL*, 589-590.
- Fontes (J.-Ch.), Bortolami (G.C.), Zuppi (G.M.), 1978. « Hydrologie isotopique du massif du Mont Blanc ». *Isotope Hydrology*, IAEA, Vienne, 1 : 411-440.
- Fontes, J.-Ch., Pierre, C., 1978. « Oxygen-18 changes in dissolved sulfate during sea water evaporation in saline ponds ». *International Congress on Sedimentology*, 10-1 (A-L) : 215-216.
- Pierre (C.), Fontes (J.-Ch.), 1978. « Isotope composition of Messinian sediments from the Mediterranean sea as indicators of paleoenvironments and Diagenesis ». *Initial reports of the Deep Sea Drilling Project*, Washington, US Government Printing Office, XLII (1) : 635-650.
- Servant (M.), Fontes (J.-Ch.), 1978. « Les lacs quaternaires des hauts plateaux des andes boliviennes : premières interprétations paléo-climatiques ». *Cahiers Orstom, série Géologie*, X (1) : 9-23.

1979

- Bortolami (G.C.), Fontes (J.-Ch.), Lale-Demoz (D.), Olive (Ph.), Quijano (L.), Zuppi (G.M.), 1979. « Infiltration rate through the crystalline massif of Mont-Blanc evidenced by environmental isotope measurements ». *Low-*

- flow, low permeability measurements in largely impermeable rocks*, Paris, OECD, 237-247.
- Boucarut (M.), Chessex (R.), Clin (M.), Dars (R.), Debon (F.), Delaloye (M.), Fontes (J.-Ch.) Hauquin (J.P.), Langguth (R.), Moussié (C.), Muller (J.), Pouchan (P.), Roge, (P.), Seyler (M.), Thibault (C.), 1979. « A stratigraphic scale of the volcanic and sedimentary formation of the Republic of Djibouti ». *Proceed. Symp. Geodynamic evolution of the Afro-Arabian Rift system*, Accademia Nazionale dei Lincei, Rome, 515-526.
- Cheverry (C.), Fontes (J.-Ch.), 1979. « Dynamique des sels dans les paysages confinés et évaporatoires ». *Sci. Géol.*, 53 : 57-60.
- Fontes (J.-Ch.), Bortolami (G-C.), Zuppi (G-M.), 1979. « Hydrologie isotopique du Massif du Mont-Blanc ». *Proceedings of the International symposium on isotope hydrology 1978*, IAEA, Proc. Ser. (STI/PUB/493), Vienna, 1 : 411-440.
- Fontes (J.-Ch.), Boulangé (B.), Carmouze (J.P.), Florkowski (T.), 1979. « Preliminary oxygen-18 and deuterium study of the dynamics of lake Titicaca ». *Isotopes in Lake studies*, IAEA, Vienna, 145-150.
- Fontes (J.-Ch.), Florkowski (T.), Pouchan (P.), Zuppi (G.M.), 1979. « Preliminary isotopic study of Lake Asal system (Republic of Djibouti) ». *Isotopes in Lake studies*, IAEA, Vienna, 163-174.
- Fontes (J.-Ch.), Garnier (J.M.), 1979. « Determination of the initial ^{14}C activity of the Total Dissolved Carbon : a review of the existing models and a new approach ». *Water Resources Research*, 14 (2) : 339-413.
- Fontes (J.-Ch.), Garnier (J.M.), 1979. « Étude isotopique de différents systèmes évaporitiques actuels et récents ». *Sci. Géol.*, 53 : 61-63.
- Fontes (J.-Ch.), Olive (P.), Bortolami (G-C.), Lale-Demoz (D.), Quijano (L.), Zuppi (G-M.), 1979. « Infiltration rate through the crystalline massif of Mont-Blanc evidenced by environmental isotope measurements ». *Proceedings of the Workshop on low-flow, low-permeability measurements in largely impermeable rocks*, Paris, 237-246.
- Jusserand (C.), Gouleau (D.), Fontes (J.-Ch.), 1979. « Comportement isotopique des vases littorales à l'évaporation ». *Oceanologica Acta*, 2 (3) : 349-354.
- Pautot (G.), Fontes (J.-Ch.), 1979. « Gypsum-calcite rosettes in sediments from the Congo deep-sea fan ». *Oceanologica Acta*, 2 (1) : 9.
- Pierre (C.), Fontes (J.-Ch.), 1979. « Oxygène-18, carbone-13, deutérium et soufre-34 : marqueurs géochimiques de la diagenèse et du paléomilieu évaporitiques du Messinien de la Méditerranée ». *Bull. Mus. Nat. Hist. Nat.*, Paris, 4^e série, 1 (C-1) : 3-18.

1980

- Faure, (H.), Fontes (J.-Ch.), Hébrard (L.), Monteillet (J.), Pirazzoli (P.A.), 1980. « Geoidal Change and Shore-Level Tilt along Holocene Estuaries ; Senegal River Area, West Africa ». *Science*, 210 : 421-423.
- Filippakis (S.), Fontes (J.-Ch.), Korres (G.), Nobis (G.), 1980. « Observations on zoological material from Messenia ». *1st International Mycenaeological Congress Premycenaeon and Mycenaeon Pylos*, Athens, 8-11 December 1980.
- Fontes (J.-Ch.), 1980. « Environmental isotopes in groundwater hydrology ». In *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry, Volume 1, The terrestrial Environment*, A, Fritz (P.) and Fontes (J.-Ch.), eds., Elsevier, Amsterdam, 1:75-140.
- Fontes (J.-Ch.), 1980. « Hydrogéologie ; un champ privilégié de l'utilisation des techniques des isotopes de milieu. Implications de l'hydrogéologie dans les autres sciences de la Terre ». *Mémoires du Centre d'Etudes et de Recherches Géologiques et Hydrogéologiques*, Mémoire hors série, 589-590.
- Fontes (J.-Ch.), Gaudant (J.), Truc (G.), 1980. « Données paléocéologiques, teneurs en isotopes lourds et paléohydrologie du bassin gypsifère oligocène d'Aix-en Provence ». *Bull. Soc. Géol. France*, 7 (XXII-3) : 491-500.
- Fontes (J.-Ch.), Pouchan (P.), Saliège (J.F.), Zuppi (G.M.), 1980. « Environmental isotope study of groundwater systems in the Republic of Djibouti ». *Arid zone Hydrology : investigations with isotope Techniques*, IAEA, Vienna, 237-262.
- Fontes (J.-Ch.), Trauth (N.), 1980. « La série du gypse ludien de la région parisienne ». *26^e Congrès Géol. Int.*, Paris, p. 10.
- Fontes (J.-Ch.), Zouridakis (N.), 1980. « The chronology of a sample with the radiocarbon method ». *1st International Mycenaeological Congress Premycenaeon and Mycenaeon Pylos*, Athens, 8-11 December 1980.
- Fritz (P.), Fontes (J.-Ch.) (Eds), 1980. « Introduction ». In *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry, The Terrestrial Environment*, A, Elsevier, Amsterdam, 1 : 1-19.
- Fritz (P.), Fontes (J.-Ch.) (Eds), 1980. *Handbook of environmental isotope geochemistry. Volume 1. The terrestrial environment*, A, Elsevier, Amsterdam, 1 : 545 p.
- Garnier (J.M.), Fontes (J.-Ch.), 1980. « Hydrochimie, géochimie des isotopes du milieu et conditions de circulation dans la nappe captive des sables astiens (Hérault) ». *Revue B.R.G.M.*, 2 (3) : 199-214.

- Garnier (J.M.), Fontes (J.-Ch.), 1980. « Reconnaissance hydrochimique et isotopique des eaux souterraines de la cuvette d'Agadez (Niger) ». Rapport Orstom.
- Soulié (M.), Joseph (C.), Rodier (C.), Fontes (J.-Ch.), 1980. « Étude des venues de CO₂ à la mine de Largentière ». *Rapport et annexes. C.E.R.G.H.*, Montpellier, 43 p.

1981

- Bouchet (P.), Fontes (J.-Ch.), 1981. « Migrations verticales des larves de Gastéropodes abyssaux : arguments nouveaux dûs à l'analyse isotopique de la coquille larvaire et post-larvaire ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 292 (III) : 1005-1009.
- Brissaud (I.), Khalifa (J.), Laurent (H.), Roynette (J.C.), Zaidins (C.), Fontes (J.-Ch.), Garnier (J.), Guillot (J.), Pechaire (A.), Plattard (S.), Uzureau (J.), 1981. « Search for the ³⁶Cl isotope in natural samples by cyclotron or tandem accelerators ». *Proceed. Symposium on Accelerator Mass Spectrometry*, Argonne, Illinois, 330-333.
- Fontes (J.-Ch.), 1981. « Chemical and Isotopic Evolution of groundwaters ». *Isotope techniques in the hydrogeological assessment of potential sites for the disposal of high-level radioactive wastes*, IAEA, Vienna 1983, Techn. Rep. Ser. n° 228, 64 p.
- Fontes (J.-Ch.), 1981. « Groundwater dating ». *Guide Book of Isotope Hydrology*, Techn. Rep. Ser., IAEA, Vienna, 91 : 285-317.
- Fontes (J.-Ch.), 1981. « Isotope hydrology of fractured rocks ». *Guide Book of Isotope Hydrology*, Techn. Rep. Ser., IAEA, Vienna, 91 : 337-350.
- Fontes (J.-Ch.), 1981. « Palaeowaters ». *Stable Isotope Hydrology. Deuterium and oxygen-18 in the Water Cycle*, Techn. Rep., IAEA, Vienna, 210 : 273-302.
- Fontes (J.-Ch.), Boulangé (B.), Rodrigo (L.-A.), 1981. « Carbone-14, carbone-13 et oxygène-18 dans les sédiments carbonatés du lac Titicaca ; premières estimations des vitesses de sédimentation et essai de paléoclimatologie ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 293 (II) : 53-56.
- Fontes (J.-Ch.), Michelot (J.L.), Calmels (P.) 1981. « Étude géochimique et isotopique des eaux du forage profond du site K. », *Rapport ORIS*, Université Paris-Sud, 40 p.
- Garnier (J.-M.), Fontes (J.-Ch.), 1981. « Hydrochimie, géochimie des isotopes du milieu et conditions de circulation dans la nappe captive des sables astiens (Hérault) ». *Bulletin du BRGM, Hydrogéologie, Géologie de l'Ingénieur*, (3) : 199-214.

- Servant (M.), Fontes (J.-Ch.), Rieu (M.), Saliège (J.F.), 1981. « Phases climatiques arides holocènes dans le sud-ouest de l'Amazonie (Bolivie) ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 292 (II) : 1295-1297.
- Servant (M.), Fontes (J.-Ch.), Argollo (J.), Saliège (J.F.), 1981. « Variations du régime et de la nature des précipitations au cours des 15 derniers millénaires dans les Andes de Bolivie ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 292 (II) : 1209-1212.

1982

- Buigues (D.), Fontes (J.-Ch.), Purser (B.-H.), 1982. « The dolomites at Mururoa Atoll, French Polynesia ». *International Congress on Sedimentology*, 11 : p. 125.
- Dever (L.), Durand (R.), Fontes (J.-Ch.), Vachier (P.), 1982. « Géochimie et teneurs isotopiques des systèmes saisonniers de dissolution de la calcite dans un sol sur craie ». *Geochim. Cosmochim. Acta*, 46 : 1947-1956.
- Durand (A.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Icole (M.), Lang (S.), 1982. « The North-West of Lake Tchad during Quaternary : a geological study of alluvial, eolian, palustrine and lacustrine palaeoenvironments ». *XI^e INQUA Congress*, Moscou, II : p. 67.
- Fontes (J.-Ch.), 1982. « Joint AIEA/GSF program for studying the physical and isotopic behaviour of soil moisture in the zone of aeration ». *Report on Research Coordination Meeting*, Neuherberg.
- Fontes (J.-Ch.), Hillaire-Marcel (C.), 1982. « Isotopic palaeohydrology of African-tropical lakes ». *XI^e INQUA Congress*, Moscou, I : p. 92.
- Fontes (J.-Ch.), Ousmane (B.), 1982. « Preliminary environmental isotope survey of semi-confined aquifers in crystalline rocks from Niger Sahelian zone (Liptako) ». *French-Swedish Seminar on Hydrology of Arid Zone*, Lund, Sweden, 127-151.
- Pierre (C.), Fontes (J.-Ch.), 1982. « Étude isotopique des saumures et des gypses des marais salants de Salin-de-Giraud (Sud de la France) ». *Géol. Méditerranéenne*, IX (4) : 479-486.
- Pirazzoli (P.A.), Fontes (J.-Ch.), 1982. « Late Holocene sea-level changes in the Central Pacific : a 1000 km-long North-South transect of French Polynesia ». *XI^e INQUA Congress*, Moscou, II : p. 247.
- Rangin (C.), Desprairies (A.), Fontes (J.-Ch.), Jehanno (C.), Verhnet (S.), 1982. « Metamorphic processes in sediments in contact with young oceanic crust-east Pacific Rise, leg. 65 ». *Init. Rep. of the DSDP*, Washington, US Government Printing Office, LXV : 375-389.
- Tardy (Y.), Clauer (N.), Fontes (J.-Ch.), Nahon (D.), 1982. « Origine marine des éléments constituant les barytines de la région de Chaillac (Indre,

France). Relation probable entre transgressions et circulations convectives d'eau de mer dans les massifs granitiques ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 295 (II) : 219-224.

1983

- Collectif dont Fontes (J.-Ch.), 1983. « Isotopes techniques in the hydrological assessment of potential sites for the disposal of High Level Radioactive Waters. » *Isotope Techniques for Hydrological Investigation of Fractured and Fissured Rocks*, T. Florkowski ed., IAEA, Vienna, Technical Report, 165 p.
- Dever (L.), Durand (R.), Fontes (J.-Ch.), Vachier (P.), 1983. « Étude pédogénétique des informations de calcite dans un sol sur craie: caractéristiques et origines ». *Geochim. Cosmochim. Acta*, 47 : 2079-2090.
- Fontes (J.-Ch.), 1983. « Caractéristiques physico-chimiques et isotopiques des eaux souterraines ». *Doc. Synthèse des connaissances sur l'hydrogéologie du socle cristallin et du sédimentaire ancien de l'Afrique de l'Ouest*, 81-104.
- Fontes (J.-Ch.), 1983. « Examples of isotope studies of the unsaturated zone ». In *Recent advances in hydrogeological research in France*, Report 82/6, IGS, Day, J.B.W ed., London, 60-70.
- Fontes (J.-Ch.), 1983. « Keynote adress on progress and prospects of new tools in isotope hydrology ». *Workshop on Isotope Hydrology*, Bhabha Atomic Research Centre Bombay, 1-14.
- Fontes (J.-Ch.), 1983. « Origin of chemical and isotopic evolution of groundwaters ». *Internal Report*, SKBF-KBS, Stockholm, 56 p.
- Fontes (J.-Ch.), 1983. « Progression des recherches, fluctuations des idées sur la genèse du gypse parisien : faits, concepts et dogmatisme ». *Bull. Inform. Géol. du Bassin de Paris*, 20 (4) : 35-44.
- Fontes (J.-Ch.), Coque (R.), Dever (L.), Filly (A.), Mamou (A.), 1983. « Paléohydrologie isotopique de l'Oued el Akarit (Sud Tunisie) au Pléistocène supérieur et à l'Holocène ». *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.*, 43 : 41-62.
- Fontes (J.-Ch.), Filly (A.), Risacher (R.), 1983. « Géochimie isotopique des "salares" de l'Altiplano méridional de Bolivie ». Rapport ATP in *Colloque ATP Géochimie et Métallogénie*, Bonas, M. Javoy, ed., 123-137.
- Fontes (J.-Ch.), Toulemont (M.), 1983. « Teneurs en isotopes lourds (^{18}O , ^{13}C , ^{34}S) des carbonates et des gypses des "Marnes et Caillasses" du Lutétien du Bassin de Paris : interprétation génétique ». Réunion GRECO, ASF.
- Herraez (I.), Fontes (J.-Ch.), Llamas (M.R.), 1983. « Las variaciones isotópicas del acuífero de Madrid y su relación con el sistema de flujo y con las

- condiciones ambientales de infiltracion ». *C.R. Actes Congrès d'Hydrogéologie*, Saragosse, Espagne, 193-204.
- Herraez (I.), Llamas (M.R.), Fontes (J.-Ch.), 1983. « Environmental isotopes, recharge and discharge areas and palaeowaters occurrence in Madrid aquifer system ». « *Methods and Instrumentation for Investigation of Groundwater Systems* », International symposium Noordwijkerhout, Netherlands, 6 p.
- Michelot (J.L.), Bortolami (G.C.), Fontes (J.-Ch.), Lale-Demoz (D.), Zuppi, (G.M.), 1983. « Application de la méthode des isotopes du milieu à l'estimation de la perméabilité et de la porosité efficace d'un massif cristallin : le Mont-Blanc ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 296 (II) : 121-124.
- Michelot (J.L.), Fontes (J.-Ch.), 1983. « Stable isotope geochemistry in groundwater systems from Stripa site ». *Geochemical and isotope characterization of the Stripa groundwaters, Progress Report*, SKBF-KBS, Stripa Project Internal Report 83-01, Stockholm, 4 : 75-105.
- Ousmane (B.), Fontes (J.-Ch.), Aranyossy (J.), Joseph (A.), 1983. « Hydrologie isotopique et hydrochimie des aquifères discontinus de la bande sahélienne et de l'Air (Niger) ». *Isotope Hydrology*, IAEA, Vienna, 367-395.
- Saliège (J.F.), Fontes (J.-Ch.), 1983. « Essai de détermination expérimentale du fractionnement des isotopes ^{13}C et ^{14}C du carbone au cours de processus naturels ». *Intern. Journ. of Applied Rad. and Isot.*, 35 (1) : 55-62.

1984

- Dever (L.), Hillaire-Marcel (C.), Fontes (J.-Ch.), 1984. « Composition isotopique, géochimie et genèse de la glace en lentilles (palse) dans les tourbières au Nouveau Québec, Canada ». *Journal of Hydrology*, 71 : 107-130.
- Durand (A.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Icole (M.), Lang (J.), 1984. « Le Nord-Ouest du lac Tchad au Quaternaire : étude de paléo-environnements alluviaux, éoliens, palustres et lacustres ». *Palaeoecology of Africa and the surrounding islands*, Balkema, Rotterdam, 16 : 215-243.
- Fontes (J.-Ch.), Brissaud (I.), Michelot (J.L.), 1984. « Hydrological implications of deep production of chlorine-36 ». *Nuclear Instruments and Methods Phys. Res.*, 233 (2) : 303-307.
- Michelot (J.L.), Bentley (H.C.), Brissaud (I.), Elmore (D.), Fontes (J.-Ch.), 1984. « Progress in environmental isotopes studies (^{36}Cl , ^{34}S , ^{18}O) on the Stripa site ». *Isotope Hydrology*, AIEA-SM-270/60, Vienna, 207-229.
- Rubio (L.), Llamas (M.-R.), Herraez (I.), Fernandez-Uria (A.), Fontes (J.-Ch.), 1984. « Relationship between ground water flow system and geochemistry in the Great sedimentary basin of Madrid (Spain) ». *Abstracts 27th International Geological Congress*, p. 503.

Servant (M.), Fontes (J.-Ch.), 1984. « Les basses terrasses fluviales du Quaternaire récent des Andes boliviennes. Datations par le ^{14}C . Interprétation paléoclimatique ». *Cahiers Orstom, série Géologie*, XIV (1) : 15-28.

1985

Allison (G.B.), Fontes (J.-Ch.), Sonntag (C.), 1985. « Conclusions and recommendations on the usefulness of studies of the isotopes ^{18}O , ^2H and ^3H ». *Stable Isotope and Radioactive Isotopes in the Study of the Unsaturated Zone*, IAEA, Vienna, TECDOC, 357 : 179-182.

Aranyossy (J.F.), Djermouni (B.), Fontes (J.-Ch.), 1985. « Étude isotopique des mouvements de l'eau en zone non saturée sous climat aride, Algérie ». *Stable Isotope and Radioactive Isotopes in the Study of the Unsaturated Zone*, IAEA, Vienna, TECDOC 357 : 161-178.

Balderer (W.), Fontes (J.-Ch.), Michelot (J.-L.), 1985. « Isotopic investigations of the water-rock system in the deep crystalline rock of northern Switzerland ». Program with Abstracts *Geological Association of Canada ; Mineralogical Association of Canada ; Canadian Geophysical Union, Joint Annual Meeting*, 10, p. A2.

Coudray (J.), Fontes (J.-Ch.), Fontes (P.), 1985. « Datation par le radiocarbone d'un site archéologique de l'île de Mayotte ». *5^e Colloque National du GMPCA*, Besançon, Résumé B. Poty, XIV : 613-621.

Fernandez-Uria (A.), Fontes (J.-Ch.), Herraes (I.), Llamas (M.-R.), Rubio (P.-L.), 1985. « Tridimensional groundwater chemical and isotopic variations as related to the Madrid aquifer flow system ». *Estudios Geológicos* (Madrid), 41 (3-4) : 229-236.

Fontes (J.-Ch.), 1985. « Méthode au chlore-36. Datation des eaux ». In *Méthodes de datation par les phénomènes nucléaires naturels*. Applications Coll. Scient. CEA, Masson éd., Coord. : E. Roth, B. Poty, chap. XIV, p. 613-621.

Fontes (J.-Ch.), 1985. « Some considerations on groundwater dating using environmental isotopes ». *18th IAH Congress*, Cambridge, Part 1, Keynote papers, 118-154.

Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), Bonnot-Courtois (C.), Michelot (J.L.), 1985. « Chlorine-36 in the Stripa groundwaters, Stripa Project ». *Hydrogeological and hydrogeochemical investigations in boreholes. Final report of the phase I geochemical investigations of the Stripa groundwaters*, Int. Rep. 85-06, SKB, Stockholm, 9 : 21-27.

Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1985. « Paléohydrologie et paléo-climatologie continentale. Programme Palhydraf. Objectifs, premiers résultats et pers-

- pectives ». Colloque d'évaluation et de prospective. *ASO-P-RCP 540*, CNRS, Univ. Poitiers, 67-72.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1985. « Progress in the PALHYDAF project ». *Int. Symp. on Palaeolimnology*, Ossiach, Autriche, Sept. 1985. Abstracts.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Callot (Y.), Plaziat (J.C.), Carbonel (P.), Dupeuble, (P.A.), Kaczmarska (I.), 1985. « Freshwater to marine-like environments from Holocene lakes in northern Sahara ». *Nature*, 317 (6038) : 608-610.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Camara (E.), Millet (B.), Saliège (J.F.), Steinberg (M.), 1985. « Late Holocene Changes in Lake Abhe Hydrology (Ethiopia-Djibouti) ». *Zeitschrift für Gletscherkunde und Glazialgeologie*, Innsbruck, 21 : 89-96.
- Fontes (J.-Ch.), Michelot (J.L.), 1985. « Stable isotope geochemistry of sulphur compounds ». D.K. Nordstrom ed., *Stripa Project, Rep. 85-06*, SKB, Stockholm, 7 : 1-17.
- Fontes (J.-Ch.), Michelot (J.L.), Andrews (J.N.), 1985. « Availability of chlorine-36 for groundwater dating ». *American Chemical Society Annual Meeting*, Chicago, Abstract.
- Fontes (J.-Ch.), Saliège (J.F.), 1985. « Some problems of interpretation of oxygen-18, carbon-13 and carbon-14 in lacustrine carbonates ». *Isotopes in the Sedimentary Cycle*, Int. Conf. CNRS, Obernai, Centre de Géol. et Géochim. de la Surface, Strasbourg, Abstracts.
- Fritz (P.), Fontes (J.-Ch.), Frappe (S.-K.), 1985. « Stable isotope and radiocarbon analyses at the Stripa test site ; Phase I ». *Proceedings of the Symposium on in situ experiments in granite associated with the disposal of radioactive waste*, 107-117.
- Launay (J.), Fontes (J.-Ch.), 1985. « Les sources thermales de Prony (Nouvelle-Calédonie) et leurs précipités chimiques. Exemple de formation de brucite primaire ». *Géologie de la France*, 1 : 83-100.
- Michelot (J.L.), Fontes (J.-Ch.), 1985. « Two cases studies on the origin of the aqueous sulphate in deep crystalline ». *IAEA Advisory Group Meeting on the Hydrology and Geochemistry of Sulphur Isotopes*, Vienna, Abstract.
- Rubio (P.L.), Llamas (M.R.), Herraez (I.), Fontes (J.-Ch.), Fernandez-Uria (C.), 1985. « Relationship between groundwater flow system and geochemistry in the great sedimentary basin of Madrid (Spain) ». *AIH Meeting*, Oxford.
- Zouari (K.), Aranyossy (J.F.), Mamou (A.), Fontes (J.-Ch.), 1985. « Étude isotopique et géochimique des mouvements et de l'évolution des solutions de la zone aérée des sols sous climat semi-aride (sud Tunisien) ». *Stable and radioactive isotopes in the study of the unsaturated soil zone*, IAEA, Vienna, TECDOC 357 : 121-143.

Zouari (K.), Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), 1985. « Avancement du programme Palhydraf en Tunisie ». *Colloque Hydrodynamisme et facteurs physico-chimiques dans les milieux lagunaires*, Djerba, Tunisie.

1986

Albert (J.), Arana (V.), Diez (J.L.), Fontes (J.-Ch.), Garcia de la Noceda (C.), Ocana (L.), Valentin (A.), 1986. « Modelo termodinamico de la actividad fumaroliana del Teide ». *Anales de Fisica*, B-82 : 186-201.

Andrews (J.N.), Fontes (J.-Ch.), Michelot (J.L.), Elmore (D.), 1986. « In situ neutron flux, ^{36}Cl production and groundwater evolution in crystalline rocks at Stripa, Sweden ». *Earth and Planetary Science Letters*, 77 : 49-58.

Dever (L.), Fontes (J.-Ch.), Vachier (P.), Durand (R.), 1986. « Isotopic compositions of the secondary calcite as palaeoclimatic indicators ». *5th Symp. on water rock interaction*, Reykjavik, Islande.

Diez (J-L.), Albert (J-F.), Arana (V.), Filly (A.), Fontes (J.-Ch.), 1986. « Modelo termodinamico de la actividad fumaroliana del Teide ». *Anales de Fisica. Serie B : Aplicaciones Metodos e Instrumentos*, 82 : 186-201.

Fontes (J.-Ch.), 1986. « Géochimie isotopique et paléohydrologie africaine au Quaternaire : problèmes, acquis et perspective ». *Changements globaux en Afrique durant le Quaternaire, passé, présent, futur*, INQUA-ASEQUA Symposium International Dakar, Orstom, Bondy, 145-148.

Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.) (et collaborateurs), 1986. « PALHYDAF : état d'avancement novembre 1985 ». *Changements globaux en Afrique durant le Quaternaire, passé, présent, futur*. INQUA-ASEQUA, Symposium International Dakar, Orstom, Bondy, 149-152.

Fontes (J.-Ch.), Massault (M.), Paris (F.), Person (A.), Saliège (F.), 1986. « Doit-on proscrire les carbonates des ossements pour les datations au radiocarbone ? » *Changements globaux en Afrique durant le Quaternaire, passé, présent, futur*, INQUA-ASEQUA Symposium International Dakar, Orstom, Bondy, 153-156.

Fontes (J.-Ch.), Yousfi (M.), Allison (G.B.), 1986. « Estimation of a long-term, diffuse groundwater discharge in the northern Sahara using stable isotope profiles in soil water ». *Journal of Hydrology*, 86 : 315-327.

Fritz (P.), Fontes (J.-Ch.) (Eds.), 1986. *Handbook of environmental isotope geochemistry. Volume 2. The terrestrial environment*, B. Elsevier, Amsterdam, 556 p.

1987

- Allison (G.B.), Colin-Kaczala (C.), Filly (A.), Fontes (J.-Ch.), 1987. « Measurement of isotopic equilibrium between water, water vapour and soil CO₂ in arid zone soils ». *Journal of Hydrology*, 95 : 131-141.
- Andrews (J.N.), Fontes (J.-Ch.), Fritz (P.), Nordstrom (D.K.), 1987. « The Hydrochemical assessment of crystalline rock for radioactive waste disposal : the Stripa experience ». *Stripa Report*, SKB, 1-23.
- Balderer (W.), Fontes (J.-Ch.), Michelot (J.L.), Elmore (D.), 1987. « Isotopic investigations of the Water-Rock System in the Deep Crystalline Rock of Northern Switzerland ». In *Saline water and gases in crystalline rocks*, Fritz, P., Frapé, S.K. eds., Geological Association of Canada Special Paper, 33 : 175-195.
- Dever (L.), Fontes (J.-Ch.), Riché (G.), 1987. « Isotopic approach to calcite dissolution and precipitation in soils under semi-arid conditions ». *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, 66 : 307-314.
- Dever (L.), Fontes (J.-Ch.), 1987. « Variations climatiques durant l'Holocène dans le nord-est du Brésil : étude des teneurs isotopiques des calcites secondaires dans la zone non saturée ». *INQUA*, 55-67.
- Durand (A.) Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Icole (M.), Lang (J.), 1987. « Nord-Ouest du lac Tchad : Manga et Kadzell. Incidence des milieux de dépôts sur le cadre géomorphologique et chronologique ». Colloque « Paléolacs-Paléoclimats », Orstom, Bondy, janvier 1987, *Géodynamique*, 2 (2) : 144-145.
- Eberschweiler (C.), Coudray (J.), Fontes (J.-Ch.), 1987. « Hydrologie de Mayotte. Bilans hydrologiques, hydrochimie et géochimie isotopique ». *Rapport Cordet n° A39*, 269 p.
- Eberschweiler (C.), Fontes (J.-Ch.), Coudray (J.), 1987. « Hydrologie de l'île de Mayotte (Archipel des Comores) ». *21^e congrès AIH*, Rome, p. 55.
- Fontes (J.-Ch.), 1987. « Rapport de mission et d'étude d'expert ». Projet C2 - RAF/8/007-05, AIEA, Vienne, 39 p.
- Fontes (J.-Ch.), Barrier (P.), di Geronimo (I.), Montenat (C.), 1987. « Datations carbone-14 sur des Bivalves pléistocènes supérieurs du détroit de Messine ». *IGAL, Documents et travaux*, Paris, 11 : 101-104.
- Fontes (J.-Ch.), Brévar (O.), 1987. « Étude isotopique des conditions de formation des dolomites récentes : Turquie, Australie, Guadeloupe, Canaries ». *Elf Aquitaine Production*, EP/S/EXP/Lab. Pau n° 87/6RS, 42 p.
- Fontes (J.-Ch.), Filly (A.), Gaudant (J.), 1987. « Conditions de dépôt du Messinien évaporitique des environs d'Alba (Piémont) : Arguments paléontologiques et isotopiques ». *Bull. Società Paleontologia Italiana*, 26 (1-2) : p. 199.

- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1987. « Programme Palhydaf (Paléohydrologie en Afrique). État d'avancement ». *XII^e congrès INQUA*, Ottawa, Abstracts, p. 167.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.) (et coll.), 1987. « Programme Palhydaf : état d'avancement, janvier 1987. Premier méridien : Sud Tunisie-Sud Niger ». Séminaire « Paléolacs-Paléoclimats », Orstom, Bondy, *Géodynamique*, 2 (2) : 139-142.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Ben Khelifa (L.), Ben Oueddou (H.), Carbonel (P.), Causse (C.), Thouveny (N.), Tucholka (P.), Zaouali (J.), Zouari (K.), 1987. « Lacustrine sediments from Wadi et Akarit and Chott Fedjej (South Tunisia) ». Joint meeting EUG IV-EGS XIII, Strasbourg. *Terra Cognita*, 7 (2-3) : p. 231.
- Fontes (J.-Ch.), Toulemont (M.), 1987. « Faciès, pétrologie et teneurs en isotopes lourds (^{18}O , ^{13}C , ^{34}S) des niveaux évaporitiques lutétiens supérieurs du bassin de Paris : interprétation paléohydrologique ». *Bull. Centres Rech. Explor.-Prod. Elf Aquitaine*, 11 : 39-64.
- Fontes (P.), Coudray (J.), Eberschweiler (Ch.), Fontes (J.-Ch.), 1987. « Datation et conditions d'occupation du site de Koungou (île de Mayotte) ». *Revue d'Archéométrie*, 11 : 77-82.
- Gasparini (A.), Fontes (J.-Ch.), Custodio (E.), Jiménez (J.), Nunez (J.A.), 1987. « Primeros datos sobre las características químicas y isotópicas del agua subterránea del Macizo fonolítico de Amurga, Gran Canaria ». *IV Simposio de Hidrogeología*, Asociación española de hidrología subterránea, Palma de Mallorca, 281-298.
- Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), 1987. « Palaeohydrology of Lake Asal (Djibouti) since 10,000 years B.P. » *14th Colloquium on African Geology*, Berlin, Abstracts.
- Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), Plaziat (J.C.), Carbonel (P.), Kaczmarska (I.), de Deckker (P.), Soulié-Marsche (I.), Callot (Y.), Dupeuble (P.A.), 1987. « Biological remains, geochemistry and stable isotopes for the reconstruction of environmental and hydrological changes in the Holocene Lakes from North Sahara ». *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.*, 60 : 1-46.
- Gouze (P.), Ferhi (A.), Fontes (J.-Ch.), Roche (M.-A.), 1987. « Composition isotopique (^{18}O) de la matière organique des tourbières actuelles et holocènes en Bolivie, résultats préliminaires et perspectives d'application en paléoclimatologie ». Orstom, Bondy, France, *Géodynamique*, 2 (2) : 113-116.
- Hales (P.E.), Perrott (R.A.), Fontes (J.-Ch.), Rae (A.), Street-Perrott (F.A.), Switsur (V.R.), 1987. « Palaeolimnological studies of Wallywash great pond, Jamaica ». Abstract : *INQUA Congress Canada*.

- Mahmoudi (M.), Plaziat (J.-C.), Fontes (J.-Ch.), Messouci (S.), Tillier (S.), 1987. « Le climat tunisien durant le Tyrrhénien, d'après des données nouvelles concernant la sédimentation, les mollusques marins et terrestres, les pollens et une mesure isotopique de la température des eaux littorales ». *International Association of Sedimentologists Regional Meeting*, 8 : 330-331.
- Michelot (J.L.), Balderer (W.), Elmore (D.), Fontes (J.-Ch.), Kubik (P.W.), Soreau, S., 1987. « Les teneurs en chlore-36 et problèmes de circulation des eaux profondes du socle de Suisse septentrionale ». *International Symposium on Isotope Hydrology*, AIEA-SM-299/59P, Vienne, p. 738.
- Michelot (J.L.), Fontes (J.-Ch.), 1987. « Two case studies on the origin of aqueous sulphate in deep crystalline rocks ». *Studies on Sulphur Isotope Variations in Nature*, IAEA, Panel-Proceeding series, 65-75.
- Travi (Y.), Gac (J.Y.), Fontes (J.-Ch.), 1987. « Reconnaissance chimique et isotopique des eaux de pluie au Sénégal ». *Géodynamique*, 2 (1) : 43-53.
- Vachier (P.), Dever (L.), Fontes (J.-Ch.), 1987. « Mouvements de l'eau dans la zone non saturée et alimentation de la nappe de la craie de Champagne (France) : approches isotopique et chimique ». *Isotope Techniques in water resources development*, IAEA, Vienna, 367-379.
- Zouari (K.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1987. « Programme PALHYDAF : site 1 : vallée de l'Oued Akarit : état d'avancement ». IAS, Tunis, Abstracts, *8th Regional Meeting of Sedimentology*, 520-521.

1988

- Andrews (J.), Fontes (J.-Ch.), Fritz (P.), Nordstrom (K.), 1988. « Hydrogeochemical Assessment of crystalline Rock for Radioactive Waste Disposal : The Stripa Experience ». *Stripa Project 88-05*, 26 p.
- Causse (C.), Conrad (G.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Gibert (E.), Kassir (A.), 1988. « Le dernier "Humide" pléistocène du Sahara nord-occidental daterait de 80-100 000 ans ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 306 (II) : 1459-1464.
- Causse (C.), Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), Zouari (K.), 1988. « Âges radiométriques Th/U et ^{14}C de la série d'Akarit (sud Tunisie) ». *12^e réunion ann. Sc. de la Terre*, Lille.
- Chery (L.), Derlich (S.), Fontes (J.-Ch.), Michelot (J.L.), 1988. « Méthodologie d'approche des circulations dans le massif granitique d'Auriat (Massif Central, France) ». *Colloque International, Hydrogéologie et sûreté des dépôts de déchets radioactifs et industriels toxiques*, B.R.G.M., Documents, 160 : 227-241.
- Chery (L.), Michelot (J.L.), Fontes (J.-Ch.), 1988. « Étude des zones de décharge des eaux profondes des massifs d'Auriat et de la Sposata. Rapport final ».

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, CEA, Fontenay-aux-Roses, 224 p.

- Dever (L.), Durand (R.), Fontes (J.-Ch.), Vachier (P.), 1988. « The isotopic and chemical composition of secondary calcite in saturated zone as palaeoclimatic indicators ». *Chemical Geology*, 70 (1-2) : p. 114.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.-N.), Edmunds (W.-M.), Guerre (A.), Travi (Y.), 1988. « Relationship between surface palaeohydrology and groundwater recharge in northern Mali ». *Chemical Geology*, 71 (4) : p. 367.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1988. « Programme Palhydraf (Paléohydrologie en Afrique). État d'avancement, mai 1988 ». Programme PIRAT, CNRS-INSU, *Journées scientifiques ATP Latérites*, 4 et 5 juillet 88, 15-20.
- Fontes (J.-Ch.), Louvat (D.), Michelot (J.L.), Soreau (S.), 1988. « Les teneurs isotopiques du sulfate aqueux, indicateurs d'origine de la minéralisation des eaux en roche cristalline ». *Colloque International, Hydrogéologie et sûreté des dépôts de déchets radioactifs et industriels toxiques*, B.R.G.M., Documents, 160 : 325-341.
- Fontes (J.-Ch.), Plazia, (J.C.), Gasse (F.), Ben Azzouz (M.), Ben Ouezdou, (H.), Chammard (P.C.), Conrad (G.), Coque (R.), Petit-Maire (N.), Ballais (J.L.), Hillaire-Marcel (C.), 1988. « Une mer saharienne quaternaire ? ». *Lettre Pour la Science*, mars 1988, 125 : p. 7.
- Hemadi (H.), Steinberg (M.), Fontes (J.-Ch.), Perthuisot (V.), 1988. « Conditions de formation des paragenèses authigènes des diapirs du Nord de la Tunisie. Composition chimique et isotopique ». *Colloque SFMC-GFA-PIRSEM, Minéraux argileux et géothermie*, Résumé.
- Roussin-Bariac (M.), Fontes (J.-Ch.), Blanc (P.L.), Ansart (M.), Pierron (P.), 1988. « Circulations discrètes de saumures dans les terrains salifères en couche. Étude préliminaire du bassin potassique de Mulhouse. (France) ». *Colloque International, Hydrogéologie et sûreté des dépôts de déchets radioactifs et industriels toxiques*, B.R.G.M., Documents, 160 : 575-586.

1989

- Andrews (J.N.), Davis (S.N.), Fabryka-Martin (J.), Fontes (J.-Ch.), Lehmann (B.E.), Loosli (H.H.), Michelot (J.L.), Moser (H.), Smith (B.), Wolf (M.), 1989. « The *in situ* production of radioisotopes in rock matrices with particular reference to the Stripa granite ». *Geochim. Cosmochim. Acta*, 53 : 1803-1815.
- Ben Ouezdou (H.), Zouar (K.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Causse (C.), Ben Khelifa (L.), 1989. « Les chotts du Sud Tunisien : un système lacustre au Quaternaire ». *Réunion PIGC 152*, Djerba, octobre 89.

- Bustillo Revuelta (M.), Ordoñez (D.), Fontes (J.-Ch.), 1989. « Composicion isotopica ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ y $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$) de las rocas encajonantes de los yacimientos Zn-Pb del Cretacico Inferior de Cantabria (Sector Reocin-La Florida) ». *Boletin Geologico y Minero*, 100 (3) : 395-403.
- Causse (C.), Coque (R.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Gibert (E.), Ben Ouezdou, (H.), Zouari (K.), 1989. « Two high levels of continental waters in the southern Tunisian chotts at about 90 and 150 ka ». *Geology*, 17 : 922-925.
- Cortecchi (G.), Fontes (J.-Ch.), Maiorani (A.), Perna (G.), Pintus (E.), Turi (B.), 1989. « Oxygen, sulfur and strontium isotope and fluid inclusion studies of barite deposits from the Iglesias-Sulcis mining district, Southwestern Sardinia, Italy ». *Mineralium Deposita*, 24 : 34-42.
- Feller (C.), Trichet (J.), Fontes (J.-Ch.), Marius (C.), 1989. « Sur le rôle de la végétation dans le stockage du soufre dans les sols de Mangrove (Sénégal). Résultats préliminaires ». *Soil Biol. Biochem.*, 21 (7) : 947-952.
- Fontes (J.-Ch.), 1989. « Isotopes et ressources en eaux ». *Hydrogéologie*, 3 : 135-142.
- Fontes (J.-Ch.), 1989. « The chlorine-36 method. Dating of natural waters ». E. Roth and B. Poty (Eds) : *Nuclear methods of dating*, ISBN 0-7923-0188-9, CEA, Paris, 379-398.
- Fontes (J.-Ch.), Edmunds (W.M.), 1989. « The use of environmental isotope techniques in arid zone hydrology ». A critical review, Technical Documents in Hydrology, *IHP-III Project 5.2*, Unesco, Paris, 75 p.
- Fontes (J.-Ch.), Fritz (P.), Louvat (D.), Michelot (J.L.), 1989. « Aqueous sulphates from the Stripa groundwater system ». *Geochim. Cosmochim. Acta*, 53 : 1783-1789.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1989. « On the age of humid Holocene and Late Pleistocene phases in North Africa. Remarks on "Late Quaternary climatic reconstruction for the Maghreb (North Africa)" by P. Rognon ». *Palaeogeogr., Palaeoclimat., Palaeoecol.*, 70 : 393-398.
- Fontes (J.-Ch.), Louvat (D.), Michelot (J.L.), 1989. « Some constraints on geochemistry and environmental isotopes for the study of low fracture flows in crystalline rocks ». *The STRIPA case. IAEA, Vienna, Proceedings of an Advisory Group Meeting*, IAEA AG-329.2/4, 29-67.
- Fontes (J.-Ch.), Sichére (M.C.), Pouchan (P.), Zuppi (G.M.), 1989. « Teneurs en brome et chlore du lac Asal (Djibouti) et bilan en eau et en sels d'un système évaporitique complexe ». *C.R. Acad. Sc., Paris*, 309 (II) : 701-706.
- Fritz, P., Fontes, J.-Ch., (Eds.), 1989. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry. Volume 3. The marine environment*, A. Elsevier, Amsterdam, 3 : 428 p.

- Fritz (P.), Fontes (J.-Ch.), Frapce (S.K.), Louvat (D.), Michelot (J.L.), Balderer, (W.), 1989. « The isotope geochemistry of carbon in groundwater at Stripa ». *Geochim. Cosmochim. Acta*, 53 : 1765-1775.
- Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), 1989. « Palaeoenvironments and palaeohydrology of a tropical closed lake (Lake Asal, Djibouti) since 10,000 yr BP » *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.*, 69 : 67-102.
- Gasse (F.), Lédée (V.), Fontes (J.-Ch.), Massault (M.), 1989. « Water-level fluctuations of Lake Tanganyika in phase with oceanic changes during the last glaciation and deglaciation ». *Nature*, 342 : 57-59.
- Hamid (S.), Dray (M.), Ferhi (A.), Dorioz (J.-M.), Normand (M.), Fontes (J.-Ch.), 1989. « Water transfer into moraine in the Lake Geneva Basin; water transfer in the unsaturated zone ». *Journal of Hydrology*, 109 (3-4) : 369-385.
- Matray (J.M.), Meunier (A.), Thomas (M.), Fontes (J.-Ch.), 1989. « Les eaux de formations du Trias et du Dogger du Bassin de Paris : leur histoire et leurs effets diagénétiques sur les réservoirs ». *Bull. Centre Rech. Expl. Prod. ELF-AQUITAINE*, 13 (2) : 483-504.
- Michelot (J.L.), Fontes (J.-Ch.), Soreau (S.), Lehmann (B.E.), Loosli (H.H.), Balderer (W.), Elmore (D.), Kubbik (P.W.), Wölfli (W.), Beer (J.), Synal (A.), 1989. « Chlorine-36 in deep groundwaters and host-rocks of Northern Switzerland : Sources, evolution and hydrological implications ». *Proceedings of the 6th International Symposium on water-rock interaction*, Malvern, août 1989, 483-486.
- Moser (H.), Wolf (M.), Fritz (P.), Fontes (J.-Ch.), Florkowski (T.), Payne, B.R., 1989. « Deuterium, oxygen-18 and tritium in Stripa groundwater ». *Geochim. Cosmochim. Acta*, 53 : 1757-1763.
- Ritchie (J.C.), Eyles (C.H.), Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), Haynes (C.V.), Pavlish (L.A.), Rynak (R.), 1989. « Pollen and stable isotopes from the Selina paleolake ». *Premier Symposium de Palynologie Africaine*, Abstracts, Rabat, 15-21 May 1989.

1990

- Amadi (U-M-P.), Fontes (J.-Ch.), 1990. « Inland hydrologic sub-basins and their control on the groundwater system from the Benue through Chad Basin ». *Mémoires Association Internationale des Hydrogéologues*, Water resources in mountainous regions. École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Switzerland, 22 (Part 1-2) : 550-556.
- Balderer (W.), Pearson (F-J.), Fontes (J.-Ch.), Michelot (J-L.), Soreau (S.), 1990. « ^{34}S and ^{18}O in SO_4 as indicators of the origin of deep groundwaters in northern Switzerland ». *Mémoires Association Internationale des*

- Hydrogéologues*, Water resources in mountainous regions. École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Switzerland. 22 (Part 1-2): 364-373.
- Clark (I.D.), Fontes (J.-Ch.), 1990. « Paleoclimatic reconstruction in Northern Oman based on carbonates from hyperalkaline groundwaters ». *Quaternary Research*, 33 : 320-336.
- Clark (I.D.), Fontes (J.-Ch.), Fritz (P.), 1990. « Hyperalkaline groundwaters and associated travertines ; stable isotope conundrums and palaeoclimatology », *GAC-MAC-GCU Joint annual meeting*, 15 : p. 25
- Dever (L.), Fontes (J.-Ch.), 1990. « Isotopic changes of the Total Dissolved Inorganic carbon, as tracers of liquid solid interactions in the unsaturated zone ». *7th Int. Conference on Geochronology, Cosmochronology and Isotope Geology (ICOG)*, Abstracts, p. 27.
- Fontes (J.-Ch.), 1990. « Isotope Geochemical Models for ^{14}C Dating of groundwaters ». *Int. Conf. on Four Decades of Radiocarbon Studies : An Interdisciplinary Perspective.*, Univ. of California, Lake Arrowhead conference, Abstracts.
- Fontes (J.-Ch.), 1990. « Isotope palaeohydrology ». *7th Int. Conference on Geochronology, Cosmochronology and Isotope Geology (ICOG)*, Abstracts, p. 35.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1990. « Paléolacs et paléoclimats : "Les sédiments lacustres dans les déserts témoignent de cycles aridité/ humidité. A quand un Sahara de nouveau verdoyant ?" ». Chapitre : "L'environnement géologique" ». *Le Courrier du CNRS*, 76 : 82-83.
- Fontes (J.-Ch.), Causse (C.), Zouari (K.), 1990. « Problème de la chronologie des épisodes humides et arides continentaux. Séance spécialisée de la S.G.F., Variabilités climatiques à différentes échelles de temps. Relation Continent-Océan ». oct. 90, *Prog. et Résumés*.
- Gallaire (R.), Téhet (R.), Fontes (J.-Ch.), 1990. « Essai de caractérisation thermique, chimique et isotopique des cures en milieu aride d'altitude : l'Aïr (Niger) ». I.A.S. XXII^e Congrès de l'AISH, *Hydrologie*, 18 : 377-380.
- Gasparini (A.), Custodio (E.), Fontes (J.-Ch.), Jimenez (J.) and Nuñez (J.A.), 1990. « Exemple d'étude géochimique et isotopique de circulations aquifères en terrain volcanique sous climat semi-aride (Amurga, Gran Canaria, Iles Canaries) ». *Journal of Hydrology*, 114 : 61-91.
- Gasse (F.), Téhet (R.), Durand (A.), Gibert (E.), Fontes (J.-Ch.), 1990. « The arid-humid transition in the Sahara and the Sahel during the last deglaciation ». *Nature*, 346 : 141-146.
- Gibert (E.), Arnold (M.), Conrad (G.), De Deckker (P.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Kassir (A.), 1990. « Retour des conditions humides au Tardiglaciaire au Sahara septentrional (sebkha Mellala, Algérie) ». *Bull. Soc. Géol. Fr.*, (8) L. VI (2) : 497-504.

- Lebdioui (S.), Michelot (J.L.), Fontes (J.-Ch.), Dray (M.), Zuppi (G.M.), 1990. « Origin of sulfate and carbonate mineralized waters of the Mont Blanc Tunnel ». *Mémoires Association Internationale des Hydrogéologues*, Water resources in mountainous regions, École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Switzerland. 22 (Part 1-2): 496-503.
- Matray (J.M.), Fontes (J.-Ch.), 1990. « Origin of the oil-field brines in the Paris Basin ». *Geology*, 18 : 501-504.
- Téhet (R.), Gasse (F.), Durand (A.), Schroeter (P.), Fontes (J.-Ch.), 1990. « Fluctuations climatiques du Tardiglaciaire à l'Actuel au Sahel (Bougdouma, Niger méridional) ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 311 (II) : 253-258.

1991

- Aranyossy (J.F.), Filly (A.), Ousmane (B.), Tandia (A.), Louvat (D.), Fontes (J.-Ch.), 1991. « Estimation des flux d'évaporation diffuse sous couvert sableux en climat hyperaride (Erg de Bilma, Niger). Résumés analytiques ». *International Symposium on the Use of Isotope Techniques in Water Resources Development*, AIEA-SM-319/39, abstract p. 100-101, Vienna, Austria, 11-15/03/1991 : 309-324.
- Brevart (O.), Chennaux (G.), Cahen (H.), Fontes (J.-Ch.), 1991. « Catagenèse I à VI. Etude des transformations minérales ». *Rapport d'avancement, vol. I et II*. Elf Aquitaine, Pau.
- Causse (C.), Coque (R.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Gibert (E.), Ben Ouezdou (H.), Zouari (K.), 1991. « A reply to Drs Richards and Vita-Finzi. Two high levels of continental waters in the Southern Tunisian Chotts, at about 90 and 150 ka ». *Geology*, 29 : 95-96.
- Clark (I.D.), Khoury (H.N.), Salameh (E.), Fritz (P.), Göksu (H.Y.), Wiesser (A.), Causse (C.), Fontes (J.-Ch.), 1991. « Travertines in Central Jordan : Implications for palaeohydrology and dating. Résumés analytiques ». *International Symposium on the Use of Isotope Techn. in Water Resources Dev.*, AIEA-SM-319-6, Vienna, Austria, 11-15/03/91, 17-18.
- Edmunds (W.M.), Gaye (C.B.), Fontes (J.-Ch.), 1991. « A record of climatic and environmental change contained in interstitial waters from the unsaturated zone of northern Senegal. Résumés analytiques ». *International Symposium on the Use of Isotope Techniques in Water Resources Development*, AIEA-SM-319/35, 11-15/03/91, 89-90.
- El Hamouti (N.), Lamb (H.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1991. « Changements hydroclimatiques abrupts dans le Moyen Atlas marocain depuis le dernier maximum glaciaire ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 313 (II) : 259-265.

- Fontes, (J.-Ch.), Andrews (J.-N.), 1991. « Importance de la production *in situ* de certains radionucléides en hydrologie et géochimie (^{36}Cl et ^{14}C). Résumés analytiques ». *International Symposium on the Use of Isotope Techniques in Water Resources Development*, AIEA-SM-319/12, Vienna, Austria, 11-15/03/91, 32-33.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), Causse (C.), Gibert (E.), 1991. « A comparison of ^{14}C and U/Th ages on continental carbonates ». Program and abstracts of the 14th international radiocarbon conference. *Radiocarbon*, 33 (2) : 196-197.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), Edmunds (W.M.), Guerre (A.), Travi (Y.), 1991. « Paleorecharge by the Niger River (Mali) deduced from groundwater geochemistry ». *Water Resources Research*, 27 (2) : 199-214.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), Walgenwitz (F.), 1991. « Évaluation de la production naturelle *in situ* d'argon 36 via le chlore 36 : implications géochimiques et géochronologiques ». *C.R. Acad. Sc.*, Paris, 313 (II) : 649-654.
- Fontes (J.-Ch.), Cai (Z.), Wei (K.), Filly (A.), Lin (R.), Pan (S.), Zhu (H.), 1991. « Estimating seasonal recharge-discharge processes through the unsaturated zone of the Chinese Loess from tritium and stable isotope profile ». *Preliminary results from semi-arid region of Inner Mongolia. 2nd China-Japan Joint Symposium on Geochronology, Cosmochronology and Isotope Geology*, Tokyo, 7-10 January 1991, Guangzhou, Chine, 16-17.
- Fontes (J.-Ch.) (Filly (A.), Gaudant (J.), Düringer (Ph.), 1991. « Origine continentale des évaporites paléogènes de Haute Alsace : arguments paléocéologiques, sédimentologiques et isotopiques ». *Bull. Soc. Géol. Fr.*, 162 (4) : 725-737.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1991. « Chronology of the major palaeohydrological events in NW Africa during the Late Quaternary : PALHYDAF results ». *Hydrobiologia*, 214 : 367-372.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), 1991. « PALHYDAF (Palaeohydrology in Africa program : objectives, methods, major results) ». *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.*, 84 : 191-215.
- Gasse (F.), Arnold (M.), Fontes (J.-Ch.), Fort (M.), Gibert (E.), Huc (A.), Li Bingyan, Li Yuanfang, Liu Qing, Mélières (F.), Van Campo (E.), Wang Fubao, Zhang Qingsong, 1991. « A 13,000-year climate record from western Tibet ». *Nature*, 353 : 742-745.
- Poutoukis (D.), Michelot (J.L.), Fontes (J.-Ch.), Blanc (P.L.), Ansart (M.), 1991. « Hydrochimie, teneurs isotopiques et origine des saumures associées aux gisements de potasse d'Alsace ». *International Symposium on the Use of Isotope Techniques in Water Resources Development*, AIEA-SM-319/21P, Vienna, Austria, 11-15/03/91, 149-150.

Taupin (J.D.), Dever (L.), Fontes (J.-Ch.), Guero (Y.), Ousmane (B.), Vachier (P.), 1991. « Evaluation de l'évaporation à travers les sols par modélisation des profils isotopiques sous climat sahélien : la vallée du Niger ». *Soil water balance in the Sudano-Sahelian Zone*, IAHS Publ. 199 (1-14) : p. 262.

1992

- Andrews (J.N.), Fontes (J.-Ch.), 1992. « Importance of in situ production of ^{36}Cl , ^{36}Ar and ^{14}C in hydrology and hydrogeochemistry ». *International Symposium on the Use of Isotope Techniques in Water Resources Development*, AIEA-SM-319/12, Vienna, Austria, 11-15/03/91, 245-269.
- Brevart (O.), Chennaux (G.), Fontes (J.-Ch.), 1992. « Mécanique de l'expulsion. Néofonnations minérales et CO_2 dans les expériences de catagenèse ». *Elf Aquitaine. Direction Recherche Exploration Production*, 13 p.
- Clark (I.D.), Fontes (J.-Ch.), Fritz (P.), 1992. « Stable isotope disequilibria in travertine from high pH waters : laboratory investigations and field observations from Oman ». *Geochimica Cosmochimica Acta*, 56 : 2041-2050.
- Edmunds, W.M., Gaye, C.B., Fontes, J.-Ch., 1992. « A record of climatic and environmental change contained in interstitial waters from the unsaturated zone of northern Senegal ». *International Symposium on the Use of Isotope Techniques in Water Resources Development*, AIEA-SM-319/35, 11-15 /03/91, 533-549.
- Fontes (J.-Ch.), 1992. « Les datations par les radionucléides naturels ; exemples d'applications en hydrologie de surface et souterraine ; protection des nappes ». *Colloque Atome et Géologie*. Résumé n° 22.
- Fontes (J.-Ch.), 1992. « Chemical and isotopic constraints on ^{14}C dating of groundwater ». In *Radiocarbon After Four Decades. An Interdisciplinary perspective*. R.E. Taylor, A. Long, R.S. Kra Eds. Radiocarbon. Springer-Verlag, 242-261.
- Fontes (J.-Ch.), 1992. « Application of isotope palaeohydrology to the prediction of long-term repository behaviour ». *29th IGC, Special Symposium B4, Geological disposal of radioactive and hazardous waste*, Abstracts.
- Fontes, (J.-Ch.), 1992. « Isotope palaeohydrology and reconstruction of long-term repository behaviours ». The committee of the workshop WC - 1 of the 29th IGC. Waste disposal and geology : Scientific perspectives. Tokyo 1992 : 135-168.
- Fontes(J.-Ch.), Andrews (J.N.), Causse (C.), Gibert (E.), 1992. « A comparison of radiocarbon and U/Th ages on continental carbonates ». *Radiocarbon*, 34 (3) : 602-610.

- Fritz (P.), Clark (I.D.), Fontes (J.-Ch.), Whitticar (L.J.), Faber (E.), 1992. « Deuterium and ^{13}C evidence for low temperature production of hydrogen and methane in a highly alkaline groundwater environment in Oman ». *Proc. of the 7th Int. Symp. on water-rock interaction, Vol. 1, Low temperature environments. U.S. Geol. Survey, Menlo Park, CA, United States, 7: 793-796.*
- Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), 1992. « Climatic changes in Northwest Africa during the last deglaciation (16-7 ka BP) ». In *The last deglaciation : absolute and radiocarbon chronologies* (E. Bard, W.S. Broecker, Eds.), Nato ASI Series, 12: 295-325.
- Marlin (C.), Fontes (J.-Ch.), 1992-1993. « Geochemical testing ». *Simulation of the effects of long-term climatic change on groundwater flow and safety of the geological disposal sites. 5 reports of the EEC-Project on management and storage of radioactive waste n° F12W-0046.*
- Poutoukis (D.), Michelot (J.L.), Fontes (J.-Ch.), Blanc (P.L.), Ansart (M.), 1992. « Hydrochimie, teneurs isotopiques et origine des saumures associées aux gisements de potasse d'Alsace ». *International Symposium on the Use of Isotope Techniques in Water Resources Development, AIEA-SM-319/39, Vienna, Austria, 11-15/03/91, 654-662.*

1993

- Andrews (J.N.), Fontes (J.-Ch.), 1993. « Comment on "Chlorine-36 dating of very old groundwater 3. Further results on the great Artesian Basin. Australia", by Torgersen *et al.*, 1991 ». *Water Resources Research*, 29 (6) : 1871-1874.
- Andrews (J.N.), Fontes (J.-Ch.), Aranyossy (J.F.), Dodo (A.), Edmunds W.W., Joseph, A., Travi, Y., 1993. « The evolution of alkaline groundwaters in the Continental Intercalaire aquifer of the Irhazer Plain, Niger ». *Water Resources Research*, 30 (1) : 45-61.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), 1993. « Response to the reply by A. Kaufman *et al.* on "The ^{36}Cl ages of the brines in the Magadi-Natron basin, East Africa" ». *Geochim. Cosmochim. Acta*, 57 : 1617-1618.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), 1993. « Comment on "The ^{36}Cl ages of the brines in the Magadi-Natron basin, East Africa", by A. Kaufman *et al.* ». *Geochim. Cosmochim. Acta*, 57 : 1607-1612.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), Gasse, F., 1993. « Conditions climatiques du retour humide à l'Holocène sur l'Afrique sud-saharienne ». Abstract IAEA-SM-329, 123-124.

- Fontes (J.-Ch.), Matray (J.M.), 1993. « Geochemistry and origin of brines from the Paris Basin ». In *Geofluids' 93*, Parnell, J. *et al.* Eds, extended abstracts, The Queen's University of Belfast, p. 17.
- Fontes (J.-Ch.), Stute (M.), Schlosser (P.), Broecker (W.S.), 1993. « Aquifers as Archives of Paleoclimate ». *Eos Transactions, American Geophysical Union*, 74 (2) : 21-22.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), 1993. « Comment on "Reinterpretation of ^{36}Cl data : physical processes, hydraulic interconnections and age estimates in groundwater systems" by Mazor, E. ». *Applied Geochem.*, 8 : 663-666.
- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Andrews (J.N.), 1993. « Climatic conditions of Holocene groundwater recharge in the Sahel zone of Africa ». *Isotope techniques in the study of past and current environmental changes in the hydrosphere and the atmosphere*, Vienna, Austria, 19-23/04/93, 231-248.
- Fontes (J.-Ch.), Matray (J.M.), 1993. « Geochemistry and origins of formation brines from the Paris Basin, France. Part 1. Brines associated with Triassic salts ». *Chemical Geology*, 109 (1/4) : 149-175.
- Fontes (J.-Ch.), Matray (J.M.), 1993. « Geochemistry and origins of formation brines from the Paris Basin, France. Part 2. Saline solutions associated with oil fields. *Chemical Geology*, 109 (1/4) : 177-200.
- Fontes (J.-Ch.), Mélières (F.), Liu (Q.), Gibert (E.), Gasse (F.), 1993. « Stable isotope and radiocarbon balances of two Tibetan lakes (Sumxi Co, Longmu Co) from 13,000 yr B.P ». *Quaternary Science Reviews*, 12 : 875-887.
- Gibert (E.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Van Campo (E.), Taïeb (M.), 1993. « Paléoclimatologie et Géochimie Isotopique : un exemple du Tibet ». Colloque *Sédimentologie et Géochimie de la Surface* à la mémoire de Georges Millot, Société géologique de France, Paris. Abstract, p. 27.
- Matray (J.M.), Fontes (J.-Ch.), 1993. « Multi-sourced formation waters from the Dogger aquifer of the Paris Basin ». In *Geofluids' 93*, Parnell, J. *et al.* Eds, extended abstracts, The Queen's University of Belfast, 304-308.
- Street-Perrott (F.A.), Hales (P.E.), Perrott (R.A.), Fontes (J.-Ch.), Switsur (V.R.), Pearson (A.), 1993. « Late Quaternary palaeolimnology of a tropical marl lake : Wallywash Great Pond, Jamaica ». *Journal of Palaeolimnology*, 9 : 3-22.
- Travi (Y.), Gac (J.Y.), Gibert (E.), Leroux (M.), Fontes (J.-Ch.), 1993. « Composition isotopique et genèse des précipitations sur Dakar pendant les saisons des pluies 1982 et 1984 ». *Isotope techniques in the study of past and current environmental changes in the hydrosphere and the atmosphere*, IAEA-SM 329/53, Vienna, Austria, 19-23/04/93.

1994

- Andrews (J.N.), Edmunds (W.M.), Smedley (P.L.), Fontes (J.-Ch.), Fifield (L.K.), Alla (G.L.), 1994. « Chlorine-36 in groundwater as a palaeoclimatic indicator: the East Midlands Triassic sandstone aquifer (U.K.) ». *Earth and Planetary Science Letters*, 122 : 159-171.
- Barker (Ph.), Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Druart (J.Cl.), 1994. « Experimental dissolution of diatom silica in concentrated salt solutions and implications for paleoenvironmental reconstruction ». *Limnol. Oceanogr.*, 39 (1) : 99-110.
- Debenay (J.P.), Fontes (J.-Ch.), 1994. « Évolution isotopique des fluides et de l'aragonite biogénique dans une lagune côtière intertropicale (Mbodiène, Sénégal). Possibilité d'application aux reconstitutions de paléomilieus ». *C.R. Acad. Sc., Paris*, 318 (II) : 1087-1094.
- Fontes (J.-Ch.), 1994. « Isotope Palaeohydrology and the Prediction of long-term repository behaviour ». *Terra Nova*, 6 : 20-36.
- Fontes (J.-Ch.), 1994. « Les datations par les radioéléments naturels ; exemples d'applications en hydrologie de surface et souterraine ; protection des nappes ». *Colloque « Atome et Géologie », Mémoires de la Société Géologique de France*, Nouvelle Série, 162 : 187.
- Fontes (J.-Ch.), Andrews (J.N.), 1994. « Accelerator Mass Spectrometry in Hydrology ». *Proceeds. 6th Internat. Conf. on Accelerator Mass Spectrometry, Canberra-Sydney (Australia), Sept. 27-Oct. 1st, 1993. NIM B (Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 92)*, 367-375.
- Matray (J.-M.), Lambert (M.), Fontes (J.-Ch.), 1994. « Stable isotope conservation and origin of saline waters from the Middle Jurassic aquifer of the Paris Basin, France ». *Applied Geochemistry*, 9 (3) : 297-309.

1995

- Daoud (D.), Fontes (J.-Ch.), Michelot (J.L.), 1995. « Caractérisation géochimique et isotopique des eaux souterraines du bassin du Chott-Chergui (Algérie) ». *Int. Symp. on Isotopes in Water Resources Management, IAEA, Vienna, 20-24 march 1995*.
- Jelinowska (A.), Tucholka (P.), Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), 1995. « Mineral magnetic record of environment in late Pleistocene and Holocene sediments, Lake Manas, Xinjiang, China ». *Geophysical Research Letters*, 22 (8) : 953-956.
- Le Gal La Salle (C.), Marlin (C.), Savoye (S.), Fontes (J.-Ch.), 1995. « Geochemistry and ^{14}C dating of groundwaters from the low and middle Jurassic confined aquifer of North Aquitaine Basin ». *Applied Geochemistry*, 11 (3) : 433-445.

1996

- Fontes (J.-Ch.), Gasse (F.), Gibert (E.), 1996. « Holocene environmental changes in Lake Bangong basin (Western Tibet). Part 1 : Chronology and stable isotopes of carbonates of a Holocene lacustrine core ». *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.*, 120 : 25-47.
- Fontes (J.-Ch.), Gaudant (J.), Mélières (F.), Filly (A.), Schlund (J.M.), 1996. « Origine continentale des évaporites paléogènes du fossé de Valence (Drôme): données minéralogiques, isotopiques et paléoécologiques ». *Bulletin de la Société Géologique de France*, 167 (4) : 471-481.
- Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), Van Campo (E.), Wei Keqin, 1996. « Holocene environmental changes in Bangong Co basin (Western Tibet). Part 4: a discussion ». *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.*, 120 : 79-92.
- Lin Ruifen, Wei Keqin, Cheng Zhiyuan, Wang Zhixiang, Gasse (F.), Fontes (J.-Ch.), Gibert (E.), Tucholka (P.), 1996. « A paleoclimatic study on lacustrine cores from Manas Lake, Xinjiang, western China ». *Geochimica*, 25 (1) : 63-72. Science Press. Beijing, China.
- Rhodes (T.E.), Gasse (F.), Lin Ruifen Fontes (J.-Ch.), Wei Keqin, Bertrand (P.), Gibert (E.), Mélières (F.), Tucholka (P.), Wang Zhixiang, Cheng Zhiyuan, 1996. « A Late Pleistocene-Holocene lacustrine record from Lake Manas, Zunggar (Northern Xinjiang, Western China) ». *Palaeogeogr., Palaeoclim., Palaeoecol.*, 120 : 105-121.

Achevé d'imprimer sur rotative
par l'imprimerie Darantiere à Dijon-Quetigny
en mars 1998

Dépôt légal : 1^{er} trimestre 1998
N° d'impression : 98-0255

Cet ouvrage rassemble des travaux récents dans les domaines de l'Hydrologie et de la Géochimie isotopique.

La première partie explore le cycle des eaux naturelles, depuis les précipitations jusqu'aux aquifères profonds, par l'analyse des variations de la composition isotopique de l'hydrogène, de l'oxygène et du carbone. Des types régionaux sont présentés, sous diverses latitudes : Spitzberg, Bassin parisien, bassin soudano-sahélien du Niger. L'intérêt de l'approche isotopique dans l'étude du *changement global* est illustrée en deuxième partie. Les variations hydroclimatiques de types régionaux, en Afrique essentiellement, sont retracées par l'analyse multidisciplinaire d'enregistrements sédimentaires, dont la géochimie isotopique constitue la clé essentielle. L'homogénéité du refroidissement, aux moyennes et basses latitudes, lors du dernier maximum glaciaire est démontrée par l'analyse isotopique des gaz nobles dans les eaux souterraines. La mise en évidence de l'origine organique du carbone de carbonates sédimentaires remet en question l'interprétation de certaines analyses isotopiques. La troisième partie fait référence aux isotopes d'origine cosmique et à la production *in situ* de radionucléides. Il est rappelé que la datation par ^{14}C a contribué à la compréhension des mécanismes des changements du climat au cours du dernier maximum glaciaire et depuis lors. Les limites de cette méthode et ses progrès récents font l'objet d'une synthèse amplement documentée. Par l'apport de données isotopiques, la géochimie s'avère fonder la modélisation des conditions de stabilité du réacteur de fission nucléaire fossile d'Oklo.

Les divers sujets présentés, tous liés aux centres d'intérêt chers à Jean-Charles Fontes, rendent compte du potentiel de l'hydrologie et de la géochimie isotopique, mais aussi et surtout de la créativité de l'ami et du maître que les auteurs de cet ouvrage ont voulu honorer.

Mots clés : Hydrologie — Géochimie isotopique — Paléoclimatologie — Radiochronologie.

This book gathers recent works in hydrology and isotopic geochemistry.

Part I exposes the general water cycle, from precipitations to deep aquifers, through the analysis of hydrogen, oxygen and carbon isotopic composition. Regional types are laid out from high latitudes (Spitzberg), through temperate regions (Parisian Basin), to the tropics (the Soudanian-Sahelian Niger Basin). The significance of isotopic techniques for Global Change analysis is shown in part II. Several case studies, mainly in Africa, reconstruct the hydroclimatic history through the pluri-proxy analysis of sediment profiles, where isotopic geochemistry is key. The last glacial maximum cooling is shown to have been homogeneous throughout middle and low latitudes, based upon noble gases isotopic analysis in groundwaters. The interpretation of some isotopic analyses could sometimes be questionable due to the organic origin of carbon in some sedimented carbonates. Part III refers to isotopes of cosmic origin and to in situ production of radionucléides. ^{14}C dating is reminded to have contributed to our understanding of climate change mechanisms during the last glacial and post-glacial periods. Both the limitations and the recent improvements in this methodology are highlighted in a well documented synthesis. Isotopic data enable geochemistry to be the base for modelling stability conditions in the Oklo natural fossil nuclear fission reactor.

These combined subjects, all close to Jean-Charles Fontes fields of interest, give an account of the richness of hydrology and isotopic geochemistry applications; but more, they reflect the creativeness of the friend and master that the authors here intend to honour.

Keywords: Hydrology — Isotopic geochemistry — Paleoclimatology — Radiochronology.

Orstom éditions
213, rue La Fayette
75480 Paris cedex 10

Diffusion
32, avenue Henri-Varagnat
93143 Bondy cedex



100 FF t.t.c.

ISSN : 0767-2896
ISBN : 2-7099-1377-1