ANTHROPOLOGICA ET PRAEHISTORICA

126 / 2015

ERAUL 143

STUDIA PRAEHISTORICA
BELGICA 8

With the participation of:

F.R.S.-FNRS, SRA-DRAC Normandie, Ministère de la Culture et de la Communication (France), CNRS – Trajectoires, Université de Liège, Geological Survey of Belgium, Royal Belgian Institute of Natural Sciences, Service Public de la Wallonie, Université de Rennes 1 CREAAH

Société royale belge
d'Anthropologie et de Préhistoire
a.s.b.l.
Rue Vautier, 29
B-1000 Bruxelles

Fondée en 1882, la Société d'Anthropologie de Bruxelles est devenue la Société royale belge d'Anthropologie et de Préhistoire à partir de 1931. Elle réunit des chercheurs professionnels ou non, belges et étrangers, spécialistes en archéologie préhistorique, en anthropologie physique, en anthropologie génétique ou en paléontologie humaine.

Koninklijke Belgische Vereniging
voor Antropologie en Prehistorie
v.z.w.
Vautierstraat, 29
B-1000 Brussel

De Vereniging voor Antropologie van Brussel, gesticht in 1882, kreeg vanaf 1931 de benaming van Koninklijke Belgische Vereniging voor Antropologie en Prehistorie. Ze verenigt al dan niet professionele onderzoekers, zowel Belgische en buitenlandse, gespecialiseerd in de prehistorische archeologie, in de fysische antropologie, in de genetische antropologie of in de menselijke paleontologie.

Bureau 2016

Présidente	Martine VERCAUTEREN	Voorzitster
Vice-présidente & Bibliothécaire	Rosine ORBAN	Ondervoorzitter & Bibliothecaris
Secrétaire générale	Caroline POLET	Secretaris-generaal
Trésorier	Jeremy LEROY	Schatbewaarder

☎ +3226274145

srbap@naturalsciences.be

Compte bancaire
Bankrekening
BE46 0000 3074 2936

AetP 126/2015 – ISSN 1377-5723 (Print) - ISSN 2507-0169 (Online)
ERAUL 143 - D/2015/0480/11
SPB 8 - D/2016/7181/2

ANTHROPOLOGICA ET PRAEHISTORICA

Bulletin de la
Société royale belge d'Anthropologie
et de Préhistoire

Bulletin van de
Koninklijke Belgische Vereniging
voor Antropologie en Prehistorie

126/2015

Autour de l'hématite – *About haematite*

Circulation et transformation au cours de la Préhistoire récente
Procurement and transformation during Recent Prehistory

Actes de la Table-Ronde internationale / *Acts of the international Round Table*
7-8/02/2013, Namur (Jambes)

Volume 2

Cyrille Billard, Dominique Bosquet, Roland Dreesen, Éric Goemaere,
Caroline Hamon, Ivan Jadin, Hélène Salomon & Xavier Savary
Éditeurs - *Editors*

2016

TABLE DES MATIÈRES – TABLE OF CONTENTS

VOLUME 2

3. MATIÈRES FERRUGINEUSES : MÉTHODES DE CARACTÉRISATION ET SOURCES DE MATIÈRES PREMIÈRES - *FERRUGINOUS RAW MATERIAL: METHODS OF CHARACTERIZATION AND SOURCING*

3.1. Chiara LEVATO 9-23
Iron Oxides Prehistoric Mines. A European Overview

3.2. Chiara LEVATO & Felice LAROCCA 25-37
The Prehistoric Iron Mine of Grotta della Monaca (Calabria, Italy)

3.3. Julien DENAYER 39-49
Iron ores of Southern Belgium: much more than hematite

3.4. Bernard MOTTEQUIN & Jean-Marc MARION 51-56
Geological context of the Mesolithic Heid de Fer and Ourlaine sites at Becco (Liège province, Belgium)

3.5. Jean-Marc BAELE, Roland DREESEN & Michiel DUSAR 57-67
Assessing apatite cathodoluminescence as a tool for sourcing oolitic ironstones

3.6. Laure DAYET 69-89
Provenance des roches à base d'hématite exploitées à Diepkloof Rock Shelter, Afrique du Sud : synthèse et implications socio-économiques

3.7. Giovanni CAVALLO & Manoj K. PANDIT 91-104
Mineralogy, Geochemistry and Microstructure of Post-Tertiary Kaolinitic Hematite from Rajasthan State, NW India

3.8. Jean-Victor PRADEAU, Didier BINDER, Chrystèle VÉRATI, Jean-Marc LARDEAUX, Stéphan DUBERNET, Yannick LEFRAIS, Ludovic BELLOT-GURLET, Paolo PICCARDO & Martine REGERT 105-119
Stratégies d'acquisition des matières colorantes dans l'Arc liguro-provençal au cours des VI^{e} et V^{e} millénaires cal. BCE

3.9. Jean-Pol FIZAINE, Dominique HARMAND & Vincent OLLIVE 121-135
Le minerai de Fer fort des plateaux du Bajocien des régions frontalières du Pays-Haut (France), de la Gaume (Belgique) et du Gutland (Grand-Duché de Luxembourg)

4. UTILISATIONS DE ROCHES RICHES EN OXYDES DE FER DURANT LA PRÉHISTOIRE *USES OF IRON OXIDES RICH ROCKS DURING PREHISTORY*

4.1. Émilie CHALMIN, Géraldine CASTETS, Bruno DAVID, Bruce BARKER, Jean-Jacques DELANNOY, Lara LAMB, Jean-Michel GENESTE, Faycal SOUFI, Sébastien PAIRIS, Stéphane HOERLÉ, Élisa BOCHE & Margaret KATHERINE 139-160
Étude des pigments rouges du panneau du « Genyornis », Terre d'Arnhem, Australie : origines de l'hématite ?

4.2. Joanna TRĄBSKA, Martin OLIVA, Adam GAWEŁ & Barbara TRYBALSKA 161-178
Dolní Věstonice I female grave (DV3). Red colourants and other components of the burial fill up and grave floor

4.3. Julia KITZIG & Britta RAMMINGER 179-186
Use and distribution of colourants in Western LBK sites

4.4. Corinne THEVENET 187-199
Quelques hypothèses quant à l'usage des matières colorantes rouges dans les sépultures du Néolithique ancien du Bassin parisien

4.5. Florent JODRY, Delphine MINNI & Marieke VAN ES 201-218
L'acquisition et l'exploitation des roches riches en oxydes de fer en Alsace du Néolithique à La Tène

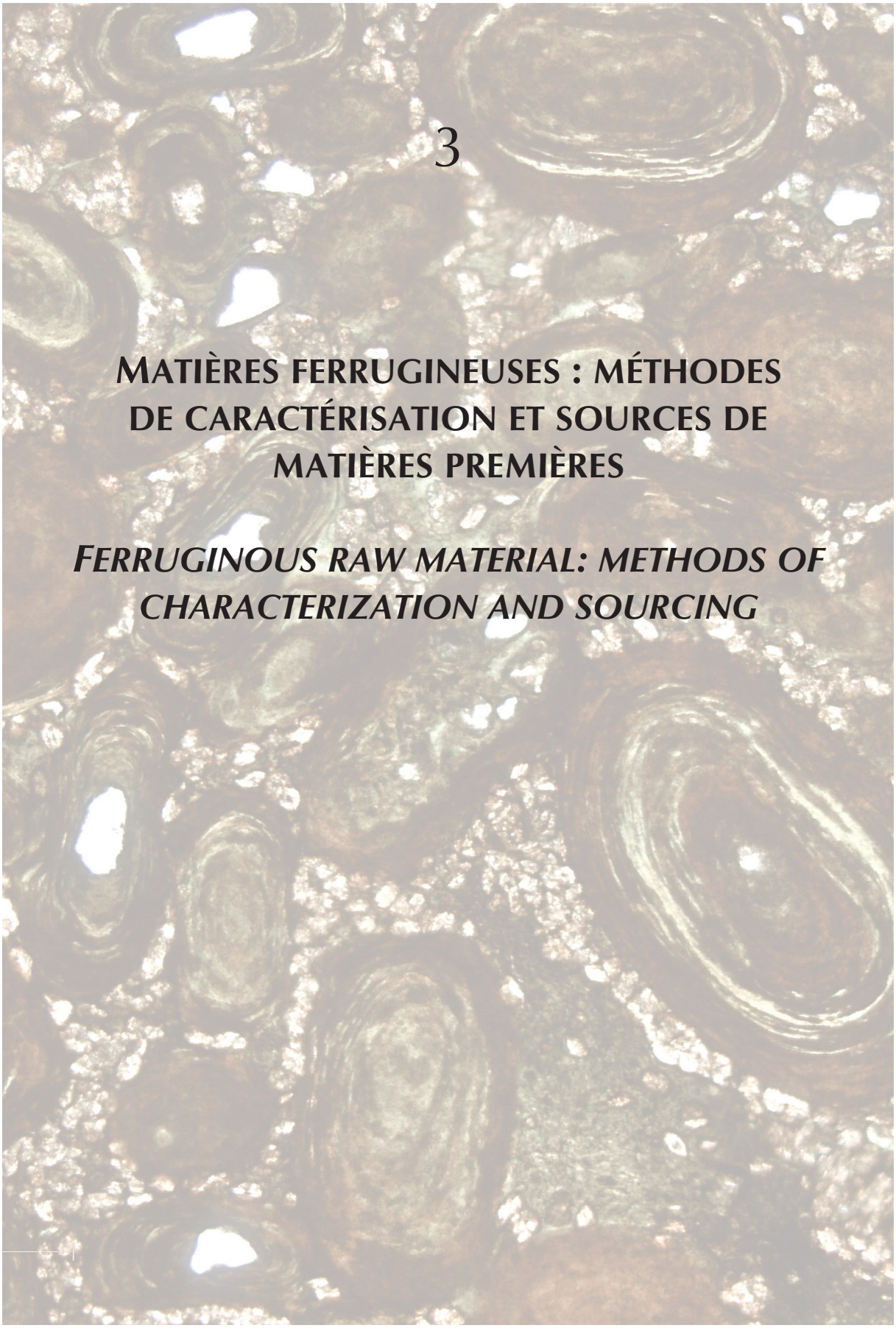
5. POURQUOI UNE TABLE-RONDE AUTOUR DE L'HÉMATITE DANS LA PRÉHISTOIRE ?
WHY A ROUND TABLE ON HEMATITE IN PREHISTORY? Les éditeurs – *The editors*
Conclusions 221-226

TABLE DES MATIÈRES – *TABLE OF CONTENTS*

VOLUME 1

1. AUTOUR DE L'HÉMATITE. APPROVISIONNEMENT ET TRANSFORMATION DURANT LA PRÉHISTOIRE RÉCENTE – *ABOUT HAEMATITE. PROCUREMENT AND TRANSFORMATION DURING RECENT PREHISTORY.* Les éditeurs – *The editors*

2. PROJET COLLECTIF DE RECHERCHE SUR LES HÉMATITES OOLITHIQUES DES SITES NÉOLITHIQUES BELGES ET NORMANDS – *COLLECTIVE RESEARCH PROJECT ON THE OOLITIC IRONSTONES FROM THE BELGIAN AND NORMAN NEOLITHIC SITES*



3

MATIÈRES FERRUGINEUSES : MÉTHODES DE CARACTÉRISATION ET SOURCES DE MATIÈRES PREMIÈRES

FERRUGINOUS RAW MATERIAL: METHODS OF CHARACTERIZATION AND SOURCING

Image au microscope optique polarisant d'un minerai de fer oolithique normand (Saint-Germain-le-Vasson, Calvados, FR)

3.1. LEVATO C., 2016. Iron Oxides Prehistoric Mines. A European Overview : 9-23.

3.2. LEVATO C. & LAROCCA F., 2016. The Prehistoric Iron Mine of Grotta della Monaca (Calabria, Italy) : 25-37.

3.3. DENAYER J., 2016. Iron ores of Southern Belgium: much more than hematite : 39-49.

3.4. MOTTEQUIN B. & MARION J.-M., 2016. Geological context of the Mesolithic Heid de Fer and Ourlaine sites at Becco (Liège province, Belgium) : 51-56.

3.5. BAELE J.-M., DREESEN R. & DUSAR M., 2016. Assessing apatite cathodoluminescence as a tool for sourcing oolitic ironstones : 57-67.

3.6. DAYET L., 2016. Provenance des roches à base d'hématite exploitées à Diepkloof Rock Shelter, Afrique du Sud : synthèse et implications socio-économiques : 69-89.

3.7. CAVALLO G. & PANDIT M. K., 2016. Mineralogy, Geochemistry and Microstructure of Post-Tertiary Kaolinitic Hematite from Rajasthan State, NW India : 91-104.

3.8. PRADEAU J.-V., BINDER D., VÉRATI C., LARDEAUX J.-M., DUBERNET S., LEFRAIS Y., BELLOT-GURLET L., PICCARDO P. & REGERT M., 2016. Stratégies d'acquisition des matières colorantes dans l'Arc liguro-provençal au cours des VI^{e} et V^{e} millénaires cal. BCE : 105-119.

3.9. FIZAINE J.-P., HARMAND D. & OLLIVE V., 2016. Le minerai de Fer fort des plateaux du Bajocien des régions frontalières du Pays-Haut (France), de la Gaume (Belgique) et du Gutland (Grand-Duché de Luxembourg) : 121-135.

In : C. BILLARD *et al.* (éd.), *Autour de l'hématite / About haematite. Actes de / Acts of Jambes, 7-8/02/2013, Volume 2*, Liège, ERAUL, **143** – *Anthropologica et Præhistorica*, **126/2015**.

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 9-23

Iron Oxides Prehistoric Mines
A European Overview

Chiara LEVATO

Résumé

Cette recherche offre une synthèse sur les anciennes exploitations d'oxydes et d'hydroxydes de fer connus sur le continent européen. L'objectif est de synthétiser les informations publiées pour chaque site. Les sites préhistoriques d'extraction de ces minéraux sont rares. En Europe, on compte cinq mines préhistoriques d'oxydes de fer connues : Tzines (Grèce), Rydno (Pologne), Lovas (Hongrie), Bad Sulzburg (Allemagne) et Grotta della Monaca (Italie). Ces cinq mines couvrent une période entre la phase finale du Paléolithique supérieur et le Néolithique final. Ces mines, qui ont survécu aux destructions liées aux exploitations ultérieures, donnent un aperçu de la distribution géographique et du cadre chronologique de cette activité, de même qu'elles livrent des informations sur les techniques d'extraction et les outils utilisés. Par contre, en l'absence de liens avec des habitats bien identifiés, l'état actuel des recherches ne permet pas de comprendre l'organisation sociale et économique des groupes qui ont développé ce type d'exploitation, exception faite du site de la mine de Rydno. Malheureusement, peu de choses sont connues à ce jour sur le traitement de la matière première après son extraction. Seule une phase de broyage direct in situ *ou à proximité du site d'extraction a pu être observée. Un nombre important de sites en grotte et de plein air livrent des évidences de l'utilisation d'oxydes de fer comme pigments, abrasifs et agents siccatifs. D'autres hypothèses sont possibles mais, en l'absence de preuves directes, elles sont tirées de sources historiques et de comparaisons ethnographiques : peinture du corps, travail de la peau, conservation de substances organiques, remèdes médicaux, entre autres. Quoiqu'il en soit, l'importance évidente de ces matériaux durant la Préhistoire laisse à penser que les sources d'approvisionnement étaient très activement recherchées.*

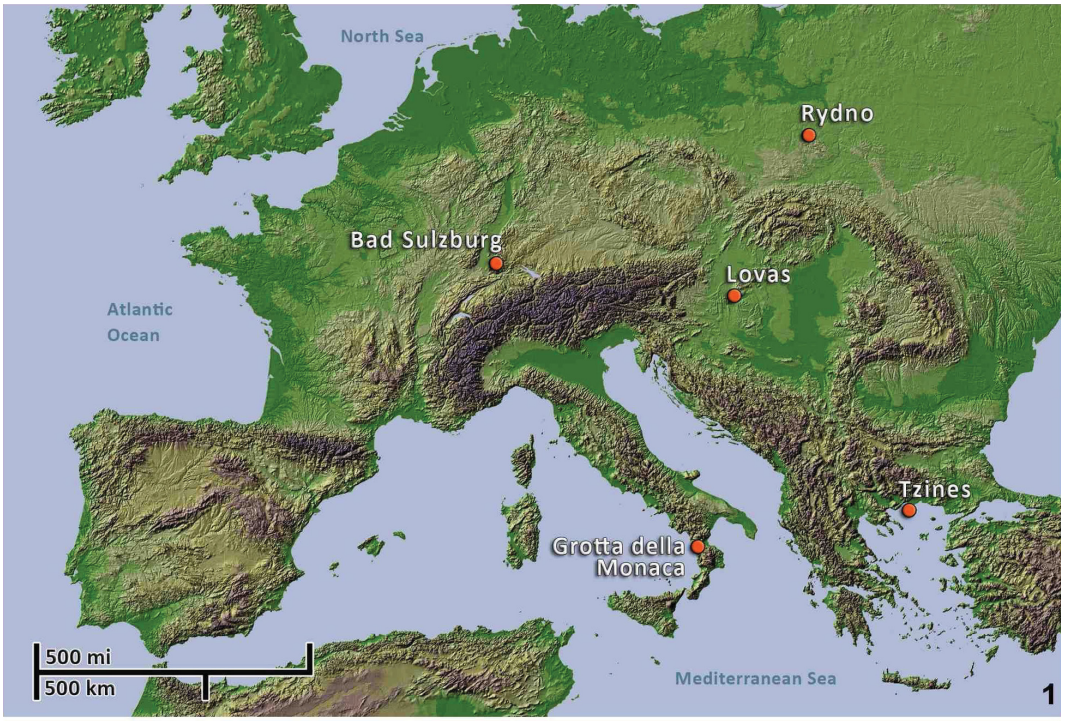
***Mots-clés** : Minières, mines, oxydes de fer, Préhistoire, Tzines (Grèce), Rydno (Pologne), Lovas (Hongrie), Bad Sulzburg (Allemagne), Grotta della Monaca (Italie), Europe.*

Keywords: Mines, Iron oxides, Prehistory, Tzines (Greece), Rydno (Poland), Lovas (Hungary), Bad Sulzburg (Germany), Grotta della Monaca (Italy), Europe.

1. INTRODUCTION

Iron oxides and hydroxides are among the most widespread chemical compounds in nature. They are composed of Fe combined with O, in the case of iron oxides, or OH, in the case of iron hydroxides. Nowadays, they are used mainly as ores in iron and steel industry and as pigments (Cornell & Schwertmann, 2003: 1-2, 511-524). Some can be obtained by thermal transformation: for example maghemite (γFe_2O_3), which can derive from the heating of some iron oxides associated with organic matters, or hematite (αFe_2O_3), that can be produced by heating goethite [$\alpha FeO(OH)$] at a temperature between 250°C and 300°C. Typical acicular nano-porosities caused by a dehydration process allow to distinguish natural hematite from the heated one (Cornell & Schwertmann, 2003: 6-7, 369-373; Pomiès *et al.*, 1998).

These minerals are often connected with the term *ochre*. Ochre is a generic word that has not an univocal and received definition. In literature it is often described as any colouring matter varying in colour from yellow to brown, without any reference to its mineralogical composition. One useful definition is suggested by Elias, Chartier, Prévot, Garay and Vignaud (2006: 70-71) for commercial natural ochres. The authors state: "Ochres contain varying amounts of octahedral iron oxides, namely hematite (αFe_2O_3) or/and goethite [$\alpha FeO(OH)$], and of white pigments (alumino-silicate as kaolinite or illite, quartz and calcium compounds as calcite, anhydrite, gypse or dolomite). When the hematite is the main iron oxide, a red colour is observed, whereas the ochre is yellow when the goethite dominates". This specific description is useful because it underlines the heterogeneous mineral composition



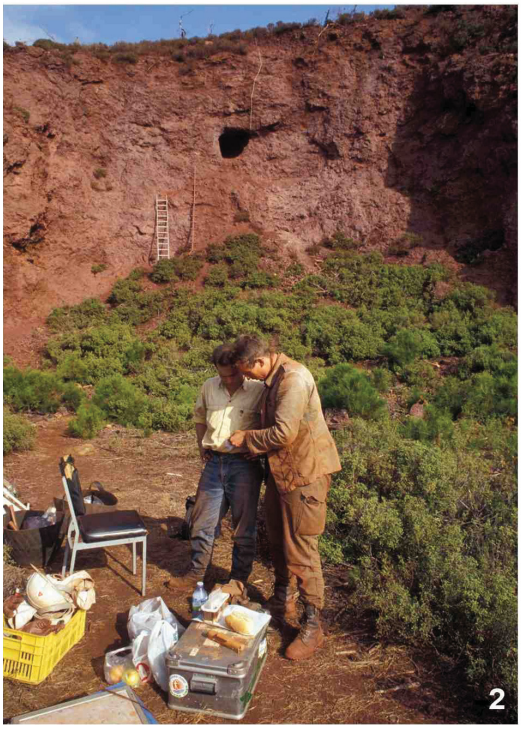


Fig 1 – 1. Geographical setting of the European prehistoric iron oxides mines (drawing by F. Breglia © 2013); 2. Entrance of Tzines "T1" mine (Thasos Island, Greece) (Image courtesy of the Deutsches Bergbau Museum Bochum); 3. Mining stone tools from the Tzines "T1" mine (Thasos Island, Greece) (Images courtesy of the Deutsches Bergbau Museum Bochum, modified).

Fig 1 – *1. Localisation géographique des mines préhistoriques d'oxydes de fer en Europe (dessin par F. Breglia © 2013) ; 2. L'entrée de la mine "T1" de Tzines, dans l'Ile de Thasos (Grèce) (Droit de reproduction du Deutsches Bergbau Museum de Bochum) ; 3. Outils de mineur en pierre provenant de la mine "T1" de Tzines (Ile de Thasos, Grèce) (Droit de reproduction du Deutsches Bergbau Museum de Bochum, modifié).*

of ochres and links its colour with the presence of iron oxides, clay minerals and carbonates.

The use of iron oxides, especially hematite, and ochres in general has been largely attested worldwide within numerous prehistoric sites. However, taking into account all the activities connected with the production cycle of iron minerals – used for different purposes from smelting ones – it is possible to observe the rarity of the hitherto known sites in which extraction activities, essential for the subsequent phases of mineral processing, were performed.

This paper offers a concise summary of a wider work about European and non-European iron oxides prehistoric mines known in literature, raised after some archaeological investigation carried out on the iron hydroxide Neolithic exploitation of Grotta della Monaca, a cave located in southern Italy (Levato, 2012). The aim is to summarize in a single contribution the information published for each site known in Europe, focusing the attention on geographic distribution, geological setting, chronology, mining techniques, and – where it has been possible – on mineralogical analysis and socio-economic organization.

2. Iron oxides prehistoric mines

In Europe are known at least five iron oxides prehistoric mines, concentrated in the southern and north-eastern European belts: Tzines (Greece), Rydno (Poland), Lovas (Hungary), Bad Sulzburg (Germany), and Grotta della Monaca (Italy) (Fig. 1:1). These five mines cover a time span ranging from the final phase of the Upper Palaeolithic to the end of Neolithic Age.

The site of Tzines is an extraordinary example of underground mine, the most ancient one today known in Europe. It is located in Thasos, an island of the northern Aegean Sea, close to the coast of East Macedonia and Thrace. The site sets in an area with rich iron-manganese deposits under the Ais Matis-Kastrou marble horizon. Iron ore is deposited erratically in the marble rock. Hematite contains small hollows in which iron oxidised and on whose surface the iron oxide weathered in powdery form is deposited (Koukouli-Chrysanthaki & Weisgerber, 1999: 130-131). Archaeological investigations were carried out between 1982 and 1993 by the 18th Ephorate of Prehistoric and Classical Antiquities of Kavala, represented by Chaido Koukouli-Chrysanthaki, in collaboration with Gerd Weisgerber of the Deutsches Bergbau Museum of Bochum and Georgios Gialoglou of the Greek Institute of Geology and Mineral Exploration. Several mining sites were discovered, four of which were excavated. The best investigated ones are the underground mines called "T1" and "T2". Prehistoric miners exploited powder hematite starting from the surface and then deepened the extraction through underground mining (Koukouli-Chrysanthaki & Weisgerber, 1999: 129-134). The T1 mine is composed of two galleries, 11 metres in length on the whole, with variable height and width (Fig. 1:2). In this site twenty-two layers, distinct by very hard upper surfaces, reflect different phases of frequentation with time gaps between one mining period and the next one. The surfaces compactness is a consequence of the deposition of waters rich in carbonates percolating from the roof and the weight of the bodies of prehistoric miners that crawled along the central axis of the cavity. Miners left *in situ* no longer useful tools placing them alongside the cave walls. The deposit provided over 500 finds made both of hard animal material, as antlers, horns, ribs, and of stone, such as flint and especially pebbles. According to Koukouli-Chrysanthaki, Weisgerber, and Cierny (Koukouli-Chrysanthaki & Weisgerber, 1999; Weisgerber *et al.*, 2008), antlers – mainly of *Cervus elaphus* – were employed as wedges or chisels, leaving digging traces on the mine walls, whilst pebbles – mainly made of marble and gneiss without any manufacturing traces – were used as hammers without handle and probably were collected in the neighbouring streams (Fig. 1:3). Other tools such as bone spatulas and flint blades might have been used respectively to collect and scrape hematite. The T2 mine is composed by a chamber 3 x 4 metres and by three small branches. A different extractive technique has been recognized within it. It was based on the direct percussion of the rock walls with the exclusive use of handheld pebbles equally lacking any manufacturing traces (Koukouli-Chrysanthaki & Weisgerber, 1999: 131-134; Weisgerber *et al.*, 2008). The lack of pottery, charcoal, and diagnostic flint tools made the dating on this context very difficult. However, two radiocarbon dates have been carried out on finds coming from T1 mine: the first, executed measuring C14 levels of deer antlers, has yielded a date

of around 6400 years BC (HD-8528-8509); the second, on an animal bone, has been realized by accelerator mass spectrometer (AMS), giving a dating of 20350±160 years BP (ETH-11573) (Tab.1). This last one is confirmed by the presence of a *Saiga tatarica* horn which dates back to the Late Glacial when Thasos was still attached to the mainland (Koukouli-Chrysanthaki & Weisgerber, 1999: 135-136; Weisgerber *et al.*, 2008). Unfortunately, the interruption of the research does not allow adding other information, even if a new series of studies is to be hoped.

Lab. no	*Material*	*Context*	*Radiocarbon dating*
ETH-11573	Bone	Tzines T1 mine	20350±160 BP
Gd-2002	Charcoal	Rydno Quarry I/1980	19280±280 BP
Gd-4306	Charcoal	Rydno Quarry I/1980 Magdalenian (?)	12960±210 BP
Gd-725	Charcoal	Rydno Quarry III/1979 Hamburghian/Magdalenian (?)	12290±210 BP
Bln-2037	Charcoal	Rydno Quarry I/1977 Hambughian (?)	11970±125 BP
Gd-724	Charcoal	Rydno Quarry III/1979 Hamburghian (?)	11940±300 BP
Gd-713	Charcoal	Rydno Quarry III/1979 Arch Backed Piece	10910±220 BP
Gd-714	Charcoal	Rydno Quarry III/1979 Arch Backed Piece/Masovian (?)	10710±250 BP
Gd-710	Charcoal	Rydno Quarry I/1977 Masovian	10360±320 BP
Gd-719	Charcoal	Rydno Quarry III/1979 Masovian (?)	9840±370 BP
MAMS-21718	Bone	Lovas Mine	11941±44 BP
MAMS-21719	Bone	Lovas Mine	11918±41 BP
MAMS-21720	Bone	Lovas Mine	11825±41 BP
ETH-15199	Bone	Lovas Mine	11740±100 BP
MAMS-21722	Bone	Lovas Mine	11728±46 BP
MAMS-21721	Bone	Lovas Mine	11469±40 BP
Beta-105503	Charcoal	Bad Sulzburg Mine	6250±60 BP
Beta-105505	Charcoal	Bad Sulzburg Mine	6180±60 BP
Beta-105504	Charcoal	Bad Sulzburg Mine	5810±60 BP
LTL-3583A	Charcoal	Grotta della Monaca/Ramo delle vaschette	5183±50 BP
LTL-3584A	Charcoal	Grotta della Monaca/Ramo delle vaschette	5010±50 BP
LTL-3582A	Charcoal	Grotta della Monaca/Buca delle impronte	4935±45 BP
LTL-3581A	Charcoal	Grotta della Monaca/Buca delle impronte	4880±45 BP

Tab. 1 – Uncalibrated radiocarbon dating acquired on charcoal and bones from the mines of Tzines, Rydno, Lovas, Bad Sulzburg and Grotta della Monaca (from Dobosi, 2006; Goldenberg *et al.*, 2003; Larocca, 2010; Sajó *et al.*, 2015; Schild *et al.*, 2011; Weisgerber *et al.*, 2008).

***Tab. 1** – Datations radiocarbones non calibrées sur charbon de bois ou os issus des mines de Tzines, Rydno, Lovas, Bad Sulzburg et Grotta della Monaca (d'après Dobosi, 2006 ; Goldenberg et al., 2003 ; Larocca, 2010 ; Sajó et al., 2015 ; Schild et al., 2011 ; Weisgerber et al., 2008).*

Rydno is the only mine for which it was possible to reconstruct exhaustively the socio-economic context, thanks to the data coming from flint assemblage and the presence of campsites surrounding the mining area. This site is located along the northern foothills of the Holy Cross Mountains, in the Kamienna River Valley (central and southern Poland). The river cuts into Triassic and Liassic sandstone as well as fluvioglacial sand and gravel deposited during the maximal phase of the Odra Glaciation (Early Saale). On the top of the so-called "Łyżwy-Nowy Młyn Hill" the Quaternary deposits were removed by slope processes linked to the Last Glacial Maximum. Here sandstone and red Triassic clay outcrop under a thin soil, while on the northern and southern hillsides slope deposits thicken downwards interbedding with redeposited red clay. The quarry area is located just on the north-eastern hillside. Here a thin slope deposit covers beds of polygenetic red conglomerate – up to 1 metre – interbedded with fine grained Variegated Sandstone. Conglomerate is composed by quartz gravel sand and pebbles mixed with hematite, chert, sandstone, igneous gravel in a red clayey matrix. The Variagated Sandstone is considered a local variant of the Upper Variegated Sandstone of the Upper Roethian (Lower Triassic). According to their genesis, this sandstone formed in shallow sea, conglomerate in beach zone, while hematite gravel and pebbles enclosed in the conglomerate derive from an older eroding seashore (Schild *et a*l., 2011: 49-50, 55). The mining area was discovered by Stefan Krukowski in 1945 but it was excavated, after some time, between the 1970s and 1980s, by the Department of Stone Age of the Institute of Archaeology and Ethnology, Polish Academy of Science, under the direction of Romuald Schild (Schild *et al*., 2011: 46-48). In an area of 110 x 30-40 metres a series of wide open pits, different in size, were dug by prehistoric miners into the beds of conglomerate (Schild *et al*., 2011: 19, 55; Fig. 2:1-2). Quantitative spectrographic analysis carried out on hematite gravel show that it contains between 45 % and 70.12 % by weight of Fe, while structural X-ray analysis show that it is composed by hematite and lepidocrocite [indicated respectively as Fe_2O_3 and FeO(OH)] (Hensel, 2011; Tab. 2, Tab. 3). Nine radiocarbon dating set mining activities between 19280±280 (Gd-2002) and 9840±370 (Gd-719) years BP (around 23000-11500 years calBP), that is between shortly after the Last Maximum Glacial and the Early Holocene (Tab.1) (Schild *et al*., 2011: 57-58). None of the evidence can be associated to the oldest date. Flint tools from the quarry are related with certainty at least to two major taxonomic units, the Arch Backed Piece and the Younger Tangent Point (Masovian) technocomplexes, that are also the most numerous and best represented in the surrounding campsites. They include in many cases blanks, cores and rare retouched tools, similar in shape to the campsites ones. This attests that camping and living activities were carried out alongside hematite and red clay mining. Furthermore, gravitational concentrations of charcoal at the pits bases suggest that miners did not refill them immediately after their exploitation (Schild & Królik, 1981: 63-69; Schild *et al*., 2011: 52, 57-58, 101, 400). Arch Backed Piece technocomplex is set in the Allerød, a temperate phase dominated by taiga forests in Central Poland (Greenland Interstadial 1c-1a, 13950-12700 years calBP) (Schild *et al*., 2011: 394, 399). The Arch Backed Piece groups of Rydno located their camps above all south-east of the mine, forming multiunit aggregations with several basin huts. Raw material assemblage shows the main use of Upper Oxfordian so-called "chocolate" flint, coming from the western section of the chocolate belt (located about 20 kilometres from the site), and of Jurassic flint from the Cracow-Częstochowa Upland. Other small, single camps around the mine show a nearly exclusive use of erratic chocolate flint collected from the surface, maybe due to the poor territorial knowledge or the lacking access to the nearest flint sources. This dichotomy may reflect a distinction within the two groups, the "controllers" and the "users" of the mine. The large communities of "controllers" needed supplementary resources of goods, including foodstuff, and this was possible through a monopolistic control over the mine, allowing its access or bartering hematite and red clay (Schild & Królik, 1981: 77-81; Schild *et al*., 2011: 72, 223, 394-395, 400-401; Sulgostowska, 2006: 36). The Masovian phase occupies in Poland a time span between the beginning of the Younger Dryas and the end of the Prebroreal Oscillation (Greenland Stadial 1 - Greenland Holocene 11.2 event, 12700-11200 years calBP) (Schild *et al*., 2011: 395, 399). Park tundra and birch-pine woods covered the plain of central Poland. Seasonal nomadic movement connected with reindeer and

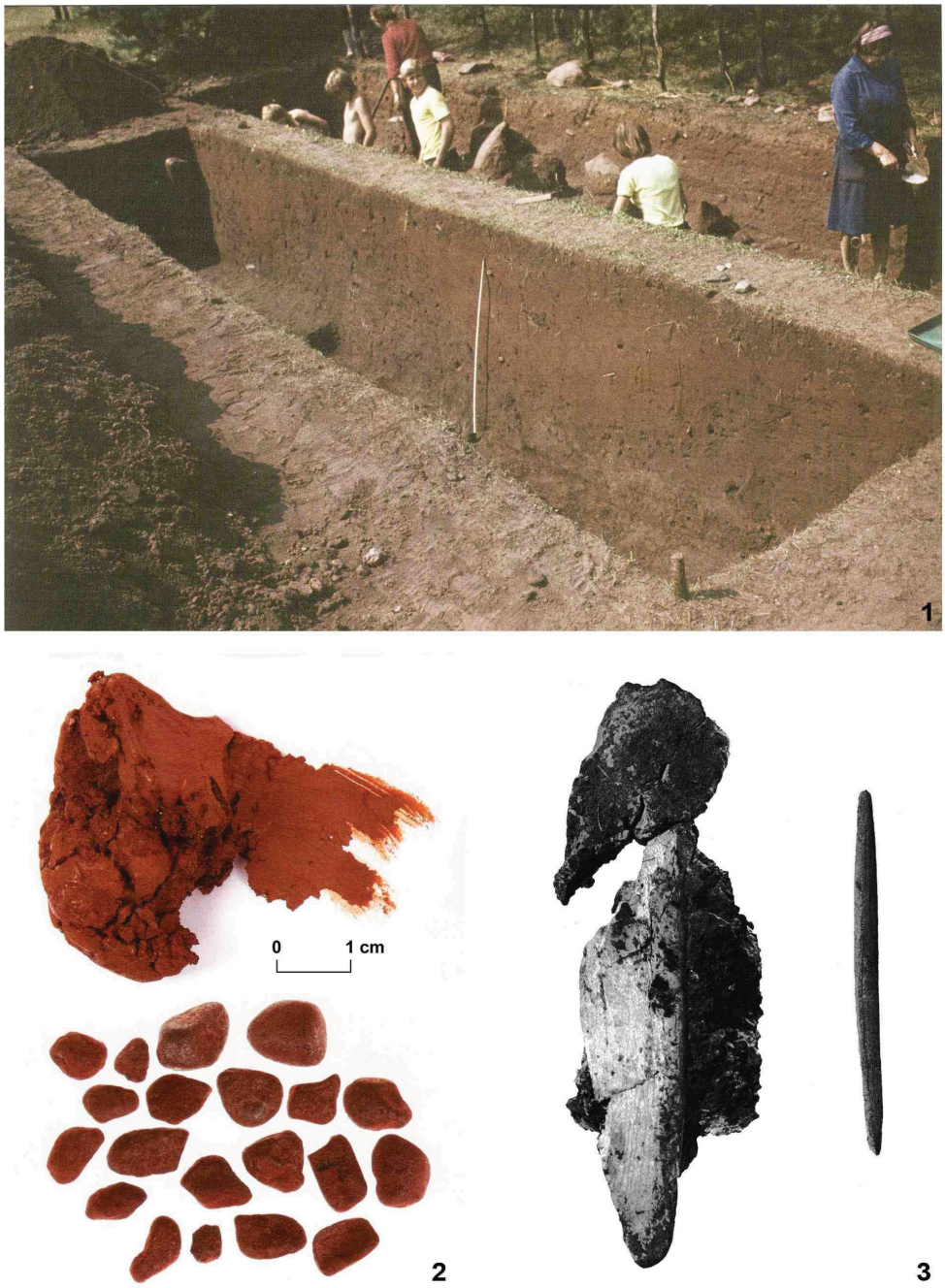


Fig. 2 – 1. Archaeological excavation within the mining area of Rydno, Poland (Cut 1/1977, Pit 1 and Pit 2) (from Schild *et al.,* 2011: fig. 4.5); 2. Red clay and hematite gravel from the mining area of Rydno, Poland (from Schild *et al.,* 2011: fig. 4.7, modified); 3. *Alces alces* ulna, on the left, and bone point, on the right, from the so-called "Pit 2" of Lovas, Hungary. The ulna is 209 mm long; the bone point is 132 mm long, with a maximum width of 9.5 mm (from Mészáros & Vértes, 1959: 9, 18, fig. 11, modified).

Fig. 2 *– 1. Fouilles archéologiques à l'intérieur de l'aire minière de Rydno, Pologne (Cut 1/1977, Puits 1 et Puits 2) (d'après Schild et al., 2011 : fig. 4.5) ; 2. Argile rouge et gravier d'hématite de l'aire minière de Rydno, Pologne (modifiée d'après Schild et al., 2011 : fig. 4.7) ; 3. Cubitus de Alces alces, à gauche, et pointe en os, à droite, du « Puits 2 » de Lovas, Hongrie. Le cubitus mesure 209 mm de long ; la pointe mesure 132 mm de long, avec une plus grande largeur de 9,5 mm (modifiée d'après Mészáros & Vértes, 1959 : 9, 18, fig. 11).*

Rydno - Spectrographic Analysis								
No	*Sample no*	*Percentages by weight*						
		Fe	*Si*	*Mg*	*Ca*	*Al*	*Ti*	*Mn*
1	6570 A	70.12 50.76	12	2.0	0.38	1.8	0.44	0.02
2	6570 B	64	12	2.0	0.30	2.2	0.60	0.003
3	6571 A	66	14	2.0	0.27	2.2	0.72	0.09
4	6571 B	68	8	1.4	0.28	1.7	0.20	0.05
5	6572 A	52	11	1.5	0.25	2.0	0.51	0.03
6	6572 B	45	17	1.3	0.25	2.5	0.52	0.02

Tab. 2 – Hematite gravel samples from Rydno: results of spectrographic analysis as determined by Classical Chemical Methods (from Hensel, 2011: 406, tab. 2).
Tab. 2 *– Échantillons de gravier d'hématite de Rydno : les résultats de l'analyse spectrographique par méthodes chimiques classiques (d'après Hensel, 2011 : 406, tab. 2).*

horse hunting was the main mode of life. The emergence of this group at Rydno is characterized by large Upper Oxfordian chocolate flint processing workshops. Small units formed camps, located near the southern and northern bank of the Kamienna River, and show the use of chocolate flint coming from distinct sections of the outcrop. The sites placed near the Kamienna fords certainly lied in a strategic position and controlled the mine to a certain extent. The different access to flint sources is thought a result of social, ethnic, or territorially distinct bands occupying each bank of the Kamienna River (Schild & Królik, 1981: 81; Schild *et al*., 2011: 76, 395, 399, 401). The "last revival" of Rydno occurred during the Late Mesolithic Vistulian (Janislavician) phase (Early Atlantic, 8200-7500 years calBP) (Schild *et al*., 2011: 402). Subsequent Neolithic and Bronze Age occupations indicate short-lived campsites not necessary associated with hematite exploitation (Schild *et al*., 2011: 350, 372-388). Chocolate flint from the Holy Cross Mountain was exported hundreds kilometres in the territory of Arch Backed Piece and Masovian groups. Hematite from Rydno was most likely exported in the Late Glacial campsites of Całowanie, 100 kilometres to north-north-east (Hensel, 1981: 100; Hensel, 2011: 407; Schild *et al*., 2011: 403; Sulgostowska, 2006). According to Schild *et al*. (2011: 403), since "ochre" sources are less widespread than those of flint, hematite gravel and red clay are the goods for which enormous aggregations of settlements were formed at Rydno. This can explain the presence of raw material coming from faraway lands, such as radiolarite from Pieniny Mountains (southern Poland) or from Slovakia, Cretaceous flint from Volhynia, Ukraine, and Podlakia (eastern Poland), obsidian from southern Slovakia or Hungary (Schild & Królik, 1981: 67; Schild *et al*., 2011: 78; Sulgostowska, 2006: 38, 40). As stated by Schild *et al*. (2011: 58), the date obtained for the Arched Backed Piece mining activities of Rydno is similar to that of Lovas mine.

The Lovas mine is located in the homonym municipal district, south of the Bakony Mountains and north of the Balaton Lake, in the Veszprém County (central and western Hungary). The site sets in a Triassic dolomitic plateau 280-290 metres above sea level that borders the southern limb of the Bakony Mountains. The first archaeological excavation was carried out between 1951 and 1952 by Gyula Mészáros of the Veszprém County Museum and László Vértes of the Hungarian National Museum. Their research revealed the existence of prehistoric mining activities dated to the Middle Palaeolithic, making Lovas at that time the most ancient "ochre" mine of Europe. In 1977

Rydno - Structural X-Ray Analysis. Identification characteristic of hematite and lepidocrocite as compared with radiographic data						
No	d_{hkl} *Actual*	*I*	d_{hkl} Fe_2O_3	*I*	d_{hkl} *FeOOH*	*I*
1	6.1	100			6.25	100
2	3.64	20	3.66	10		
3	3.30	20			3.29	80
4	2.70	80	2.69	70		
5	2.51	60	2.51	40	2.46	70
6	2.20	60	2.18	20		

Tab. 3 – Hematite gravel samples from Rydno: identification of phase composition by structural X-ray analysis as compared with radiographic data (from Hensel, 2011: 406, tab. 3).
Tab. 3 *– Échantillons de gravier d'hématite de Rydno : l'identification de la composition de phases par des analyses structurelles aux rayons X (d'après Hensel, 2011 : 406, tab. 3).*

Viola T. Dobosi and István Vörös of the Hungarian National Museum carried out further surveys to find new prehistoric mines, but without success because modern mining, active up to 1960, probably destroyed other further evidence. Therefore, they concentrated their attention on the revision of the chronology and of the faunal remains discovered during the Fifties. Recent study, published in 2015, has shedded new light on radiocarbon dating, ochre mineral composition and ochre processing. Three open pits – "Pit 1", "Pit 2" and "Pit 3" – differing in size were dug by prehistoric miners within the Triassic dolomitic rock containing red beddings (Mészáros & Vértes, 1959: 1-7; Dobosi, 2006: 29-30; Sajó *et al.*, 2015). According to mineralogical analysis carried out in the Fifties (analytical method unspecified) the red beddings were composed by clay with fragments of dolomite. In particular, it is composed by the 74.3 % of $CaCO_3$, identified as "finely grained calcite", and the 16.8 % of $Fe(OH)_3$, identified as "limonite with colloidal graining" (Mészáros & Vértes, 1959: 24-25; Tab. 4). According to mineralogical analysis carried out at the end of the Nineties (analytical method unspecified) it is composed by a percentage of Fe comprised between 11.49 % and 4.61 % of Fe (Dobosi, 2006: 35; Tab. 5). Quantitative evaluation of XRD spectra, published in 2015, shows that ochre is composed by dolomite (about 80 w/w %) with smaller quantities of quartz, clay and mica, and 5 % of hematite; dolomite dominate also the red dolomite veins. XRD spectra of a sample of red ochre particoles (<10μm) near a

Lovas - Micromineralogical analysis of 1954				
$CaCO_3$	$Fe(OH)_3$	SiO_2	heavy fraction	coal, bone
74.3 %	16.8 %	6.7 %	1.0 %	1.2 %

Tab. 4 – Red sediment from Lovas: micromineralogical results (analytical method unspecified) (from Mészáros & Vértes, 1959: 24).
Tab. 4 *– Sédiment rouge de Lovas : résultats micro-minéralogiques (méthode analytique non spécifiée) (d'après Mészáros & Vértes, 1959 : 24).*

Lovas - Mineralogical analysis of 1999					
Mg	*Al*	*Si*	*P*	*Ca*	*Fe*
11.50	0.88	3.71	/	72.43	11.49
1.51	/	/	/	93.87	4.61

Tab. 5 – Ochre from Lovas: mineralogical results (analytical method unspecified) (from Dobosi, 2006: 35).
Tab. 5 *– Ocre de Lovas : résultats minéralogiques (méthode analytique non spécifiée) (par Dobosi, 2006 : 35).*

bone tools shows that ochre is composed by dolomite (c. 70 w/w %), smaller quantities of quartz, clay, calcite and 12 % of hematite. SEM analysis equipped with energy-dispersive spectrometer on red ochre show a 52.1 wt % of Ca and 4.2 wt % of Mg as dolomite, partly coated by the 22.7 wt % of Fe, as hematite. The ochre show a particular structure, formed by a "core" of dolomite or quartz grains and an external "shell" of hematite. Since this structure does not occur in the *in situ* pigment, researchers suggest that prehistoric miners ground the red material in order to obtain finer particles and exploited the natural oxidation process through which hematite nano-particles coated the core of sand or silt-sized grains, obtaining in this way a major volume of pigmented material (Sajó *et al.*, 2015). The archaeological assemblage includes lithic and bone implements. Lithics are about twenty and are not diagnostic, except for a bifacial leaf scraper classified by Vértes and Mészáros (1959) in the Transdanubian Szeletian group, known as Jankovichian Culture, attributed by them in the Würm I-II Interstadial. This setting on the base of a single tool in the Middle Palaeolithic is now widely rejected. Raw material shows use of radiolarite coming from sources 20 kilometres far from the site (Dobosi, 2006: 34-35). Lovas distinguishes for its bone assemblage, characterized by tools specifically made for mining. On 130 definable animal bones, the 80 % are of *Alces alces*, above the 16 % of *Cervus elaphus*, and the remaining above 4 % equally divided between *Rangifer tarandus*, *Capra carpatorum*, *Sus scrofa*, *Equus* sp., and *Grus grus*. Among ninety-two individual bone objects there are awls, antler tools, scapulas probably used as shovels, polished ribs used as levers, spoon chisels from tubular bones. However, peculiar elements of the mining toolkit are 23 *Alces alces* ulnae; their morphology reflects a planned digging function and it is influenced by their anatomic features, since the natural arch of the bone allows to resist to great strain (Fig. 2:3). Bone working techniques show cutting, carving, pointing and polishing traces (Dobosi, 2006: 31-36; Dobosi & Vörös, 1979; Mészáros & Vértes, 1959: 7-25). Mining activities were carried out extracting first ochre veins outcropping on the surface and then the one placed within the soil. As attested by the best preserved and excavated Pit 2 (above 6 metres long, with an height and a width of 2.5 metres) the last phase of exploitation corresponds to the lowest layer, upon which other distinct layers indicate its use as camp after the end of mining activities (Dobosi, 2006: 35; Dobosi & Vörös, 1979: 21; Mészáros & Vértes, 1959: 1-7, 24-25; Sajó *et al.*, 2015) (Fig. 3:1). The chronological setting of the site was difficult and controversial. However, five new AMS radiocarbon dating on *Alces alces* bone confirm the previous single radiocarbon date known for this site (11740±100 years BP, ETH-15199). In fact they yielded a date between 11941±44 (MAMS-21718) and 11469±40 (MAMS-21721) years BP (13800-13200 years calBP) (Tab. 1), setting mining activities during the Allerød Interstadial GI-1-b-d (Dobosi, 2006: 32; Sajó *et al.*, 2015).

The Holocene iron oxides mining includes the sites of Bad Sulzburg and Grotta della Monaca. Bad Sulzburg is located in the southern slope of the Black Forest, in the federal state of Baden-Württemberg (south-western Germany). This mine sets in an area in which hydrothermal veins containing hematite with low content of non ferrous or precious ore outcrop. The iron ore deposits are associeted with a strong silicification of the rock wall that leads to the formation of "reef-like" rocks emerging from the neighbouring gneiss. Hematite is finely distributed within "hornstone-like" quartz but it occurs also as joint fillings or compact masses. Under these rock formations detrital slopes are characterized by ground substrates and siliceous blocks pigmented by hematite. Bad Sulzburg mine was discovered in 1980 by Norbert Kindler and excavated by the Institute of Pre- and Proto-History of the Freiburg University in 1997 (Goldenberg *et al.*, 2003: 179-180). Apart from shallow cavities in the rocky outcrop, it is characterized by a small pit – 4 metres long, 1 metre wide and 3 metres deep – dug for hematite exploitation (Fig. 3:2). This pit (called "Pit 1") was refilled with mining debris, containing stone implements and fragments, a flint blade and charcoals. Between them, 33 more or less completely preserved stone hammers were recovered. They are mainly made of quartzite or quartzitic sandstone rounded pebbles that could be acquired in the gravel banks of the Rhine, 15 kilometres far from the mine. Some samples were handheld, other show notches and trace of picking. Within 16 hafted hammers 13 shows trace of use after their breakage, i.e. they were employed in mining activities after their damage. The only flint blade might have been used to repair hammer hafting; while two grindstones, respectively made of amphibolite and gneiss, could be connected with hematite

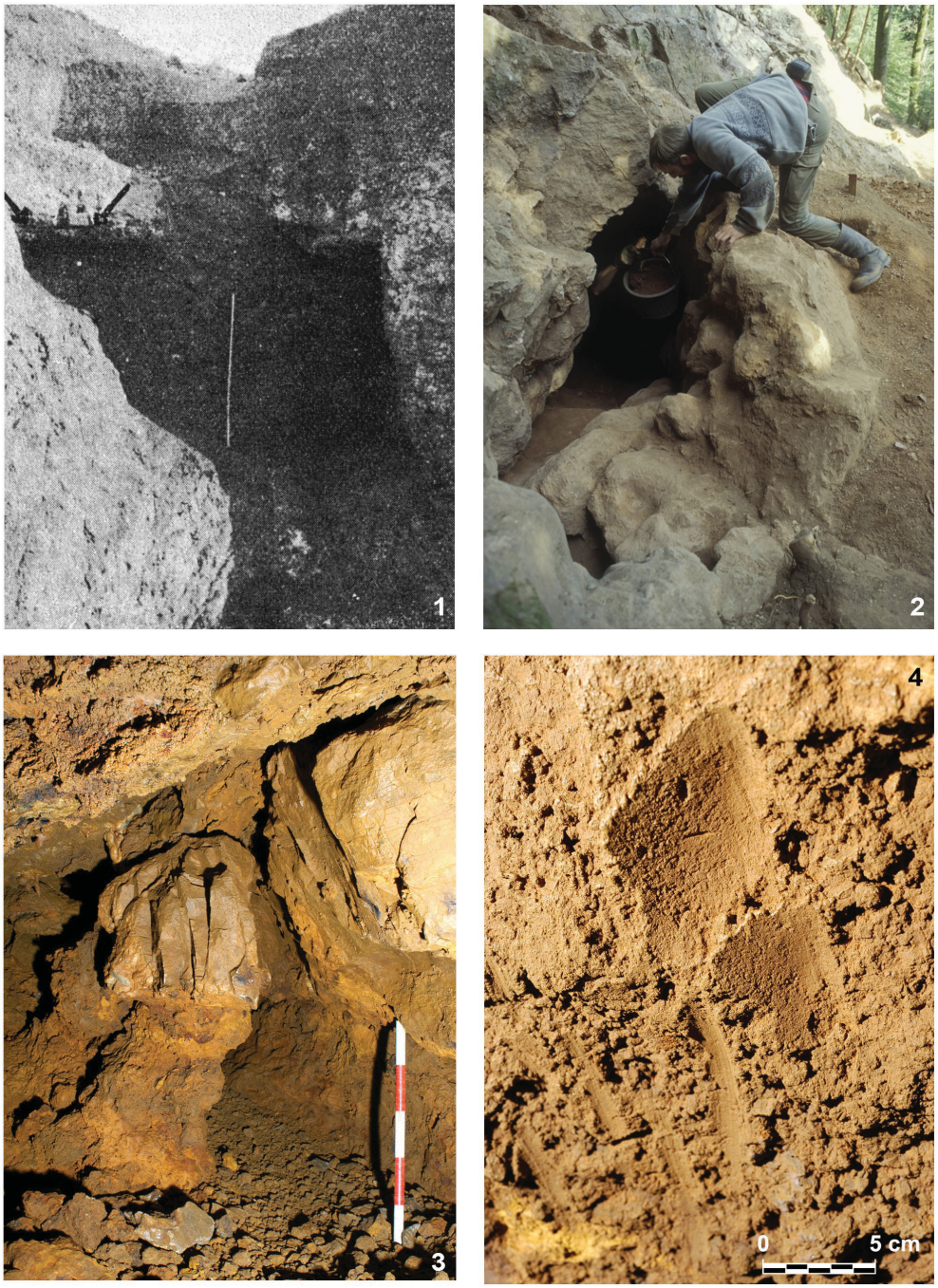


Fig. 3 – 1. Southern profile of Lovas mine "Pit 2", Hungary (from Mészáros & Vértes, 1959: fig. 2.1); 2. Entrance of the so-called "Pit 1" of Bad Sulzburg mine, Germany (Image courtesy of Gert Goldenberg - Institut für Archäologien, Universität Innsbruck); 3. Goethite supporting pillar occurring within a Final Neolithic mining sector of Grotta della Monaca (Italy) (photo by F. Larocca); 4. Imprints of scapula shovels on a goethite vein outcropping within a Final Neolithic mining sector of Grotta della Monaca (Italy) (photo by F. Larocca).

Fig. 3 *– 1. Profil méridional du « Puits 2 » de la mine de Lovas, Hongrie (d'après Mészáros & Vértes, 1959 : fig. 2.1) ; 2. Entrée du « Puits 1 » de la mine de Bad Sulzburg, Allemagne (Droit de reproduction de Gert Goldenberg - Institut für Archäologien, Universität Innsbruck) ; 3. Pilier de soutien en goethite au sein d'un secteur minier datant de la fin du Néolithique de la Grotta della Monaca (Italie) (photo de F. Larocca) ; 4. Empreintes de petites pelles en cubitus sur un filon de goethite affleurant à l'intérieur d'une zone d'extraction, vers la fin du Néolithique, Grotta della Monaca (Italie) (photo de F. Larocca).*

processing, such as the *in situ* mineral grinding for the testing of iron oxide quality. Mining techniques were based on the crushing of rock rich in hematite using stone hammers (Goldenberg *et al.*, 2003: 181-185). Three radiocarbon AMS dating on oak wood charcoals place mining activities between 6250±60 (Beta-105503) and 5810±60 (Beta-105504) years BP (end of VI-beginning of V millennium calBC) (Tab. 1). They set mining activities in the Linear Ceramic Culture of the Upper Rhine Valley (5500-4800 years BC) (Goldenberg *et al.*, 2003: 182). In this period organized mining activities were at their first development, reaching the most advance expression during the Late Neolithic, within the extensive mining complexes of Michelsberg Culture. However, evidence from Bad Sulzburg mine allows to recognize an already specialized extractive method. Probably hematite was reserved for the consumption of the local group that maybe could have come from the Markgräflerland region, located in the western border between the Black Forest and the Rhine River (Goldenberg *et al.*, 2003: 182, 183, 185).

Grotta della Monaca is a karstic cave located in the municipality district of Sant'Agata di Esaro (CS), Calabria, southern Italy. Its impressive entrance is located on the hydrographic left of the Esaro River. This cavity sets in the north-western sector of the Calabrian-Peloritan Arc, along a fault called "Sangineto line" marking the boundary between the metamorphic crystalline Calabrian units and the Apennines carbonate domains. It develops within Mesozoic carbonate units (Triassic) for about 500 metres in length and it is composed by galleries, chambers and narrow passages (Dimuccio, 2005: 25-26). Being highly visible and easily reachable, it is cited in some literary sources and explorative reports dating back to the 19th and 20th centuries. Inspired by these writings, surveys where carried out in the 1990s by the "Enzo dei Medici" Regional Centre of Speleology in collaboration with the "Aldo Moro" University of Bari and led to the discovery of ancient mining activities, giving birth to speleo-archaeological researches ongoing since 2000, under the direction of Felice Larocca (Larocca & Dimuccio, 1997; Larocca & Lorusso, 1998). The cavity was frequented during the late Neolithic for the exploitation of iron hydroxides, such as goethite, that outcrops isolated or associated to lepidocrocite, its polymorph (Larocca, 2010: 267-268). The carbonate substrate in which Grotta della Monaca develops (Unità di San Donato) contains, among others, scattered primary iron sulfide mineralizations (e.g. pyrite - FeS_2) (Amodio Morelli *et al.*, 1976; Bonardi *et al.*, 1982; Boni *et al.*, 1990; Dimuccio, 2005; Ietto *et al.*, 1992; Lorenzoni *et al.*, 1983), which form in oxygen-poor environments. It seems plausible to assume that the iron oxide/hydroxide minerals (essentially massive dyke/stratiform facies), observed inside the cave (Larocca & Dimuccio, 1997; Dimuccio *et al.*, 2005), are the result of pyrite oxidation in oxygen-rich environment. Grotta della Monaca seems to be a typical example of polygenetic cave (i.e. has experienced more than one type of origin) where the mixing of hypogenic ascending flows (rising along fractures and inclined bedding planes) with probable infiltrating oxygen-rich epigenic meteoric waters (descending vadose flows) caused the cave development (by corrosion) and a concurrent precipitation of massive ferruginous mineralizations. An important role of microbial activity, especially in catalysing the precipitation of iron during the active speleogenetic phases, cannot be excluded (Dimuccio Luca Antonio, personal communication). The archaeological excavation of two underground mining sectors, called "Buca delle impronte" and "Ramo delle vaschette", revealed evidence of iron hydroxides exploitation, AMS dated between 5183±50 (LTL-3583A) and 4880±45 (LTL-3581A) years BP (end of V-first half of IV millennium calBC) (Tab. 1). The main feature of this mining activity is the use of natural cavities as means of access to iron hydroxide sources. In this sense, caves are though "containers" of precious mineral sources, as already suggested by Gerd Weisgerber in the Nineties (Larocca, 2010: 269; Weisgerber, 1997). Underground mining required goethite pillars to support the unstable roof preventing this way its potential collapse (Fig. 3:3). This technique reflect a mining tradition similar to Neolithic flint exploitation one (Di Lernia & Galiberti, 1993: 33-36). The tools used for mining have not been found but they left several digging traces both on veins and on small goethite boulders, scattered on the ground and within the archaeological deposit. It is possible to identify with certainty blows left by picks made of deer antler and by shovels of mammal scapulas (Larocca & Levato, 2013: 23-24; Fig. 3:4). For the underground lighting miners used torches made of small *Pinus sylvestris* branches (Larocca, 2012: 254). Recent techno-functional analyses on lower and upper grindstones – probably of the Final Ne-

olithic and coming from the entrance – have revealed grinding and crushing activities of goethite blocks (Caricola, 2013: 157-159). Unfortunately, it is still unknown where these minerals were exported to and what was their use.

3. CONCLUSION

The actual state of the researches on the currently known iron oxides prehistoric mines does not allow understanding the socio-economic context that developed such exploitations; especially because of the lack of settlements linked to the mining sites, except for Rydno. Unfortunately not much is known about mineral processing phases after its extraction; only a subsequent grinding phase carried out *in situ* or in the immediate surroundings is attested, as at Bad Sulzburg, Grotta della Monaca, probably Lovas, and Rydno. In the latter, thin sandstone palettes used for grinding and mixing hematite have been found, such as quartzite and granite upper grinding stones that bear traces of ochre (Schild *et al*., 2011: 96). Still more difficult is to determine in what shape, in which way and where the finished product was carried. Ethnographic record suggests that aborigines miners of Wilgie Mia (Western Australia) separated "ochre" from the spoil or directly *in situ* or in places surrounding the mines. The finely ground mineral was mixed with water to form cakes, ready for barter only if they showed a bright red colour when dry (Davidson Sutherland, 1952: 84; Sagona, 1994: 137). While mining at Wilgie Mia was carried out by men, hematite from Toolumbunner mine (Tasmania) was excavated by women, that ground hematite using pestles and discoid facetted lithic bases (the so-called "ballywinne"). Powdered mineral was transported within hides bags downhill, where men made a paste mixing "ochre" and fat used for body painting (Sagona, 1994: 114-117, 143-144). According to Schild *et al*. (2011: 404), hematite mining organization at Rydno shows close analogies with Parachilna (Bookartoo) mine, in South Australia. This mine was controlled by Blinman aborigines that allowed the access to the source in return to gifts. Organized expeditions followed established trade routes, carrying hematite in form of cakes weighing above 30-40 kilograms. The central role of iron oxide from Parachilna within aborigines communities was related not only to its quality but also to its traditional and spiritual value, since it was originated by the blood of the big dog *Marindi* according to aboriginal mythology (Schild *et al*., 2011: 404; Smith & Fankhauser, 2009: 4-5). From the archaeological point of view, the use iron oxides is widely attested in shelters, caves, and open-air settlements. Evidence shows their use as pigments, abrasives, and drying agents (Salomon *et al*., 2008; Wadley, 2005; Philibert, 1994). Nevertheless, in absence of direct evidence, their finding within the archaeological sites allows further hypothesis based on historical and ethnographic sources: body painting, hide processing, organic matter preservation, medical remedy. The wide use of "ochre" – above all of its red variety – during Prehistory is often explained with different utilitarian and/or symbolic interpretations (Wadley, 2005). However, it can be assumed that the two functions do not exclude each other and that the utilitarian use of ochre might have been associated with a parallel development of its colour symbolism (Martini, 2010: 158-163). The relevance of iron oxides and "ochres" in general among prehistoric communities suggests a more in-depth research on raw material sources in close connection, where possible, with mining and settlement evidence, in order to reconstruct the social and economic context of the human groups that sought a mineral, evidently precious, even in the underground.

Acknowledgements

I would like to express my gratitude to Dr. Felice Larocca for his enthusiastic encouragement of this work. Thanks also to Prof. Donato Coppola for his helpfulness and kindness and to Prof. Alfredo Geniola for his great support. I am grateful to Prof. Thomas Stöllner and Dr. Caroline Hamon for their willingness for the development of this research. My grateful thanks to Dr. Luca Antonio Dimuccio of the Centre of Studies on Geography and Spatial Planning - CEGOT, Department of Geography (University of Coimbra), for geological information, Maria De Falco for the English translation revision, Giuseppe Guarascio and Francesco Breglia for their support. Special thanks to all institution, academics, and librarians that help me in bibliographic and iconographic research: Mrs. Jacqueline Angot-Westin, the Deutsches Bergbau Museum of Bochum, Dr. Dominique Commelin, Dr. Viola Dobosi, Mrs. Linda Fick, Mrs. Eleanor Galvin, Mrs. Carole Goeminne, Prof. Gert Goldenberg, Dr. Arthur Jedinak, Prof. Halina Królik, the Institute of Archaeology and Ethnology of the Polish Academy of Sciences, Mr. Jarosław Michalak, Prof. Lighea Pappalardo, Dr. Sylvie Philibert, Dr. Hélène Salomon, Mr. Gero Steffens, Prof. Romuald Schild, Prof. Lyn Wadley.

Bibliography

AMODIO MORELLI L., BONARDI G., COLONNA V., DIETRICH D., GIUNTA G., IPPOLITO F., LIGUORI V., LORENZONI S., PAGLIONICO A., PERRONE V., PICCARRETA G., RUSSO M., SCANDONE P., ZANETTIN-LORENZONI E. & ZUPPETTA A., 1976. L'Arco Calabro Peloritano nell'orogene Appenninico-Maghrebide. *Memorie della Società Geologica Italiana*, **17**: 1-60.

BONARDI G., DE VIVO B., GIUNTA G., LIMA A., PERRONE V. & ZUPPETTA A., 1982. Mineralizzazioni dell'Arco Calabro-Peloritano: Ipotesi genetiche e quadro evolutivo. *Bollettino della Società Geologica Italiana*, **101**: 141-155.

BONI M., TORRE M. & ZAMPARELLI V., 1990. Il Trias medio superiore dell'Unità di San Donato (Appennino Meridionale, Calabria): risultati preliminari. *Rendiconti della Società Geologica Italiana*, **13**: 89-92.

CARICOLA I., 2013. *Il gesto e la funzione: analisi delle tracce d'uso di macine, macinelli e levigatoi da Grotta della Monaca (Sant'Agata di Esaro - Cosenza)* (Unpublished master's thesis). Università degli Studi di Roma "La Sapienza", Roma.

CORNELL R. & SCHWERTMANN U., 2003. *The Iron Oxides: Structure, Properties, Reactions, Occurrences and Uses* (2nd ed.). Weinheim: Wiley-Vch Verlag GmbH & Co.

DAVIDSON SUTHERLAND D., 1952. Notes on the Pictographs and Petroglyphs of Western Australia and a Discussion of Their Affinities with Appearances Elsewhere on the Continent. *Proceeding of the American Philosophical Society*, **96** (1): 76-117.

DI LERNIA S. & GALIBERTI A., 1993. *Archeologia mineraria della selce nella Preistoria. Definizioni, potenzialità e prospettive della ricerca*. Firenze: All'Insegna del Giglio.

DOBOSI V., 2006. Lovas (Hungary) ochre mine reconsidered. *In*: G. KÖRLIN & G. WEISGERBER (eds), *Stone Age - Mining Age, Der Anschnitt*, **19**: 29-36.

DIMUCCIO L. A., 2005. Inquadramento geologico. *In*: F. LAROCCA (ed.), *La miniera pre-protostorica di Grotta della Monaca (Sant'Agata di Esaro - Cosenza)*. Roseto Capo Spulico: Centro Regionale di Speleologia "Enzo dei Medici": 25-29.

DIMUCCIO L. A., GARAVELLI A., PINTO D. & VURRO F., 2005. Le risorse minerarie. *In*: F. LAROCCA (ed.), *La miniera pre-protostorica di Grotta della Monaca (Sant'Agata di Esaro - Cosenza)*. Roseto Capo Spulico: Centro Regionale di Speleologia "Enzo dei Medici": 37-41.

DOBOSI V., 2006. Lovas (Hungary) ochre mine reconsidered. *In*: G. KÖRLIN & G. WEISGERBER (eds), *Stone Age - Mining Age, Der Anschnitt*, **19**: 29-36.

DOBOSI V. & VÖRÖS I., 1979. Data to an Evaluation of the Finds Assemblage of the Palaeolithic Paint Mine at Lovas. *Folia Archaeologica*, **XXX**: 7-26.

ELIAS M., CHARTIER C., PRÉVOT G., GARAY H. & VIGNAUD C., 2006. The colour of ochres explained by their composition. *Materials Science and Engineering B*, **127**: 70-80.

GOLDENBERG G., MAASS A., STEFFENS G. & STEUER H., 2003. Hematite Mining during the Linear Ceramics Culture in the Area of the Black Forest, South West Germany. *In*: T. STÖLLNER, G. KÖRLIN, G. STEFENS & J. CIERNY (eds), *Man and Mining - Mensch und Bergbau, Der Anschnitt*, **16**: 179-186.

HENSEL Z., 1981. Physical and Chemical Examination of Hematite Grains from Rydno and Całowanie. *Przegląd Archeologiczny*, **29**: 98-100.

HENSEL Z., 2011. Physical and Chemical Examination of Hematite Gravel from Rydno Quarry and The Final Paleolithic Campsites of Całowanie. *In*: R. SCHILD, H. KRÓLIK, A. J. TOMASZEWSKI & E. CIEPIELEWSKA, *RYDNO. A Stone Age Red Ochre Quarry and Socioeconomic Center. A century of Research*. Warsaw: Institute of Archaeology and Ethnology - Polish Academy of Sciences: 405-407.

IETTO A., BARILARO A. M., CALLIGARO G. & MANCUSO C., 1992. Elementi per una revisione dei rapporti Appennino-Arco Calabro. *Bollettino della Società Geologica Italiana*, **111**: 193-215.

KOUKOULI-CHRYSANTHAKI C. & WEISGERBER G., 1999. Prehistoric Ochre Mines on Thasos. *In*: C. KOUKOULI-CHRYSANTHAKI, A. MÜLLER & P. PAPADOPOULUS (eds), *Thasos: Matières Premières et Technologie de la Préhistorie à nos jours*. Paris: De Boccard: 129-144.

LAROCCA F., 2010. Grotta della Monaca: A Prehistoric Copper and Iron Mine in the Calabria

Region (Italy). *In*: P. ANREITER, G. GOLDENBERG, K. HANKE, R. KRAUSE, W. LEITNER, F. MATHIS, K. NICOLUSSI, K. OEGGL, E. PERNICKA, M. PRAST, J. SCHIBLER, I. SCHNEIDER, H. STADLER, T. STÖLLNER, G. TOMEDI & P. TROPPER (eds), *Mining in European History and its Impact on Environment and Human Societies*. Proceedings for the 1st Mining in European History Conference of the FZ HiMAT. Innsbruck: Innsbruck University Press: 267-270.

LAROCCA F. & DIMUCCIO L. A., 1997. Importanti scoperte nella Grotta della Monaca. *Speleologia*, **68**: 129-130.

LAROCCA F. & LEVATO C., 2013. From the imprint to the tool: the identification of prehistoric mining implements through the study of digging traces. The case of Grotta della Monaca in Calabria (Italy). *In*: P. ANREITER, K. BRANDSTÄTTER, G. GOLDENBERG, K. HANKE, W. LEITNER, K. NICOLUSSI, K. OEGGL, E. PERNICKA, V. SCHAFFER, T. STÖLLNER, G. TOMEDI & P. TROPPER (eds), *Mining in European History and its Impact on Environment and Human Societies*. Proceedings for the 2nd Mining in European History Conference of the FZ HiMAT . Innsbruck: Innsbruck University Press: 21-26.

LAROCCA F. & LORUSSO D., 1998. La Grotta della Monaca a Sant'Agata di Ésaro (Cosenza). *Speleologia*, **38**: 5-12.

LEVATO C., 2012. *L'estrazione mineraria di ossidi e idrossidi ferrosi nella Preistoria. Il caso di Grotta della Monaca in Calabria* (Unpublished master's thesis). Università degli Studi di Bari "Aldo Moro", Bari.

LORENZONI S., ORSI G. & ZANETTIN E., 1983. Metallogenesis in the tectonic units and lithogenetic environments of Calabria (Southern Italy). *Memorie di Scienze Geologiche*, **XXXV**: 411-428.

MARTINI F., 2010. *Archeologia del Paleolitico. Storia e culture dei popoli cacciatori-raccoglitori* (2nd ed.). Roma: Carocci.

MÉSZÁROS G. & VÉRTES L., 1959. A Paint Mine from the Early Upper Palaeolithic Age near Lovas (Hungary, County Veszprém). *Acta Archaeologica Academiae Scientiarum Hungaricae*, **V** (1-2): 1-33.

PHILIBERT S., 1994. L'ocre et le traitement des peaux: révision d'une conception traditionnelle par l'analyse fonctionnelle des grattoirs ocrés de la Balma Margineda (Andorre). *L'Anthropologie*, **98** (2-3): 447-453.

POMIÈS M. P., MORIN G. & VIGNAUD C., 1998. XRD study of the goethite-hematite transformation: application to the identification of heated prehistoric pigments. *Journal of Solid State Inorganic Chemistry*, **35**: 9-25.

SAGONA A. (ed.), 1994. *Bruising the Red Earth. Ochre Mining and Ritual in Aboriginal Tasmania*. Carlton: Melbourne University Press.

SAJÓ I. E., KOVÁCS J., FITZSIMMONS K. E., JÁGER V., LENGYEL G., VIOLA B., TALAMO S. & HUBLIN J. J., 2015. Core-Shell Processing of Natural Pigment: Upper Palaeolithic Red Ochre from Lovas, Hungary. *PLoS ONE*, **10** (7): e0131762. doi:10.1371/journal.pone.0131762.

SALOMON H., VIGNAUD C., COQUINOT Y., PAGES-CAMAGNA S., POMIES M. P., GENESTE J. M., MENU M., JULIEN M. & DAVID F., 2008. Les matières colorantes au début du Paléolithique supérieur. Caractérisation chimique et structurale, transformation et valeur symbolique. *Techné, Special Issue*: 15-21.

SCHILD R. & KRÓLIK H., 1981. Rydno. A Final Paleolithic Ochre Mining Complex. *Przegląd Archeologiczny*, **29**: 53-100.

SCHILD R., KRÓLIK H., TOMASZEWSKI A. J. & CIEPIELEWSKA E., 2011. *RYDNO. A Stone Age Red Ochre Quarry and Socioeconomic Center. A century of Research*. Warsaw: Institute of Archaeology and Ethnology - Polish Academy of Sciences.

SMITH M. & FANKHAUSER B., 2009. Geochemistry and identification of Australian red ochre deposits. *Palaeowork Technical Papers*, **9**. Retrieved from http://palaeoworks.anu.edu.au/pubs/Smith&Fankhauser%202009_Ochre%20Provenancing.pdf

SULGOSTOWSKA Z., 2006. Final Palaeolithic Societies' Mobility in Poland as Seen from the Distribution of Flints. *Archaeologia Baltica*, **7**: 36-42.

WADLEY L., 2005. Putting ochre to the test: replication studies of adhesives that may have been used for hafting tools in the Middle Stone Age. *Journal of Human Evolution*, **51**: 587-601.

WEISGERBER G., 1997. Speleology and Archaeology of Mining - a Comparison. *Proceedings of the 12th International Congress of Speleology*, **6**: 96-98.

WEISGERBER G., CIERNY J. & KOUKOULI-CHRYSANTHAKI C., 2008. Zu paläolithischer Gewinnung roter Farbmineralien auf der Insel Thasos. *In*: Ü. YALCIN (ed.), *Anatolian Metal IV, Der Anschnitt*, **21**: 179-190.

Author's address:

Chiara LEVATO
Università degli Studi di Bari "Aldo Moro"
Missione di Ricerca speleo-archeologica
Via Pisani, 28
87010 Sant'Agata di Esaro (CS) (Italia)
okros@live.it

Centro Regionale di Speleologia
"Enzo dei Medici"
Commissione di Ricerca
per l'Archeologia delle Miniere
Via Lucania, 3
87070 Roseto Capo Spulico (CS) (Italia)

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 25-37

The Prehistoric Iron Mine of Grotta della Monaca (Calabria, Italy)

Chiara LEVATO & Felice LAROCCA

Résumé

La Grotta della Monaca est une cavité karstique située sur la commune de Sant'Agata di Esaro (CS), agglomération de la Calabre nord-occidental, en Italie méridionale. La grotte s'ouvre à l'intérieur d'un pic rocheux à 600 mètres d'altitude a.s.l., le long de la rive gauche de la rivière Esaro. Les prospections, menées vers la fin des années 90 par le Centre Régional de Spéléologie "Enzo dei Medici" avec la collaboration de l'Université de Bari "Aldo Moro", montrèrent que cette grotte est une mine préhistorique ancienne inconnue jusqu'ici. Ces prospections ont ouvert la voie à une période de recherches spéléo-archéologiques qui se sont poursuivies dans les années 2000. La grotte est très riche en minéraux métalliques, en particulier des minéraux de cuivre et de fer. Les minéraux de cuivre sont représentés surtout par la malachite [$Cu_2(CO_3)(OH)_2$] et dans une moindre mesure l'azurite [$Cu_3(CO_3)_2(OH)_2$]. Les minéraux de fer les plus répandus sont les hydroxydes, en particulier la goethite [$\alpha FeO(OH)$], isolée ou associée à son polymorphe, la lépidocrocite [$\gamma FeO(OH)$], et se présentent sous la forme de filons entre les couches de roche carbonatée. Les fouilles archéologiques ont révélé la présence, dans les secteurs plus profonds de la grotte, d'activités préhistoriques qui étaient destinées à l'exploitation de ces minéraux ferrugineux.

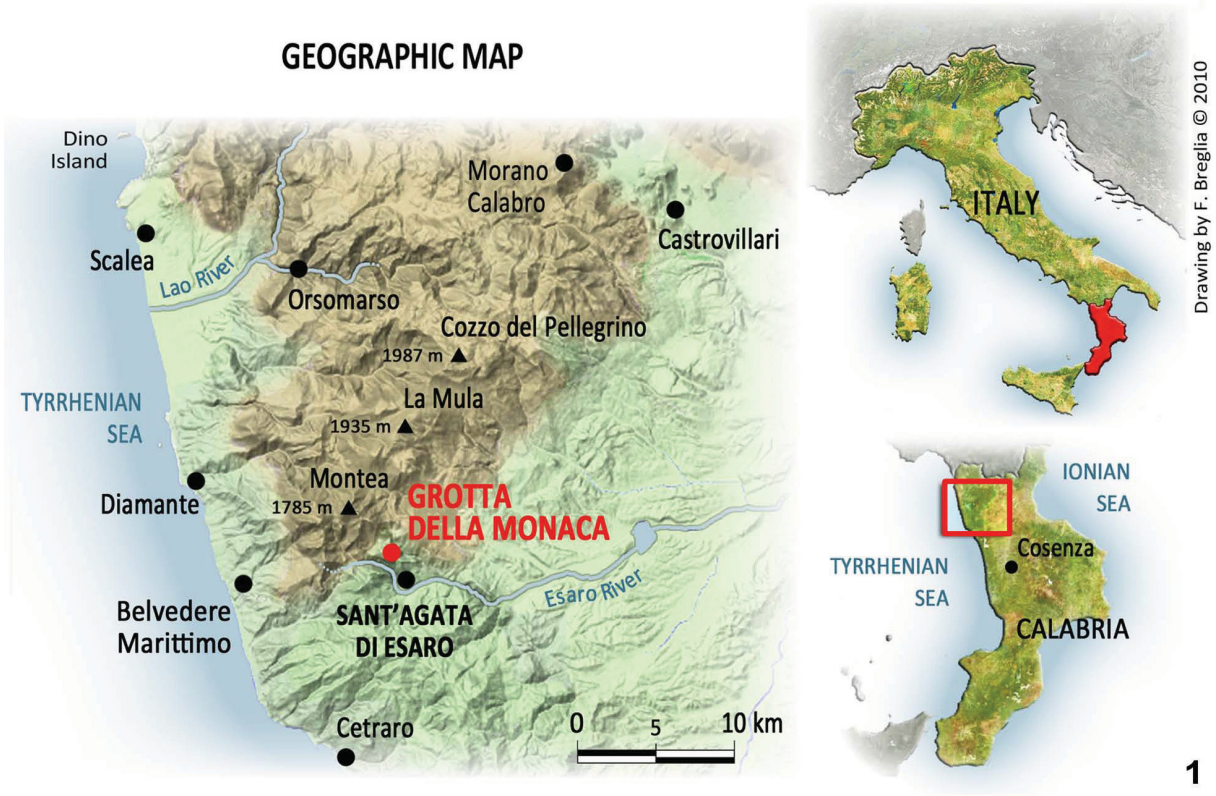
Les fouilles ont permis de distinguer deux cycles miniers principaux, l'un qui se rapporte au Néolithique final (fin du V^e^ - première moitié du IV^e^ millénaire calBC) et relié à l'extraction des hydroxydes de fer, l'autre qui s'inscrit dans le Énéolithique initial (première moitié du IV^e^ millénaire calBC) et destiné à l'approvisionnement en carbonates de cuivre. Les traces d'exploitation des minéraux de fer ont été reconnues à l'intérieur de deux secteurs nommés la "Buca delle impronte" et le "Ramo delle vaschette". La présence d'une variété extrêmement tendre de goethite a permis la conservation de nombreuses traces, qui attestent l'utilisation avérée d'outils en os et de pics en andouiller. L'étude de ce contexte minier ancien offre des informations importantes sur les techniques d'extraction des minéraux de fer vers la fin du Néolithique. L'accès à ces ressources se faisait en évoluant dans une cavité karstique, en utilisant des torches en Pinus sylvestris *pour illuminer les coins plongés dans l'obscurité totale. Le filon était exploité directement ou bien les niveaux concrétionnés étaient atteints par des terrasses. Enfin, des piliers de soutien ont été observés pour empêcher l'écroulement de la voûte. Une analyse techno-fonctionnelle récente a été conduite sur les meules et sur les molettes, probablement de la fin du Néolithique et qui proviennent de la zone à proximité de l'entrée. Celle-ci montre diverses activités comme la mouture et le bris des blocs de goethite. Le lieu où ces minéraux étaient transportés, n'est pas identifié, ni les modalités d'utilisation du produit fini. Cette Grotta della Monaca est l'une des cinq mines préhistoriques exploitant des oxydes de fer en Europe et la seule aujourd'hui étudiée et datée sur le territoire italien.*

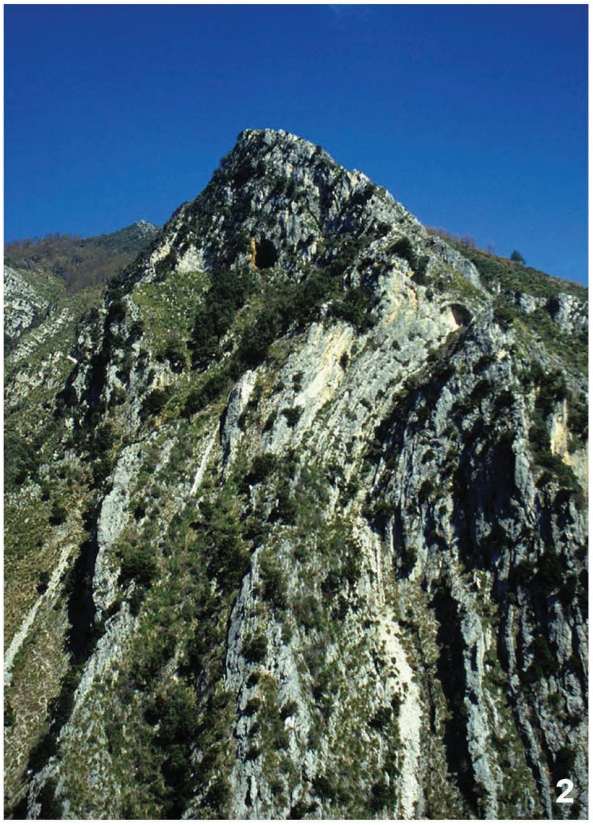
***Mots-clés** : mines, minerai de fer, Préhistoire, Grotta della Monaca, Calabre, Italie.*

Keywords: mines, iron ore, Prehistory, Grotta della Monaca, Calabria, Italy.

1. INTRODUCTION

Grotta della Monaca is a karstic cave located within the municipality district of Sant'Agata di Esaro (CS), a small town in north-western Calabria, southern Italy (Fig. 1:1). Its imposing entrance is set 600 metres high a.s.l. on a mountainous peak, alongside the hydrographic left bank of the Esaro River (Fig. 1:2-3). Being highly visible and easily reachable, it has been occasionally explored and subjected to speleological surveys of which we can find traces in some literary sources and explorative reports dating back to the 19th and 20th centuries. In particular, one of these references reports for the first time the presence of archaeological evidence within the cavity: it is an unpublished note about an expedition of the Swiss Speleological Society in 1975. The text relates the finding of bone remains, potsherds, and a grooved stone tool. Subsequently surveys carried out in the 1990s by the "Enzo dei Medici" Regional Centre of Speleology in collaboration with the "Aldo Moro" University of Bari confirmed the statements made by Swiss speleologists: a hammer-axe and other fragmentary polished lithic tools were found in





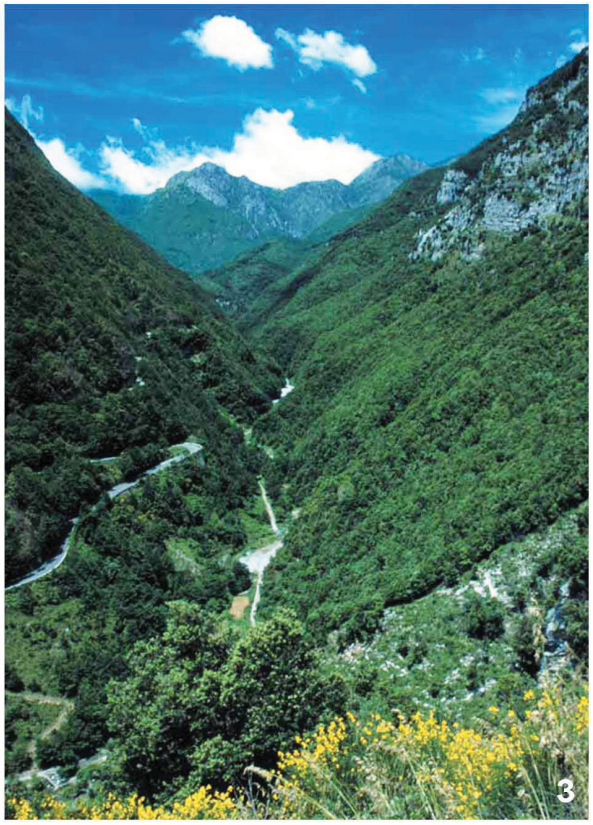


Fig. 1 – 1. Geographical setting of the prehistoric mine of Grotta della Monaca (drawing by F. Breglia © 2010);
2. The huge entrance of the cave on the top of a massive rocky peak (photo by F. Larocca);
3. View of the Upper Esaro River Valley from the access of the cave (photo by F. Larocca).

the same area previously noted, the deepest sector of the cavity. As a consequence, it was immediately recognized as an ancient and unknown prehistoric mine, giving birth to an intense period of speleo-archaeological research beginning in 2000 (Larocca, 2005a; Larocca & Dimuccio, 1997; Larocca & Lorusso, 1998).

The cave sets in the north-western sector of the Calabrian-Peloritan Arc, along a fault called "Sangineto line" marking the boundary between the metamorphic crystalline Calabrian units and the Apennines carbonate domains. The cavity develops within Mesozoic carbonate units [(Triassic) (Dimuccio, 2005: 25-26)] for about 500 metres in length. It is characterized by several spaces differing in size and morphology that can be schematically divided in three main sectors: "Pregrotta", a wide gallery near the cave entrance; the so-called "Sala dei pipistrelli", a huge chamber in the middle of the cave system; and "Cunicoli terminali", a series of low and narrow passages at the end of the underground system (Fig. 2:1) (Larocca, 2005b). The cave is particularly rich in metallic minerals, both iron and copper ones. Cupriferous minerals, outcropping mainly in the Cunicoli terminali, are represented primarily by malachite [$Cu_2(CO_3)(OH)_2$], and, to a lesser extent, by azurite [$Cu_3(CO_3)_2(OH)_2$] (Fig. 2:2). This mineralization is often associated with copper sulphates and phosphates such as brochantite [$Cu_4(SO_4)(OH)_6$], libethenite [$Cu_2(PO_4)(OH)$], and sampleite [$NaCaCu_5(PO_4)_4Cl{\cdot}5H_2O$].

Iron minerals are present from the cave access to the deepest recesses of the cavity; the most widespread ones are hydroxides, particularly goethite [αFeO(OH)], occurring either isolated or associated with lepidocrocite [γFeO(OH)], a polymorph of goethite. Iron minerals outcrop as veins embedded between the carbonate layers (Fig. 2:3); due to varying mineral subdivision and purity degree, they exhibit different colours: from black with sub-metallic lustre, for example in some stalactitic and stalagmitic formations, to yellow in the friable cryptocrystalline variety. Other minerals present are hematite [αFe_2O_3], an iron oxide detected near the entrance, and yukonite [$Ca_2Fe_3(AsO_4)_4(OH){\cdot}12H_2O$], an hydrated arsenate of iron and calcium found in the area of Cunicoli terminali. Particularly, the presence of hematite is linked with thermal transformation of goethite, as clearly visible near some fireplaces of historical age set on iron hydroxides beddings (Dimuccio *et al.*, 2005; Garavelli *et al.*, 2009; Garavelli *et al.*, 2012; Larocca, 2010: 267-268; Larocca, 2012: 251). The carbonate substrate in which Grotta della Monaca develops (Unità di San Donato) contains, among others, scattered primary iron sulfide mineralizations [(e.g. pyrite - FeS_2) (Amodio Morelli *et al.*, 1976; Bonardi *et al.*, 1982; Boni *et al.*, 1990; Dimuccio, 2005; Ietto *et al.*, 1992; Lorenzoni *et al.*, 1983)], which form in oxygen-poor environments. It seems plausible to assume that the iron oxide/hydroxide minerals (essentially massive dyke/stratiform facies), observed inside the cave (Larocca & Dimuccio, 1997; Dimuccio *et al.*, 2005), are the result of pyrite oxidation in oxygen-rich environment. Grotta della Monaca seems to be a typical example of polygenetic cave (i.e. has experienced more than one type of origin) where the mixing of hypogenic ascending flows (rising along fractures and inclined bedding planes) with probable infiltrating oxygen-rich epigenic meteoric waters (descending vadose flows) caused the cave development (by corrosion) and a concurrent precipitation of massive ferruginous mineralizations. An important role of microbial activity, especially in catalysing the precipitation of iron during the active speleogenetic phases, cannot be excluded (Dimuccio Luca Antonio, personal communication).

Archaeological excavations confirmed the presence of prehistoric activities aiming to the exploitation of metallic minerals in the deepest sectors of the underground system. Two main mining phases can be recognized: exploitation of iron hydroxides dating to the final phase of the Neolithic (between the end of the V and the first half of the IV millennium calBC), and exploitation of copper carbonates during an early phase of the Copper Age (first half of the IV millennium calBC). The iron hydroxides were exploited once again during Post-Medieval times (XVI-XVIII century AD) in the area near the entrance of the cave (Larocca, 2012: 251; Larocca & Levato, 2013: 23). Prehistoric mining phases were followed during the middle Bronze Age (between 1700 and 1400 calBC) by the use of the cavity as an underground burial-place approximately within the same sectors in which prehistoric mineral mining activities were previously carried out (Arena *et al.*, 2013).

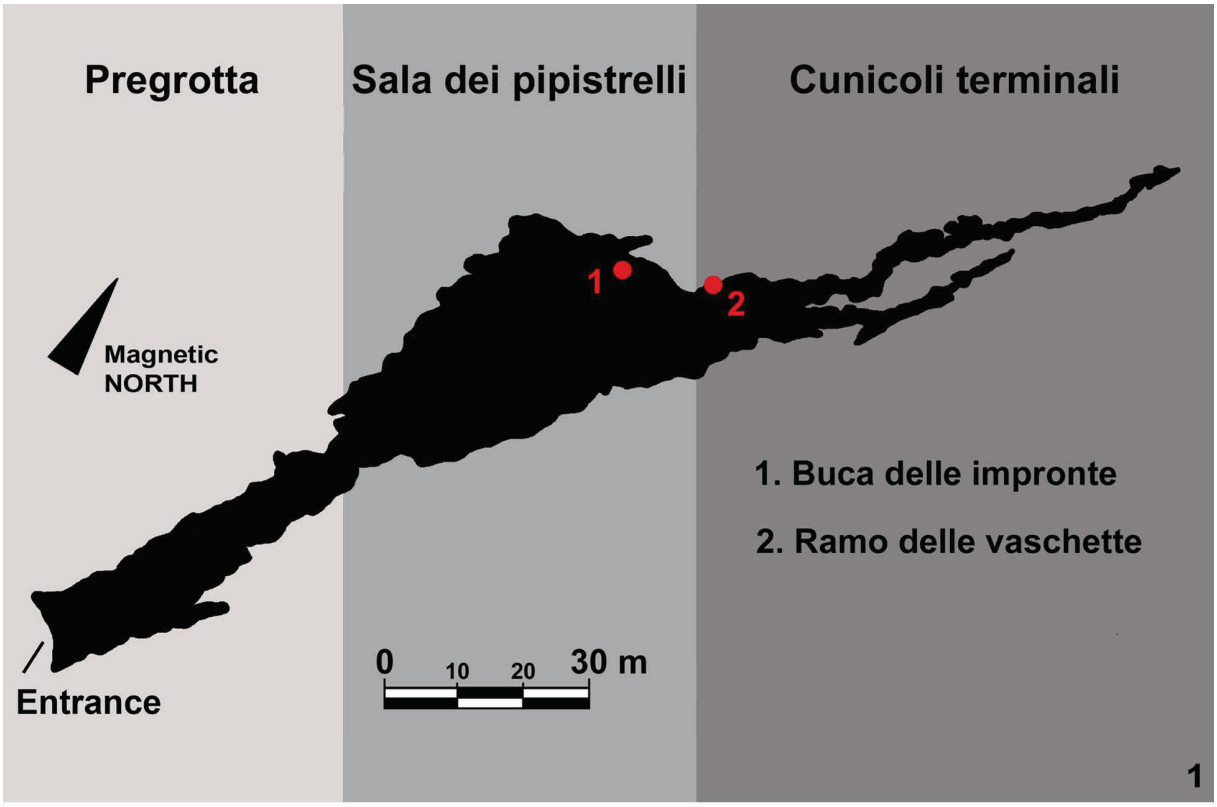


Fig. 2 – 1. Schematic plan of Grotta della Monaca; highlighted the mining sectors used for the exploitation of iron hydroxides during the final Neolithic (data and digital processing by F. Larocca); 2. Malachite smearing on a carbonate rock boulder (photo by F. Larocca); 3. Goethite vein within a fracture of the carbonate rock walls (photo by F. Larocca).

2. THE PREHISTORIC EXPLOITATION OF IRON HYDROXIDES

Traces of Post-Medieval iron exploitation can be found in Pregrotta and beneath Sala dei pipistrelli. These activities almost totally destroyed evidence of possible earlier exploitation of which we found traces within deposits located at the entrance, such as loose blocks of hydroxide retaining digging traces from non-metallic tools, and atypical flint tools found within fractures full of goethite. From the same levels containing these flint tools comes a human ulna deliberately placed under a rocky boulder, and AMS radiocarbon dated to 18250-17800 calBC (84.6 %) / 17750-17600 calBC (10.8 %) (LTL-3580A - 16761±100 BP). It is not to be excluded that this oldest frequentation could be associated to the exploitation of the iron hydroxides outcropping near the cave entrance (Larocca, 2010: 268; Larocca, 2012: 251). However, the most clear and best preserved contexts of iron minerals exploitations are located in the innermost and darkest underground sectors. Inside the Sala dei pipistrelli a mining sector called "Buca delle impronte" has been investigated; it was detected thanks to hundreds of digging traces visible on iron hydroxides veins outcropping within it. This goethite is so soft that it preserved for thousands of years negative imprints of the tools used to work it (Larocca & Levato, 2013: 23-24). Radiocarbon dating demonstrates a late Neolithic mining phase. This chronological assignment is supported by research carried out in another mining area called "Ramo delle vaschette", near the Cunicoli terminali. The secluded position of these two sectors allowed the preservation of an archaeological context that has reached us almost untouched by later activity.

2.1. Buca delle impronte

Buca delle impronte is a sub-horizontal passage 11 m long, and about 60 cm to 4 m wide, varying in height from 25 cm to 1 m; it is located in the inner part of the Sala dei pipistrelli (Fig. 2:1). It has a complex structure: a sub-round shaft with a downwards bottleneck opening at its bottom gives access to a slightly sloping passage; at the end of the bottleneck two pillars still support the vault and prevent it from collapsing (Fig. 3:1). This area presents a nearly flat surface on which archaeological excavations were conducted, covering an area of 7.5 square metres, with a height from the surface level to the roof between 20 and 60 cm. During the first investigations, this deposit proved to be artificial; in fact, it partially overlaid a hydroxide vein that bears digging traces. Beneath a first layer of mining debris, a beaten earth layer was uncovered. It is 1.90 m in length, a maximum of 1.05 m in width, with a concavo-convex longitudinal section sloping down towards the inner part of the chamber, with a cross-section that is concave in the centre and convex at the side edges (Fig. 3:2). This level is clearly recognizable due to its compactness and blackish colour resulting from charcoal remains scattered on its surface. The deposit has reached a maximum depth of -90 cm, partially stopping at the carbonate rock emerging from the cave floor. During excavations, four main stratigraphic units were recognized, allowing the identification of the extractive phases carried out in this sector. Prehistoric miners first dug out all of the goethite vein, proceeding from the outside to the inside of Buca delle impronte, and they disposed waste materials within the same digging area, successively mining its inner part. Due to the small distance between the floor and vault (only 70 cm on average), they proceeded by crawling on the debris previously generated, compacting the deposit and so creating the beaten earth layer. New debris progressively accumulated on the latter until the cessation of mining activities (Levato, 2012: 187-197; Levato, 2013).

This extractive technique implies the direct excavation of the vein, selecting the soft goethite variety and discarding the more compact one. In case the carbonate rock on top of the vein risked collapse, the miners left sections of mineral, as evidenced by the pillar designated "P1" and the semi-pillar designated "P2", both made of goethite (Fig. 4:1-2). Soft goethite was certainly extracted using tools made of antler, bone, and probably horn or wood. Though no material remains of these tools have been found, they can be identified through digging traces. The latter can be grouped as:

- imprints of deer antlers used as picks (Fig. 4:3);
- imprints of animal scapulas used as shovels (Fig. 4:4);
- imprints of unidentifiable tools.

Whilst digging traces of antler tools can be easily recognised from the presence on their surface of lengthwise stripes, and imprints of

Fig. 3 – 1. Goethite vein within Buca delle impronte, in the area next to the bottleneck. On the left can be seen the P1 pillar, while to the right of the metric gauge can be seen one end of the P2 semi-pillar (photo by F. Larocca); 2. Beaten earth layer detected within Buca delle impronte (photo by F. Larocca).

Laboratory number	*Material*	*Context*	*Radiocarbon dating*
LTL-3581A	*Pinus sylvestris* charcoal	Buca delle impronte	4880±45 BP 3780-3630 calBC (89.8 %) 3580-3530 calBC (5.6 %)
LTL-3582A	*Pinus sylvestris* charcoal	Buca delle impronte	4935±45 BP 3800-3640 calBC (95.4 %)
LTL-3583A	*Pinus sylvestris* charcoal	Ramo delle vaschette	5183±50 BP 4230-4200 calBC (2.3 %) 4170-4090 calBC (4.9 %) 4080-3920 calBC (79.4 %) 3880-3800 calBC (8.9 %)
LTL-3584A	*Pinus sylvestris* charcoal	Ramo delle vaschette	5010±50 BP 3950-3690 calBC (95.4 %)

Tab. 1 – Grotta della Monaca (Italy). Radiocarbon dating of the final Neolithic iron hydroxide mining (from Larocca, 2010; Quarta *et al.*, 2013).

scapulas by a small raised section corresponding to specific bone morphology, for other imprints we can only propose the use of a raw material different from antler (bone, horn, wood). Imprints have also been found on loose blocks of iron hydroxide contained in the archaeological deposits (Larocca & Levato, 2013: 23-24).

Working activities set in an underground environment so distant from the outside and therefore from natural light required the utilization of artificial lighting systems. Within Buca delle impronte, more than one hundred charcoal samples have been collected, and archaeobotanical analysis indicates they derived from *Pinus sylvestris*. These represent almost the totality of organic remains found, and are the only archaeological evidence, in terms of absolute chronology, that allows the assignment of this exploitation phase to the final Neolithic. The dispersion of the same material within the entire investigated deposit, their dimension, their occurrence on the beaten earth layer, the same wood species suggest a derivation from torches used to light the hypogean areas (Larocca, 2012: 254).

Unfortunately, as previously stated, apart from charcoal remains of torches no other artefacts have been found. This exploitation chronology is based on the AMS radiocarbon dating of burnt remains of *Pinus sylvestris* that yielded dates between 3800-3640 calBC [(95.4 % - LTL-3582A) and 3780-3630 calBC (89.8 % - LTL-3581A) (Tab 1) (Larocca, 2010: 268; Larocca, 2012: 254; Quarta *et al.*, 2013)].

2.2. Ramo delle vaschette

Ramo delle vaschette is a sub-horizontal passage of 6 m in length, 1.6 m in maximum width, and 90 cm average height. It is adjacent to a nearly flat area that gives access to the Cunicoli terminali (Fig. 2:1). Extensive archaeological excavations have been carried out, excluding part of the deposit in the area close to the end of the passage. Nearby the access, it was possible to excavate only a restrained portion of the deposit because part of it was covered by a thick stalagmitic crust. In this deposit, we detected a small depression in the ground full of sediment, designated "Depressione I", where 28 lithic flakes were found. These clearly derive from a not diagnostic fragment of a schist tool found on the surface. The middle portion of the passage has been extensively investigated; in fact the majority of the deposit in this area reached a maximum depth of -90 cm. A single layer of accumulation of mining debris was found, including several broken stalagmites and calcitic flowstones; the latter, together with carbonate rock boulders, iron hydroxides, and yukonite, filled a second and wider depression in the ground designated "Depressione II".

Fig. 4 – 1. Supporting pillar designated "P1" (photo by F. Larocca); 2. Supporting semi-pillar designated "P2" (photo by F. Larocca); 3. Imprints of deer antlers on a vein outcropping along the area subjected to archaeological excavation (photo by F. Larocca); 4. Imprints of blows with scapula shovels made from two different distances (photo by F. Larocca).

According to the data currently available, the extractive technique consisted of a stripping action: it involved the removal of the calcitic bulk formerly spread on the floor and on the side walls of the passage. This action is demonstrated by nine strips of calcitic flowstone alongside the passage perimeter at a height of 23 to 70 cm above the surface level (Fig. 5:1). The presence within the deposit of smashed stalagmites and flowstones validates the hypothesis of a stripping activity. Specifically, it was observed that these stalagmites were actually whole, so the smashing activity must have been carried out alongside their perimeter where calcite dripstone is generally thinner (Fig. 5:2). The only tool found in this context is the before-mentioned schist percussion tool, designated "L15", which was used in the underground area, scattering tens of lithic chips on the ground (Fig. 5:3). Technological analysis allowed re-assembling of the flakes on the hammer edge of the implement, proving their actual association with the tool; this analysis highlighted traces of manufacturing, which aimed to create a groove or notch, and of shaping by pecking the tool (Breglia, 2013: 87, 129). Goethite exploitation is suggested by the limited remains of an iron hydroxide vein, which is now largely worn out, but extends underneath the original flowstone, and by the abundance of loose goethite boulders detected within the deposit (Levato, 2012: 237; Levato, 2013).

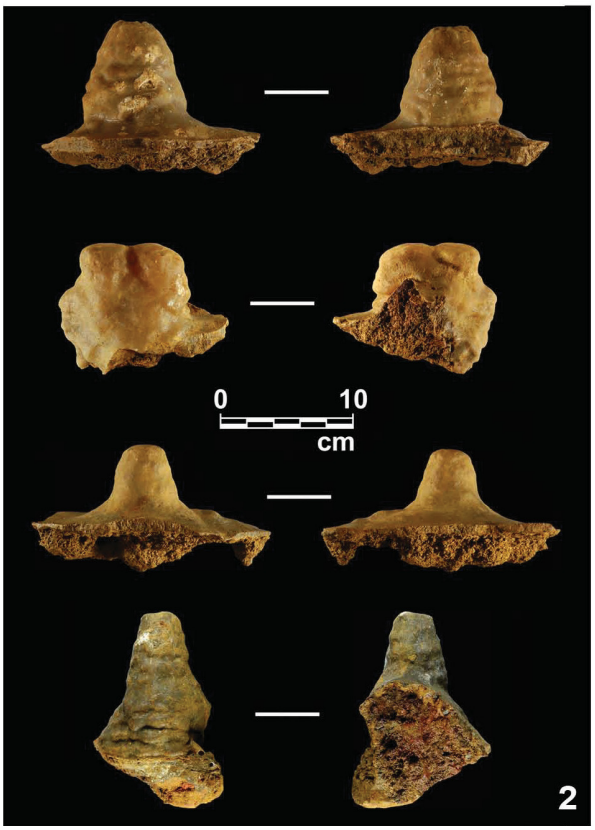
As in the Buca delle impronte, the presence of charcoal remains, deriving from the combustion of *Pinus sylvestris*, implies the use of torches for underground lighting (Larocca, 2012: 254). Two AMS radiocarbon dates on charcoal of this same wood type set the exploitation in the Ramo delle vaschette between 4080-3920 calBC [(79.4 % - LTL-3583A) and 3950-3690 calBC (95.4 % - LTL-3584A) (Tab. 1) (Larocca, 2010: 268; Quarta *et al.*, 2013)].

3. CONCLUSIONS

Mining evidence found within Buca delle impronte and Ramo delle vaschette certainly raise the issue of iron oxide/hydroxide exploitation and use during Prehistory. Thanks to the research carried out within both contexts it has been possible to improve our knowledge of the acquisition phase for iron minerals and of the techniques used by the miners of the Grotta della Monaca during the end of the Neolithic Age. The first notable feature is the access to mining resources through a karstic cave, a feature that has no comparison with the other prehistoric iron oxide/hydroxide mines. The bright chromatism of iron hydroxide veins outcropping near the wide entrance probably made their identification easier, encouraging miners to follow their veins to the deepest sector of the cavity, using torches of *Pinus sylvestris* to illuminate these completely dark places. Two different extraction techniques can be observed: direct excavation of veins outcropping on the surface, and flowstone stripping for veins located beneath them. In the most extreme cases, pillars of iron hydroxide were spared, helping to sustain the unsteady vault. Digging traces allowed to detect exploitation, and to identify some tools used, as deer antler picks and shovels made of large mammal scapulas (Larocca & Levato, 2013: 23-24). Except for a schist percussion tool, no other artefact has been found within the investigated sectors. Whilst the absence of bone and antler tools cannot be satisfactorily explained, pottery can be considered as equipment not directly linked with extraction, for example, it was likely not used for mineral transport. Work carried out in such narrow spaces might have required perishable animal or vegetable materials that would better comply with the morphology of the underground environment, allowing an easier transport of extracted raw material.

Mining activities occurred between the end of V and the first half of IV millennium calBC, during an advanced and transitional phase of the final Neolithic into the succeeding Copper Age. It is a period marked in a large part of southern Italy by the dispersal of Diana style pottery – found in the Pregrotta of Grotta della Monaca – and by the diffusion of engraved ceramics, absent in the cavity. The appearance of the first metallurgic activities to produce copper artefacts – on the Acropoli of Lipari – stands out among the other innovations of this period (Larocca, 2012; Pacciarelli, 2011; Pessina & Tiné, 2010: 48-49, 132-134; Salerno & Vanzetti, 2004: 215).

What happened within Grotta della Monaca testifies to the first phase of the operative sequence that leads from mineral extraction to the final product. The most recent techno-functional analysis carried out on macrolithic tools – upper and lower grinding stones – found within the



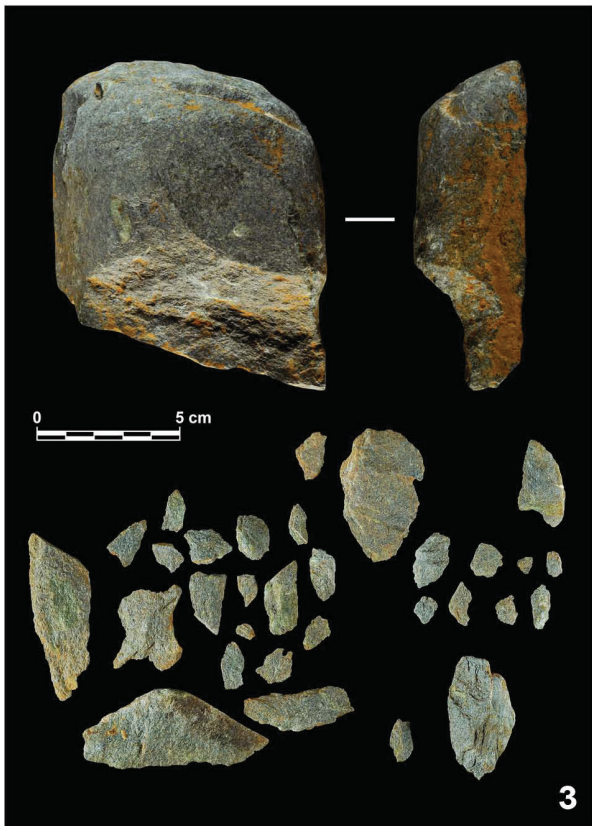


Fig. 5 – 1. Stripping traces on a calcitic flow within Ramo delle vaschette (photo by F. Larocca);
2. Smashed stalagmites found within the debris deposit (photo by F. Larocca);
3. Fragment of a lithic tool made of schist designated "L15", seen with its associated flakes (photo by F. Larocca).

Pregrotta imply that these kinds of tools were used near the entrance to smash and grind goethite blocks. Unfortunately, their typology and the lack of a reliable stratigraphic context do not provide chronological information, but it is unlikely their attribution to Post-Medieval times, as a more complex mineral processing method – carried out in places outside from the extractive site – is attested (Caricola, 2013: 157-159). However, this is one of the rare sites in which there is both iron mineral exploitation and evidence linked to raw materials processing (Goldenberg *et al.*, 2003; Vaughn *et al.*, 2013). Unfortunately, it is not possible to evaluate the use of the resulting finished product, as no coeval open-air villages have been found in the surrounding area.

The site can be included along with at least five prehistoric iron oxide/hydroxide mines investigated in Europe to date (Dobosi, 2006; Goldenberg *et al.*, 2003; Weisgerber *et al.*, 2008; Schild *et al.*, 2011). Ongoing archaeological excavations within Grotta del Tesauro, another iron hydroxide mine located in the surrounding area, will help improve our knowledge about dynamics of supply of these raw materials within the Upper Esaro River Valley and clarify the chrono-cultural context of these mining activities (Garavelli *et al.*, 2012).

Acknowledgements

We wish to acknowledge the help provided by Dr. Luca Antonio Dimuccio of the Centre of Studies on Geography and Spatial Planning - CEGOT, Department of Geography (University of Coimbra, Portugal), for speleogenetic information, Maria De Falco for the English translation and Giuseppe Guarascio for the French texts. Special thanks to Fabiola Arena, Silvia Attilii, Enza Cigliola, and Caterina Mezzina for their collaboration in underground excavations; Francesco Breglia and Isabella Caricola for their support.

Bibliography

AMODIO MORELLI L., BONARDI G., COLONNA V., DIETRICH D., GIUNTA G., IPPOLITO F., LIGUORI V., LORENZONI S., PAGLIONICO A., PERRONE V., PICCARRETA G., RUSSO M., SCANDONE P., ZANETTIN-LORENZONI E. & ZUPPETTA A., 1976. L'Arco Calabro-Peloritano nell'orogene Appenninico-Maghrebide. *Memorie della Società Geologica Italiana*, **17**: 1-60.

ARENA F., LAROCCA F., ONISTO N. & GUALDI-RUSSO E., 2013. *Il sepolcreto protostorico di Grotta della Monaca in Calabria. Aspetti antropologici*. Poster presented at the XX Congress of the Italian Anthropologist, Ferrara, Italy.

BONARDI G., DE VIVO B., GIUNTA G., LIMA A., PERRONE V. & ZUPPETTA A., 1982. Mineralizzazioni dell'Arco Calabro-Peloritano: Ipotesi genetiche e quadro evolutivo. *Bollettino della Società Geologica Italiana*, **101**: 141-155.

BONI M., TORRE M. & ZAMPARELLI V., 1990. Il Trias medio superiore dell'Unità di San Donato (Appennino Meridionale, Calabria): risultati preliminari. *Rendiconti della Società Geologica Italiana*, **13**: 89-92.

BREGLIA F., 2013. *Gli strumenti litici scanalati dalla miniera preistorica di Grotta della Monaca in Calabria. Ricostruzione delle catene operative e verifiche sperimentali* (Unpublished master's thesis). Università degli Studi di Ferrara, Ferrara.

CARICOLA I., 2013. *Il gesto e la funzione: analisi delle tracce d'uso di macine, macinelli e levigatoi da Grotta della Monaca (Sant'Agata di Esaro - Cosenza)* (Unpublished master's thesis). Università degli Studi di Roma "La Sapienza", Roma.

DIMUCCIO L. A., 2005. Inquadramento geologico. *In*: F. LAROCCA (ed.), *La miniera pre-protostorica di Grotta della Monaca (Sant'Agata di Esaro - Cosenza)*. Roseto Capo Spulico: Centro Regionale di Speleologia "Enzo dei Medici": 25-29.

DIMUCCIO L. A., GARAVELLI A., PINTO D. & VURRO F., 2005. Le risorse minerarie. *In*: F. LAROCCA (ed.), *La miniera pre-protostorica di Grotta della Monaca (Sant'Agata di Esaro - Cosenza)*. Roseto Capo Spulico: Centro Regionale di Speleologia "Enzo dei Medici": 37-41.

DOBOSI V., 2006. Lovas (Hungary) ochre mine reconsidered. *In*: G. KÖRLIN & G. WEISGERBER (ed.), *Stone Age - Mining Age, Der Anschnitt*, **19**: 29-36.

GARAVELLI A., PINTO D., VURRO F., MELLINI M., VITI C., BALIC-ZUNIC T. & DELLA VENTURA G., 2009. Yukonite from the Grotta della Monaca cave, Sant'Agata di Esaro, Italy: characterization

and comparison with cotype material from the Daulton Mine, Yukon, Canada. *Canadian Mineralogist*, **47** (1): 39-51.

GARAVELLI A., LAROCCA F., LEVATO C. & PINTO D., 2012. *Prehistoric Mines of the Upper Esaro Valley*. Poster presented at the 2nd Mining in European History-Conference. The Impact of Historic and Prehistoric Mining Activities on the Environment and Societies in Europe, Innsbruck, Austria.

GOLDENBERG G., MAASS A., STEFFENS G. & STEUER H., 2003. Hematite Mining during the Linear Ceramics Culture in the Area of the Black Forest, South West Germany. *In*: T. STÖLLNER, G. KÖRLIN, G. STEFFENS & J. CIERNY (ed.), *Man and Mining - Mensch und Bergbau*, *Der Anschnitt*, **16**: 179-186.

IETTO A., BARILARO A. M., CALLIGARO G. & MANCUSO C., 1992. Elementi per una revisione dei rapporti Appennino-Arco Calabro. *Bollettino della Società Geologica Italiana*, **111**: 193-215.

LAROCCA F., 2005a. Storia delle esplorazioni e delle ricerche. *In*: F. LAROCCA (ed.), *La miniera preprotostorica di Grotta della Monaca (Sant'Agata di Esaro - Cosenza)*. Roseto Capo Spulico: Centro Regionale di Speleologia "Enzo dei Medici": 11-15.

LAROCCA F., 2005b. Il sistema sotterraneo: cenni descrittivi. *In*: F. LAROCCA (ed.), *La miniera preprotostorica di Grotta della Monaca (Sant'Agata di Esaro - Cosenza)*. Roseto Capo Spulico: Centro Regionale di Speleologia "Enzo dei Medici": 17-23.

LAROCCA F., 2010. Grotta della Monaca: A Prehistoric Copper and Iron Mine in the Calabria Region (Italy). *In*: P. ANREITER, G. GOLDENBERG, K. HANKE, R. KRAUSE, W. LEITNER, F. MATHIS, K. NICOLUSSI, K. OEGGL, E. PERNICKA, M. PRAST, J. SCHIBLER, I. SCHNEIDER, H. STADLER, T. STÖLLNER, G. TOMEDI & P. TROPPER (ed.), *Mining in European History and its Impact on Environment and Human Societies*. Proceedings for the 1st Mining in European History Conference of the FZ HiMAT. Innsbruck: Innsbruck University Press: 267-270.

LAROCCA F., 2012. Grotta della Monaca (Calabria, Italia meridionale). Una miniera neolitica per l'estrazione dell'ocra. *In*: M. BORREL, F. BORRELL, J. BOSCH, X. CLOP & M. MOLIST (ed.), *Xarxes al neolític, Rubricatum*, **5**: 249-256.

LAROCCA F. & DIMUCCIO L. A., 1997. Importanti scoperte nella Grotta della Monaca. *Speleologia*, **68**: 129-130.

LAROCCA F. & LORUSSO D., 1998. La Grotta della Monaca a Sant'Agata di Ésaro (Cosenza). *Speleologia*, **38**: 5-12.

LAROCCA F. & LEVATO C., 2013. From the imprint to the tool: the identification of prehistoric mining implements through the study of digging traces. The case of Grotta della Monaca in Calabria (Italy). *In*: P. ANREITER, K. BRANDSTÄTTER, G. GOLDENBERG, K. HANKE, W. LEITNER, K. NICOLUSSI, K. OEGGL, E. PERNICKA, V. SCHAFFER, T. STÖLLNER, G. TOMEDI & P. TROPPER (ed.), *Mining in European History and its Impact on Environment and Human Societies*. Proceedings for the 2nd Mining in European History Conference of the FZ HiMAT, 7-10 November 2012, Innsbruck. Innsbruck University Press: 21-26.

LEVATO C., 2012. *L'estrazione mineraria di ossidi e idrossidi ferrosi nella Preistoria. Il caso di Grotta della Monaca in Calabria* (Unpublished master's thesis). Università degli Studi di Bari "Aldo Moro", Bari.

LEVATO C., 2013. *Grotta della Monaca. Le coltivazioni preistoriche dei minerali di ferro*. Manuscript submitted for publication.

LORENZONI S., ORSI G. & ZANETTIN E., 1983. Metallogenesis in the tectonic units and lithogenetic environments of Calabria (Southern Italy). *Memorie di Scienze Geologiche*, **XXXV**: 411-428.

PACCIARELLI M., 2011. L'Eneolitico della Calabria tirrenica: nuovi dati sull'articolazione cronoculturale. *Origini,* **XXXIII**: 249-302.

PESSINA A. & TINÉ V., 2010. *Archeologia del Neolitico. L'Italia tra VI e IV millennio a.C.* (2nd ed.). Roma: Carocci.

QUARTA G., LAROCCA F., D'ELIA M., MACCHIA M., GABALLO V., PALESTRA G. & CALCAGNILE L., 2013. Radiocarbon dating the exploitation phases of the Grotta della Monaca cave in Calabria, Southern Italy: a prehistoric mine for the

extraction of iron and copper. *In*: A. J. T. JULL & C. HATTÉ (eds), *Proceeding of the the 21st International Radiocarbon Conference, Radiocarbon*, **55** (2-3): 1246-1251.

SALERNO A. & VANZETTI A., 2004. L'Eneolitico e il Bronzo antico in Calabria. *In*: *Atti della XXXVII Riunione Scientifica. Preistoria e Protostoria della Calabria*. Firenze: Istituto Italiano di Preistoria e Protostoria: 207-234.

SCHILD R., KRÓLIK H., TOMASZEWSKI A. J. & CIEPIELEWSKA E., 2011. *RYDNO. A Stone Age Red Ochre Quarry and Socioeconomic Center. A century of Research*. Warsaw: Institute of Archaeology and Ethnology, Polish Academy of Sciences.

VAUGHN K. J., VAN GIJSEGHEM H., WHALEN V. H., EERKENS J. V. & LINARES GRADOS M., 2013. The Organization of Mining in Nasca During the Early Intermediate Period: Recent Evidence from Mina Primavera. *In*: N. TRIPCEVICH & K. J. VAUGHN (ed.), *Mining and Quarrying in the Ancient Andes. Sociopolitical, Economic, and Symbolic Dimensions*. New York: Springer: 157-182.

WEISGERBER G., CIERNY J. & KOUKOULI-CHRYSANTHAKI C., 2008. Zu paläolithischer Gewinnung roter Farbmineralien auf der Insel Thasos. *In*: Ü. YALCIN (ed.), *Anatolian Metal IV*, *Der Anschnitt*, **21**: 179-190.

Authors address:

Chiara LEVATO
Felice LAROCCA
Università degli Studi di Bari "Aldo Moro"
Missione di Ricerca speleo-archeologica
Via Pisani, 28
87010 Sant'Agata di Esaro (CS) (Italy)
okros@live.it, specus@tin.it
and
Centro Regionale di Speleologia
"Enzo dei Medici"
Commissione di Ricerca per
l'Archeologia delle Miniere
Via Lucania, 3
87070 Roseto Capo Spulico (CS) (Italy)

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 39-49

Iron ores of Southern Belgium: much more than hematite

Julien DENAYER

Résumé

En Wallonie (partie sud de la Belgique), près de 3000 gisements, gîtes et exploitations de minerai de fer ont été répertoriés sur base d'ouvrages historiques, de plans miniers, d'études géologiques mais aussi grâce à la toponymie qui a gardé plus de traces des activités minières que le paysage. Ces 3000 gîtes se rangent en trois catégories principales : (1) les gisements de fer en couches (y compris les hématites oolithiques) ; (2) les gisements d'altération (« amas couchés » des anciens), et (3) les gisements en lien avec les minéralisations de plomb et zinc. Les gisements oolithiques en couches présents en Wallonie sont interstratifiés dans les roches sédimentaires du Dévonien et du Jurassique. Les couches d'hématite ont été identifiées à la base des formations eifeliennes, frasniennes et famenniennes. La couche de goethite oolithique (« Minette de Lorraine ») se trouve à la base de la série toarcienne-aalénienne en Lorraine belge. Les minerais liés à l'altération des roches sédimentaires sont dominés par les hydroxydes de fer et se rangent en plusieurs sous-catégories. Les plus courants sont les amas couchés, des gisements formés au contact entre deux couches géologiques de lithologies différentes. Ils sont particulièrement développés dans les roches dévoniennes de l'Entre-Sambre-et-Meuse et du Condroz, dans les roches jurassiques de la Lorraine belge et dans les roches paléogènes du Hainaut et du Brabant. Les amas cryptokarstiques sont développés aux épontes de certains karsts à remplissage sableux (« abannets » de la Calestienne et de l'Entre-Sambre-et-Meuse). Les graviers ferrugineux, résultant du démantèlement des autres types de gisements, constitue une autre sous-catégorie importante en Lorraine belge. Enfin, de nombreux filons et amas de sulfures de plomb et zinc sont surmontés d'une zone superficielle altérée (« chapeau de fer ») composée en partie de limonite. Ces gisements sont connus dans les vallées de la Meuse et de la Vesdre, dans la Calestienne et dans les régions de Durbuy et de Philippeville.

***Mots-clés** : hématite, limonite, minerai de fer, chapeau de fer, amas cryptokarstiques, Belgique.*

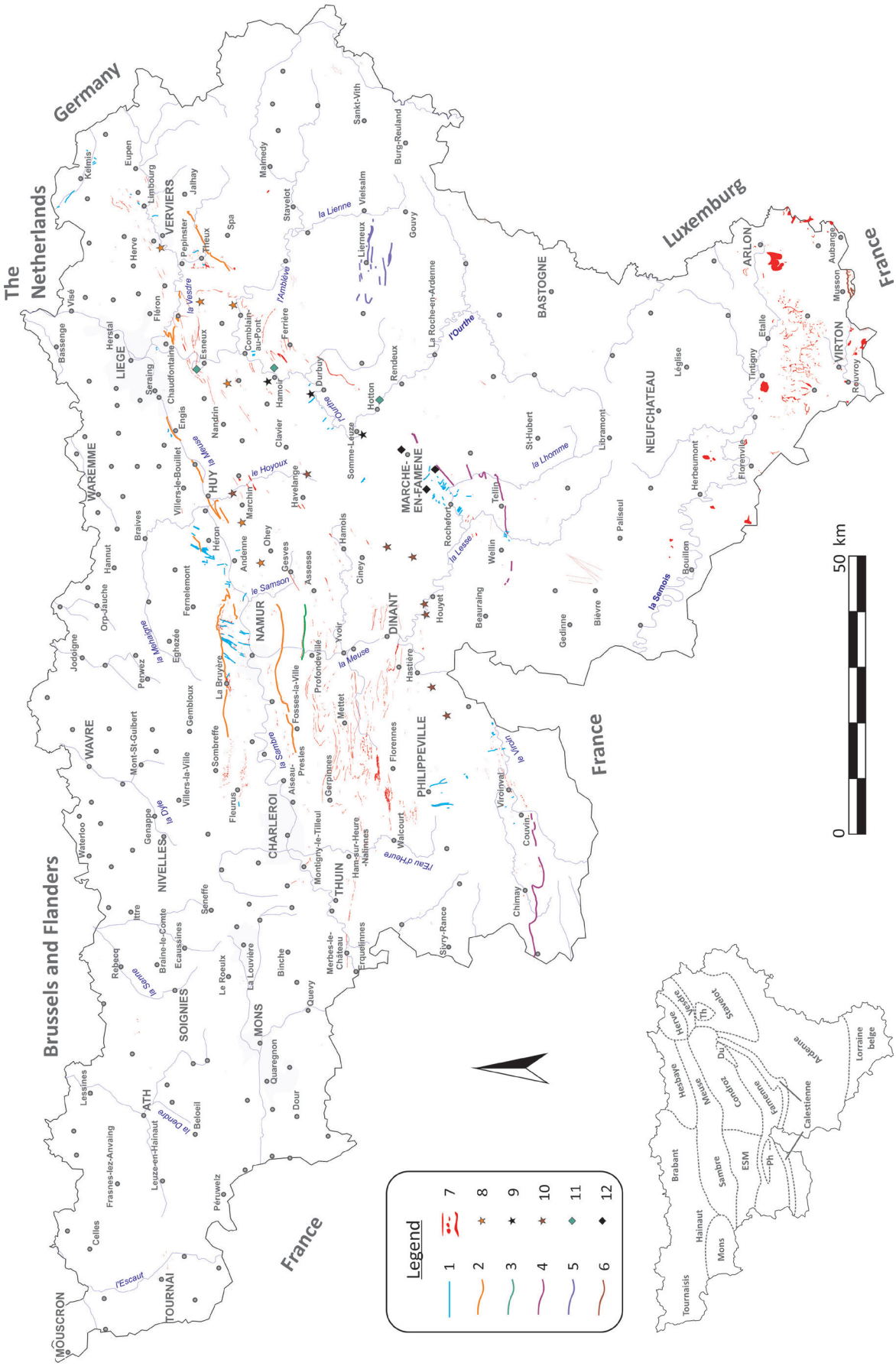
Abstract

In Wallonia (Southern Belgium), about 3000 occurrences and extraction sites of iron ores were identified after examination of historical sources, mining maps, geological studies and toponymy. These 3000 occurrences are grouped into three main categories: (1) sedimentary ores (including hematitic oolitic ironstones); (2) weathering deposists (gossans) and (3) lead-zinc sulfides-related iron ores. Oolitic ironstones are essentially known from the Devonian and Jurassic strata. Hematitic oolitic ironstone horizons are situated at the base of the Eifelian, Frasnian and Famennian stages, while the Minette ores of Lorraine (oolitic goethite) are situated at the Toarcian-Aalenian boundary. Ores related to the weathering of sedimentary rocks are grouped in several sub-categories. Gossans are developed along geological contacts between rocks of different lithologies. The latter are very common in the Devonian rocks in the Condroz and Entre-Sambre-et-Meuse areas, in the Jurassic rocks of the Belgian Lorraine area and in the Paleogene rocks of the Brabant and Hainaut areas. Cryptokarstic ore bodies, developed along the walls of sand filled-karsts (*abannets*-type ores) are known from the Calestienne and Entre-Sambre-et-Meuse areas. Ferruginous gravels resulting from the disintegration of the previous ore categories are common in the Belgian Lorraine area. A last ore type consists of weathered superficial parts of lead-zinc-iron sulfide veins (iron caps). These veins are known in the Vesdre and Meuse valleys, the Calestienne region and the Durbuy and Philippeville areas.

Keywords: haematite, limonite, iron ore, gossan, cryptokarstic ore bodies, Belgium.

1. INTRODUCTION

Wallonia is particularly rich in iron ores. About 3000 occurrences and extraction sites of iron ores were identified (Fig. 1, Denayer *et al.*, 2011) after analyzing historical sources, mining maps, geological studies and toponymy. The latter preserved more traces of mining activities than the landscapes themselves. Most of the iron ores were mined since the Antiquity. In its chronicles *De Bello Gallico*, Julius Caesar (58-50 BC) already noticed the mining skills of the Nervian and Eburons peoples. During the High Middle Age, the Entre-Sambre-et-Meuse area is thought to be one of the most important mining and iron industry center of Western Europe (Pleiner, 1964; Gillard, 1971). Legends tell that the cast iron was discovered in Liège at the beginning of the 14th century, where the blast furnace was also invented (Pasquasy, 2005). Nowadays, the blast furnace is known to have been invented in England by A. Darby who first introduced the use of coke


Germany
The Netherlands
Brussels and Flanders
France
Luxemburg
France
Legend
1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
11
12
0
50 km
LIEGE
VERVIERS
WAREMME
HUY
WAVRE
NAMUR
DINANT
MARCHE-EN-FAMENNE
BASTOGNE
NEUFCHATEAU
ARLON
VIRTON
NIVELLES
CHARLEROI
THUIN
PHILIPPEVILLE
SOIGNIES
MONS
ATH
TOURNAI
MOUSCRON
la Lienne
la Vesdre
l'Amblève
l'Ourthe
la Meuse
la Sambre
la Semois
le Samson
le Hoyoux
la Lhomme
la Lesse
la Dyle
la Senne
la Dendre
l'Escaut
l'Eau d'Heure
la Viroin
Brabant
Hainaut
Tournaisis
Mons
Sambre
ESM
Ph
Hesbaye
Condroz
Famenne
Ardenne
Calestienne
Lorraine belge

to replace the charcoal in 1709, whilst the cast iron was already used in Sweden at least in the 12th century (Den Ouden, 1985; Isaksson *et al.*, 1995). However, the modern steel industries of Belgium are not legendary: they reached a peak in production and technology in the 1820-1860's, when Cockerill's engineer Montefiore finally used the hematite ores in blast furnace working with coke in 1852 (Pasquasy, 2005). The past industrial history of Wallonia is almost entirely relying on the richness and quality of the local iron ores, the availability of coal and the traditional skills of the miners and steelworkers, and this, long before Darby or Cockerill. As early as the Neolithic, men already used oolitic hematite as a pigment, as proved by several archeological discoveries (e.g. Bosquet *et al.*, 2013). Neolithic ochres industries are less well documented in Belgium but archaeological materials – limonite and goethite – are known from the beginning of the 20th century (e.g. Van den Broeck *et al.*, 1910)

2. GEOLOGY OF THE IRON ORES

The Walloon iron ores can be grouped into three categories: (1) sedimentary ores, (2) weathering deposits and (3) lead-zinc sulfides-related iron ores. With a few exceptions, all of the irons ores are hosted in Palaeozoic sedimentary rocks (Devonian and Carboniferous) and, to a lesser extent, in Jurassic and Paleogene rocks (Fig. 2).

Fig. 1 – (left page) Map of Wallonia (Southern Belgium) with position of the iron ores. Legend: 1: iron cap upon lead-zinc sulfide veins; 2:hematitic oolitic iron horizon in the basal Famennian; 3: hematitic oolitic iron horizon in the basal Frasnian; 4: hematitic oolitic ironstone horizon in the basal 'Couvinian' (Emsian-Eifelian); 5: ferro-manganesiferous ore horizons of the Lienne valley; 6: Minette-type goethitic oolitic ironstone horizon; 7: weathering deposits (cryptokarstic ores, gossans, etc.); 8: isolated outcrop of hematitic oolitic ironstone horizon in the basal Famennian, red facies; 9: isolated outcrop of hematitic oolitic ironstone horizon in the basal Famennian, green facies; 10: isolated outcrop of hematitic oolitic ironstone horizon in the lower and middle Famennian; 11: isolated outcrop of hematitic oolitic ironstone horizon in the basal Frasnian, red facies; 12: isolated outcrop of hematitic oolitic ironstone horizon in the basal Frasnian, green facies. The small map indicates the main geological and geomorphological areas of Southern Belgium. Abbreviations: Ph: Philippeville Massif; Du: Durbuy Massif; Th: Theux Tectonic Window.

The iron oxides and hydroxides are the dominant components of the ores. The iron oxide (hematite, Fe_2O_3) is a dense, black, grey or red mineral occurring in massive or granular (oolitic) form or, more rarely in Belgium, as crystals. Theoretically, it contains up to 70 % of iron but due to frequent impurities, the iron contain of the ore is usually less than 50 %. The goethite (FeO(OH)) is an iron hydroxide occurring in dark or yellowish massive, concretionary or pulverulent forms. Goethite is often associated with limonite, a general term used for minerals composed of hydrated iron hydroxides ($FeO(OH).nH_2O$). Limonite results often from the weathering of other iron minerals, such as pyrite. Pyrite and marcasite are two common iron sulfides (FeS_2) not used as an iron ore but mined for the production of vitriol (iron sulfates) and sulfur. Iron silicates (glauconite, chlorite, berthierine) are common iron minerals occurring as grains (ooids) within sedimentary rocks but of no industrial utility if not weathered into limonite.

2.1. Sedimentary iron ores

Because the overall geological characteristics and the petrographical description of the Belgian hematitic oolitic ironstones aim the papers of Goemaere *et al.,* 2016: volume 1 and Dreesen *et al.*, 2016: volume 1), we will rather focus on the other sedimentary iron deposits. Nevertheless, a short description of these hematitic oolitic sedimentary iron ores is given below, because of their geological and industrial importance and their large spatial distribution within Southern Belgium and surroundings areas. They are described in an ascending stratigraphical order.

2.1.1. The Middle Devonian (Eifelian) hematitic oolitic ironstone ('couche d'oligiste oolithique du Couvinien')

This first hematitic oolitic ironstone is composed of 2 to 6 individual centimetric oolitic ore layers separated by shales and dolomitic sandstones. The ferruginous ooids are rare but hematitized bioclasts are frequent ('fossil ore facies' according to Dreesen *et al.*, 2016: volume 1). Red-coloured facies are dominant but some layers richer in siderite (iron carbonate) are grey to green in colour (Cayeux, 1911). The mean iron content varies from 35 to 42 % (Delmer, 1913). The oolitic ironstone horizon stratigraphicaly forms the top of the Emsian Hierges Formation (formerly called the

'Assise de Bure') but locally it grades into younger strata (Eifelian, Saint-Joseph Formation). It extends from the Wignehies (France) to Couvin areas and reaches a maximum development south of Chimay. A second outcrop area is situated eastward, between Wellin and Champlon-Famenne (Fig. 1).

2.1.2. The Frasnian hematitic oolitic ironstone ('couche d'oligiste oolithique du Frasnien')

A hematitic oolitic ironstone horizon occurs at the extreme base of the Frasnian: it is a 0.2-1 m-

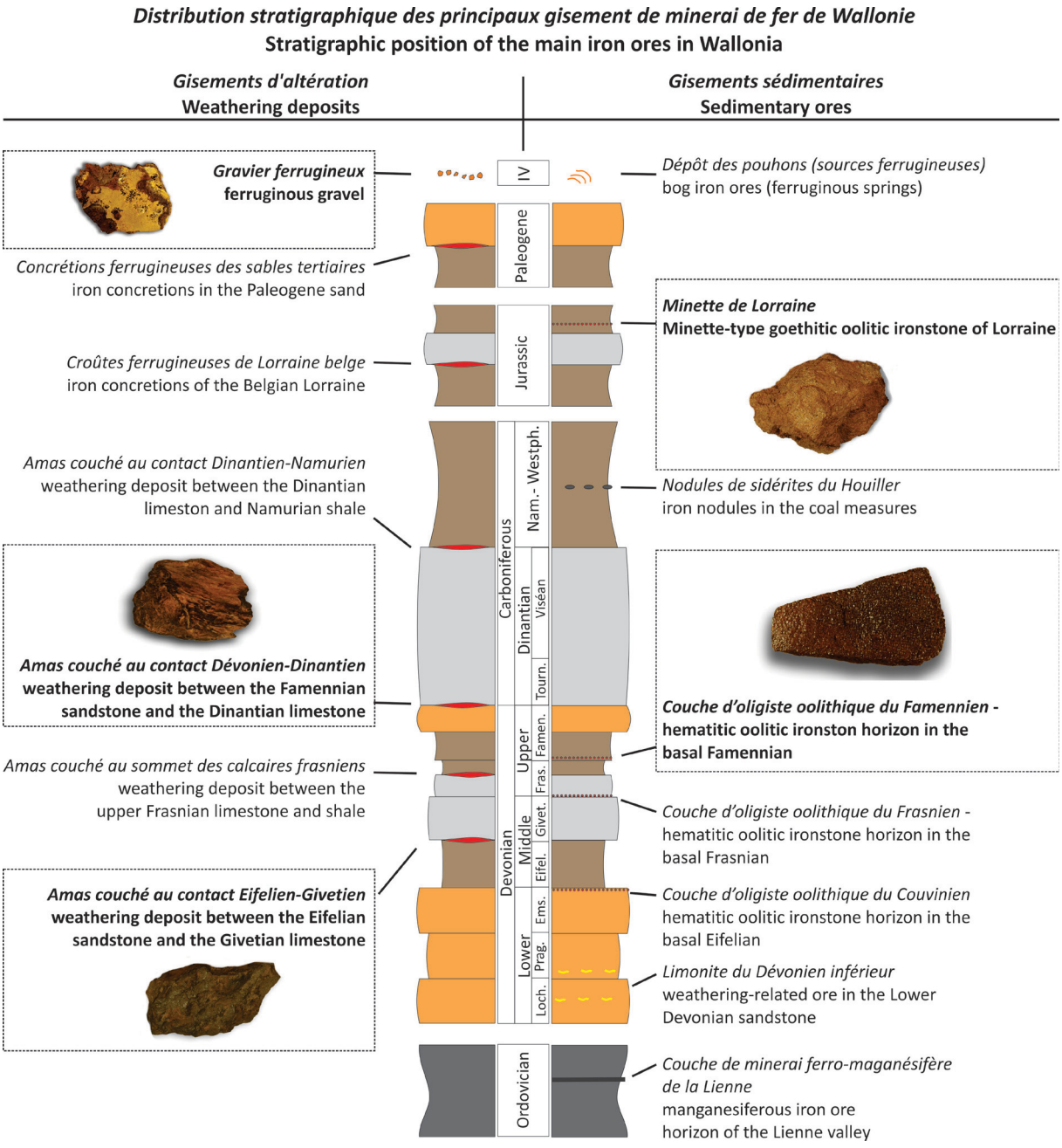


Fig. 2 – Stratigraphic position of the main sedimentary rocks-related iron ores of Wallonia. Illustrated ores (boxes) were the most important from an industrial and economical point of view. Fragments of ores c. 10 cm. Abbreviations: Loch. Lochkovian, Prag.: Pragian, Ems.: Emsian, Eifel.: Eifelian, Givet.: Givetian, Fras.: Frasnian, Famen.: Famennian, Tourn.: Tournaisian, IV: Quaternary.

thick level of hematitic oids and hematitized bioclasts ('fossil ore') incorporated in the so-called Presles Formation (Delmer, 1913). It crops out in the Meuse valley (Tailfer) and occurs in the Samson valley eastward (Fig. 1). Several punctual outcrops are also known in the Ourthe valley (near Esneux and Hotton, Fourmarier, 1908). Southward, the horizon displays a green facies (black squares on Fig. 1), due to the reduced state of the iron in the minerals composing the ferruginous ooids. The hematite (red ore) is replaced by berthierine and chamosite (green ore, complex iron silicates) in the Marche-en-Famenne and Rochefort area (de Magnée, 1933). The latter Fe- chlorite-rich oolitic facies corresponds to a more distal setting of the oolitic level, according to Dreesen (1982b). In Tailfer the ironstone has an iron content of about 25 % (Delmer, 1913).

2.1.3. Hematitic oolitic ironstones from the basal Famennian ('couche d'oligiste oolithique du Famennien')

The Clinton-type hematitic oolitic ironstone horizon in the basal Famennian is the most important of all Walloon oolitic ironstones (Fig. 2). It is composed of true ooids and pisoids (microoncoids), enclosed in a hematitic, sideritic or carbonated cement. The ooids are usually ellipsoidal and flattened (forming the so-called 'flaxseed ore', Dreesen *et al.*, 2016: volume 1). This points to the fact that the original material was not entirely hardened when deposited (Dreesen, 1982a-b). The iron content varies from locality to locality and from layer to layer, but a mean value of 35 % is acceptable, the richest layer reaching up to 55 % of iron (Delmer, 1912). The horizon crops out along two inliers parallel to the Sambre and Meuse valleys (Fig. 1). The southern limb ranges from Aisemont to Haltinne and eastward from Ben-Ahin to Engis. The ore is here composed of one to four layers, the thickest reaching 45 cm and the beds are almost vertically disposed in all these localities. The northern limb forms three segments separated by faults, the westernmost ranging from Les Isnes to Marche-les-Dames, the middle one occurring between Houssoy and Vezin and the easternmost occurrence located near Couthuin (Fig. 1). The ore is also present in the Theux area ('*la Heid de Fer*' outcrop, Marion *et al.*, 2013) and in the Vesdre valley (Vaux-sous-Chevremont, Chaudfontaine, Fraipont) but it rapidly thins eastwards, showing ferruginous ooids scattered in shales only, in the Verviers area (Macar & Calembert, 1938). The ore is composed of two to ten individual layers of oolitic ironstones, the thickness of each layer varying from several centimetres to 125 cm (in the Couthuin mine, Delmer, 1912). More to the South, in the Hamoir, Durbuy and Somme-Leuze areas (yellow stars on Fig. 1), the horizon crops out discontinuously and presents a green facies (distal facies), with scarce ooids composed of berthierine, chamosite and chlorites (Anthoine, 1912).

2.1.4. Other hematitic oolitic ironstone horizons within the Famennian succession

Dreesen (1982) recognized five stratigraphically distinct layers of hematitic oolitic ironstones in the Famennian strata. The lower one, identified as level I, is the main ore deposit as described above. The other stratigraphical levels, labeled II, IIIa, IIIb and IV are rather lenticular and scattered within the lower and middle Famennian rocks. They crop out punctually, e.g. in the Hoyoux, Lesse and Hermeton valleys (orange stars on Fig. 1). These ironstones are very thin (a few centimetres at the most). The composition of these horizons is highly variable, mostly composed of hematitized bioclasts ('fossil ore facies'; mainly crinoids). These horizons were rarely mined because of their lesser geographical extent, thickness and quality.

2.1.6. Other sedimentary iron ores within the Palaeozoic rocks

The '*couche d'oligiste oolithique du Gedinnien*' - a hematitic oolitic ironstone horizon in the Lochkhovien and the '*couche d'oligiste oolithique du Givetien*' – a hematitic oolitic ironstone horizon in the Givetien - are cited in the literature but only poorly described (Ancion & van Leckwijck, 1947; Fourmarier, 1954). Both probably represent rocks that are locally enriched in hematite but they do not represent true sedimentary ores (Dimanche & Toussaints, 1977). The manganesiferous iron ore of the Lienne valley is a sedimentary deposit transformed and enriched by low-grade metamorphism, but does not display any oolitic facies. It comprises two to six layers of dark or reddish iron and manganese oxides, often laminated (Libert, 1906). The ores have a mean iron content of 20 % and about 5-25 % of manganese (Firket, 1884) and were mined to produce a high-

manganese cast iron in the first half of the last century (Dusart & Dusart, 1991). Several sideritic horizons (nodular iron carbonates) are known throughout the thick sequence of coal measures in the Mons and Liège areas (Kaisin, 1943) and in the Lower Devonian of the eastern Ardenne (Legrand, 1965). Once weathered, these rocks yielded an ore of bad quality, siliceous and argillaceous, that was locally extracted only.

2.1.5. The Minette ore of Lorraine ('Minette de Lorraine')

The goethitic oolitic ironstone horizon of Lorraine, in the southernmost part of Wallonia, corresponds to the northern edge of the large iron ore basin of the Grand Duchy of Luxemburg and Eastern France. In our region, the ore is composed of two thick individual layers (50 cm and 110 cm respectively) interstratified with shales and marls, forming the Toarcian-Aalenian boundary succession (Cayeux, 1922). The ferruginous are composed of goethite – not of hematite – and are enclosed within a carbonate matrix or cement ('Minette-type' oolitic ironstone). Its phosphorous content long restricted its use in blast furnaces. The so-called Thomas-Gilchrist de-phosphorization process that allowed the use of minette in furnaces was finalized only in 1878, but mining activities are recorded at least from the beginning of the 17th century (Delhez, 2004). In Southern Belgium, the Musson-Halanzy mine was the last active iron mine in Belgium that finally closed down in 1978.

2.2. Weathering deposits

The weathering-related ores – secondary ores, replacement ores or impregnation ores after Routhier's classification (1963) – are the dominant ones, both in term of quantity and variety in Southern Belgium. All these weathering ores originated through the same three-step process:

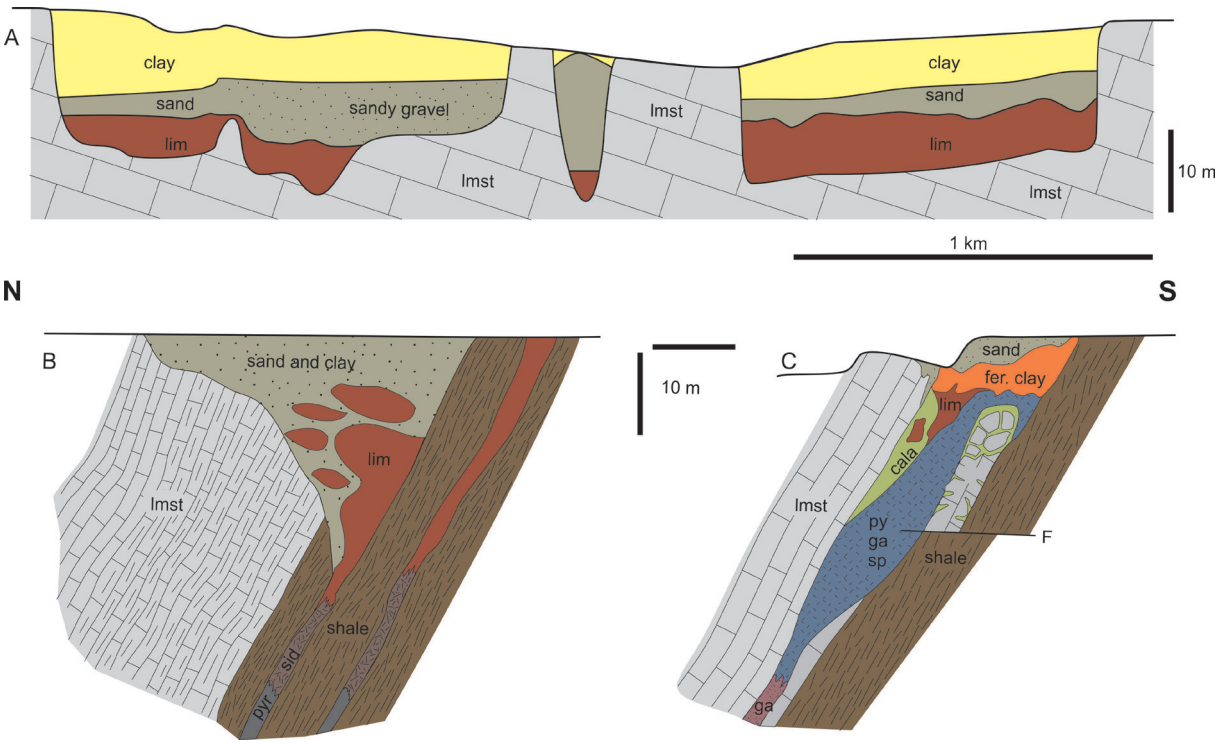


Fig. 3 – Geological section through different ores and deposits. A: Cryptokarstic deposits (exemplified by the Saint-Aubin mine, redrawn after 1/20000 mining plans – 1848 – stored in the Walloon Administration mine service, Namur). B: Weathered deposit between Givetian limestone and Eifelian shale (exemplified by the Berzée mine, redrawn after Bouhy, 1856). C: Iron cap in a sulfide vein (exemplified by the Dos mine in Engis, redrawn after 1/1000 mining section – 1875 – stored in the Walloon Administration mine service, Namur). Abbreviations: lmst: limestone; lim: limonite; py: pyrite (iron sulfide), sid: siderite (iron carbonate); ga: galena (lead sulfide); sp: sphalerite (zinc sulfide), cala: calamine (zinc hydroxide and carbonate). Fer. clay: ferruginous clay; F: fault.

1 Infiltration of meteoric waters through siliciclastic sedimentary rocks (sand, sandstones, siltstones);
2 Leaching of the iron ions (Fe^{2+}) released by the weathering of iron-rich minerals (glauconite, chlorite, pyrite, etc.);
3 Deposition of the iron ions by modification of the pH-Eh values of the water where it touches carbonate rocks (limestones), as iron oxides and hydroxides.

This category of ores is rather restricted to the geological contact between carbonate and siliciclastic sedimentary rocks. In Southern Belgium, such contacts are frequent throughout the lithostratigraphic column (see below and Fig. 2), and iron ores are also well developed. The subsequent subcategories are detailed below in ascending stratigraphic order.

2.2.1. Replacement ores along geological contact ('amas couchés')

This old denomination designates stratiform ore bodies chiefly composed of goethite and limonite, occurring along the contact of two different lithologies of sedimentary rocks (e.g. between limestones and shales or between limestones and shales; Fig. 3A). The contact between Eifelian shale and Givetian limestone bears iron mineralization in the Entre-Sambre-et-Meuse area (e.g. Erquelinnes, Merbes-le-Chateau, Berzée, Gourdinne, Gerpinne and near Fosse-la-Ville; Fig. 1) and in the Condroz area (around Esneux, Plainevaux, Dolembreux, Trooz, Sougné, Aywaille, Harzé, Ferrière and Weris). The ores form long (up to several hundreds of meters) and narrow (no more than 40 m) bodies stretched parallel to the strata, funnel-like in section and up to 80 m thick (Fig. 3B). This type of ore yields limonite and goethite concretions often carbonated or siliceous, that reach a content of 25-50 % of iron. The deepest parts of the ores are usually made of siderite and/or pyrite. In the Entre-Sambre-et-Meuse area, the contact between the middle Frasnian limestone and upper Frasnian shale occasionally contains such ores (e.g. Gerpinnes and Saint-Gérard areas). They form ore bodies similar to the previous ones but smaller in dimension. The most important *'amas couché'* in Southern Belgium occurs along the contact between the Famennian sandstone and the Tournaisian limestone (Fig. 1, Fig. 2). These ore bodies reach several hundred metres in length and reach up to 100 m in width and thickness. The mineralization is dominated by limonite and goethite, siderite and rare hematite and pyrite (Delmer, 1913). The Famennian-Tournaisian ore is omnipresent in the central part of the Entre-Sambre-et-Meuse area: Saint-Gérard, Biesmes, Scry, Mettet, Furnaux, Oret, Denée, Graux, Ermeton-sur-Biert, Sosoye, Biesmerée, Stave, Hanzinelle, Yves-Gomezée, Jamiolle, Falaën, Serville, Onhaye, etc. The ores were mined discontinuously between the Antiquity and the 19th or 20th century in all these localities (Gillard, 1971) sometimes at a true industrial scale. In the Condroz area, the same geological contact is less mineralized and this for unclear reasons (hydrological context? enhanced erosion?). Some mines also operated in the Dinant, Hamois, Gesves, Anthisnes and Comblain-au-Pont vicinities and in the Vesdre area. Several ores, mainly those of the Vesdre valley, are developed along the contact between Viséan limestone and overlying Namurian shale. Some rare ores are known to occur between the Jurassic marl and sandstone in the Belgian Lorraine (Souchez-Lemmens, 1968) but they were not mined *in situ*. The same phenomenon is observed if the two lithologies are in tectonic contact (e.g. along the Theux Fault in eastern Belgium). This first subcategory of ores was abundantly mined in Southern Belgium and is at the origin of the Gallic, Roman and medieval industries and lately of Walloon cast iron and steel industry (Denayer *et al.*, 2011).

2.2.2. Cryptokarstic ores

The *abannets*-type or cryptokarstic ores formed in open karsts (developed in Devonian and Carboniferous limestone, Quinif, 1993) filled with Paleogene glauconitic sand. The glauconite being unstable under atmospheric conditions, it released its iron, subsequently leached through the sand by infiltrated meteoric waters and precipitated along the contact with the basement limestone. This category forms irregular bulks of limonite that are usually sandy (Van den Broeck *et al.*, 1910) and contain up to 45 % of iron (Delmer, 1913). The renowned 'Abannets' and 'Fondry des Chiens' sites in the Calestienne area, are the most emblematic of this category of ores. They were mined since the late Antiquity and the sand initially filling the pockets was excavated. The large ore deposits of Fraire, Saint-Aubain and Morialmé in the Entre-Sambre-et-Meuse area, also belong to this cryptokarstic category (Fig. 3A), together

with the smaller ore deposits of the Fleurus and Oret vicinities (Rucloux, 1849; Dejaer, 1970).

2.2.3. Ferruginous gravels

Ferruginous gravels in the Belgian Lorraine area, consist of reworked fragments of goethitic and limonitic crusts. These crusts occur along lithological contacts within Jurassic rocks (see paragraph 2.2.1). The dismantling of the ferruginous crusts by superficial erosion and the sedimentation of the fragments in the valley, produced superficial deposits (so-called *'fer d'alluvion'*, alluvial iron ore) mined in the Tintigny and Châtillon areas (Delhez, 2004). This ore is mainly composed of dark goethite, reaching up to 25-50 % of iron (Delmer, 1913). Similar ores are observed in the Hainaut Province, where the Paleogene sands contain iron concretions reworked as gravel in some valleys (e.g. in the Quevy area, Delmer, 1913).

2.3. Lead-zinc sulfides-related iron ores

The lead-zinc ores are usually developed as sulfide veins composed of galena (lead sulfide) and sphalerite (zinc sulfide) associated with pyrite/marcasite (iron sulfide). The latter being unstable, it often degrades into iron oxides and hydroxides. The uppermost part of the vein, the so-called *'chapeau de fer'* (iron cap or *'gossan'*) corresponds to the weathered, iron-enriched ore, capping the underlying lead-zinc ore (Fig. 3C). The lead-zinc veins are developed inside the Lower Carboniferous limestone and dolostone in the eastern part of Wallonia (Moresnet, Plombière, Kelmis), the Verviers and Theux areas (Dejonghe *et al.*, 1993). In the Sambre and Meuse valleys, from Rhisnes (west of Namur) to Liège, several iron cap ores were mined for iron long before the discovery of zinc and lead in the deeper parts of the veins. The best example is the Vedrin mine, where the iron cap was mined at least since the 14th century, while the galena was discovered only in 1612 (Évrard, 1943). In other deposits (e.g. Haies Monets, Héron, Engis, etc.) the iron cap is less developed and the limonite was less exploited (Balcon, 1981; Dargent, 1949). The same veins are observed throughout the Devonian limestone and dolostone along the Calestienne area (from Chimay to Hotton) and in the Philippeville and Durbuy areas. Occasionally, barite, fluorite and copper minerals are associated with the lead-zinc veins (Dejonghe, 1985).

Remarkable hematite-rich veins occur near Porcheresse (Bièvre) in the Ardenne (Denayer *et al.*, 2011). It is poorly known, but consists obviously of quartz-hematite veins set in Lower Devonian sandstone.

3. CONCLUSIONS

The hematitic oolitic ironstones (*'oligiste oolithique'*) is probably the most renowned iron ore of Southern Belgium and it is the most studied both from an archaeological and historical point of view (see Dreesen *et al.*, 2016: volume 1; Goemaere *et al.*, 2016: volume 1). Nevertheless, it represents only a small part of the total volume of Southern Belgium iron ores, the first place being occupied by iron hydroxides (limonite and goethite) extracted from weathering deposits. Contrary to the hematitic oolitic ironstones, the weathering ores are very poorly documented, both from a geological point of view (except Delmer, 1913a) or from a historical and archeological point of view (e.g. Bonenfant *et al.*, 1986). Iron hydroxides initially produced the source materials for prehistoric ochre industries. Occurrence of iron ochre associated with burial has been documented in Mesolithic and Neolithic sites throughout Belgium (e.g. Van den Broeck *et al.*, 1910; Cauwe, 2001; Polet & Cauwe, 2002; Steevens *et al.*, 2009; Miller *et al.*, 2011 and references within). Nevertheless, the origin of the material (geographical and geological) has not been answered. The source of iron hydroxide ochre may be local considering the wide distribution of ore bodies in Southern Belgium, but long-distance dispersion cannot be excluded since such dispersal patterns are documented for hematitic oolitic pigment (Roebroeks *et al.*, 2012). Analytic methods – such as Raman spectroscopy, Froment *et al.* (2008) – are interesting for the characterization of pigments but a database of natural ores is yet to be established for comparison purpose.

The iron hydroxides were the source of an important steel industry in Belgium reaching acmes during the Middle Ages and in the 19th century. The palaeometallurgy is an important human activity of our history but the source and process of ores are still poorly understood in Belgium. Again, analytic methods (e.g. Blakelock *et al.,* 2009; Fluzin *et al.*, 2000) applied to iron artifact or slags are promising but require a prerequisite knowledge of the iron ores.

Bibliographie

ANCION C. & VAN LECKWIJCK W., 1947. Les minerais de fer du sol belge. *In*: P. FOURMARIER, *Introduction à la Géologie de la Belgique*. Congrès 1947, section géologie. Centenaire de l'Assemblée des Ingénieurs sortis de l'École de Liège: 96-104.

ANTHOINE R., 1912. Observations sur le niveau à oligiste oolithique du Famennien inférieur. *Annales de la Société Géologique de Belgique*, **40**: 29-40.

BALCON J., 1981. Quelques idées sur les minéralisations plombo-zincifères dans les formations carbonatées en Belgique. *Bulletin de la Société belge de Géologie*, **90** (1): 9-61.

BLAKELOCK E., MARTINÓN-TORRES M., VELDHUIJZEN H. A. & YOUNG T., 2009. Slag inclusions in iron objects and the quest of provenance: an experiment and case study. *Journal of Archaeological Science*, **36**: 1745-1757.

BONENFANT P., DEFOSSE P. & FONTANA A., 1986. La Paléosidérurgie dans l'Entre-Sambre-et-Meuse. *In*: *La Région du Viroin au temps des cavernes au temps des châteaux, vol. 2 : La protohistoire et l'histoire*. Éditions du Centre d'études et de documentation archéologiques, Viroinval: 13-27.

BOSQUET D., ADIN I., HAMON C. & GOEMAERE E., 2013. Haematite exploitation during the Neolithic in Belgium: archaeological contexts and questions. *In*: C. BILLARD, B. BOSQUET, R. DREESEN, É. GOEMAERE, C HAMON, I. JADIN, H. SALOMON & X. SAVARY (ed.), *Autour de l'hématite, Table Ronde international – About haematite, International Workshop, 7-8.02.2013, Jambes (Belgium)*, Abstract book:19-20.

BOUHY V., 1856. Notice sur le gisement et l'exploitation du minerai de fer dans le Hainaut. *Annales des Travaux publics de Belgique*, **14**: 223-277.

CAUWE N., 2001 Skeletons in motion, ancestors in action: Early Mesolithic collective tombs in Southern Belgium. *Cambridge Archaeological Journal*, **1**: 147-163.

CAYEUX L., 1911. *Les minerais de fer oolithiques de France. Minerais de fer primaires*. Ministère des Travaux publics, Paris: 344 p.

CAYEUX L., 1922. *Les minerais de fer oolithiques de France. Minerais de fer secondaires*. Ministère des Travaux publics, Paris: 1051 p.

DARGENT J.-L., 1949. Les mines métalliques et la métallurgie du pays de Liège. *Bulletin illustré de la Société royale belge d'Études géologiques et archéologiques les « Chercheurs de Wallonie », Spéléologie, Préhistoire, Vulgarisation*, **14**: 152-339.

DEJAER J., 1870. Notice sur quelques gîtes de minerai de fer de la Province de Namur. *Annales des Travaux Publics de Belgique*, **28**: 89-314.

DEJONGHE L., 1985. Mineral deposits of Belgium. *Bulletin de la Société belge de Géologie*, **94** (4): 283-297.

DEJONGHE L., LADEUZE F. & JANS D., 1993. Atlas des gisements plombo-zincifères du Synclinorium de Verviers (Est de la Belgique). *Mémoires pour servir à l'explication des cartes géologiques et minières de la Belgique*, **33**: 483p.

DELHEZ J.-C., 2004. *Les mines de fer du pays gaumais* : 223 p.

DELMER A., 1912. La question du minerai de fer en Belgique (première partie). *Annales des Mines de Belgique*, **17**: 854-940.

DELMER A., 1913. La question du minerai de fer en Belgique (seconde partie). *Annales des Mines de Belgique*, **17**: 325-448.

DE MAGNEE I., 1933. Observations sur le calcaire à oolithes ferrugineuses de la base du Frasnien. *Annales de la Société géologique de Belgique*, **56**: 79-87.

DEN OUDEN A., 1985. The introduction and early spread of the blast furnace in Europe. *Wealden Iron Research Group Bulletin*, **5**: 21-35.

DENAYER J., PACYNA D. & BOULVAIN F., 2011. *Le minerai de fer en Wallonie: cartographie, histoire et géologie*. Édition de la Région wallonne, Jambes: 250 p.

DIMANCHE F. & TOUSSAINTS G., 1977. Gisement de fer au contact Givetien-Couvinien (Esneux, Province de Liège). *Annales des Mines de Belgique*, **5**: 533-540.

DREESEN R., 1982a. A propos des niveaux d'ooli-

thes ferrugineuses de l'Ardenne et du volcanisme synsédimentaire dans le Massif Ardenno-Rhénan au Dévonien supérieur: essai de corrélation stratigraphique. *Neues Jahrbuch für Geologie und Palaeontologie Abhandlungen*, **1**: 1-11.

DREESEN R., 1982b. Storm-generated oolitic ironstones of the Famennian Fa1b-Fa2a in the Vesdre and Dinant Synclinoria (Upper Devonian, Belgium). *Annales de la Société géologique de Belgique*, **105**: 105-129.

DREESEN R., SAVARY X. & GOEMAERE E., 2016. Definition, classification and microfacies characteristics of oolitic ironstones, used in the manufacturing of red ochre - a comparative petrographical analysis of Palaeozoic samples from France, Belgium and Germany. *In*: C. BILLARD *et al.* (ed.), *Autour de l'hématite / About haemitite. Actes de / Acts of Jambes, 7-8/02/2013, Volume 1*, Liège, ERAUL, **143** – *Anthropologica et Præhistorica*, **125/2014:** 203-223

DUSSART N. & DUSSART J., 1991 *Les mines de Chevron et Rahier. Le manganèse de la Basse Vallée de la Lienne, 1857-1934.* J. Chauveheid Stavelot: 170 p.

ÉVRARD P., 1943. La minéralisation de Vedrin. *Annales de la Société géologique de Belgique*, **6**: 207-211.

FIRKET A., 1884. Notice sur la carte de la production, de la circulation, de la consommation des minerais et de la production des métaux en Belgique, pendant l'année 1878. *Annales des Travaux Publics de Belgique*, **39**: 171-222.

FLUZIN P., PLOQUIN A. & SERNEELS V., 2000. Archéométrie des déchets de production sidérurgique – Moyens et méthodes d'identification des différents éléments de la chaîne opératoire directe. *Gallia*, **57**: 101-121.

FOURMARIER P., 1908. Le Famennien dans la vallée de la Mehaigne. *Annales de la Société géologique de Belgique*, **35**: 288-293.

FOURMARIER P., 1954. Le Mésodévonien. *In* : *Prodrome d'une description géologique de la Belgique*. Volume hors-série de la Société géologique de Belgique: 119-141.

FROMENT F., TOURNIÉ A. & COLOMBAN P., 2008. Raman identification of natural red to yellow pigments: ochre and iron-containing ores. *Journal of Raman spectroscopy*, **39**: 560-568.

GILLARD A., 1971. L'industrie du fer dans les localités du du Comté de Namur et de l'Entre-Sambre-et-Meuse de 1345 à 1600. *Pro Civitate Collection Histoire*, série in-8°, **29**: 1-273.

GOEMAERE E., KATSCH A., ESCHGHI I. & DREESEN R., 2016. Geological record and depositional setting of Palaeozoic oolitic ironstones in Western Europa. *In*: C. BILLARD *et al.* (ed.), *Autour de l'hématite / About haemitite. Actes de / Acts of Jambes, 7-8/02/2013, Volume 1*, Liège, ERAUL, **143** – *Anthropologica et Præhistorica*, **125/2014**: 23-43.

ISAKSSON O., BRADBURY R., & HANSSON G., 1995. *Vallonbruk i Uppland: människor och miljöer*. Bonnier i samarbete med Upplandsmuseet : 109 p.

KAISIN F., Jr., 1943. Concrétion de sidérose à texture granuleuse des couches de houille. *Bulletin de la Société belge de Géologie, Paléontologie et Hydrologie*, **51**: 32-48.

LEGRAND R., 1965. *Carte géologique de Belgique au 1/25000e, feuille 233 – Saint-Vith Schönberg*. Bruxelles.

LIBERT J., 1906. Les gisements ferro-manganifères de la Lienne. *Annales de la Société géologique de Belgique*, **32**: 144-154.

MACAR P. & CALEMBERT L., 1938. Observations sur les couches d'oligiste oolithique du Famennien de la Vesdre. *Annales de la Société géologique de Belgique*, **62**: 35-52.

MARION J.-M., SIMONS J. & MOTTEQUIN B., 2013. Contexte géologique des sites mésolithioques de la Heid de Fer et de l'Oulaine à Becco (Theux, Belgique). *In*: C. BILLARD, D. BOSQUET, R. DREESEN, É. GOEMAERE, C. HAMON, I. JADIN, H. SALOMON & X. SAVARY (ed.), *Autour de l'hématite, Table Ronde international – About haematite, International Workshop, 7-8.02.2013, Jambes (Belgium)*, Abstract book, **51**.

MILLER R., STEWART J., ZWYNS N. & NOIRET P., 2011. The Mesolithic of Trou al'Wesse Cave (Belgium) in regional context. *Miscellania, Proceedings of the 15th UISPP Congress. British Ar-*

chaeological Reports International: 214-225.

PASQUASY F., 2005. Le haut-fourneau au Pays de Liège. *Bulletin de la Société des Bibliophiles liégeois*, **25**: 1-236.

PLEINER, 1964. Die eisenverhüttung in der « Germania Magna » zur römischen kaiserzeit. *Bericht der Römisch-Germanischen Kommission*, **45**: 11-86.

POLET C. & CAUWE N., 2002. Les squelettes mésolithiques et néolithiques de l'abri des Autours (province de Namur, Belgique). *Comptes rendus Paléovol*, **1**: 43-50.

QUINIF Y., 1993. Les phénomènes karstiques en Calestienne. *De la Meuse à l'Ardenne*, **16**: 55-75.

ROEBROEKS W., SIER M. J., NIELSEN T. K., DE LOECKER D., PARÉS J. M., ARPS C. E. S. & MÜCHER J., 2012. Use of red ochre by early Neandertals. *Proceedings of the National Academy of Science*, **109**: 1889-1894.

ROUTHIER P., 1963. *Les gisements métallifères*. Ed. Masson, Paris: 1282 p.

RUCLOUX M., 1849. Notice sur les dépôts métallifères du nord de la province de Namur. *Annales des Travaux publics de Belgique*, **8**: 157-179.

SOUCHEZ-LEMMENS M., 1968. Accumulations ferrugineuses absolues en Lorraine belge septentrionale. *Annales de la Société géologique de Belgique*, **91**: 145-158.

STEEVENS R. H., GERMONPRÉ M., PETRIE C. A. & O'CONNELL T. C., 2009. Palaeoenvironmental and chronological investigations of the Magdalenian sites of Goyet and Trou de Chaleux (Belgium), via stable isotopes and radiocarbon analyses of horse skeletal remains. *Journal of Archaeological Science*, **36**: 653-662.

VAN DEN BROECK E., MARTEL E. & RAHIR E., 1910. *Les cavernes et rivières souterraines de la Belgique*. Ed. Lamertin, Bruxelles, **1**: 1826 p.

Author's address:

Julien DENAYER
Service de Paléontologie animale et humaine
Département de Géologie
Université de Liège
Allée du Six-Août, B.18, Sart Tilman
4000 Liège (Belgique)
julien.denayer@ulg.ac.be

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 51-56

Geological context of the Mesolithic Heid de Fer and Ourlaine sites at Becco (Liège province, Belgium)

Bernard MOTTEQUIN & Jean-Marc MARION

Résumé

À proximité du hameau de Becco (province de Liège, Belgique), les sites de la Heid de Fer et de l'Ourlaine sont connus pour avoir livré de l'outillage et des déchets de taille attribués au Mésolithique ancien (pré-Boréal). Située au sommet d'un petite falaise constituée par des grès et des siltites famenniens appartenant à la Formation d'Esneux, la station de la Heid de Fer domine un versant abrupt développé dans les shales et les siltites des formations de Lambermont et de Hodimont (Dévonien supérieur), au sein desquels se rencontre un niveau d'hématite oolithique atteignant plusieurs décimètres d'épaisseur (0,5 m au maximum). Des fouilles supplémentaires mériteraient d'être conduites dans cette région à la recherche d'autres témoins de l'industrie microlithique comme le suggère la topographie particulière de ces deux sites.

Mots-clés *: Mésolithique, Belgique, Heid de Fer, Ourlaine, Famennien, hématite oolithique, grottes.*

Keywords: Mesolithic, Belgium, Heid de Fer, Ourlaine, Famennian, oolitic ironstone, caves.

The Heid de Fer Mesolithic site, which is located in the province of Liège, east of Becco hamlet, commune of Theux (Fig. 1, Fig. 2, Fig. 3, Fig. 4), was originally reported by Tihon (1900). Further research has been conducted there during the years 1952–1953 and led to the discovery of tools

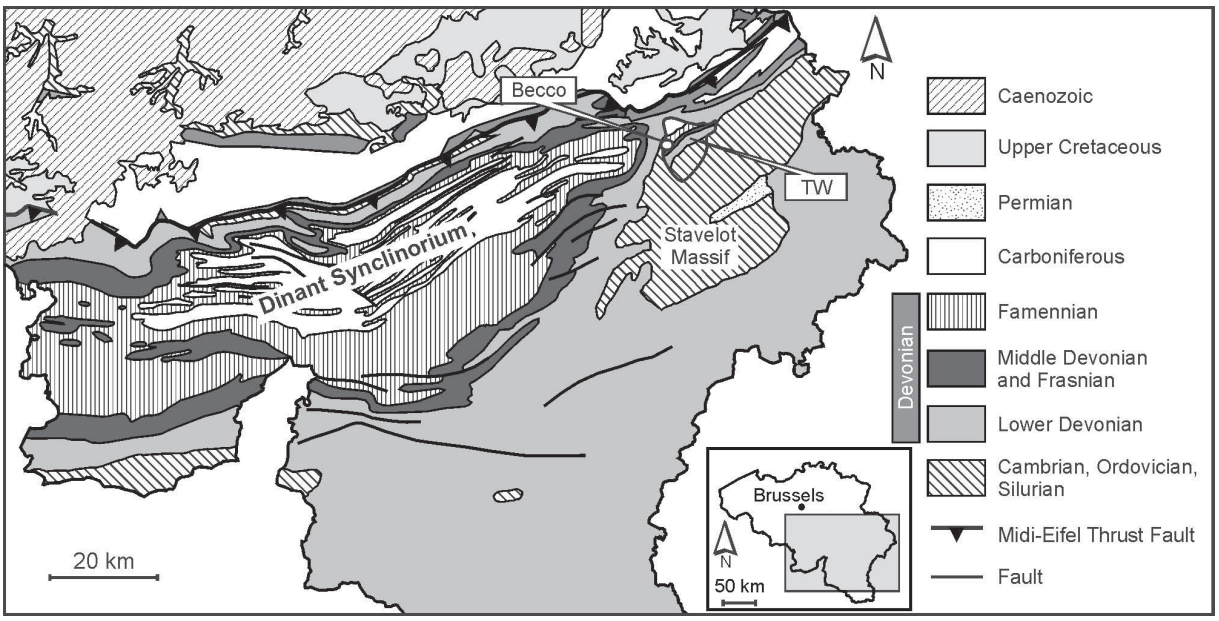


Fig. 1 – Schematic geological map of Belgium with the location of the village of Becco (commune of Theux) (after de Bethune, 1954). Abbreviation: TW: Theux Window.
Fig. 1 *– Carte géologique schématique de la Belgique avec la localisation du village de Becco (commune de Theux) (d'après de Béthune, 1954). Abréviation : TW : Fenêtre de Theux.*

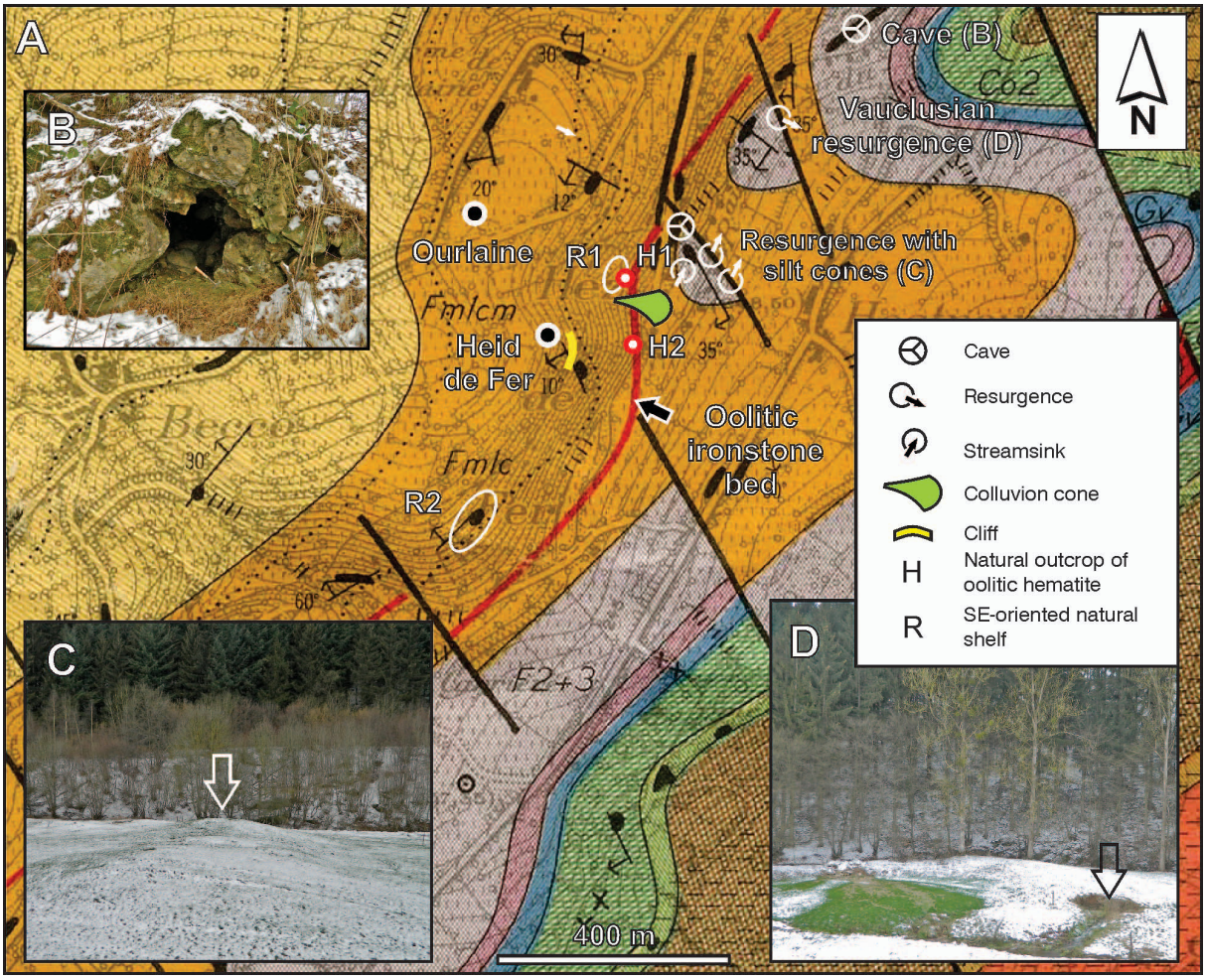


Fig 2 – A: excerpt of the Louveigné-Spa geological map (Fourmarier, 1958) focused on the Heid de Fer and Ourlaine sites (Thûron valley). The shoulders R1 and R2 are located halfway up the steep shaly slope of the Heid de Fer. R1 is developed in contact with the horizon of oolitic ironstone H1 (base of Hodimont Formation). B: collapsed SE-oriented cave (limestone of the Lustin Formation), Thûron valley (hammer size: 0.5 m); C: cone of soft sediments (silts); D: Vauclusian resurgence. Abbreviations : Fm2a: Montfort Formation (sandstones); Fm1cm: Souverain-Pré Formation (nodular limestones); Fm1c: Esneux Formation (sandstones and siltstones); Fm1ba: Lambermont and Hodimont formations (shales, siltstones); F3: Aisemont Formation (shales and limestones); F2: Lustin Formation (limestones); F1: Le Roux Formation (limestones, dolostones); Gv: Névremont Formation (limestones); Co1 & Co2: Pepinster Formation (shales, sandstones and conglomerates); E3 + E2: Wépion and Acoz formations (sandstones and quartzites).

Fig 2 – *A: extrait de la carte géologique Louveigné-Spa (Fourmarier, 1958) centré sur les sites de la Heid de Fer et de l'Ourlaine (vallée du Thûron). Les replats R1 et R2 sont situés à mi-pente dans le versant schisteux abrupt de la Heid de Fer. R1 est développé au contact de l'horizon d'hématite oolithique H1 (base de la Formation de Hodimont). B : grotte effondrée (calcaire de la Formation de Lustin) orientée au SE, vallée du Thûron (taille du marteau : 0,5 m) ; C : cône de sédiments fins (limons) ; D : résurgence vauclusienne. Abréviations : Fm2a : formation de Montfort (grès) ; Fm1cm : formation de Souverain-Pré (calcaires noduleux) ; Fm1c : formation d'Esneux (grès et siltites) ; Fm1ba : formations de Lambermont et de Hodimont (schistes, siltites); F3 : formation d'Aisemont (schistes et calcaires) ; F2 : formation de Lustin (calcaires) ; F1 : formation du Roux (calcaires, dolomies) ; Gv : formation de Névremont (calcaires) ; Co1 & Co2 : formation de Pepinster (schistes, grès et conglomérats) ; E3+E2 : formations de Wépion et d'Acoz (grès et quartzites).*

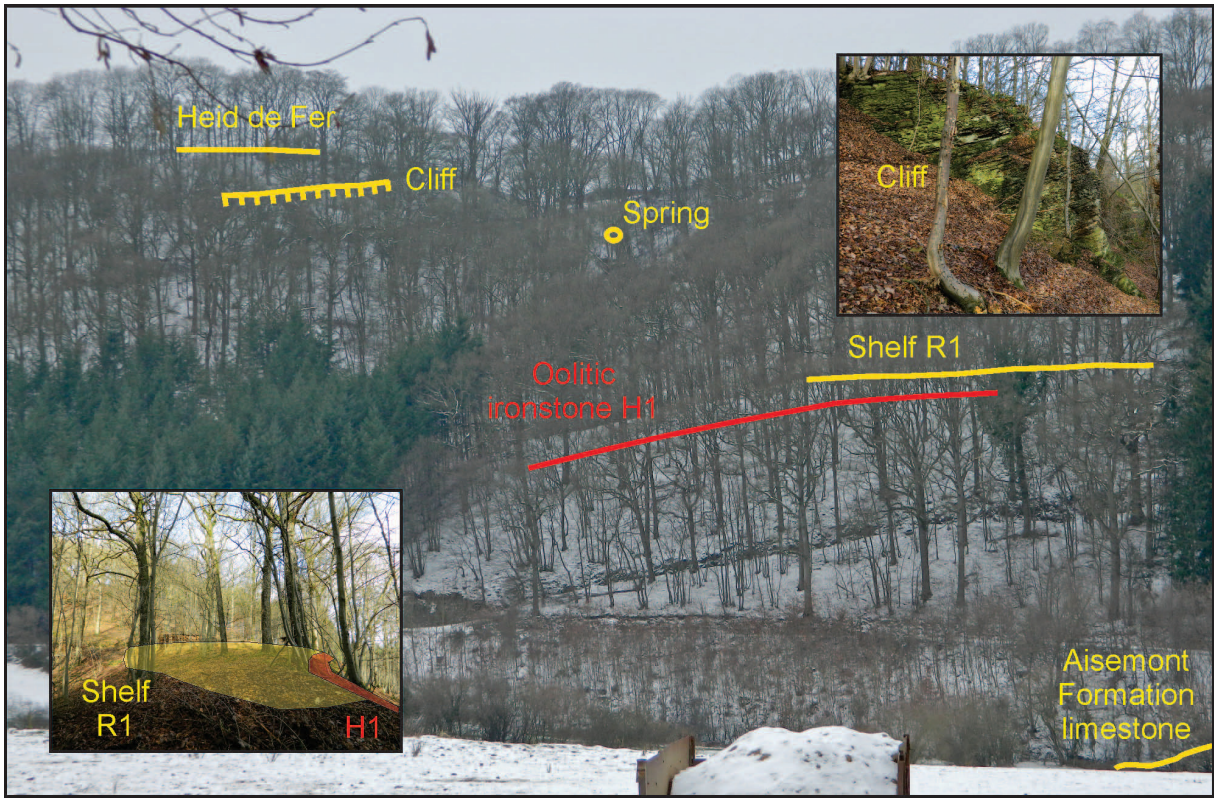


Fig. 3 – General view of the Heid de Fer site.
***Fig. 3** – Vue générale du site de la Heid de Fer.*

and trimmings, mainly in flint (Cornet, 1954). The Heid de Fer site is located at the top of a series of small cliffs formed by sandstones and siltstones belonging to the Esneux Formation (Famennian; Fig. 2, Fig. 3, Fig. 4). It overlooks a steep slope developed to the south-east in the thick shaly Lambermont and Hodimont formations of Famennian age (Upper Devonian; Fig. 4), north of the Thûron stream, between the hamlets of Becco and Hestroumont (Fig. 2A).

Known as a Mesolithic occurrence for a long time (Rahir, 1928; Pirnay, 1982; Perdaen *et al.*, 2004; Miller *et al.*, 2012), the Ourlaine site (Fig. 2A) is located on a topographic shelf, 200 m northwest of the previous one. It has been excavated since the 1970s (Lausberg-Miny *et al.*, 1982) and permitted the discovery of a few hundreds microlithic tools, mainly in flint, but also in fine sandstone and in shale as well as some ceramic shards. Sandstones and shales correspond to the major autochthonous lithologies: siltstones and thinly bedded sandstones of the Esneux Formation (Famennian) form the small cliffs located at the top of the steep slopes of the Heid de Fer and overlay the mainly shaly Lambermont and Hodimont formations (Fig. 2A, Fig. 4). The archaeological material from this station is identified as the Ourlaine Group (e.g. Perdaen *et al.*, 2004) and is Preboreal in age.

From the geological viewpoint, both stations are located in the western part of the tectonic Theux Window (Fig. 1) that exposes rocks situated below the Ardenne Anticlinorium (e.g. Dinant Synclinorium and Stavelot Massif) and separated from the latter by the major Theux–Tunnel thrust Fault (for more details, see e.g. Fourmarier, 1958; Hance *et al.*, 1999). This abnormal contact between rocks of different age and type has led to the occurrence of a varied landscape surrounded by Ardenne-type landscapes and soils (e.g. Poty, 1976).

The Middle Devonian–Carboniferous succession of the Theux Window includes karstified carbonate rocks such as the limestones of the

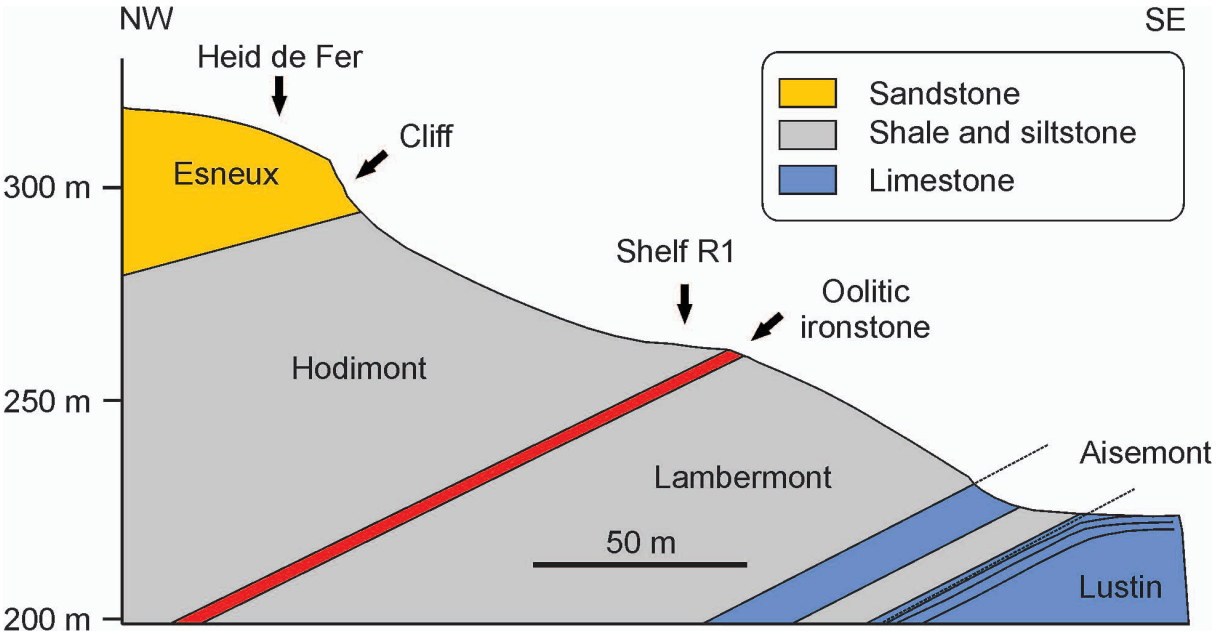


Fig. 4 – Schematic cross section of the Heid de Fer site.
***Fig. 4** – Coupe schématique à travers du site de la Heid de Fer.*

Frasnian (Upper Devonian) Lustin Formation (Liégeois, 1928; Fourmarier, 1950, 1958; Roland & Marion, 1987) in which caves are developed in the Heid de Fer area (Fig. 2B). Furthermore, other karstic phenomena are developed in the Thûron valley, notably a vauclusian spring, other resurgences and sinkholes, and the deposition of cones of soft sediments (silts) around resurgences (for more details, see Roland & Marion, 1987; Fig. 2C–D).

The Heid de Fer gets its name from the presence of several beds of oolitic ironstone (e.g. Franquoy, 1869; Delmer, 1912) within the Hodimont Formation, notably in its lowermost part (Dusar & Dreesen, 1977; Dreesen, 1982). Their first occurrence is considered as the base of the Hodimont Formation (Laloux *et al.*, 1996). The Heid de Fer station is situated 200 m west of a large natural outcrop of oolitic ironstone (Fourmarier, 1958; Fig. 2A, Fig. 4) that may have been used as potential raw material during the Mesolithic. This poorly altered particular level, which reaches a maximum thickness of 0.5 m, is visible in the lower third of the slope, east of a ravine, and has slowed the mechanical evolution of the the shaly slope. Moreover, it has fostered the development of a SE-oriented ledge (terrace) extending on a few tens of square meters. The downstream end of the ravine is characterized by the presence of colluvial cone that opens into the Thûron valley (Fig. 2A).

The physical setting and the availability of mineral resources (hematite), combined with the presence of a river and natural shelters (caves; Fig. 2B) developed within the limestones of the Frasnian Lustin Formation, suggest that this area may be suitable for future archaeological surveys. Furthermore, the colluvial cone mentioned above deserves to be searched, looking for signs of the microlithic industry. So, the Heid de Fer area has more archaeological potential than previously expected because of the presence of several significant resources (oolitic ironstone beds, caves, water) and their particular location may also be a focal point for human activity. Moreover, the site is propitious for further archeological investigation as the ledge above the oolitic ironstone beds remains unexplored and there are accumulations of sediment (two types of cones) that may have covered and preserved signs of human occupation, which is a rare condition in a region dominated by erosion.

Acknowledgements

We express our sincere thanks to Michiel Dusar and Éric Goemaere for their helpful suggestions that significantly improved this paper.

Bibliography

CORNET G. X., 1954. La station mésolithique de la « Hez-de-Fer » (Becco-commune de La Reid, Province de Liège). *Revue verviétoise d'Histoire naturelle*, **11**: 50-54.

DE BÉTHUNE P., 1954. *Géologie de la Belgique, carte à l'échelle 1: 500.000. Atlas de Belgique, planche 8.* Bruxelles, Institut géographique militaire.

DELMER A., 1912. La question du minerai de fer en Belgique (Première partie). *Annales des Mines de Belgique*, **17**: 854-940.

DREESEN R., 1982. Storm-generated oolitic ironstones of the Famennian (Fa1b-Fa2a) in the Vesdre and Dinant synclinoria (Upper Devonian, Belgium). *Annales de la Société géologique de Belgique*, **105**: 105-129.

DUSAR M. & DREESEN R., 1977. Étude biostratigraphique du Famennien inférieur dans les environs de Theux. *Annales de la Société géologique de Belgique*, **99**: 543-564.

FOURMARIER P., 1950. Compte-rendu de la session extraordinaire de la Société Géologique de Belgique et de la Société Belge de Géologie, de Paléontologie et d'Hydrologie tenue à Liège, Theux et Spa, du 15 au 18 septembre 1950. *Annales de la Société Géologique de Belgique*, **73**: 151-218.

FOURMARIER P., 1958. *Carte géologique de la Belgique à l'échelle de 1 : 25.000, Louveigné-Spa n° 148 (+ notice explicative).* Bruxelles, Service Géologique de Belgique.

FRANQUOY M., 1869. Description des gîtes, du caractère minéralogique et de la teneur des minerais de fer de la Province de Liège. *Revue universelle des Mines (1ère série)*, **25-26**: 1-73.

HANCE L., DEJONGHE L., GHYSEL P., LALOUX M. & MANSY J.-L., 1999. Influence of heterogenous lithostructural layering on orogenic reformator in the Variscan front Zone (eastern Belgium). *Tectonophysics*, **309**: 161-177.

LALOUX M., DEJONGHE L., GEUKENS F., GHYSEL P. & HANCE L., 1996. *Carte géologique de Wallonie à 1 : 25000. Fléron–Verviers 42/7-8 (+ notice explicative).* Ministère de la Région Wallonne, Namur.

LAUSBERG-MINY J., LAUSBERG P. & PIRNAY L., 1982. Le gisement mésolithique de l'Ourlaine. *In*: A. GOB & F. SPIER (ed.), *Le Mésolithique entre Rhin et Meuse : actes du Colloque sur le Paléolithique supérieur final et le Mésolithique dans le Grand-Duché de Luxembourg et dans les régions voisines (Ardennes, Eifel, Lorraine) tenu à Luxembourg, le 18 et 19 mai 1981.* Luxembourg: 323-329.

LIÉGEOIS P. G., 1928. Hydrologie des formations calcaires de la région de Theux. *Annales de la Société Géologique de Belgique*, **51**: 333-339.

MILLER R., ZWYNS N., OTTE M., STEVENS C. & STEWART J., 2012. La séquence mésolithique et néolithique du Trou Al'Wesse (Belgique) : résultats pluridisciplinaires. *L'Anthropologie*, **116**: 99-126.

PERDAEN Y., CROMBÉ Ph. & SERGANT J., 2004. Vroeg-mesolitische lithische technologie: Verrebroek-*Dok I* (Beveren, Oost-Vlaanderen) in zijn Belgische context. *Notae Praehistoricae*, **24**: 95-104.

PIRNAY L., 1982. Méthodes de taille utilisées à Ourlaine. *In*: A. GOB & F. SPIER (eds), *Le Mésolithique entre Rhin et Meuse : actes du Colloque sur le Paléolithique supérieur final et le Mésolithique dans le Grand-Duché de Luxembourg et dans les régions voisines (Ardennes, Eifel, Lorraine) tenu à Luxembourg, le 18 et 19 mai 1981.* Luxembourg: 73-75.

POTY E., 1976. L'influence de la structure géologique sur le relief de la Belgique. *In*: A. PISSART (ed.), *Géomorphologie de la Belgique.* Liège : Laboratoire de Géographie physique de l'Université de Liège: 107-113.

RAHIR E., 1928. *Vingt-cinq années de recherches, de restaurations et de reconstitutions.* Bruxelles, Service des fouilles de l'État.

ROLAND C. & MARION J.-M., 1987. Phénomènes karstiques et cônes de limon formés aux résurgences à La Reid. *Bulletin de la Société géographique de Liège*, **22-23**: 149-159.

TIHON F., 19000. Fouilles à La Reid, dans la vallée de l'Aisne et à Goffontaine. *Annales de la Société royale d'Archéologie de Bruxelles*, **14**: 338-351.

Authors address :

Bernard MOTTEQUIN
OD Earth and History of Life
Royal Belgian Institute
of Natural Sciences
29, rue Vautier
1000 Brussels (Belgium)
bmottequin@naturalsciences.be

Jean-Marc MARION
Animal and Human Palaeontology Unit
Geology Department
Liège University
Allée du 6 Août, Bât. B18
4000 Liège 1 (Belgium)
jmmarion@ulg.ac.be

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 57-67

Assessing apatite cathodoluminescence as a tool for sourcing oolitic ironstones

Jean-Marc BAELE, Roland DREESEN & Michiel DUSAR

Résumé

La cathodoluminescence (CL) est un processus au cours duquel de la lumière visible est émise par des minéraux lorsqu'ils sont bombardés par un faisceau d'électrons énergétiques. Des défauts cristallins et des impuretés chimiques peuvent soit activer ou inhiber la CL en fonction de leur nature et de leur concentration. Mn^{2+}, Ti^{4+}, Fe^{3+}, Cr^{3+}, Eu^{2+} and REE^{3+} (terres rares) sont des exemples d'activateurs dans beaucoup de minéraux tandis que Fe^{2+} est un inhibiteur courant. De légères variations dans la composition en éléments en traces ou en défauts cristallins mènent fréquemment à un changement très notable de l'émission CL, qui peut alors être utilisée comme une empreinte génétique dans les problèmes de provenance. Une émission CL intense et colorée est presque omniprésente dans l'apatite, qui est un minéral accessoire très commun dans les oolites ferrugineuses. La raison est que l'apatite est un bon piège pour Mn^{2+} et les terres rares (qui sont activateurs de la CL) mais pas pour Fe^{2+} (qui est inhibiteur).

Nous documentons ici l'étude d'oolites ferrigineuses du Dévonien supérieur de Saint-Ghislain, Vezin-Sclaigneaux, Couthuin, Aisémont et Boosichot (Belgique). Nous avons trouvé des différences significatives en ce qui concerne le cathodofaciès et l'émission spectrale du phosphate de calcium dans ces roches, qui pourraient être utilisées pour retrouver les zones d'approvisionnement de ces matériaux. Dans l'oolite ferrugineuse, le phosphate de calcium se présente sous la forme 1) d'une masse fine et disséminée, 2) de dépôts diagénétiques dans les vides de la roche et en remplacement de minéraux déjà présents, 3) de lamines d'oolites, 4) de bioclastes (dont des conodontes), et, moins fréquemment 5), de grains détritiques. L'apatite diagénétique montre la plus grande variabilité des caractéristiques de CL. À Saint-Ghislain, elle présente une séquence diagénétique complexe qui consiste en une phase à CL rose à bleue suivie de phases rouge, jaune, vert-bleu et vert. À Couthuin, la sequence est moins complexe et consiste en une phase à CL bleue suivie d'une phase orange à rose. À Vezin, une séquence similaire est observée à l'exception d'une phase intermédiaire verte. De plus, l'apatite s'y trouve préférentiellement en remplacement de feldspaths, l'espace intergranulaire étant plutôt occupé par du quartz et/ou de la calcite diagénétiques. À Aisémont, l'apatite se trouve dans des lamines d'oolithe et en remplacement de bioclastes calcaires. Elle y montre une luminescence bleu profond qui peut se changer en vert sans qu'il y ait de véritable séquence chronologique de dépôt. Un échantillon d'oolite ferrugineuse standard provenant de l'Alabama, Etats-Unis, a également été étudié à titre de comparaison. Aucune séquence diagénétique nette n'a été reconnue mais l'apatite montre une luminescence vert pâle significativement différente des autres.

Nos résultats montrent que tous les échantillons analysés peuvent être distingués sur base de leurs caractéristiques CL. Cette technique pourrait donc fournir une signature unique et peut dès lors être considérée comme un outil puissant pour l'analyse de provenance des oolithes ferrugineuses et d'autres matériaux. Elle supplémente les autres techniques conventionnelles comme la microscopie optique et électronique tout en faisant le lien entre la pétrographie et la géochimie.

Mots-clés : *Cathodoluminescence, apatite, oolite ferrugineuse, Dévonien, Belgique, provenance.*

Keywords: Cathodoluminescence, apatite, oolitic ironstone, Devonian, Belgium, sourcing.

1 INTRODUCTION

Many minerals emit light when they are subjected to bombardment by electrons accelerated with a voltage typically in the 10-20 kV range (Marshall, 1988; Pagel *et al.*, 2000; Götze & Kempe, 2009). This phenomenon, called cathodoluminescence (CL), is caused by several luminescence centres consisting of defects and chemical impurities at the ppm (part per million) level within the crystal lattice. Chemical impurities such as Mn^{2+}, Ti^{4+}, Fe^{3+}, Cr^{3+}, Eu^{2+} and REE^{3+} causing CL emission are *activators* whereas other such as Fe^{2+} and Co^{2+}, which lower or suppress CL, are *inhibitors*. The

CL emission is very sensitive to slight variations in defects and trace element concentrations, which may be used as a fingerprint for sourcing natural and manufactured geomaterials.

Apatite very often shows bright CL emission since Mn^{2+}, Eu^{2+} and REE^{3+} (activators) ubiquitously substitute for Ca^{2+} in the crystal lattice whereas Fe^{2+} (quencher) does not. Several CL emission colors are observed depending on the activators. Mn^{2+} activation results in yellow-green CL, while REE (mainly Eu^{2+}, Dy^{3+}, Sm^{3+}) induces violet, blue, green to red CL colors (Waychunas, 2002).

Apatite is an extremely common accessory mineral in oolitic ironstones, occurring in the mineralogical form carbonate-apatite, or francolite (Karakus *et al.*, 1988). Phosphorus in these rocks was probably adsorbed onto and incorporated in the primary iron oxide precipitates (ferrihydrite) and subsequently released in pore fluids as ferrihydrite stabilized into more stable minerals (goethite and hematite) as shown in hydrothermal sediments in the East Pacific Rise (Poulton & Canfield, 2006). Ferrihydrite precipitating in iron microbial mats in freshwater environments systematically contains significant amounts of phosphorus (Papier, 2014). Due to this high affinity of phosphorus for iron oxides, it is highly probable that virtually all oolitic ironstones will contain at least trace amounts of apatite, depending on calcium availability during diagenesis.

Oolitic ironstone samples from 6 localities were studied in order to evaluate apatite cathodoluminescence as a potential tool for sourcing archaeological materials. As a first step in our approach, only source materials were considered in order to investigate the variability of the CL characteristics of ironstones.

2 MATERIALS AND METHODS

Samples for this study were taken from boreholes cores (Saint-Ghislain and Booischot) and from former ironstone mines in Belgium (Vezin-Sclaigneaux, Couthuin and Aisémont), provided by the rock library (lithotheque) of the Geological Survey of Belgium. All these ironstones are of Upper Devonian (Famennian) age. One sample from Alabama, USA (Krantz rock collection), which is a famous locality for ordovician oolitic ironstone, was also selected for comparison. Polished thin-sections were prepared from these samples, >100 for Saint-Ghislain (partly studied in Etienne, 2010), 12 for Vezin and 1 to 2 for the other localities. The idea behind the large number of thin-sections for Saint-Ghislain and Vezin was to test the variability of the CL characteristics within the same locality.

The thin-sections were studied under the polarizing microscope to examine the mineralogy and the petrography of the ironstones. They were then investigated under cathodoluminescence (CL) using a cold-cathode CITL Mk5 unit operated at an acceleration voltage and beam current of 15 kV and 500 µA, respectively (defocussed beam). The unit is mounted on a Zeiss Universal-R microscope customized for spectroscopy and spectral imaging using a CITL OSA2 optical spectrometer (380-1100 nm spectral range) and a set of bandpass interference filters. Spectroscopy was used to identify the CL activators to differentiate those minerals with similar emission color. CL micrographs at high magnification were acquired with an optical digital camera fitted on a Cameca SX50 electron microprobe (hot-cathode, or SEM-CL) operated at 15 kV and 20 nA (focused beam, scanned). A 20 nm-thick conductive coating (carbon) was applied onto the thin-sections. A very good correspondence was observed between the CL colors obtained with the cold- and hot-cathode equipments.

3 MINERALOGY AND PETROGRAPHY

All the investigated ironstone samples consist of grains with a size ranging from a few hundreds of micrometer to 1 millimeter. The grains are predominantly ooids with a typical concentric structure made of thin laminae. A nucleus, i.e. the former grain onto which laminae successively deposited during ooid formation, is sometimes visible. The ooids are more or less flattened and composed of iron minerals, mainly hematite, goethite and chlorite (chamosite). A few laminae may be composed of phosphate but they are better identifiable under CL (see below). Other grains consist of calcareous and phosphatic bioclasts, and detrital minerals: quartz, feldspars, muscovite, apatite and zircon. Many phosphatic grains are unidentifiable and probably represent coprolites, pellets, phosphatized grains of unknown origin

and clasts of phosphatic skeletons. Also, conodonts are common phosphatic bioclasts that are easily recognizable by their typical morphology and CL color. Fine-grained clayey or phosphatic sediment may be observed as well.

The grains in ironstones are bound together by a diagenetic cement, which consists of irons oxides, apatite, quartz and/or carbonate (calcite, dolomite, ankerite and siderite). Such diagenetic minerals are usually deposited in voids but they are also found replacing the grains, which may obscure the original texture of the ironstone. Phyllosilicates (illite/muscovite) are also present as replacement of former minerals, especially in Saint-Ghislain. Sulphides, chiefly pyrite but also galena and sphalerite, and sulphates, anhydrite and strontianite, were observed in minor amounts, except in Vezin, where the ironstone may be pervasively replaced by pyrite, probably due to the flow of H_2S-rich fluids along fractures during late diagenesis, as reported in Brittany by Gloaguen *et al.* (2007).

4 CATHODOLUMINESCENCE

4.1 General CL characteristics

Amongst the minerals in the oolitic ironstones listed above, only apatite, feldspars, calcite, dolomite, quartz and zircon are luminescing. Zircon is a ubiquitous accessory mineral in many sedimentary rocks and its CL characteristics will not be discussed here.

4.1.1 Apatite

Apatite in the investigated ironstones showed a great variety of CL emission colors. Rare detrital apatite exhibits a very bright yellow-green emission at 575 nm due to Mn^{2+} activation (Fig. 1).

In diagenetic apatite, REE activation superimposes onto this emission, yielding a wide range of colors depending on the dominant REE and other factors yet unknown. Samples from Saint-Ghislain, Couthuin and Vezin were studied under spectroscopy in order to establish the link between emission spectra and the resulting colors. A blue-dominated CL color is caused by a broad band emission at ca. 420 nm caused by Eu^{2+} (Pagel *et al.*, 2000; Waychunas, 2002), which is frequently observed in Couthuin and Vezin but rarely in Saint-Ghislain, where the occasional blue CL color rather appears to result from a strong Dy^{3+} sharp emission at 485 and 585 nm. Mn^{2+} activation superimposed onto this emission adds a green component and the resulting color is distinct from the "pure" yellow-green due to Mn activation alone. An orange-red CL color may originate from Sm^{3+} activation at 605 and 645 nm lines but the possible influence of an unknown, additional broad band emission in the red region is currently under investigation. This emission cannot be separated from the main Mn-activation at 575 nm, which simply appears more asymmetrical towards longer wavelengths. It yields the typical yellow and red-luminescing diagenetic apatite in the Saint-Ghislain and Vezin apatite. These yellow and red emissions are probably the result of Mn activation as well but in a different crystal field due to change in apatite chemistry, as suggested by Baele *et al.*, 2011 for hydroxyapatite in fossil bones. All other shades of CL emission are the result of a mixed influence of the above activators, a more or less equilibrated mix resulting in a grey to white emission.

Neodymium activation occurs at ca. 870 nm, i.e. in the near-infrared region of the spectrum, which therefore, cannot produce any visible color. However, CCD (couple-charged-device) cameras are sensitive to such emission providing they have no IR-blocking filter mounted in front of the sensor.

4.1.2 Feldspars and quartz

Feldspars exhibit diverse CL color due to the combination of a series of activators (Eu^{2+}, Ti^{4+}, Mn^{2+}, Fe^{3+} to name the most important; Marshall, 1988; Pagel *et al.*, 2000) as does quartz, but with an much lower overall intensity. Common CL colors of feldspars are blue for orthoclase and yellow to reddish-brown for plagioclase. Quartz is usually blue to violet (magmatic origin) or brown (metamorphic). The details on CL activation of these minerals will not be given here but can be found in e.g. Marshall (1988).

4.1.3 Calcite and dolomite

Calcite and dolomite are very commonly activated by Mn^{2+} substituting for Ca^{2+} and/or Mg^{2+} and this gives rise to a unique broad band emission in the yellow-red region of the spectrum (Machel, 1985). Due to the different crystal lattice environment in calcite and dolomite, which

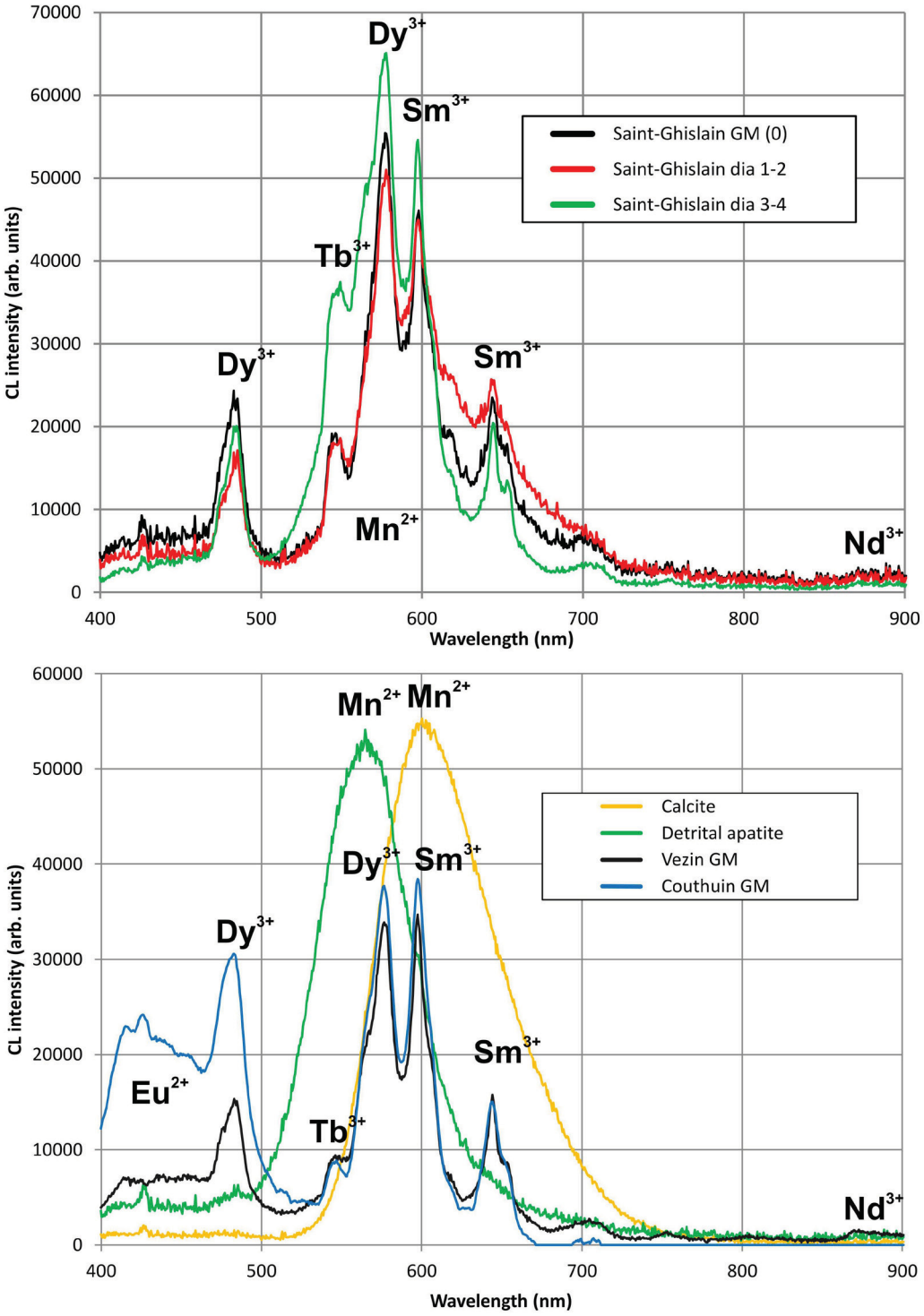


Fig. 1 – Cathodoluminescence (CL) emission spectra of apatite and calcite in Upper Devonian oolitic ironstones from Belgium. Upper graph: spectra of the Saint-Ghislain samples. GM = groundmass apatite (stage 0), dia = diagenetic apatite (corresponding diagenetic stage indicated). Lower graph: spectra from Vezin and Couthuin. The main CL activators are indicated.

Fig. 1 – *Spectres d'émission de cathodoluminescence (CL) d'apatites et de calcite dans des oolites ferrugineuses du Dévonien Supérieur de Belgique. Graphe en haut : spectres relatifs à Saint-Ghislain. GM = apatite disséminée (phase 0), dia = apatite diagénétique (la phase correspondante est mentionnée). Graphe en bas : spectres relatifs à Vezin et Couthuin. Les activateurs principaux de la CL sont indiqués.*

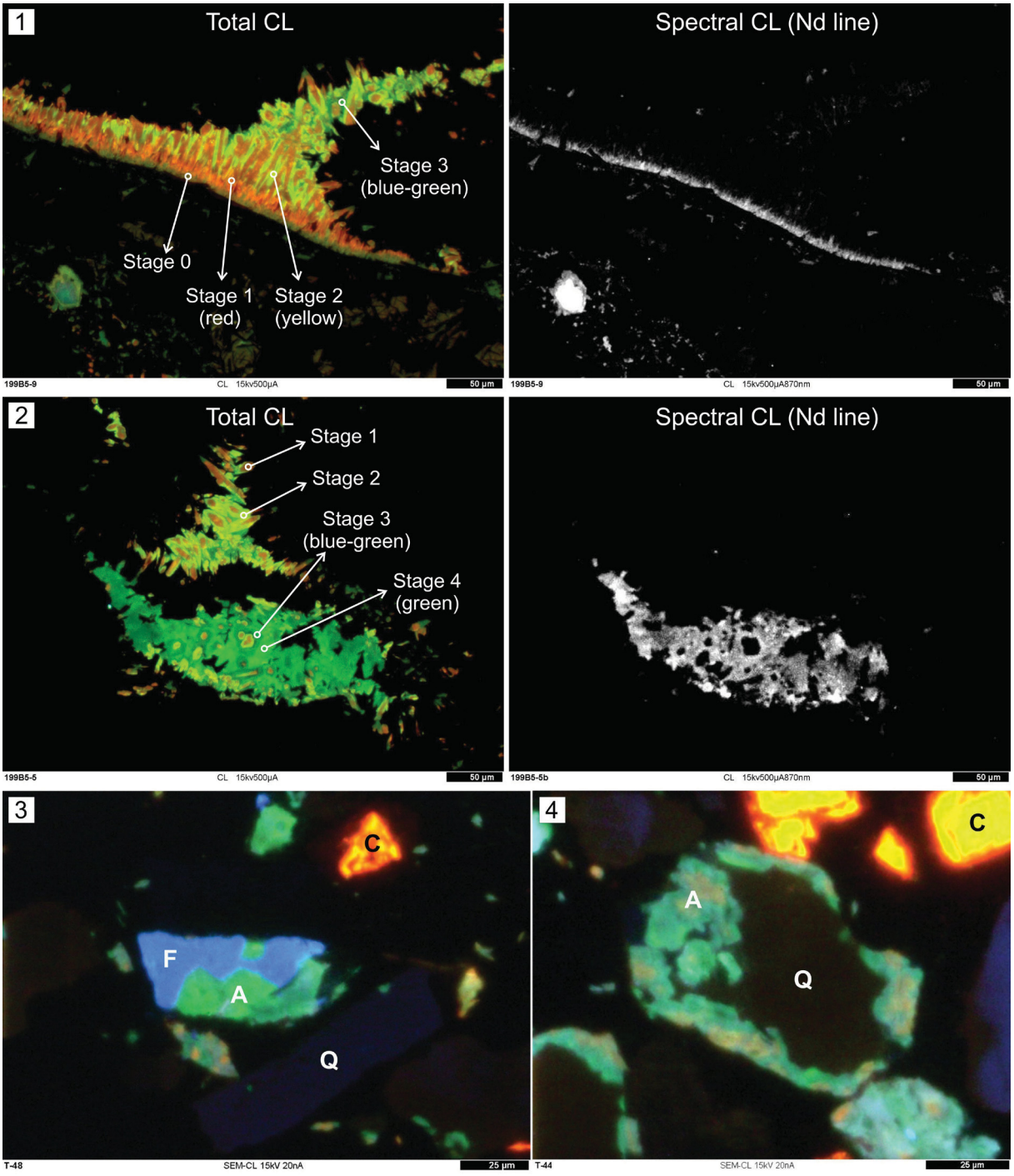


Fig. 2 – Cathodoluminescence imaging of apatite in the Saint-Ghislain ironstone. Photos 1 and 2 depict the diagenetic sequence in total (left) and spectral (right) CL (optical CL, scale bar 50 µm). The latter show the distribution of neodymium, which is not visible in total CL because it occurs in the near-infrared. In photos 3 and 4, apatite is replacing feldspars and quartz grains (SEM-CL, scale bar 25 µm). F = feldspar, Q= quartz, A = apatite and C = calcite.

Fig. 2 *– Imagerie de cathodoluminescence de l'apatite de l'oolithe ferrugineuse de Saint-Ghislain. Les photos 1 et 2 montrent la séquence diagénétique en CL totale (à gauche) et spectrale (à droite) (CL optique, échelle = 50 µm). L'imagerie spectrale permet de visualiser la distribution du néodyme, qui n'est pas visible en Cl totale puisqu'elle se produit dans le proche-infra-rouge. Dans les photos 3 et 4, l'apatite remplace les grains de feldspath et de quartz (CL sous microsonde électronique, échelle = 25 µm). F = feldspath, Q = quartz, A = apatite et C = calcite.*

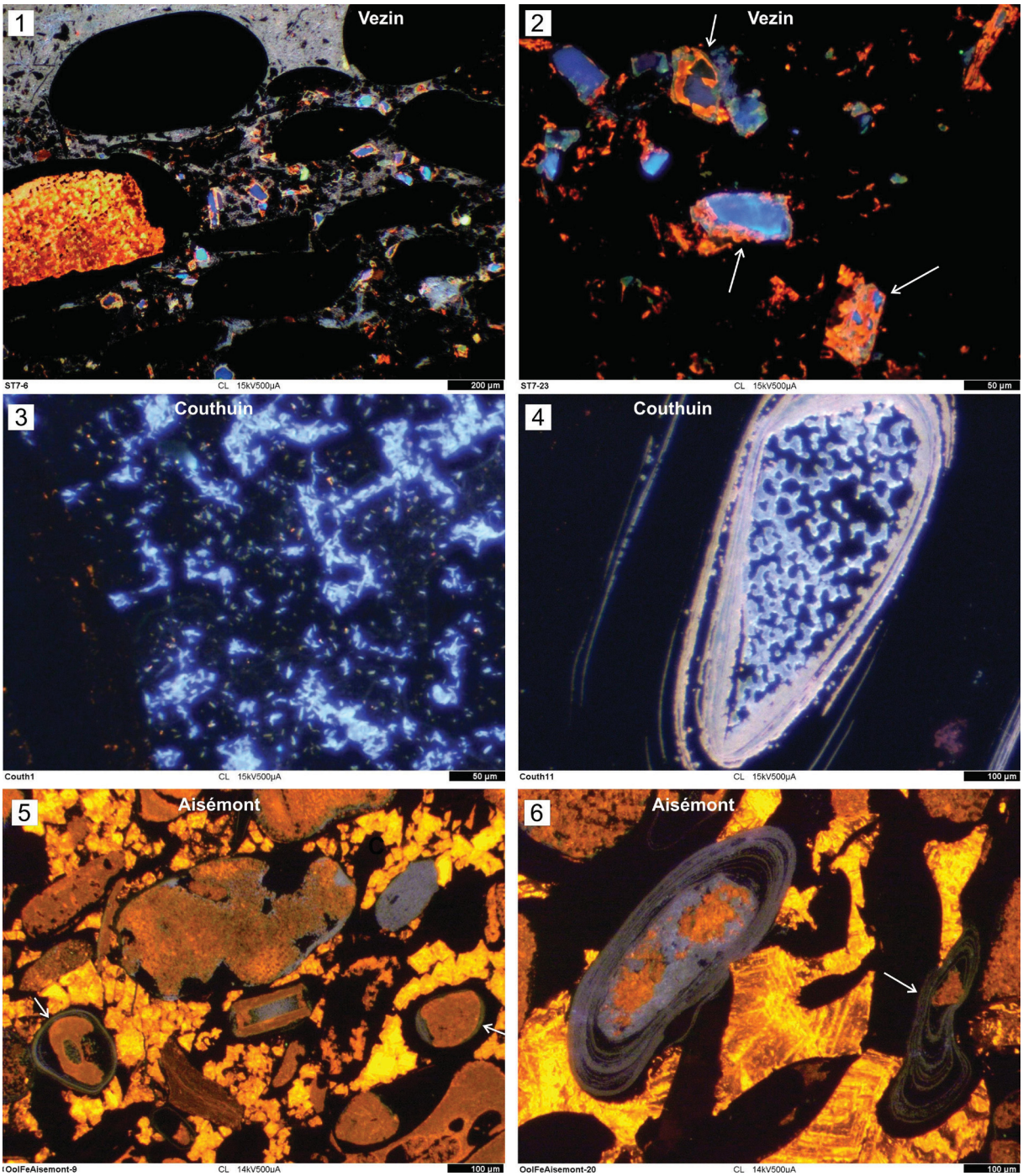
influences the electronic levels of the activator, and the existence of two substituting sites in dolomite, the same Mn-activation produces a yellow and red CL color in calcite and dolomite respectively (although dolomite may rarely exhibit yellow or green CL; Gillaus *et al.*, 2010).

Spectral imaging of the neodymium emission provided an effective means of quickly distinguishing apatite and calcite with similar CL color since neodymium does not, or very uncommonly, activate the CL of calcite.

4.2 CL characteristics by locality

4.2.1 Saint-Ghislain

The main CL characteristics of apatite in the Saint-Ghislain ironstone lies in a complex



diagenetic sequence, which is observed in virtually all samples. The sequence starts with fine-grained apatite with a pinkish to blueish CL of moderate intensity, mainly activated by REE^{3+} (stage 0). This apatite was obviously part of a fine-grained sediment or early precipitates. It is overgrown by needle-like apatite crystals comprising a four-stage CL sequence with a bright luminescence: 1) red, 2) yellow, 3) blue-green and 4) green (Fig. 2). Apatites in stage 0 and 4 are predominantly REE-activated as shown by spectra and spectral imaging of neodymium. In contrast, stage 1, 2 and 3, are predominantly Mn-activated. Crystal morphology also seems to change from acicular to equigranular in stage 4. This diagenetic sequence is observed in intergranular (i.e. having been deposited in the voids between the oolites) but also intragranular apatite, specifically in nuclei that are interpreted as former carbonate grains that were dissolved before apatite precipitated. Diagenetic apatite is also observed overgrowing conodonts and other phosphate grains as well as replacing K-feldspar (but not plagioclases) and quartz grains. Feldspar grains frequently have a rhombic shape, suggesting a possible volcanic origin, corroborating the volcanogenic source of the iron in Palaeozoic oolitic ironstones (Dreesen, 1989; Sturesson *et al.*, 1999; 2000).

Apatite in grains and oolite laminae exhibits a moderate CL of brownish color produced by both REE and Mn-activation. Many flakes of non-luminescing muscovite-illite of diagenetic origin are present.

Carbonates are very rare in Saint-Ghislain. Dolomite rhombs were occasionally observed in samples enriched in detrital minerals that are believed to represent the transition rock between the ironstone and adjacent formations.

4.2.2 Vezin-Sclaigneaux

In Vezin, diagenetic apatite is observed as a fine groundmass with a greyish- to blueish white CL (fig. 3). It is followed by green then orange-red apatite. Similarily to Saint-Ghislain, diagenetic apatite is found replacing rhombic K-feldspars. The apatite sequence is thus less complex than in Saint-Ghislain. Additionaly, it is rarely observed in intergranular pores, but rather as replacement. This porosity is now filled with quartz which contains calcite inclusions, indicating the silicification of a former carbonate cement.

Diagenetic apatite in ooid laminae and phosphatized grains exhibits a blueish-white to greenish CL color distinct from its counterpart in the Saint-Ghislain ironstone.

Fig. 3 – (belows cons) Cathodoluminescence imaging of apatite in the Vezin (1-2), Couthuin (3-4) and Aisémont (5-6) ironstones. In photo 1, the white-luminescing groundmass apatite is visible in the upper part. Note the yellow-red luminescing calcitic nucleus on the left. Photo 2 shows a close-up of rhombic K-feldspars being partially replaced by apatite (arrows). Photo 3 shows the fine-grained apatite groundmass with a bacillus-like morphology. Note the dark rhombs corresponding to non-luminescing carbonates. In photo 4, a crinoid now replaced by blue-luminescing apatite served as nucleus for ooid formation, starting with pink-luminescing apatite laminae. Note in photos 5 and 6 the abundance of yellow-luminescing, zoned calcite. Apatite, mainly in ooid laminae, is deep blue-luminescing with some green-luminescing zones (arrows). Scale bars: 1 = 200 µm, 2 and 3 = 50 µm, 4, 5 and 6 = 100 µm.

Fig. 3 *– (ci-contre) Imagerie de cathodoluminescence de l'apatite dans les oolites ferrugineuses de Vezin (1-2), Couthuin (3 et 4) et Aisémont (5 et 6). Dans la photo 1, l'apatite finement disséminée luminescente en blanc est visible dans la partie supérieure. Noter le nucleus d'oolite en calcite luminescente en jaune-rouge à gauche. La photo 2 montre un agrandissement de feldspaths potassiques rhombiques partiellement remplacés par de l'apatite (flèches). La photo 3 montre la morphologie « en bacilles » de l'apatite finement disséminée. Noter les formes rhombiques sombres qui correspondent à des carbonates non-luminescents. Dans la photo 4, un bioclaste de crinoïde maintenant remplacé par de l'apatite à luminescence bleue a servi de nucleus pour la formation d'une oolite, qui débute par des lamines d'apatite luminescentes en rose. Noter, dans les photos 5 et 6, l'abondance de la calcite zonée luminescente en jaune. L'apatite, présente ici principalement dans les lamines des oolites est luminescente en bleu avec quelques zones vertes (flèches). Barres d'échelle : 1 = 200 µm, 2 and 3 = 50 µm, 4, 5 and 6 = 100 µm.*

Conodont bioclasts have a dark-green emission resulting from a combined REE and Mn-activation in which the latter predominates. However, conodonts in Vezin often exhibit a distinct blueish shade consistent with the Eu^{2+} emission observed in diagenetic apatite from this locality. Consistently, a few conodonts with a red component in their emission were observed in Saint-Ghislain.

Calcite is rather common in Vezin, especially as vein-fill.

4.2.3 Couthuin

In Couthuin, the fine-grained apatite in the groundmass has a blueish-white CL and a typical bacillus-like morphology due to the presence of minute scattered apatite crystals of a few

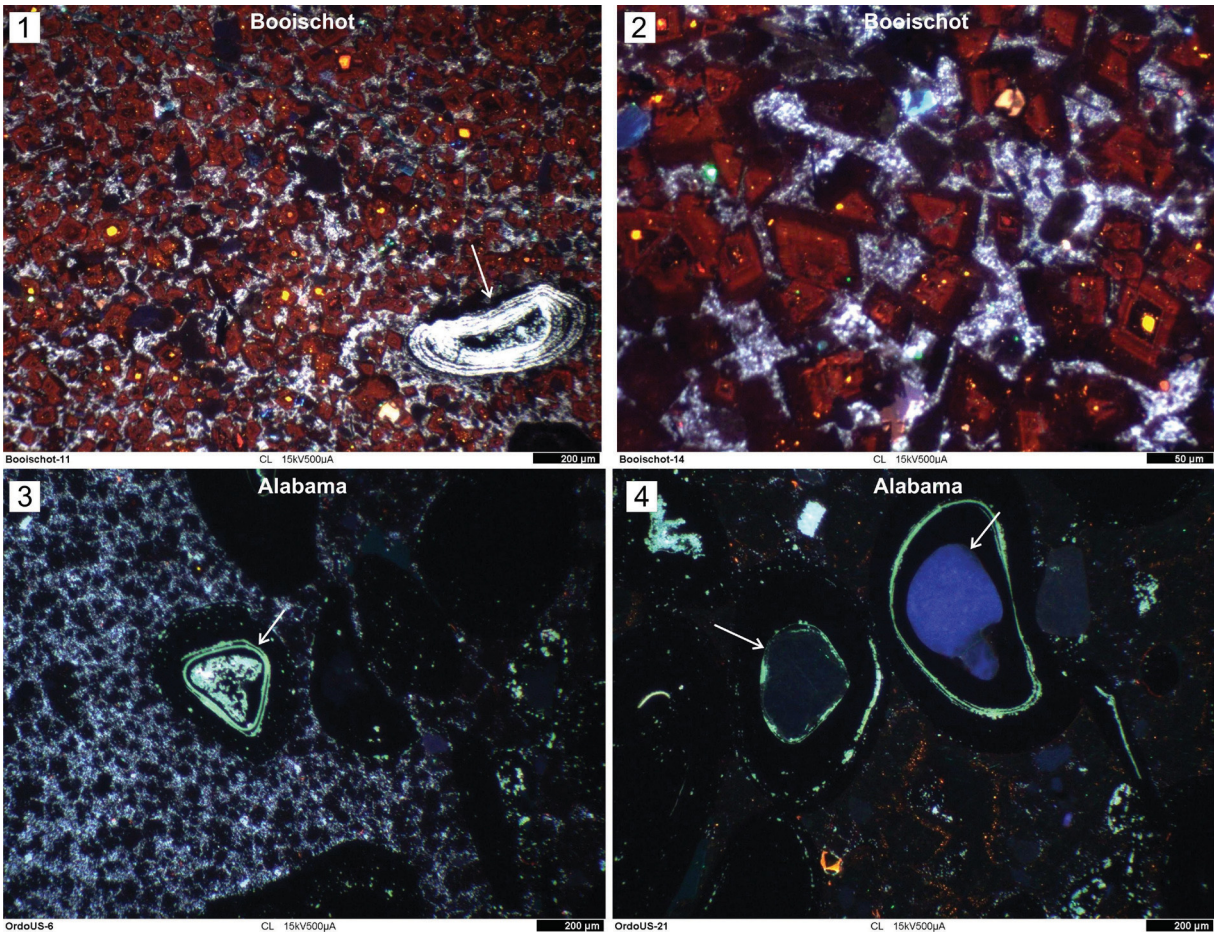


Fig. 4 – Cathodoluminescence imaging of selected Booischot (1-2) and Alabama (3-4) oolitic ironstone samples. In photo 1 apatite within the fine-grained groundmass and ooid laminae is white-luminescing. The close-up in photo 2 shows the details of the groundmass and the red-brown luminescing dolomite rhombs. Photos 3 and 4 depict the cathodofacies of the Alabama oolitic ironstone which comprises fine-grained groundmass apatite with non-luminescing carbonates (dark spots in 3). Light-green luminescing apatite occasionally occurs within the ooid laminae and the nucleus. Note the presence of well-rounded quartz grains as ooid nuclei (arrows in 4). Scale bars: 1-3 and 4 : 200 µm, 2: 50 µm.

Fig. 4 *– Imagerie de cathodoluminescence des échantillons sélectionnés d'oolite ferrugineuse de Booischot (1-2) et de l'Alabama (3-4). Dans la photo 1, l'apatite formant la masse finement disséminée et des lamines dans les oolithes est luminescente en blanc. L'agrandissement dans la photo 2 montre le détail de cette masse ainsi que les rhomboèdres de dolomite à luminescence brun-rouge zonée. Les photos 3 et 4 illustrent le cathodofaciès de l'oolite de l'Alabama, qui comprend une masse finement disséminée parsemée de carbonates non-luminescents (taches sombres dans la photo 3). De l'apatite à luminescence vert pâle est parfois présente dans les lamines et les nuclei des oolites (flèche). Noter les nuclei formés de grains de quartz bien arrondis (flèche dans la photo 4). Barres d'échelle : 1-3 et 4 : 200 µm, 2 : 50 µm.*

micrometers in size (Fig. 3). Diagenetic apatite mainly occurs as ooid laminae and replacement of bioclasts (crinoids, bryozoa, etc.) The sequence recognized so far is blue-CL followed by orange-CL apatite, the latter emission color being perceived more pinkish than reddish due to a blue component as detected by spectroscopy.

Non-luminescing (Fe^{2+}-rich) carbonate rhombs are scattered in the groundmass and they contain a few bacillus -like apatite inclusions. Rare brown-luminescing calcite laminae or fracture fillings were observed.

4.2.4 Aisémont

Diagenetic apatite in the Aisémont ironstone is concentrated in the ooid laminae and calcareous bioclasts (fig. 3). Two distinct emission colors are observed: deep blue and green, both with a moderate luminescence intensity. There is no clear sequence as the CL color may change across the same ooid laminae.

Bright luminescing calcite is very abundant in the Aisémont samples. Conventional petrography shows many iron oxides inclusions in zoned calcite, which suggests that this iron was originally dissolved as Fe^{2+} in the calcite lattice, after which it was oxidized and exsolved out of carbonate, thus allowing Mn^{2+}-activated luminescence.

4.2.5 Booischot

The sample from Booischot showed bright blueish-white to white-luminescing diagenetic apatite in a fine-grained groundmass and in oolite laminae (Fig. 4). There are many reddish-brown luminescing, zoned dolomite rhombs scattered throughout the cement. These rhombs have no apatite inclusions, but yellow-luminescing calcite.

4.2.5 Alabama

In the ironstone sample from Alabama, diagenetic apatite is ubiquitously light-green luminescing although the bacillus -like groundmass exhibits a more light CL color (Fig. 4). Non-luminescing carbonate rhombs with no apatite inclusions are present.

Detrital quartz is common and the grains are very well-rounded. In addition, they are often found as nuclei in the ooids.

Traces of brown-luminescing calcite may be observed.

Locality	*Carbonate*	*Detritals*	*Diagenetic apatite*		
			*CL Sequence**	*CL Colors*	*Replacement***
Saint-Ghislain	rare (D)	K, P & Q	unique, 5-stage	Pink/blue -> red -> yellow -> blue-green -> green	K and Q
Vezin-Sclaign	C+D	K & Q	unique, 3-stage	Blue -> green -> orange	K
Couthuin	(NL)	Q	unique, 2-stage	Blue -> orange (pink)	-
Aisemont	C (zoned)	very rare	No	Blue <-> dark-green	-
Booischot	D (zoned)	Q (K & P)	No	Blueish-white	-
Alabama	rare (incl. C)	Q	No	Light green	-

C: calcite D: dolomite K: K-feldspar P: plagioclase Q: quartz NL: non-luminescing
*Subsequent to fine-grained groundmass with bacillus-like crystals
**Excluding calcareous bioclasts

Tab. 1 – Summary of the distinguishing features provided by cathodoluminescence analysis of the selected oolitic ironstone samples. All the samples can be distinguished based on these features. See text for additional features and further explanation.

Tab. 1 *– Résumé des caractéristiques distinctives fournies par l'analyse en cathodoluminescence des échantillons d'oolite ferrugineuse sélectionnés. Ces caractéristiques permettent de distinguer tous les échantillons entre eux. Se reporter au texte pour d'autres caractéristiques et plus d'explications.*

5 DISCUSSION

Based on the observed characteristics in the studied samples (Tab. 1), the diagenetic apatite sequence appears as the most distinguishing feature. The apatite sequence commonly starts with a blue CL zone and ends with green or orange CL overgrowths, indicating some common trend in the temporal change in composition of the diagenetic fluids. However, in detail, the sequence is significantly different from one locality to another and reflects a unique history of the sediments in the basin or a particular region thereof. The diagenetic apatite sequence can thus be regarded as a real fingerprint. Other observations such as the blue Eu^{2+} emission in samples from Couthuin and Vezin, the well-rounded quartz grains in Alabama, the CL of the diagenetic quartz (not presented here) could also be used as additional distinguishing features along with other classical mineralogical and petrographical characteristics (see for instance Dreesen *et al.*, 2016: this volume). Besides changes in initial sediment composition, the assemblage and growth history of diagenetic minerals such as apatite can therefore be quickly examined with CL analysis. However, in provenance studies, it is important to first evaluate the variation of the characteristics within the same locality before attempting to compare with other localities. Here, this evaluation was conducted only for samples from Saint-Ghislain and Vezin, which both yielded uniform signatures. All of the >100 samples from Saint-Ghislain exhibit the same diagenetic apatite sequence, which is significantly different from the samples from other localities, even if they are stratigraphically almost analogous. Yet more samples from the other localities, where only one or two thin-sections were studied should be investigated in the future in order to evaluate the uniformity of the diagenetic apatite sequence.

6 CONCLUSION

All of the investigated samples can be distinguished based on their CL characteristics, which are here considered as diagnostic features or fingerprints. Apatite is especially interesting since it is a very common accessory mineral in oolitic ironstones. This mineral readily incorporates during diagenesis those trace-elements which act as CL activator (REE and Mn^{2+}), but not inhibitors (Fe^{2+}). The relative abundance of these trace-elements is reflected by the emission intensity and color of apatite. Our results show that CL imaging of apatite is an efficient tool in provenance analysis. More complex techniques such as spectroscopy and spectral imaging provide additional information and allow distinguishing minerals with similar CL color.

Although focused on apatite, this study also shows other luminescing minerals that are difficult to observe under conventional optical microscopy, mainly feldspars and carbonate when they are present at trace amounts, are revealed with CL. This technique may therefore be considered as a valuable tool for sourcing ironstones and other natural or manufactured geomaterials in complement with other techniques such as conventional optical and electron microscopy. Due to its high sensitivity to trace-elements, CL also bridges the gap between petrography and geochemistry.

Bibliography

BAELE J. M., PAPIER S., BARRIQUAND L., & BARRIQUAND J., 2011. Insights into the use of cathodoluminescence for bone taphonomy in the fossil bear deposit of Azé Cave, Saône-et-Loire, France. *Quaternaire*, Hors-série, **4**: 291-296.

DREESEN R., 1989. Oolitic ironstones as event-stratigraphical marker beds within the Upper Devonian of the Ardenno-Rhenish Massif. In: T. P. YOUNG & W.E.G. TAYLOR (ed.), Phanerozoic Ironstones. London, Geological Society Special Publication **46**: 65-78.

DREESEN R., SAVARY X. & GOEMAERE É., 2016. Definition, classification and microfacies characteristics of oolitic ironstones, used in the manufacturing of red ochre - a comparative petrographical analysis of Palaeozoic samples from France, Belgium and Germany. *In*: C. BILLARD *et al.* (ed.), *Autour de l'hématite / About haematite. Actes de / Acts of Jambes, 7-8/02/2013, Volume 1*, Liège, ERAUL, **143** - *Anthropologica et Præhistorica*, **125/2014:** 203-223.

ETIENNE A., 2010. *Minéralogie, diagenèse et environnement de formation de l'hématite oolithique du sondage de Saint-Ghislain*. Unpublished Master Thesis, University of Mons, Mons.

GILLAUS A., RICHTER D. K., GÖTTE Th. & NEUSER R. D., 2010. From tabular to rhombohedral dolomite crystals in Zechstein 2 dolostones from Scharzfeld (SW Harz/Germany): A case study with combined CL and EBSD investigations. *Sedimentary Geology*, **228**: 284-291.

GLOAGUEN E., BRANQUET Y., BOULVAIS Ph., MOËLO Y., CHAUVEL J. J., CIAPPERO P.J. & MARCOUX E., 2007. Palaeozoic oolitic ironstone of the French Armorican Massif: a chemical and structural trap for orogenic base metal–As–Sb–Au mineralisation during Hercynian strike-slip deformation. *Mineralium Deposita*, **42** (4): 399-422.

GÖTZE J., & KEMPE U., 2009. Physical principles of cathodoluminescence (CL) and its applications in Geosciences. In: A. GUCSIK (ed.), *Cathodoluminescence and its application in the planetary sciences*. Berlin Heidelberg, Springer-Verlag: 1-22.

KARAKUS M., HAGNI R. D., & SPRENG A. C., 1988. Cathodoluminescence petrography of phosphate grains in Jurassic (Aalenian) sedimentary iron ores, Alsace-Lorraine, France. *Proceedings of the 22nd Annual Meeting of the Geological Society of America, North-Central Section*, **20** (5): 351.

MACHEL H. G., 1985. Cathodoluminescence of calcite and dolomite and its geochemical interpretation. *Geoscience Canada*, **12** (4): 139-147.

MARSHALL D. J. (ed.), 1988. *Cathodoluminescence of Geological Materials*. Boston, Unwin Hyman.

PAGEL M., BARBIN V., BLANC P. & OHNENSTETTER D. (ed.), 2000. *Cathodoluminescence in Geosciences*. Berlin, Heidelberg, Springer-Verlag.

PAPIER S., 2014. *Géomicrobiologie des dépôts bactériens ferrugineux : influence des facteurs biologiques et environnementaux sur l'oxydation du fer en milieu continental*. PhD thesis, University of Mons, Mons.

POULTON S. W. & CANFIELD D. E., 2006. Co-diagenesis of iron and phosphorus in hydrothermal sediments from the southern East Pacific Rise: implications for the evaluation of paleoseawater phosphate concentrations. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **70**: 5883-5898.

STURESSON U., DRONOV A. & SAADRE T., 1999. Lower Ordovician iron ooids and associated oolitic clays in Russia and Estonia: a clue to the origin of iron oolites? *Sedimentary Geology*, **123**: 63-80.

STURESSON U., HEIKOOP J. M. & RISK M. J., 2000. Modern and Palaeozoic iron ooids - a similar volcanic origin. *Sedimentary Geology*, **136**: 137-146.

WAYCHUNAS G. A., 2002. Apatite luminescence. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*. **48**: 701-741.

Authors address:

Jean-Marc BAELE
Department of Geology
Faculty of Engineering
University of Mons
20, Place du Parc
7000 Mons (Belgium)
jean-marc.baele@umons.ac.be

Roland DREESEN
Michiel DUSAR
Royal Belgian Institute of Natural Sciences
Belgian Geological Survey
13, Jennerstreet
1000 Brussels (Belgium)
roland.dreesen@telenet.be

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 69-89

Provenance des roches à base d'hématite exploitées à Diepkloof Rock Shelter, Afrique du Sud : synthèse et implications socio-économiques

Laure DAYET

Abstract

Hematite is one of the most common red pigments used by hunter-gatherer societies. In Africa, the earliest and unambiguous evidence for the use of red ferruginous pigments dates to the early Middle Stone Age (MSA), more than 200 ky ago. Usually referred to as "ochre", they were intensively exploited in Southern Africa from about 160 ky. Hundreds of ochre fragments have been found in MSA layers from dozens of South African sites. The powder extracted from these red rocks is assumed to have been involved in a variety of activities, for body painting, for medicinal or ritual purposes, in hide treatment or as a loading agent in adhesives. Direct evidence of its use by MSA populations is scarce and mostly inferred from powder residues staining archaeological artifacts, such as backed tools or shell beads. Although red pigment use by early modern humans has often been interpreted as reflecting symbolically mediated and complex behaviors, the way they were collected and selected before being used remains poorly documented. Provenance studies are among the most powerful approaches to reconstruct procurement strategies and to discuss selection criteria. In this paper we investigate the provenance of ochre pieces from the MSA units of Diepkloof Rock Shelter, South Africa, in order to discuss the complexity of ochre procurement. Samples were examined with a binocular microscope and a part of them was submitted to chemical analyses by SEM-EDS (micro-structure), XRD (mineralogical composition), ICP-OES and ICP-MS (composition in major and trace elements). They were compared with a geological database constituted of samples from 12 sources located around the site.

Ochre pieces from Diepkloof were shown to belong to three main categories of rocks: clayish sedimentary rocks (shale); intensively ferruginized nodules (nodular ferricretes); partially ferruginized sedimentary rocks (shale/ferricrete). Petrological observations and mineralogical analyses suggest a local provenance for a majority of the shale pieces, probably from a shale bed located directly in the back of the shelter. A significant number is exogenous however, and several were shown to be non-local. Geochemical data interrogated by statistical methods confirm the presence of both local and exogenous shale pieces. In comparison to shale pieces, no ferricrete sources are encountered in the vicinity of the site. Ferricrete pieces are exogenous and some of them are probably non local according to their micro-structure. However the ferricrete sources do not show clear mineralogical or geochemical fingerprints as the shale sources do. Regarding the provenance of shale/ferricrete pieces, similar conclusions were reached. According to these results, raw materials containing high iron oxide amounts were preferentially collected although they required long distance movements. Most of the non-local ochre pieces (shale and ferricrete), come from formations located to the south-west, upstream of the valley where the site is located. They are all located in Howiesons Poort units. At least one shale piece could come from a more distant area located to the north-east, where deeper valleys are encountered (Cederberg area). Such connections between different valleys suggest long distance group mobility or group exchange. In conclusion, ochre procurement at Diepkloof followed complex patterns during the Howiesons Poort, involving local supply, day trips, and possibly long distance mobility or group exchange.

Keywords*: hematite, ochre, provenance, mineralogy, geochemistry, Middle Stone Age, South Africa, procurement strategies.*

Mots-clés : hématite, ocre, provenance, minéralogie, géochimie, *Middle Stone Age*, Afrique du Sud, stratégies d'approvisionnement.

1. INTRODUCTION

L'hématite est l'un des pigments rouges les plus emblématiques des sociétés traditionnelles. Souvent associée à la terre ou au sang, de nombreux ouvrages ethnographiques relatent l'utilisation de cet oxyde de fer, pur ou naturellement mélangé à d'autres minéraux, au cours de rituels à valeur hautement symbolique (voir par exemple Bleek & Llyod, 1911 ; Peabody, 1927 ; Rudner, 1982 ; Taçon, 2004). Le terme « hématite » est issu du grec ancien et signifie « sang ». Si les grecs

faisaient la différence entre l'hématite pure et les « ocres », terres argileuses rouges colorées par la présence de cet oxyde de fer, tel n'est pas le cas de nombreux explorateurs et ethnographes ayant décrit son usage au sein des sociétés de chasseurs-cueilleurs d'Amérique du Sud, d'Afrique ou encore d'Australie. Aujourd'hui encore, le terme « ocre » reste toujours largement utilisé en archéologie pour désigner tout type de matière colorante rouge colorée par l'hématite.

La question de l'usage de ces ocres a fait l'objet d'un intérêt croissant ces dernières années dans le cadre des recherches menées en Afrique, au Proche Orient ou en Europe pour comprendre comment se sont développées les sociétés de chasseurs-cueilleurs au Paléolithique moyen (PM) et au Middle Stone Age (MSA) (Watts, 2002 ; Hovers *et al.*, 2003 ; Marean *et al.*, 2007 ; d'Errico *et al.*, 2010 ; Wadley *et al.*, 2009 ; Zilhao *et al.*, 2010 ; Dayet *et al.*, 2013). En l'absence de peintures sur paroi ou sur mobilier pour ces périodes, plusieurs auteurs ont proposé une utilisation pour la peinture corporelle (Bordes, 1952 ; Soressi & d'Errico, 2007 ; Bouzzougar *et al.*, 2007). Les résidus d'hématite observés sur des coquillages perforés découverts dans les couches atériennes de la grotte des Pigeons (Maroc), ou encore dans des couches Still Bay à Blombos Cave (Afrique du Sud), sont jusqu'à présent les indices les plus tangibles en faveur de cette hypothèse (d'Errico *et al.*, 2005 ; Bouzzougar *et al.*, 2007). En parallèle, des résidus rouges ont été observés sur la partie emmanchée de pièces à dos sur trois sites Howiesons Poort en Afrique du Sud, à Sibudu Cave, Rose Cottage Cave et Umhlatuzana (Wadley *et al.*, 2004 ; Wadley, 2005 ; Lombard, 2007). L'hypothèse d'une utilisation comme charge dans un adhésif a été avancée et testée expérimentalement (Wadley *et al.*, 2009). L'aspect ponctuel de ces découvertes ne permet cependant pas de comprendre l'ensemble des activités dans lesquelles l'ocre rouge était impliquée. Notamment, la question de l'existence de pratiques symboliques associées à cet usage, que ce soit à des fins de communication non verbale ou au travers de rituels, reste posée pour le MSA et le PM. L'intense exploitation d'ocre observée à cette période en Afrique australe (Watts, 2002), ainsi que la découverte de gravures géométriques, estimées à environ 75 ka, sur des fragments d'ocre à Blombos Cave (Henshilwood *et al.*, 2002, 2009) rend particulièrement propice cette réflexion.

Plusieurs pistes de recherche ont été proposées pour aborder ces questionnements, notamment par le biais de l'étude des fragments d'ocre découverts en contexte archéologique. Certains se sont focalisés sur les traces de modifications anthropiques et les procédés de transformation (Rifkin, 2012 ; Hodsgkiss, 2013), tandis que d'autres ont davantage mis l'accent sur les critères de sélection des matières premières (Watts, 2010 ; Dayet *et al.*, 2013). En comparaison, l'économie de ces ressources reste peu décrite. Connaître les sources d'approvisionnement en matières premières, les déplacements ou échanges entre groupes, l'aspect spécifique ou opportuniste de la collecte, peut aider à mieux comprendre les critères de sélection et l'importance de cette exploitation dans le système économique global des groupes de chasseurs-cueilleurs. Le registre ethnographique a permis de révéler chez certains groupes des stratégies d'approvisionnement complexes pour les matières colorantes rouges. Un observateur du début du 20ème siècle rapporte par exemple qu'un pigment rouge brillant, particulièrement prisé et faisant l'objet de croyances particulières, était collecté par les San du Lesotho à des distances de plusieurs dizaines de kilomètres des sites d'habitat (How, 1962 : 34).

En Australie, les témoignages et sources ethnographiques ont permis d'identifier plusieurs mines exploitées par les aborigènes, comme Pukardu Hill près de Parachilna au Sud de l'Australie, Wilga Mia au Nord, ou une mine au centre près de Campbell Ranges (Paterson & Lambert, 1985). Dans les trois cas, l'ocre extraite était échangée par les groupes locaux avec d'autres groupes. L'échange de matières colorantes minérales rouges entre différents groupes est également mentionné chez les indiens Pima d'Arizona (Russell, 1908 : 92). Les recherches de provenance apparaissent ainsi comme un outil idéal pour aborder cette possible diversité de comportements économiques au sein des populations de chasseurs-cueilleurs du MSA d'Afrique australe. Ce type d'approche n'a encore jamais été réalisé dans ce contexte. Le site de Diepkloof Rock Shelter, situé à proximité de la côte Atlantique, a été choisi pour cette première étude de provenance de roches ferrugineuses en Afrique du Sud en raison de sa séquence clé intégrant l'un des techno-complexes les plus normalisés du MSA de cette région, l'Howiesons Poort.

Par le passé, plusieurs auteurs se sont consacrés à la question de la provenance des matières colorantes ou ocres rouges provenant de sites archéologiques. Barham (2002), a par exemple, émis l'hypothèse que les matières colorantes rouges du site de Twin Rivers, Zambie, trouvées dans des niveaux datés à plus de 200 ka, sont d'origine locale. Il s'est basé pour cela sur les caractéristiques minéralogiques et géochimiques des fragments de pigments retrouvés sur le site. Plus récemment, Salomon *et al.* (2012) ont montré que les quelques fragments d'ocres découverts à d'Es Skhul, Israël, dans les niveaux datés à environ 100 ka, provenaient certainement de sources situées à plus d'une centaine de kilomètres du site, étant donné leur composition minéralogique. Cependant, en l'absence de prospections géologiques, la fiabilité des sources documentaires sur lesquelles repose cette hypothèse n'est pas discutée.

En parallèle, un certain nombre d'auteurs ont privilégié les aspects méthodologiques des recherches de provenance, cherchant à déterminer si des différences de composition significatives entre sources d'ocre peuvent être déterminées par l'analyse physico-chimique. Parmi les travaux les plus aboutis en ce sens, il faut citer en premier lieu ceux de Popelka-Filcoff (2006), qui a développé une méthode basée sur l'analyse des éléments majeurs et traces et un traitement statistique des données. Le protocole qu'elle propose a permis de distinguer avec succès des sources d'ocre provenant de plusieurs régions des USA, à partir de leur composition en fer et en éléments traces (Popelka-Filcoff *et al.*, 2007, 2008). Parallèlement, plusieurs mines d'hématite du Botswana et du Nord de l'Afrique du Sud, ayant fait l'objet d'études similaires, ont pu être séparées par leur signature en éléments traces (Kiehn *et al.*, 2007). Cependant, la dernière étape dans les recherches de provenance, qui consiste à comparer des échantillons archéologiques au corpus géologique de référence, n'a été que très marginalement appliquée. Récemment, Eiselt *et al.* (2011), reprenant la méthodologie de Popelka-Filcoff (2006), ont comparé différentes sources du centre de l'Arizona, avec des échantillons « d'hématite » sous forme poudreuse ou compacte (« earthy hematite » et « rocky hematite » : 3022) de trois sites paléoindiens de la région. La signature géochimique de quelques pièces archéologiques correspond à celle d'une des sources étudiées.

Le travail de recherches de provenance entrepris à Diepkloof a donc eu pour objectif de créer un référentiel géologique, prenant en compte aussi bien les caractéristiques minéralogiques que géochimiques des sources, de déterminer des critères de provenance, et de les appliquer aux échantillons archéologiques. Les résultats de cette dernière partie de l'étude de provenance, ainsi que les implications en termes de stratégies d'approvisionnement et de critères de sélection, sont abordés dans cette courte synthèse.

2. Contexte archéologique et géologique

2.1. Contexte archéologique : les niveaux MSA de Diepkloof Rock Shelter

Situé près de la côte Ouest de l'Afrique du Sud, à 180 km au Nord du Cap, le site de Diepkloof Rock Shelter domine une petite vallée au milieu d'un paysage semi-aride. L'abri est localisé au sommet d'un promontoire rocheux, au sein de formations de conglomérats et de grès quartziques (formation Table Mountain). Les premières fouilles y ont été menées par J. Parkington dans les années 1980, puis elles ont été reprises en 1999 par une équipe franco-sud-africaine, sous la direction de J.-P. Rigaud, P.-J. Texier et J. Parkington. Plusieurs aires ont été fouillées, dont une zone où la puissance stratigraphique atteint près de 3,10 m sur 3 m^2 de surface. La séquence ainsi mise au jour montre une occupation au Middle Stone Age quasi continue. Plusieurs complexes s'y succèdent (Porraz *et al.* 2008, 2013) :

- Une phase MSA dont la caractérisation reste en suspens.
- Une phase MSA ancien de type Mike (US Mike et Laureen), caractérisée par la production d'éclats triangulaires.
- Une phase pré-Still Bay (US Lynn), intermédiaire entre la phase précédente et la phase suivante.
- Une phase Still Bay (5 US, de Leo à Keeno), identifiable par la présence de pointes foliacées bifaciales.
- Une phase Early Howiesons Poort (6 US, de Keegan à Jess), caractérisée par la production d'outils sur lame de type pièces esquillées.
- Deux US distinctes de l'HP, Jude et Jack, entre l'Early HP et l'Intermediate HP, pour lesquels des pièces à dos retouchées de type racloir ont été observées.

- Un ensemble HP (14 US, de Jeff à Debbie), pouvant être séparé en deux phases, une intermédiaire et une plus tardive, caractérisées majoritairement par des pièces à dos géométriques et pièces encochées.
- Une phase post-Howiesons Poort (3 US, de Danny à Claude), à partir de laquelle les supports produits sont moins réguliers qu'à l'HP.

La datation par thermoluminescence et luminescence optiquement stimulée des unités stratigraphiques inférieures situe les premières occupations de l'abri à partir d'environ 110 000 ans, tandis que les unités MSA les plus récentes sont estimées à environ 50 000 ans (Tribolo *et al.,* 2009, 2013). Parmi les découvertes les plus remarquables, on peut citer des résidus d'adhésif identifiés sur quelques pièces Howiesons Poort, des graines et fleurs carbonisées, et surtout des fragments d'œufs d'autruche gravés de motifs géométriques, toujours dans les couches Howiesons Poort (Rigaud *et al.,* 2006 ; Texier *et al.,* 2010, 2013).

2.2. Contexte géologique : sources potentielles

D'après la carte géologique au 1/250 000 de la région, il existe deux types de roches dans les environs de Diepkloof susceptibles d'avoir été exploités comme ocre : les shales, décrits comme des lits colorés, parfois rouges et les ferricrètes, décrits comme des formations issues d'altérations secondaires (Roberts, 2003). Des prospections géologiques ciblées suivant les indications de la carte ont permis un relevé plus précis des sources.

Les shales se rencontrent dans les trois types de formations sédimentaires proto-Paléozoïques et Paléozoïques présentes autour du site de Diepkloof : les formations Malmesbury, Klipheuwel et Table Mountain, des plus anciennes aux plus récentes (Fig. 1). Les formations Malmesbury (système Nama) ont subi un léger métamorphisme, globalement plus important que les formations supérieures (Du Toit, 1954 ; Saggerson & Turner, 1995). Quelques affleurements de shale rouge et jaune ont été localisés dans ces formations. Les plus proches étant localisés à une vingtaine de kilomètres du site. Au-dessus, les formations Klipheuwel se présentent sous la forme de larges bancs de shale rouge, parfois accompagnés de grès et de conglomérats. Enfin, au sein des formations Table Mountain (système du Cap), dans lesquelles s'est formé l'abri de Diepkloof, quelques fins lits de shale de faible épaisseur apparaissent. L'un de ces affleurements est visible dans le fond de l'abri. Il se situe au fond d'une anfractuosité, creusée peut-être naturellement avec possible intervention humaine (notamment au *Late stone Age*).

Les ferricrètes sont décrits dans la notice de la carte de façon vague, comme formations tertiaires à quaternaires, ce qui ne permet pas d'identifier un horizon où ils se seraient formés préférentiellement. Cependant, nos données de terrain montrent qu'ils sont souvent localisés à proximité des formations Malmesbury. Cette observation est en adéquation avec ce que l'on sait par ailleurs du mode de formation de ces roches. Les ferricrètes se forment par dissolution/reprécipitation d'éléments à partir d'un substrat rocheux en contexte d'altération, de la même façon que les silcrètes (Blatt & Tracy, 1996). Les formations Malmesbury sont celles qui ont subi les phénomènes d'altérations les plus intenses dans la région. Les silcrètes sont fréquents dans ce contexte, alors qu'ils sont plus rares au sein des formations Table Mountain (Roberts, 2003). Les ferricrètes ont donc davantage de chances d'être trouvés à proximité des formations Malmesbury.

Le contexte géologique autour de Diepkloof apparait idéal pour définir les sphères locale, semi-locale et non locale. En effet, les formations Malmesbury n'affleurent pas à moins de 20 km du site. La limite de 20 km a donc été choisie pour distinguer la sphère semi-locale de la sphère non locale (Porraz *et al.*, 2008). En parallèle, la limite de la sphère locale a été établie à 5 km, distance à laquelle affleurent les formations Klipheuwel les plus proches. Ces distances entrent typiquement dans les ordres de grandeur des rayons proposés pour définir l'origine des matières premières au Paléolithique (voir Geneste, 1988). Il s'agit cependant du contexte géologique tel qu'il peut être perçu à l'heure actuelle. À certaines périodes, le niveau de la mer a été notablement plus bas, en particulier à l'Howiesons Poort (Compton, 2011). La ligne de rivage, actuellement située à 14 km de l'embouchure du Verlorenvlei, pourrait s'être déplacée de plus de 18 km vers l'ouest, lorsque le niveau de la mer était le plus bas (stade isoto-

pique 4, climat plus froid). On ne peut exclure la possibilité que des sources aient été exploitées au-delà de la limite actuelle du rivage. Toutefois, si tel a été le cas, ces sources seraient non locales, voire éventuellement semi-locales si immédiatement situées après cette limite.

3. MATÉRIEL ET MÉTHODES

3.1. Matériel archéologique

En raison de la documentation inégale selon les secteurs de fouille, cette étude a été restreinte à la zone où la séquence est la plus longue, au niveau du secteur principal ; ceci concerne 2 m², pour une puissance stratigraphique de 3,1 m (carrés M6-N6). Les méthodes de fouille sur cette partie de la séquence sont toujours les mêmes, à savoir découpage de la surface et fouille par sous-carré (de 50 cm de côté) ; individualisation des objets de plus de 2 cm et des objets d'intérêt particulier, coordonnés dans l'espace ; tamisage à sec du sédiment par couche et sous-carré. De plus, au niveau de ce secteur, trois sections permettent de contrôler la stratigraphie. Le corpus ainsi retenu compte un total de 549 pièces. Un grand nombre provient des refus de tamis, seule-

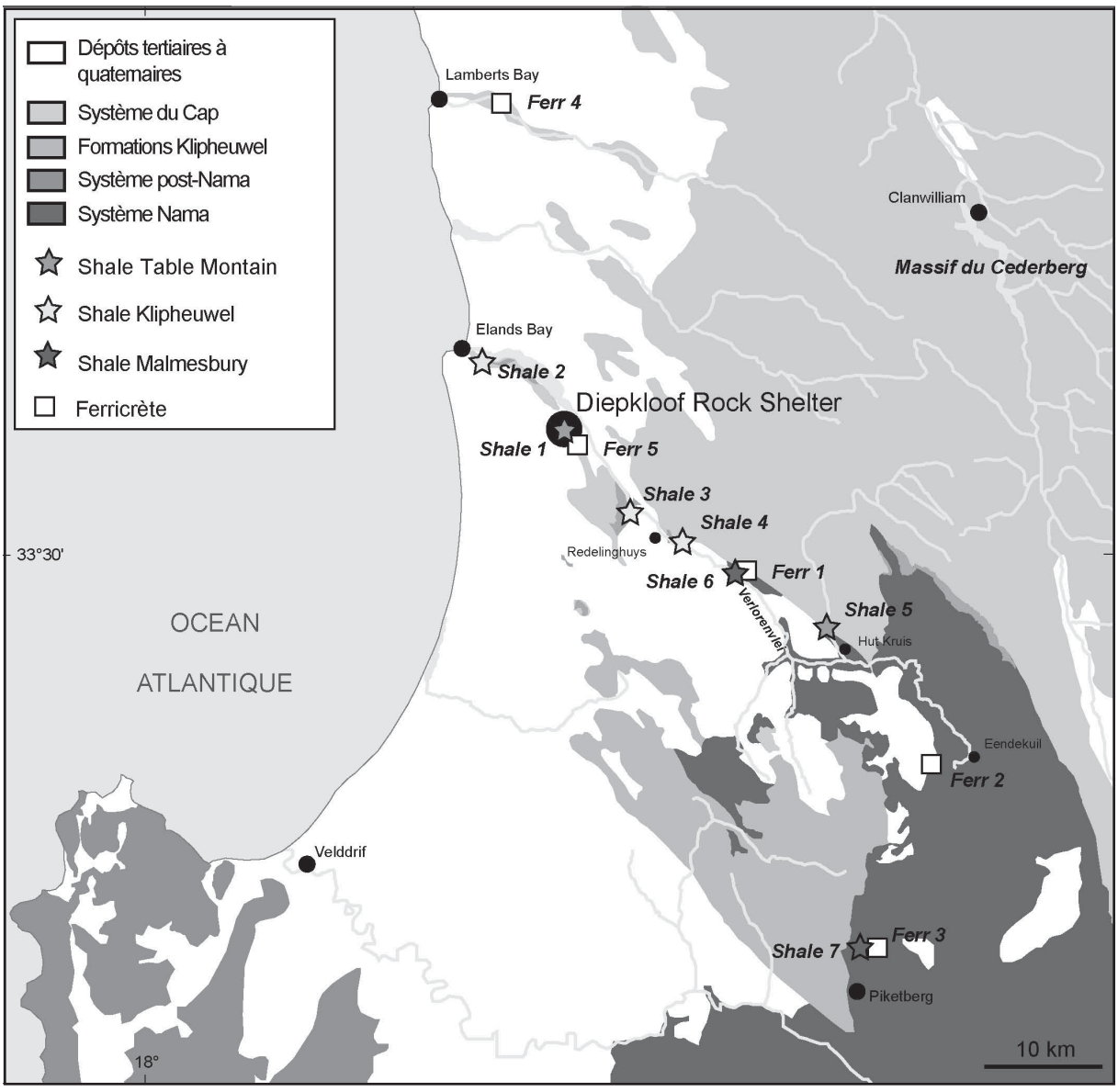


Fig. 1 – Localisation des sources principales répertoriées et prélevées au cours des prospections géologiques.

ment 56 ayant été identifiées à la fouille et coordonnées dans l'espace. Une description détaillée de ce corpus, état de fragmentation, matières premières et traces d'usure, ont fait l'objet d'un précédent travail (Dayet *et al.*, 2013).

3.3. Méthodes

3.3.1. Examen macroscopique

Les critères de caractérisation macroscopique des matières premières ont été choisis à partir des différences observées entre sources géologiques et par la comparaison avec les résultats de l'analyse par MEB-EDXS et par DRX. Les critères suivants ont été retenus lors de l'examen macroscopique des pièces, à l'œil nu et à la loupe binoculaire :

- La structure : échantillon massif, légèrement laminé, laminé, finement laminé éventuellement globulaire.
- La texture : roches à grains fins (dans certains cas des roches silteuses ont pu être distinctement identifiées) ; grès.
- La porosité : présence ou absence de pores.
- La présence de minéraux spécifiques : grains de quartz, micas blancs, micas noirs.
- La présence d'un cortex : le type de cortex, caractéristique d'un gîte subprimaire ou secondaire, impliquant un transport (stigmates de « chocs » sur la surface dus au transport, émoussés et arrondis des angles).
- Aspect du cortex : mat ou lustré.

3.3.2. MEB-EDXS

Des analyses non-destructives par MEB-EDXS ont été réalisées sur une sélection d'échantillons (98 au total). L'instrument utilisé est un MEB JEOL 6460 LV couplé à un spectromètre de rayons X en dispersion d'énergie EDXS Oxford XMax 20. Des analyses globales (surfaces analysées : 0,5 à 2 mm^2) et ponctuelles sur les minéraux ont été réalisées, en surface, en mode *low vacuum*. La surface des échantillons a été nettoyée au préalable à l'eau distillée pour enlever les sels solubles de type chlorures ou nitrates très présents dans les sédiments.

3.3.3. Diffractométrie de rayons X (DRX)

Les échantillons analysés au MEB-EDS ont été analysés en parallèle par DRX appliquée en surface. Puis 28 d'entre eux ont fait l'objet de prélèvements afin de réaliser des analyses sur poudres, nécessaires pour identifier tous les minéraux argileux présents. Toutes les variations macroscopiques de shales et ferricrètes ont été inclues dans cette sélection. Les échantillons ont été broyés dans un mortier en agate puis dans un broyeur avec un bol de tungstène.

L'appareil de DRX utilisé (Bruker D8 Advance) est équipé d'un tube avec une anode de cuivre (longueur d'onde : 1.54 Å) et d'un détecteur CCD multicanal PSD LynxEye. Les analyses de surface ont été réalisées avec un miroir de Göbel, une fente de 1 mm à l'avant, et des fentes solaires longues devant le détecteur. Pour les poudres, une géométrie Bragg-Brentano a été appliquée, une fente divergente de 0,3 mm a été placée à la sortie du tube et un couteau positionné au-dessus de l'échantillon. Ces conditions sont optimales pour l'analyse aux bas angles et l'identification des minéraux argileux. Les poudres ont été déposées sur lames de verre (à partir d'un mélange pâteux obtenu par ajout d'eau). Cette méthode, qui a pour effet d'orienter les feuillets des minéraux argileux, permet une meilleure détection de ces derniers.

L'identification a été réalisée via la base de données PDF-4 (Powder Diffraction Files). Les différentes familles de minéraux argileux ont été identifiées à partir de la position de leur pic principal (Moore & Reynolds, 1989 ; Meunier, 2002). Pour l'illite, la forme du pic principal dépend de son état de cristallinité. Sur la fraction argileuse (<4 µm), il est possible de distinguer deux types d'illite : l'une bien cristallisée (Well crystallysed illite, WCI), qui présente une raie très fine aux alentours de 10 Å ; une autre moins bien cristallisée (Poorly cristallysed illite, PCI), qui lorsqu'elle est présente apparait sous la forme d'un épaulement de la raie principale, lui conférant un aspect asymétrique (Gharrabi *et al.*, 1998 ; Meunier & Velde, 2004). Sur la fraction globale, le pic principal autour de 10 Å peut être la somme d'autres contributions, notamment celle de micas comme la muscovite. Les déconvolutions que nous avons effectuées montrent qu'il existe toujours soit une, soit deux composantes principales dans le pic à 10 Å sur la fraction globale comme sur la fraction argileuse. La décomposition des raies de l'illite a été réalisée à partir du logiciel Fytik 2.1, en utilisant des fonctions de type Pearson 7.

3.3.4. Spectrométrie d'émission optique (CP-OES) et spectrométrie de masse (ICP-MS)

Afin d'étudier les caractéristiques géochimiques des échantillons archéologiques, 11 d'entre eux (6 shales et 5 ferricrètes) ont été analysés par ICP-OES et ICP-MS. Avant analyse, 200 mg de matière a été broyée finement dans un microbroyeur planétaire en agate, puis fondue en présence de $LiBO_2$, et enfin dissous par HNO_3. La solution a ensuite été injectée dans le système d'ionisation par induction plasma (ICP). La même préparation a été utilisée pour l'analyse des éléments majeurs et des éléments traces. L'analyse des éléments traces a été réalisée à partir d'un spectromètre ICP-MS X7 de Thermo. Pour l'analyse des éléments majeurs, un ICP-OES (Icap 6500) à torche radiale (Thermo Scientific) a été utilisé. La calibration des mesures a été effectuée à partir de 6 standards différents, tous distribués par le SARM (BR, DR-N, UB-N, AN-G, GH et IF-G). Le seuil de détection correspond à 6 fois la déviation standard du blanc. L'incertitude sur les mesures a été calculée pour 200 mg d'échantillon.

3.4. Définition du référentiel géologique

Au cours des prospections menées de 2009 à 2011, des prélèvements ont été réalisés sur les affleurements de shale et de ferricrète les plus proches du site. Au total, 12 sources ont fait l'objet de prélèvements, 7 sources de shale et 5 sources de ferricrète (soit un total de 87 échantillons ; Fig. 1). Leur étude par les mêmes méthodes que celles appliquées au matériel archéologique a permis la constitution d'un référentiel (Tab. 1 ; pour version détaillée, Dayet, 2012 ; Dayet *et al.*, 2015). L'échantillonnage a été réalisé selon les cri-

Source	*Nb*	*Formation géol.*	*Structure*	*Analyses MEB-EDS*	*Analyses DRX*	*Analyses ICP*
Shale 1	*16*	Table Mountain	Laminé	X	X	X
Shale 2	*11*	Klipheuwel	Laminé	X	X	X
Shale 3	*10*	Klipheuwel	Légèrement laminé	X	X	X
Shale 4	*5*	Klipheuwel	Laminé	X	X	
Shale 5	*2*	Table Mountain	Légèrement laminé	X	X	
Shale 6	*10*	Malmesbury	Finement laminé	X	X	X
Shale 7	*2*	Malmesbury	Finement laminé	X	X	
Ferr 1	*11*	Tertiary/quaternary, associé Malmesbury	Massif	X	X	X
Ferr 2a	*6*	Tertiary/quaternary, associé Malmesbury	Légèrement laminé, Massif	X	X	X
Ferr2b	*9*	Tertiary/quaternary, associé Malmesbury	Massif	X	X	X
Ferr 3	*2*	Tertiary/quaternary	Massif, globulaire	X	X	
Ferr 4	*1*	Tertiary/quaternary	Massif	X	X	
Ferr 5	*2*	Surface, Table Mountain ?	Légèrement laminé	X	X	
Total	*87*			*87*	*30*	*64*

Tab. 1 – Description générale du référentiel géologique et types d'analyses réalisées, par source.

tères suivants : au moins deux sources par type de formation ont été étudiées ; les sources les plus proches du site ont été échantillonnées en priorité ; des prélèvements ont été réalisés en différentes localisations et à différentes hauteurs pour chaque affleurement.

En ce qui concerne les shales, la structure est le critère premier qui permet de déterminer leur origine géologique. Une structure laminaire peu marquée caractérise les shales Klipheuwel et les shales Table Mountain, tandis que les shales Malmesbury présentent le plus souvent une lamination très fine (résultat du métamorphisme). Cette lamination fine est accompagnée d'une microstructure en paillettes constituées de feuillets de micas juxtaposés, observable par MEB-EDS. Toutefois, c'est principalement la DRX sur poudre qui permet d'identifier la formation géologique d'origine d'un échantillon, en fonction de la nature des minéraux argileux présents. La présence d'argiles interstratifiées présentant un pic aux alentours de 13 Å, ou encore la présence de chlorite, indique une affiliation aux formations Klipheuwel. Une illite bien cristallisée, présentant une raie symétrique fine est caractéristique des formations Malmesbury. Enfin, une comparaison directe entre la composition élémentaire des shales géologiques et des shales archéologiques peut être réalisée en utilisant les logarithmes des rapports de certains éléments traces (As, Ba, Cr, Sb, V) sur le fer (pour le choix de ces éléments et de la méthode de traitement, voir Dayet *et al.*, 2015). L'ensemble des résultats permet de dresser un schéma de synthèse des différentes caractéristiques de chaque source, depuis l'observation jusqu'à l'analyse par ICP-MS et ICP-OES (Fig. 2).

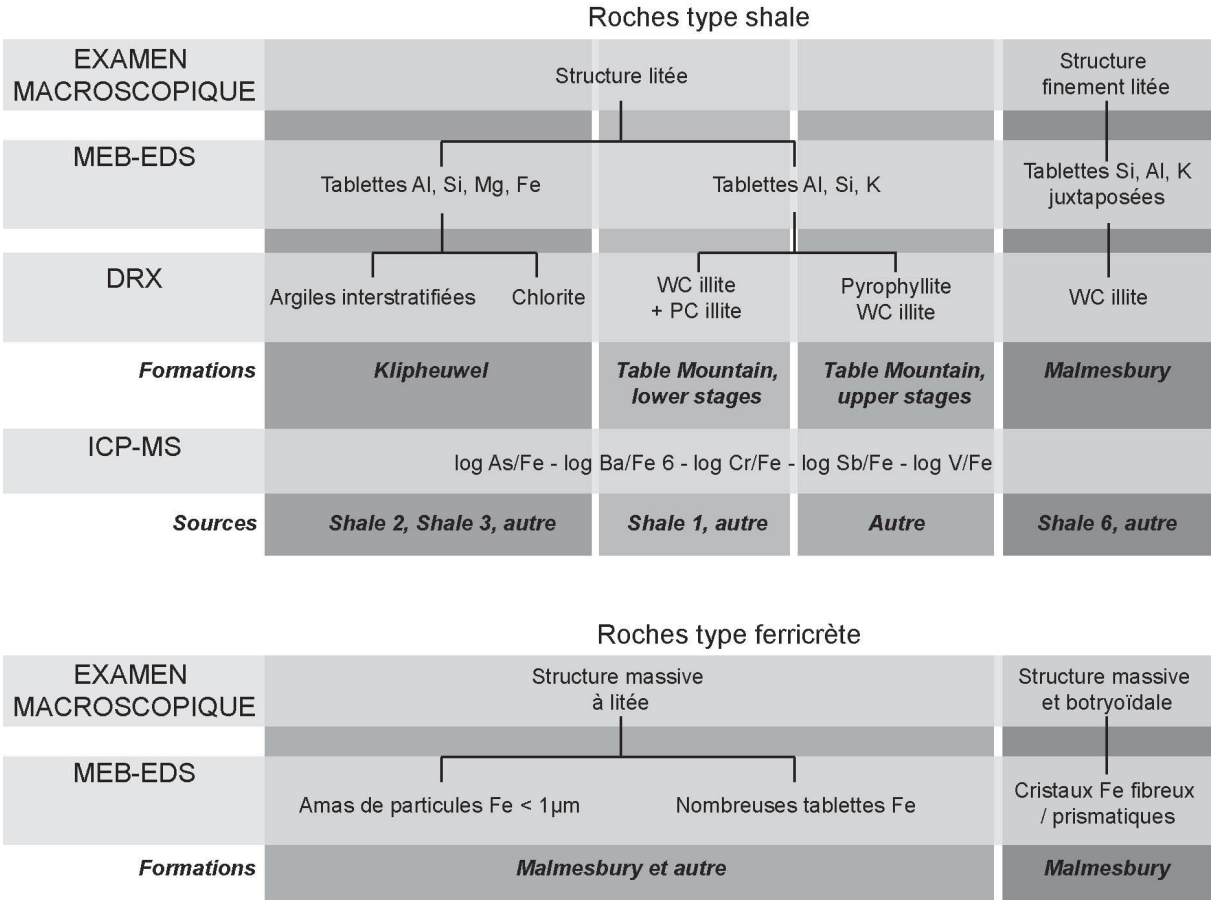


Fig. 2 – Schéma de synthèse établi à partir de différentes méthodes pour déterminer l'origine géologique et la provenance des shales et des ferricrètes dans le contexte proche de Diepkloof Rock Shelter, Afrique du Sud (réalisé à partir de Dayet, 2012 et Dayet *et al.*, 2015). WC : *well-crystallized*, bien cristallisé ; PC : *poorly crystallized*, faiblement cristallisé.

Pour les ferricrètes, la morphologie des cristaux d'oxydes de fer s'est avérée être le seul critère susceptible d'indiquer une origine géologique. Plusieurs ferricrètes des formations Malmesbury présentent en effet des cristaux prismatiques avec une disposition radiale. Ils sont parfois visibles à l'œil nu, sinon observables au MEB-EDS. Ils peuvent former des agglomérats de petites sphères (structure botryoïdale). Du point de vue géochimique, peu d'éléments traces peuvent être utilisés pour discriminer les différentes sources. Le trop faible nombre de sources étudiées ne permet pas une comparaison fiable entre le référentiel géologique et les échantillons archéologiques analysés par ICP-OES et ICP-MS.

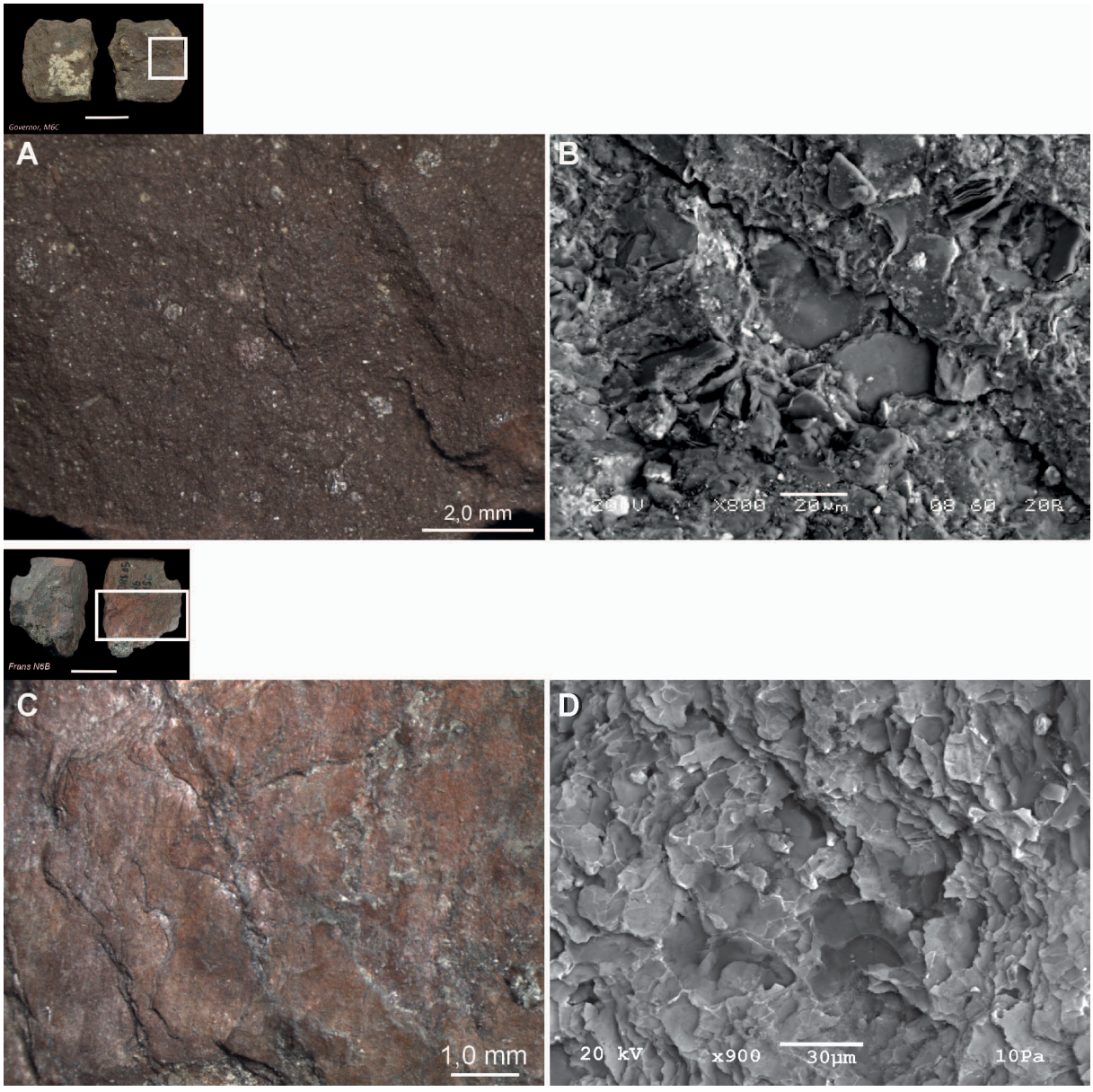


Fig. 3 – Observations à la loupe binoculaire et images MEB en électrons rétrodiffusés de différents faciès de shales et shale/ferricrètes.
A : quelques paillettes de micas sur un shale, non caractéristiques d'une provenance. B : les mêmes paillettes vues au MEB, incorporées dans une matrice argileuse. C : structure en fin feuillets d'un shale/ferricrète avec cortex d'altération en cours de formation, provenant probablement des formations Malmesbury.
D : mêmes feuillets vus au MEB, formés de fines paillettes juxtaposées, en partie ferruginisées.

4. RÉSULTATS

4.1. Shales

Au total, environ 71 % des échantillons archéologiques étudiés, provenant des couches MSA sans distinction, s'apparentent à des shales. La présence d'une source située dans l'abri même (*Shale 1*) suggère une origine locale pour ce type de roche. L'observation plus détaillée par l'étude minéralogique et géochimique permet cependant de nuancer cette hypothèse.

4.1.1. Observations macroscopiques et MEB-EDXS

A l'observation, les shales présentent une certaine variabilité. Celle-ci n'est pas nécessairement caractéristique d'une différence de provenance. La présence ou l'absence de micas, par exemple, ne détermine pas une origine géologique étant donné la variabilité interne de certaines sources, présentant différents faciès de composition et texture (en particulier la source de l'abri *Shale 1* ; Fig. 3A-B). Au contraire, la présence d'un cortex d'altération indique une position sub-primaire ou secondaire, éliminant la possibilité d'une provenance d'une source primaire telle que la source de l'abri. Environ 5 % des pièces identifiées comme des shales présentent un tel cortex (Fig. 4A). Il s'agit de pièces exogènes clairement apportées sur le site depuis d'autres sources (Tab. 2).

La structure macroscopique, si elle n'est pas aussi déterminante que la microstructure, est un paramètre important pour distinguer les shales, puisqu'elle est liée aux conditions de sédimentation et au degré de métamorphisme de la roche, comme le montrent les résultats obtenus sur le référentiel géologique. Plusieurs échantillons de shale présentent une lamination fine, potentiellement caractéristique des formations Malmesbury (Fig. 4B ; Tab. 2).

4.1.2. Composition minéralogique

L'analyse minéralogique révèle une plus grande homogénéité de composition parmi les shales. Les phases en présence sont presque toujours les mêmes : minéraux argileux de type illite et/ou mica de type muscovite, quartz, hématite, et parfois une argile de type kaolinitique. Ces caractéristiques sont en tous points similaires à celles des shales issus de la source locale. De même que précédemment, il faut en déduire qu'une grande partie des fragments de shale trouvés dans les dépôts archéologiques proviennent de l'abri.

Quelques cas diffèrent de ces généralités, permettant d'identifier des apports extérieurs (synthèse, Tab. 2). La présence d'une argile interstratifiée dans un échantillon indique qu'elle provient certainement des formations Klipheuwel. Cette pièce est cependant isolée. Alors que les deux formes d'illite sont fréquemment rencontrées dans les échantillons de shale, quelques uns ne

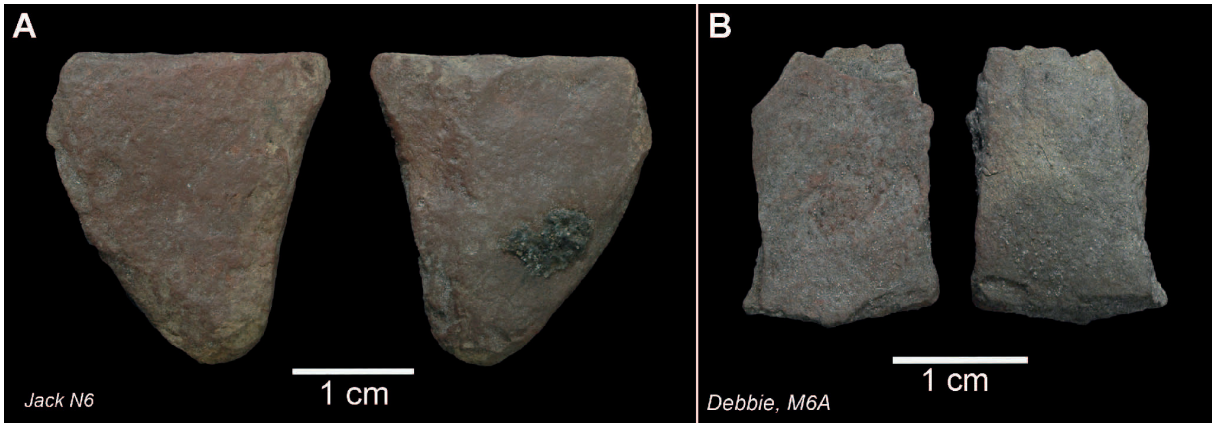


Fig. 4 – Exemples de pièces de shale exogènes et non locales. A : shale avec cortex d'altération, nécessairement apporté sur le site par l'homme ; B : shale constitué d'une fine lamination, provenant certainement des formations Malmesbury.

	Sélection Analysés, poudres	*Tous les shales (observés+analysés)*	
	N	*N*	*%*
Exogène	7	32	8.2
Dont non local	3	11	2.9
Finement laminé	*1*	*9*	*2.4*
Avec illite WCI	*1*	*1*	*0.25*
Avec illite WCI + pyrophyllite	*1*	*1*	*0.25*
Dont avec cortex	3	21	5.4
Dont avec argile interstratifiée	*1*	*1*	*0.3*
Sans signe distinctif	9	360	91.8
Total	*16*	*392*	*100.0*

Tab. 2 – Indices de provenance utilisés pour déterminer l'origine exogène ou allochtone de certains shales, ainsi que leurs nombres et proportions.

contiennent que la forme bien cristallisée, l'illite WCI (Fig. 5A-B). Cette caractéristique permet de les attribuer aux sources des shales schisteux issus des formations Malmesbury ou d'autres formations schisteuses non locales. Le faible nombre de pièces archéologiques (N = 2) pour lesquelles cette caractéristique a été observée ne permet pas de montrer de lien entre caractéristiques macroscopiques et minéralogiques. Enfin, l'une de ces pièces présente en parallèle un minéral argileux différent, la pyrophyllite, non rencontrée dans les sources que nous avons étudiées (Fig. 5C). Cette phase est typique d'un métamorphisme de très faible degré lié à la formation de montagnes (orogénèse). Elle semble fréquente dans certaines formations Table Mountain du massif du Cederberg, plus au Nord (Saggerson & Turner, 1995). Les premières formations du même type affleurent à plus de 25 km du site.

4.1.3. Éléments traces

L'analyse des éléments traces par ICP-MS a porté sur un petit nombre de pièces, pour une confirmation des observations précédentes. Quatre échantillons avec un faible degré de lamination, un avec une lamination fine, et un dernier présentant une illite WCI ont été choisis pour ce test. D'ores et déjà, il apparaît que les deux derniers échantillons ont un taux de fer supérieur à celui rencontré au sein des shales de la source locale : il dépasse les 30 % en Fe_2O_3 dans ces échantillons supposés non locaux, tandis que la teneur maximale en fer observée dans notre échantillonnage de la source Shale 1 ne dépasse pas 17 % en Fe_2O_3.

Selon le protocole défini à partir du référentiel géologique, les éléments traces les plus discriminants pour séparer les sources de shale sont As, Ba, Cr, Sb et V (voir Dayet, 2012). Afin de s'affranchir des variations en Fe_2O_3 parfois importantes au sein d'une même source, les logarithmes des rapports sur le fer ont été utilisés. Une analyse en composantes principales (ACP) réalisée à partir de Log éléments/Fe pour les 5 éléments traces sélectionnés permet de séparer les 4 sources principales de shale étudiés avec un intervalle de confiance de 90 % (PC1 et PC2, 87 % de la variance). Les coordonnées des 6 échantillons de shales archéologiques étudiés ont été calculées à partir de cette ACP (Fig. 6A). Trois d'entre eux, sans caractéristiques distinctes, entrent dans la distribution à 95 % de la source *Shale 1*, la source locale.

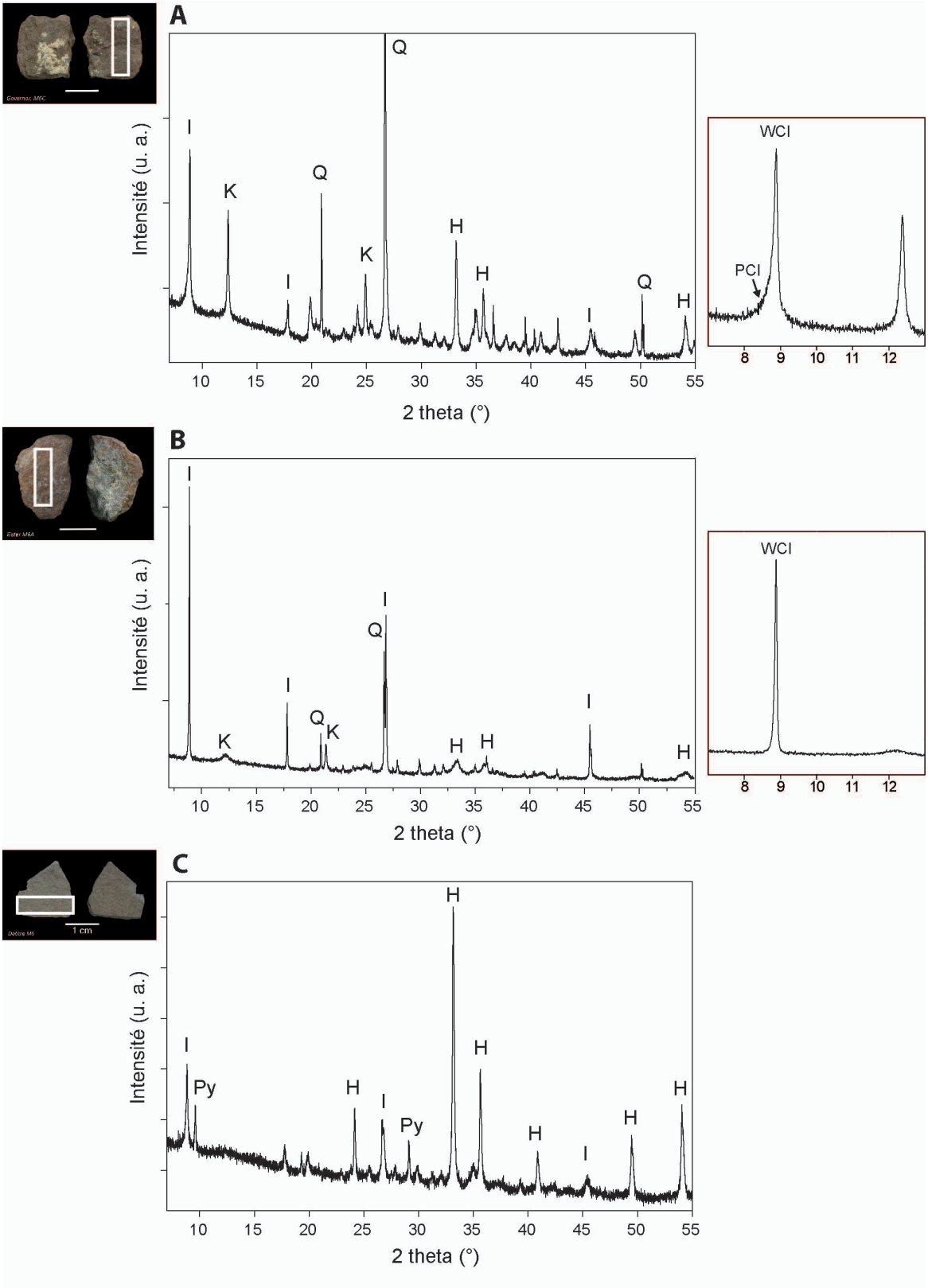


Fig. 5 – Résultats de l'analyse par DRX et phases minéralogiques présentes dans les shales permettant de leur attribuer une origine géologique. A : shale avec illite WCI et illite PCI toutes deux présentes. B : shale avec uniquement illite WCI. C : shale avec pyrophyllite et illite WCI. Abréviations : H : hématite ; I : illite/muscovite ; K : kaolinite ; Q : quartz ; Py : pyrophyllite.

L'échantillon finement laminé et l'échantillon avec illite WCI sont nettement en dehors de la distribution des sources étudiées. Enfin, le dernier est à la frontière entre les sources Shales 1et 6. Afin de départager les deux provenances, seuls deux éléments, As et Ba, ont été conservés (Fig. 6B). Cette fois, les 4 shales sans signes distinctifs entrent dans la distribution de la source Shale 1. Cette dernière étape dans les recherches de provenance, bien que restreinte, permet de valider les hypothèses émises précédemment : les shales sans signes distinctifs sont d'origine locale ; les shales finement laminés et/ou contenant une illite WCI sont au moins exogènes, potentiellement non locaux.

4.2. Shale/ferricrètes

Les pièces classées comme intermédiaires entre les shales et les ferricrètes sont les plus difficiles à aborder du point de vue de l'origine géologique. En effet, il ne s'agit pas d'un type de roche à proprement parler, ils représentent différents niveaux d'altération, et donc différentes formes géologiques, aussi bien des nodules avec cortex d'altération sub-primaire que des fragments de roches sédimentaires indurées. Très peu de formes d'altération de ce type ont été répertoriées au cours des prospections géologiques, et les rares échantillons trouvés étaient associés à des ferricrètes, eux-mêmes en relation indirecte avec des formations Malmesbury. Certains s'assimilent aux shales schisteux, de par leur structure finement laminée et leur microstructure en feuillets juxtaposés. Parmi les 42 shales/ferricrètes de l'assemblage, un seul présente de telles caractéristiques (Fig. 3C-D). De manière générale, les taux de fer des shales indurés sont globalement plus proches de ceux des ferricrètes que de ceux des shales. Ils sont donc très probablement exogènes.

4.3. Ferricrètes

Environ 19 % des pièces étudiées ont été identifiées comme des ferricrètes (N = 104). Elles peuvent d'ores et déjà être considérées comme apportées par l'homme, la source de l'abri (*Shale 1*) étant de nature géologique distincte. Le référentiel géologique des sources de ferricrètes est cependant pauvre par rapport à celui des sources de shales, ce qui ne permet pas de définir une provenance au sens strict. Toutefois, l'origine géologique des ferricrètes nodulaires peut être discutée

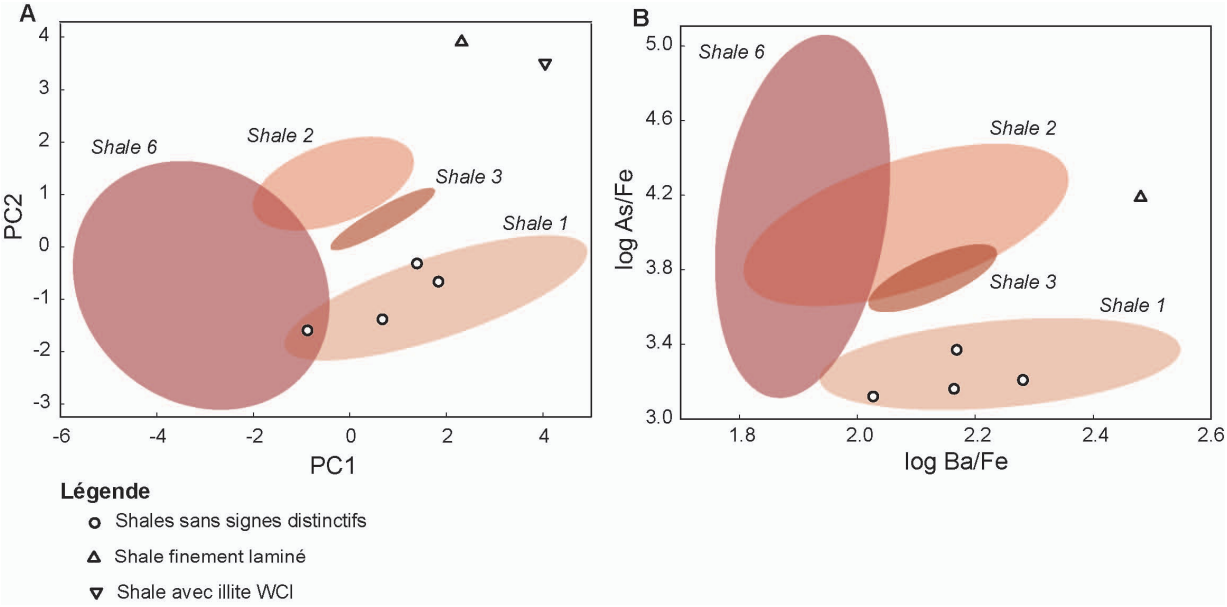


Fig. 6 – Résultats des analyses ICP-OES et ICP-MS, comparaison d'une sélection d'échantillons de shales archéologiques avec la distribution des sources principales de shale répertoriées autour de l'abri. Les logarithmes des rapports éléments traces/Fe ont été utilisés. Les ellipses représentent la distribution des points de chaque source avec un intervalle de confiance de 95 %. A : résultats de l'analyse en composantes principales à partir des éléments As, Ba, Cr, Sb et V. B : Diagramme binaire des éléments As et Ba seuls.

sur la base de quelques indices. Certaines caractéristiques des ferricrètes archéologiques, aussi bien macroscopiques que minéralogiques, tendent à montrer l'existence d'au moins deux types distincts, dont au moins un est lié à une origine géologique particulière.

Les ferricrètes présentent, comme les shales, des structures et des microstructures variables. Il existe cependant deux formes différentes de cristaux d'oxydes de fer observables à l'échelle microscopique, des cristaux en tablettes et des cristaux prismatiques ou fibreux. Ces « types » n'ont pas tous la même pertinence en termes de provenance ou d'origine. Dans le premier type (« type 1 »), les cristaux en tablettes sont soit dispersés dans la fraction fine comme les paillettes de micas (Fig. 7A), soit regroupés en amas (Fig. 7B). Il

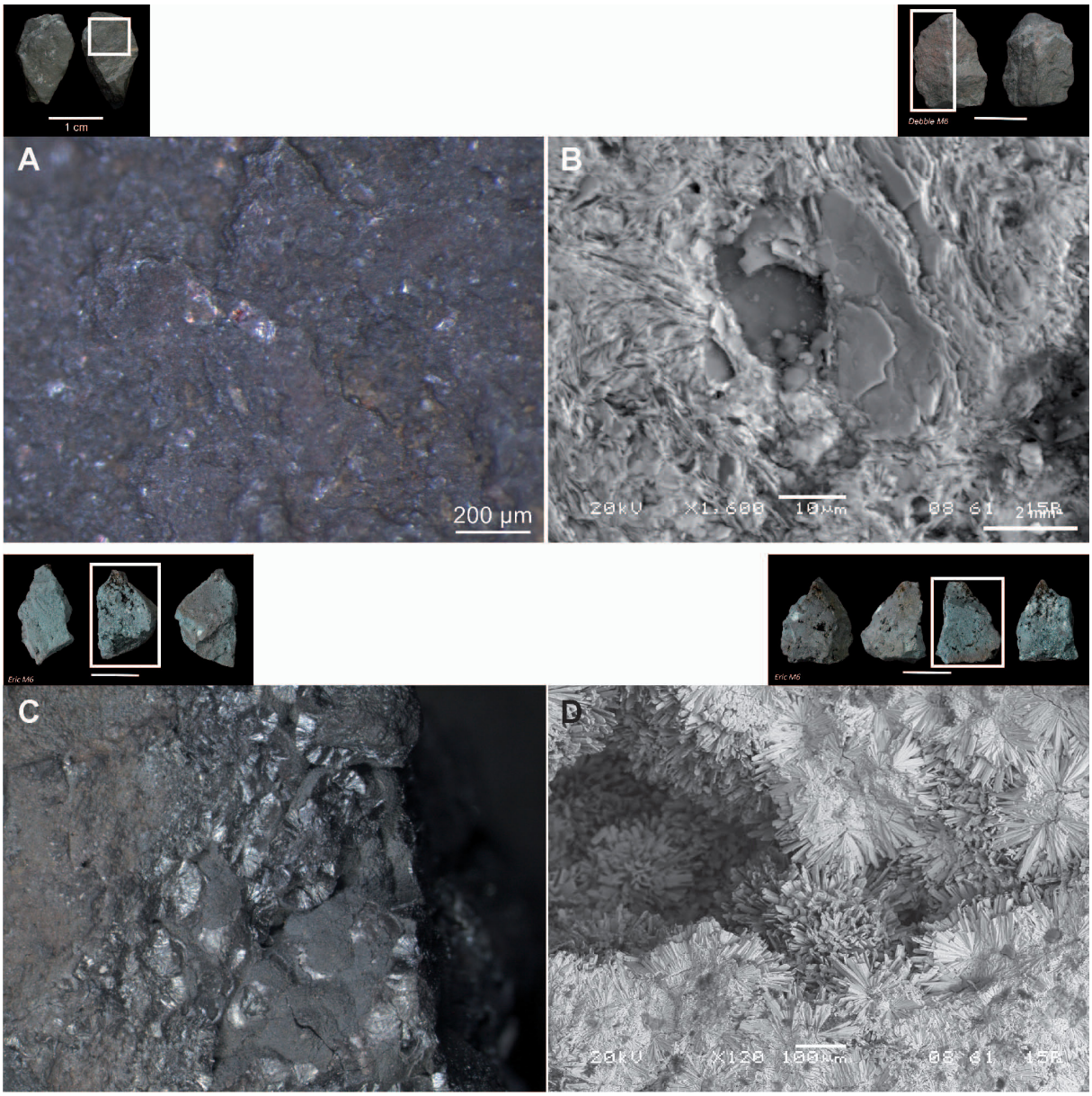


Fig. 7 – Observations à la loupe binoculaire et images MEB en électrons rétrodiffusés de différents faciès de ferricrètes. A : quelques paillettes micacées sur un ferricrète, en partie ferruginisées. B : fines tablettes d'oxydes de fer en amas, ferricrète « type 1 » (image MEB). C : globules fracturés constitués de cristaux fibreux d'oxydes de fer orientés radialement, ferricrète « type 2 » (structure botryoïdale ; photo loupe binoculaire). D : cristaux prismatiques d'oxydes de fer orientés radialement, ferricrète « type 2 » (image MEB).

s'agit probablement de formes d'altérations secondaires, ayant conservé en partie la microstructure de la roche d'origine, typiquement shales ou shales schisteux. Il est difficile de proposer une origine précise pour ces ferricrètes, en l'absence de critères similaires observés au sein du corpus géologique. Bien que les gîtes indiqués sur la carte géologique soient majoritairement associés aux formations Malmesbury, rien ne permet d'affirmer qu'ils proviennent de ce contexte. On ne peut exclure la présence de sources plus ponctuelles dans les formations plus récentes, comme l'indiquent les quelques nodules trouvés hors contexte à proximité du site (source *Ferr5*).

Un autre type s'assimile à des nodules ou fragments systématiquement massifs, avec présence de cristaux aciculaires ou prismatiques, comme observé dans plusieurs nodules géologiques des sources *Ferr2* et *Ferr3*, situés près des formations Malmesbury (« type 2 ») (Fig. 7C-D). D'après les données de terrain recueillies par ailleurs, il semble peu probable que ce type de recristallisation ait été possible au niveau des formations Table Mountain ou Klipheuwel (voir § 3.4). Ces ferricrètes sont donc très probablement non locales. Ces caractéristiques concernent environ 16 % des ferricrètes (Tab. 3).

4.4. Autres matières premières

Il existe en parallèle des deux grandes classes de roches ferrugineuses exploitées à Diepkloof quelques pièces plus rares de grès et du quartzite ferrugineux (N = 11). Certains présentent des stries d'abrasion comme les ferricrètes et les shales. Ils

	Sélection, analysés, surface	*Tous les ferricrètes (observés+analysés)*	
	N	*N*	*%*
Cristaux en paillettes (type 1)	9	9	8.7
Cristaux prismatiques (type 2)	12	17	16.3
Pas de signes distinctifs	15	78	75.0
Total	*36*	*104*	*100.0*

Tab. 3 – Indices de provenance utilisés pour déterminer l'origine non locale de certains ferricrètes, ainsi que leur nombre et proportion.

	Shale		*Ferricrètes*		*Shale/ferr.*		*Grès*		*Total*	
	N	*% total*	*N*	*% total*	*N*	*% total*	*N*	*% total*	*N*	*%*
Exogène	32	5.8	104	18.9	42	7.7			178	32.4
Dont non-local	*11*	*2.0*	*17*	*3.1*	*1*				*29*	*5.3*
Dont ind.	*21*	*3.8*	*87*	*15.8*	*41*				*149*	*27.1*
Ind. ou local	360	65.6					11	2.0	371	67.6
Total	*392*	*71.4*	*104*	*18.9*	*42*	*7.7*	*11*	*2.0*	*549*	*100*

Tab. 4 – Provenance des pièces en fonction du type de matière première, synthèse globale.

		Shale		Shale/ferr.		Ferricrètes		Autre	Total
		N	Dont non local	N	Dont non local	N	Dont non local	N	
Post-HP	Claude	3	0	0	0	1	0	1	5
	Denzil	7	0	2	0	7	2	0	16
	Danny	9	0	0	0	1	0	0	10
Late HP	Debbie	11	4	1	0	8	1	3	23
	Dean	2	0	4	0	2	0	0	8
	Darryl	4	0	1	0	2	0	1	8
	Deon	0	0	0	0	0	0	0	0
	Eric	4	0	1	0	15	11	0	20
	Ester	3	2	0	0	1	0	0	4
	Edgar	15	1	3	0	6	0	0	24
	Eve	0	0	0	0	0	0	0	0
	Eben	0	0	2	0	2	0	0	4
	Frans	2	1	1	1	4	1	0	7
Intermediate HP	Fred	4	2	1	0	2	0	1	8
	Frank	1	0	3	0	3	0	0	7
	Fox	1	0	1	0	1	0	0	3
	Fiona	1	0	1	0	0	0	0	2
	Governor	7	0	0	0	4	0	0	11
	John	15	0	0	0	5	1	0	20
	Jeff	5	0	2	0	6	0	0	13
	Joy	4	1	1	0	1	0	0	6
Early HP	Jack	3	0	2	0	7	0	0	12
	Jude	4	0	1	0	1	0	0	6
	Jess	19	0	1	0	1	0	0	21
	Julia	44	0	1	0	1	0	0	46
	Kate	31	0	1	0	0	0	1	33
	Kerry	28	0	4	0	1	0	1	34
	Kenny	6	0	0	0	2	0	0	8
	Keegan	10	0	0	0	2	0	0	12
Still Bay	Keeno	2	0	0	0	0	0	0	2
	Kim	20	0	1	0	1	0	0	22
	Larry	28	0	3	0	3	0	0	34
	Logan	25	0	1	0	4	0	0	30
	Leo	11	0	2	0	3	0	0	16
	Lynn	34	0	1	0	2	0	2	39
	Laureen	13	0	0	0	3	0	1	17
	Mike	15	0	0	0	2	0	0	17
	Total	391*	11	42	1	104	17	11	548*

Tab. 5 – Synthèse de la répartition stratigraphique des roches ferrugineuses exploitées à Diepkloof en fonction du type de matière première et de leur provenance (niveaux MSA).
*Total différent par rapport à l'assemblage non détaillé, du fait du contexte stratigraphique incertain pour une pièce de shale.

peuvent être considérés comme des matières colorantes potentielles. De telles formes de ferruginisations sont observées ponctuellement dans les environs immédiats du site, tout porte donc à penser qu'elles sont d'origine locale.

5. DISCUSSION ET CONCLUSION

Du point de vue des stratégies d'approvisionnement, les données obtenues sur les matières premières permettent d'établir des faits nouveaux en ce qui concerne le Middle Stone Age. A Diepkloof Rock Shelter, l'affleurement de shale présent dans l'abri constitue une source d'ocre facilement accessible. Or, on constate que la part de matières premières exogènes est non négligeable : elles représentent près de 32,5 % des pièces, soit un tiers de l'assemblage (N = 178), parmi lesquels 18 % de shale (N = 32 ; Tab. 4). Ceci est en accord avec les observations concernant le choix des matières premières préférentiellement exploitées par abrasion. En effet, nous avons pu constater que les traces de modifications anthropiques (abrasion) sur les shales sont rares, puisqu'observées sur seulement 5 % d'entre eux (Dayet *et al.*, 2013). Une partie pourrait donc être d'origine naturelle, provenant de l'érosion du banc de shale situé au fond de l'abri. Parmi les pièces exogènes, 5 % au moins sont issues de sources que nous avons pu établir comme non-locales. De façon notable, on constate qu'elles proviennent toutes des phases intermédiaire et tardive de l'Howiesons Poort (Tab. 5). Ceci nous indique qu'au cours de ces phases la collecte de l'ocre était corrélée à des déplacements qui pouvaient nécessiter de longues distances. Les ferricrètes sont cependant exploités dans presque tous les niveaux MSA, y compris avant le Still Bay. Leur rareté autour du site pourrait indiquer soit que les sources visitées à ces périodes se sont épuisées, soit qu'elles étaient semi-locales voire non locales.

Des propriétés spécifiques ont pu être recherchées, différentes de celles des shales locaux, soit selon des critères techniques (dureté par exemple), soit selon des critères liées à la fonction (poudre pas assez colorante, pas assez siccative, etc.). L'étude des shales peut donner quelques indications sur ces propriétés. En effet, les pièces de shale exogène analysées ont la particularité d'être parmi les plus riches en fer, d'après les résultats de l'analyse élémentaire. La ou les propriétés recherchées au cours des déplacements effectués pourraient donc être liées à la présence d'un taux de fer plus important. Ces résultats sont également en accord avec le fait que ce sont les pièces les plus riches en hématite qui sont préférentiellement abrasées (Dayet *et al.*, 2013). Ainsi, un schéma structuré de gestion des matières premières (ou modalité techno-économique) semble se dégager pour les roches ferrugineuses de ce site, orienté vers la recherche de poudre colorante rouge, très riche en hématite.

On note, de plus, que la structure micacée des shales finement laminés leur confère un éclat brillant. Cet aspect spécifique peut avoir contribué à leur sélection au moment de la collecte. En effet, s'il apparait plus cohérent de considérer qu'il existait une relation entre les critères de sélection des matières premières et la fonction du produit recherché (pigment, siccatif, charge dans les adhésifs, etc.), on ne peut exclure une sélection indépendante de tout aspect technique, basée avant tout sur l'aspect extérieur des roches, comme la brillance. Les ferricrètes du type 2, à cristaux prismatiques aux reflets métalliques remarquables, pourraient avoir eu une importance particulière du fait de cet aspect brillant en plus du taux élevé d'oxydes de fer. La « brillance » apparaît ainsi comme un critère potentiel pour expliquer le choix de sources éloignées du site, en parallèle du taux en oxydes de fer.

Du point de vue des déplacements, la vallée du Verlorenvlei, riche en sources d'ocre, pouvait servir d'axe de circulation, notamment pour la collecte des matières premières issues des formations Malmesbury, situées en amont de la rivière, au sud-est du site. Les sources de shale Klipheuwel affleurant régulièrement le long de cette vallée, en contexte local à sub-local, apparaissent cependant peu exploitées en comparaison des sources non locales. L'approvisionnement auprès de ces dernières n'est cependant pas spécifique. En effet, plusieurs sources de silcrètes, également exploitées à l'Howiesons Poort pour la réalisation d'outils, sont présentes dans la même zone. La présence d'une pièce en provenance de formations Table Mountain du Cederberg indique, quant à elle, que d'autres vallées plus au Nord ont pu être visitées. Des ressources en roches ferrugineuses y sont également disponibles, mais à des distances encore plus grandes de plus de 25 km.

L'approvisionnement en ocre, shale ou ferricrète, à Diepkloof Rock Shelter, apparaît donc obéir à des schémas variés, incluant à la fois un ramassage extrêmement local, ou des déplacements sur une journée de marche ou plus. Un approvisionnement dans d'autres vallées, telles que celles du Cederberg, où plusieurs sites MSA sont répertoriés, tels que Klein Kliphuis ou Klipfonteinrand (MacKay, 2009, 2011), ouvre la perspective de possibles échanges entre groupes. Une comparaison entre Diepkloof Rock Shelter et ces sites, par les mêmes méthodes que celles mises en œuvre dans ce travail, ainsi qu'une extension du référentiel géologique, pourront permettre d'explorer cette piste dans le futur.

Remerciements

Ce travail est le fruit de multiples collaborations. Je tiens à remercier en premier lieu mes encadrants de thèse, Floréal Daniel, Pierre-Jean Texier et Pierre Guibert, ainsi que mes collègues de l'IRAMAT-CRP2A (CNRS – Université Bordeaux Montaigne), dont plus spécifiquement François-Xavier Le Bourdonnec pour son aide sur la partie statistique et constitution du référentiel géologique, et Nadia Cantin pour ses précieux conseils sur l'identification des minéraux argileux. Je remercie chaleureusement Guillaume Porraz pour son soutien continu à ce travail et sa contribution aux prospections géologiques. Merci enfin aux relecteurs du manuscrit pour leurs commentaires constructifs. Ces recherches ont été financées par la région Aquitaine, l'Université Bordeaux Montaigne et le CNRS.

Bibliographie

BARHAM L. S., 2002. Systematic Pigment Use in the Middle Pleistocene of South-Central Africa. *Current Anthropology*, **43** (1) : 181-190.

BLATT H. & TRACY R. J., 1996. *Petrology: igneous, sedimentary, and metamorphic*. New York, W.H. Freeman, 3ème édition.

BLEEK W. H .I. & Lloyd L. C., 1911. *Specimens of Bushmanfolklore*. London, George Allen.

BORDES F., 1952. Sur l'usage probable de la peinture corporelle dans certaines tribus moustériennes. *Bulletin de la Société préhistorique française*, **49** (3) : 169-171.

BOUZOUGGAR A., BARTON N., VANHAEREN M., D'ERRICO F., COLLCUTT S., HIGHAM T., HODGE E., PARFITT S., RHODES E., SCHWENNINGER J.-L., STRINGER C., TURNER E., WARD S., MOUTMIR A. & STAMBOULI A., 2007. 82,000-year-old shell beads from North Africa and implications for the origins of modern human behavior. *PNAS*, **104** (24) : 9964-9969.

COMPTON J. S., 2011. Pleistocene sea-level fluctuations and human evolution on the southern coastal plain of South Africa. *Quaternary Science Reviews*, **30** (5-6) : 506-527.

D'ERRICO F., HENSHILWOOD C., VANHAEREN M. & VAN NIEKERK K., 2005. Nassarius kraussianus shell beads from Blombos Cave: evidence for symbolic behaviour in the Middle Stone Age. *Journal of Human Evolution*, **48** (1) : 3-24.

D'ERRICO F., SALOMON H., VIGNAUD C. & STRINGER C., 2010. Pigments from the Middle Palaeolithic levels of Es-Skhul (Mount Carmel, Israel). *Journal of Archaeological Science*, **37** (12) : 3099-3110.

DAYET L., 2012. *Matériaux, transformations et fonctions de l'ocre au Middle Stone Age : le cas de Diepkloof Rock Shelter dans le contexte de l'Afrique australe*. Thèse de doctorat non publiée, Université Bordeaux 3, Bordeaux.

DAYET L., TEXIER P.-J., DANIEL F. & PORRAZ G., 2013. Ochre resources from the Middle Stone Age sequence of Diepkloof Rock Shelter, Western Cape, South Africa. *Journal of Archaeological Science*, **40** (9) : 3492-3505.

DAYET L., LE BOURDONNEC F.-X., PORRAZ G., DANIEL F. & TEXIER P.-J., 2015. Ochre provenance and procurement strategies during the Middle Stone Age at Diepkloof Rock Shelter, South Africa. *Archaeometry*.

DU TOIT, 1954. *The geology of South Africa*. Edimburg: Oliver & Boyd, 3rd edition : 611 p.

EISELT B. S., POPELKA-FILCOFF R. S., DARLING J. A. & GLASCOCK M. D., 2011. Hematite sources and archaeological ochres from Hohokam and O'odham sites in central Arizona: an experiment in type identification and characterization. *Journal of Archaeological Science*, **38** (11) : 3019-3028.

HENSHILWOOD C. S., D'ERRICO F. & WATTS I., 2009. Engraved ochres from the Middle Stone Age levels at Blombos Cave, South Africa. *Journal of Human Evolution*, **57** (1) : 27-47.

HENSHILWOOD C. S., D'ERRICO F., YATES R., JACOBS Z., TRIBOLO C., DULLER G .A. T., MERCIER N., SEALY J. C., VALLADAS H., WATTS I., & WINTLE A. G., 2002. Emergence of Modern Human Behavior: Middle Stone Age Engravings from South Africa. *Science*, **295** (5558) : 1278-1280.

HODSGKISS T., 2013. Ochre use in the Middle Stone Age at Sibudu, South Africa: grinding, rubbing, scoring and engraving. *Journal of African Archaeology*, **11** (1) : 75-95.

HOVERS E., SHIMON I., BAR-YOSEF O. & VANDERMEERSCH B., 2003. An Early Case of Color Symbolism: Ochre Use by Modern Humans in Qafzeh Cave. *Current Anthropology*, **44** (4) : 491-522.

HOW M. W., 1962. *The mountain Bushmen of Basutoland*. Pretoria, J. L. van Schaik.

GHARRABI M., VELDE B. & SAGON J. P., 1998. The transformation of illite to muscovite in pelitic rocks; constraints from X-ray diffraction. *Clays and Clay Minerals*, **46** : 79-88.

GENESTE J.-M., 1988. Systèmes d'approvisionnement en matières premières au Paléolithique moyen et au Paléolithique supérieur en Aquitaine. *In* : M. OTTE (éd.), *L'Homme de Néandertal, la Mutation*. Liège, ERAUL, **8** : 61-70.

KIEHN A. V., BROOK G. A., GLASCOCK M. D., DAKE J. Z., ROBBINS L. H., CAMPBELL A. C. & MURPHY M. L., 2007. Fingerprinting Specular Hematite from Mines in Botswana, Southern Africa. *In* : M. D. GLASCOCK, R. J. SPEAKMAN & R. S. POPELKA-FILCOFF (éd.), *Archaeological Chemistry*. Washington, American Chemical Society : 460-479.

LOMBARD, M., 2007. The gripping nature of ochre. The association of ochre with Howiesons Poort adhesives and Later Stone Age mastics from South Africa. *Journal of Human Evolution*, **53** (4) : 406-419.

MACKAY A., 2009. *History and selection in the Late Pleistocene archaeology of the Western Cape, South Africa*. PhD Thesis, The Australian National University, Canberra, Australia.

MACKAY A., 2011. The Late Pleistocene archaeology of Klein Kliphuis Rock Shelter, Western Cape, South Africa: 2006 excavation. *South African Archaeological Bulletin*, **65**, 134-147.

MAREAN C. W., BAR-MATTHEWS M., BERNATCHEZ J., FISHER E., GOLDBERG P., HERRIES A. I. R., JACOBS Z., JERARDINO A., KARKANAS P., MINICHILLO T., NILSSEN P. J., THOMPSON E., WATTS I. & WILLIAMS H. M. (2007). Early human use of marine resources and pigment in South Africa during the Middle Pleistocene. *Nature*, **449** : 905-909.

MEUNIER A., 2002. *Argiles*, Paris. GB Sciences Publisher.

MEUNIER A. & VELDE B., 2004. *Illite*. Springer, Verlag Berlin Heidelberg.

MOORE D. M. & REYNOLDS J. R. C., 1989. *X-ray diffraction and the identification and analysis of clay minerals*. New York, Oxford University Press.

PATERSON N. & LAMPERT R. J., 1985. A central Australian ochre mine. *Records of the Australian Museum*, **37** (1) : 1-9.

PEABODY C., 1927. Red paint. *Journal de la Société des Américanistes*, **19** : 207-244.

POPELKA-FILCOFF R. S., 2006. *Applications of elemental analysise for archaeometric studies : analytical and statistical methods for understanding geochemical trends in ceramics, ochre and obsidian*. Thèse de doctorat non publiée, University of Missouri-Colombia, Colombia.

POPELKA-FILCOFF R. S., ROBERTSON J., GLASCOCK M. & DESCANTES C., 2007. Trace element characterization of ochre from geological sources. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **272** (1) : 17-27.

POPELKA-FILCOFF R. S., MIKSA E. J., ROBERTSON J. D., GLASCOCK M. D. & WALLACE H., 2008. Elemental analysis and characterization of ochre sources from Southern Arizona. *Journal of Archaeological Science*, **35** (3) : 752-762.

PORRAZ G., TEXIER P. J., RIGAUD J. P., PARKINGTON J., POGGENPOEL C. & ROBERTS D. L., 2008. Preliminary characterization of a Middle Stone Age lithic assemblage preceding the «classic» Howieson's Poort complex at Diepkloof Rock Shelter, Western Cape province, South Africa). *South African Archaeological Society Goodwin*, Series **10** : 106-121.

PORRAZ G., TEXIER P. J., ARCHER W., PIBOULE M., RIGAUD J.-PH. & TRIBOLO C., 2013. Technological successions in the Middle Stone Age sequence

of Diepkloof Rock Shelter, Western Cape, South Africa. *Journal of Archaeological Science*, **40** (9) : 3376-3400.

RIFKIN R. F., 2012. Processing ochre in the Middle Stone Age: Testing the inference of prehistoric behaviours from actualistically derived experimental data. *Journal of Anthropological Archaeology*, **31** (2) : 174-195.

RIGAUD J.-P., TEXIER P.-J., PARKINGTON J. & POGGENPOEL. C., 2006. Le mobilier Stillbay et Howiesons Poort de l'abri Diepkloof : la chronologie du Middle Stone Age sud-africain et ses implications. *Comptes rendus Palevol,* **5 (**6) : 839-849.

ROBERTS D., 2003. *Age, genesis and significance of South African coastal belt silcrètes*. Pretoria, Council for Geoscience, Memoir **95**.

RUDNER I., 1982. *Khoisan pigments and paints and their relationship to rock paintings*. Cape Town, South African Museum.

RUSSELL F., 1908. *The Pimas Indians*. Tucson Arizona, The University of Arizona Press (Édition de 1975).

SALOMON H., VIGNAUD C., COQUINOT Y., BECK L., STRINGER C., STRIVAY D. & D'ERRICO F., 2012. Selection and heating of colouring materials in the Mousterian level of es-Skhul (c.100 000 years BP, Mount Carmel, Israel). *Archaeometry*, **54** (4) : 698-722.

SAGGERSON E. P.& TURNER L. M., 1995. *A review of metamorphism in the Republic of South Africa and the kingdoms of Lesotho and Swaziland*. Pretoria,Council for Geoscience, Geological Survey of South Africa.

SORESSI M. & D'ERRICO F. 2007. Pigments, gravures, parures : les comportements symboliques controversés des Néandertaliens. *In* : B. VANDERMEERSCH & B. MAUREILLE (éd.), *Les Néandertaliens, biologie et cultures*. Paris, C.T.H.S., Documents préhistoriques : 297-309.

TAÇON P., 2004. Ochre, clay, stone and art: the symbolic importance of minerals as life-force among Aboriginal peoples of northern and central Australia. *In* : N. BOIVIN & M. A. OWOC (éd.), *Soils, stones and symbols: cultural perceptions of the mineral world*. Londres, UCL Press : 31-42.

TEXIER P.-J., PORRAZ G., PARKINGTON J., RIGAUD J.-P., POGGENPOEL C., MILLER C., TRIBOLO C., CARTWRIGHT C., COUDENNEAU A., KLEIN R., STEELE T. & VERNA C. 2010. A Howiesons Poort tradition of engraving ostrich eggshell containers dated to 60,000 years ago at Diepkloof Rock Shelter, South Africa. *PNAS*, **107** (14) : 6180-6185.

TEXIER P.-J., PORRAZ G., PARKINGTON J., RIGAUD J.-P., POGGENPOEL C., & TRIBOLO C., 2013. The context, form and significance of the MSA engraved ostrich eggshell collection from Diepkloof Rock Shelter, Western Cape, South Africa. Journal of Archaeological Science, **40** (9) : 3412-3431.

TRIBOLO C., MERCIER N., VALLADAS H., JORON J. L., GUIBERT P., LEFRAIS Y., SELO M., TEXIER P. J., RIGAUD J. P., PORRAZ G., POGGENPOEL C., PARKINGTON J., TEXIER J. P. & LENOBLE A., 2009. Thermoluminescence dating of a Stillbay-Howiesons Poort sequence at Diepkloof Rock Shelter (Western Cape, South Africa). *Journal of Archaeological Science*, **36** (3) : 730-739.

TRIBOLO C., MERCIER N., DOUVILLE E., JORON J.-L., REYSS J.-L., RUFER D., CANTIN N., LEFRAIS Y., MILLER C. E., PARKINGTON J., PORRAZ G., RIGAUD J.-P. & TEXIER P.-J., 2013. OSL and TL Dating of the Middle Stone Age Sequence of Diepkloof Rock Shelter (Western Cape, South Africa): A Clarification. *Journal of Archaeological Science*, **40** (9) : 3401-3411.

WADLEY L., 2005. Putting ochre to the test: replication studies of adhesives that may have been used for hafting tools in the Middle Stone Age. *Journal of Human Evolution*, **49** (5) : 587-601.

WADLEY L., HODGSKISS T. & GRANT M., 2009. Implications for complex cognition from the hafting of tools with compound adhesives in the Middle Stone Age, South Africa. *PNAS*, **106** (24) : 9590-9594.

WADLEY L., WILLIAMSON B. & LOMBARD M., 2004. Ochre in hafting in Middle Stone Age southern Africa: a practical role. *Antiquity*, **78** (301) : 661–675.

WATTS, 2002. Ochre in the Middle Stone Age of Southern Africa: Ritualised Display or Hide Preservative? *The South African Archaeological Bulletin,* **57** (175) : 1-14.

WATTS I., 2010. The pigments from Pinnacle Point Cave 13B, Western Cape, South Africa. *Journal of Human Evolution*, **59** (3-4) : 392-411.

ZILHÃO J., ANGELUCCI D. E., BADAL-GARCÃA E., D'ERRICO F., DANIEL F., DAYET L., DOUKA K., HIGHAM T. F. G., MARTÍNEZ-SÁNCHEZ J., MONTES-BERNÁRDEZ R., MURCIA-MASCARÓS S., PÉREZ-SIRVENT C., ROLDÁN-GARCÍA C., VANHAEREN M., VILLAVERDE V., WOOD R. & ZAPATA J., 2010. Symbolic use of marine shells and mineral pigments by Iberian Neandertals. *PNAS*, **107** (3) :1023-1028.

Adresse de l'auteur :

Laure DAYET
CNRS, UMR5060-IRAMAT
Université Bordeaux Montaigne
33607 Pessac (France)
laure.dayet@gmail.com

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 91-104

Mineralogy, Geochemistry and Microstructure of Post-Tertiary Kaolinitic Hematite from Rajasthan State, NW India

Giovanni CAVALLO & Manoj K. PANDIT

Résumé

Les échantillons d'hématite kaolinitique ont été récoltés au centre sud de la région des montagnes de Aravalli (AMR), dans le district de Chittourgarh, Rajasthan, Inde. Des analyses de la microstructure, de la composition chimique et minéralogique ont été effectuées à l'aide de MLP, MEB/EDS, DRX, FRX.

L'utilisation de techniques basées sur l'emploi du microscope et des techniques micro analytiques ont permis de faire la distinction entre une structure massive où des reliques de minéraux semblables aux plagioclases sont préservés et des microstructures semblables à des ooïdes (glaebules). Ces dernières ont été regroupées en quatre typologies en fonction de la distribution et de la concentration relative de Si, Al et Fe. En particulier, les microstructures sphériques montrent des noyaux riches en Fe entourés par une bordure fine, riche en Al (Type A), des noyaux riches en Al entourés par une bordure fine riche en Fe (Type B), Al associé à des noyaux riches en Al-Si avec une bordure en Al-Si (Type C) et des particules subarrondies riches en Al où l'Al est associé à des grains d'oxydes et à du Si (Type D). Le diamètre est compris entre 70 et 250 µm.

Tous les échantillons contiennent de la kaolinite [$Al_2Si_2O_5(OH)_4$], de l'hématite (α-Fe_2O_3) et de l'anatase (TiO_2). Sur la base du rapport ordre-désordre de la structure de la kaolinite il a été possible de rassembler les échantillons en un Type I, avec de la kaolinite ordonnée, et en un Type II où le désordre peut être mis en évidence grâce aux pics caractéristiques des diffractogrammes aux rayons X. Les pics de l'hématite et de l'anatase sont larges ce qui indique une cristallinité basse.

La majorité des échantillons ont des pertes au feu >10 %, ce qui souligne leur état très altéré. Des contenus presque négligeables en alcalis confirment cette interprétation étant donné leur mobilité élevée dans tous les processus qui se déroulent dans la croûte terrestre. Les teneurs en TiO_2 sont anormalement élevées et sont, en général, positivement corrélées avec les valeurs de Al_2O_3. Al et Ti sont tous les deux très résistants et peu mobiles pendant les processus d'hydratation et d'altération. Un rapport inversement proportionnel entre SiO_2 et TiO_2 confirme cette interprétation. Le SiO_2 est corrélé positivement avec la perte au feu ce qui confirme ultérieurement que le SiO_2 est le principal composant qui a été lessivé pendant le processus d'altération. Des valeurs élevées et variables de Fe_2O_3 indiquent soit que les roches étaient riches en Fe soit qu'il y a eu un enrichissement durant le processus d'altération. L'absence de corrélation systématique entre TiO_2 et Fe_2O_3 suggère qu'il y a eu un enrichissement secondaire en fer durant le processus d'altération. La composition chimique totale (valeurs basses pour SiO_2 et élevées pour Al_2O_3, TiO_2, Fe_2O_3) indiquent que les roches à l'origine de ces argiles hématitiques étaient de nature basique (probablement des basaltes). Leur source potentielle pourrait être la large étendue des basaltes du Deccan (Crétacé final à base du Tertiaire) qui couvrent la région de Chittourgarh. Quelques échantillons très riches en silicium peuvent être attribués à des shales et à des grès protérozoïques appartenant au Super groupe Vindhyan qui sont sous les basaltes L'altération des roches hôtes en hématite kaolinique est donc un évènement post-Tertiaire.

Ce travail représente un premier essai de caractérisation de l'hématite kaolinitique dans le but de disposer d'une banque de données ce qui est essentiel pour des études de provenance d'hématites utilisées dans d'objets archéologiques et historiques en hématite.

***Mot-clés** : ocre rouge, microstructure de l'ocre, géochimie de l'ocre, kaolinite, hématite, anatase, Rajasthan, Inde du Nord-Ouest.*

Abstract

Mineralogical, geochemical and microstructural characteristics of kaolinitic hematite samples from Chittourgarh in the south-central part of the Aravalli Mountain Region (AMR) in Rajasthan State, NW India, are presented and discussed. The analytical techniques used were PLM, SEM/EDS, XRD, XRF.

Microscopic observations and microanalysis allowed to differentiate a massive microstructure where relics of plagioclase-like minerals are still preserved and ooid-like microstructures (glaebules) can be seen. Glaebules were grouped into four types according to relative concentrations of Si, Al, and Fe and their distribution. The rounded microstructures exhibit Fe-rich cores surrounded by a thin Al-rich rim (Type A), Al-rich cores surrounded by a thin Fe-rich rim (Type B), Al associated with Al-Si rich cores by a Al-Si rim (Type C) and Al-rich sub-rounded particles where Al is both related to oxide grains and to Si (Type D). The diameter ranges between 70 to 250 μm.

All the samples contain kaolinite [$Al_2Si_2O_5(OH)_4$], hematite (α-Fe_2O_3) and anatase (TiO_2). Based on the order-disorder in kaolinite structure it was possible to group the samples in Type I where ordered kaolinite was detected and Type II where disorder is clearly displayed by characteristic XRD reflections. Hematite and anatase reflections are rather broad indicating poor-crystalline mineral phases.

The majority of the samples have >10 % LOI (loss on ignition), underlining their heavily altered nature. Almost negligible alkali contents further substantiate this interpretation as these are highly mobile in any crustal process. TiO_2 values are unusually high and also generally correlate positively with Al_2O_3. Both Al and Ti are extremely resistant and immobile during hydration and alteration processes. An inverse relationship between SiO_2 and TiO_2 also attests to this proposition. The SiO_2 correlated positively with LOI, further confirming that the SiO_2 was the major component that was lost during alteration. High and variable Fe_2O_3 values show both an iron rich rock as well as iron enrichment during alteration process. Lack of any systematic correlation between TiO_2 and Fe_2O_3 suggests secondary iron enrichment during alteration. Overall geochemistry (low SiO_2, high Al_2O_3, TiO_2 and Fe_2O_3) indicate basic rocks (most likely, basalt) as the provenance for these iron rich clays. The potential source could be the vast expanse of Late Cretaceous – Early Tertiary Deccan basalts that are exposed in the Chittourgarh region. Some high silica samples may be attributed to shale and sandstones belonging the Proterozoic Vindhyan Supergroup that underlie the basalts. The alteration of host rocks into secondary kaolinitic hematite is therefore a post Tertiary event.

This study is the first attempt to characterize kaolinitic hematite in order to develop a preliminary database essential for provenance studies of hematite used in archaeological and historical artefacts.

Keywords: red ochre, ochre microstructure, ochre geochemistry, kaolinite, hematite, anatase, Rajasthan, NW India.

1. INTRODUCTION

In the economic geological context the term "ochre" is loosely used to designate clay minerals-rich deposits pigmented with Fe-oxides and/or Fe-oxi-hydroxides; in addition, the same term is also used to designate natural Fe-based yellow and red pigments, also known as earthy pigments (Hradil *et al.*, 2003), widely used since the Palaeolithic times in burial practices, food preservation, decoration of the body, etc. However the most common application has been in the field of visual arts (Delamare & Guineau, 2000). Their wide occurrence in different geological environments, stability in all the organic and inorganic media and compatibility with all pigments and dyes, have been the guiding factors in deciding their popularity as the most common material in wall decorations and paintings (Helwig, 2007).

Although there is a general lack of consensus on the terminological meaning of ochre, it will be used here with the following connotation: clay minerals rich of Fe-based oxides having colouring power, generally in association with non-colouring mineral phases whose composition depends on the host and mother rocks, extent of alteration, eventual transport and depositional mechanisms.

Rajasthan State (NW India) is the leading producer of ochre in India (Mineral Directory of Rajasthan, 2008) where red and yellow deposits are reported from almost all the districts. In this paper the characteristics of red ochre collected from mines located in Chittourgarh district in the south-eastern part of the State will be discussed.

The research was aimed at characterizing the ochre deposits by correlating the mineralogical and chemical composition with the geological environment in order to infer the source and to identify possible markers useful for archaeometric purposes. Therefore, the present study represents a first step that would lead to implementation in archaeological and historical contexts as the characterization of the raw materials can be related with artworks for tracing the provenance (Popelka-Filcoff *et al.*, 2008; Grygar *et al.*, 2003). The other scientific significance of the study is that it provides mineralogical and geochemical data concerning Fe-based materials (Cavallo & Zorzin, 2008); micro-structural characteristics have provided useful information on the relationship between clay minerals and hematite (Hradil *et al.*, 2003). This basic information already is useful for proper interpretation of archaeologically significant ochre as the presence of mineral

phases such as calcite and dolomite could be interpreted as voluntary addition in the form of extenders wherever they are regarded as impurities inherited from the parent rock. Finally, this topic is quite new in India as no previous studies are available except those in the field of economic geology (Shekhawat & Sharma, 2009).

2. GEOLOGICAL SETTING

Precambrian rocks in NW India occur as a NE-SW trending, >750 km long tract beginning from south of Delhi in the north, to northern Gujarat in south. This terrain, also known as Aravalli Mountain Region (AMR) exposes two Proterozoic metasedimentary sequences: Aravalli (Paleoproterozoic) and Delhi (Mesoproterozoic) fold belts, deposited over an Archean basement popularly known as the Banded Gneiss Complex BGC (BGC: Heron, 1953; Fig. 1). A number of white mica and sericite rich deposits (<1 m to >10 m thick) occur in a linear array all along the Archean – Proterozoic contact around Udaipur city. These have been described as 'paleosol' or 'fossil soil' which show a gradational contact with the basement granite-gneisses (BGC) and a sharp one with the overlying metasediments of Aravalli Supergroup, characteristic of preserved in-situ soil profiles (Sreenivas *et al.*, 2001; Pandit *et al.*, 2008; de Wall *et al.*, 2012). Precambrian geological history of this region is marked with multiple phases of deformation and metamorphism, and the present day outcrop pattern is a result of the processes which have controlled the weathering conditions. The basement rocks are directly juxtaposed to the Meso-Neoproterozoic Vindhyan Supergroup along the Great Boundary Fault. In contrast to the other sequences, the Vindhyan rocks (sand – carbonate – shale) are undeformed and seen as horizontal to subhorizontal exposures in an East – West trending sickle-shaped basin running across central India. In the southern part of AMR, the Precambrian rocks are directly covered by Late Cretaceous – Early Paleogene Deccan Flood Basalts and Quaternary alluvium. The sampled sites for the present study are located in Chittourgarh district forming the south-central part of the AMR (Fig. 1).

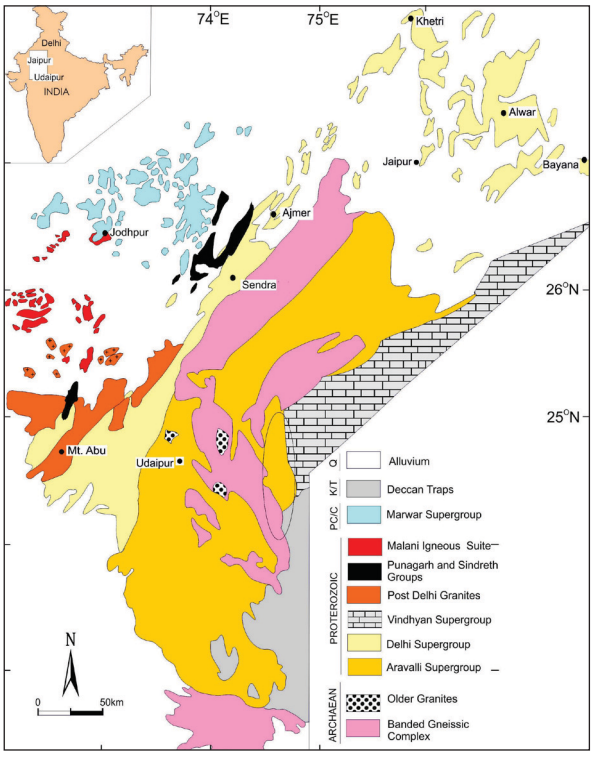


Fig. 1 – Schematic geological map of Rajasthan with indication (black ellipse) of the studied area. Map modified from van Lente *et al.*, 2009.

3. MATERIALS AND METHODS

Field visits were conducted at the active and abandoned mining pits for documenting geological observations and for collecting hand samples from the working faces or any other suitable surface. The description and location of the collected samples are reported in table 1.

Generally the samples are homogeneous in colour and textural characteristics. Polished thin sections of standard thickness (~30 µm) were prepared for examination in transmitted and incident lights using a Zeiss polarizing microscope. Selected areas of the thin sections were examined using a Scanning Electron Microscope coupled with an Energy Dispersive Spectrometer (SEM/EDS) in order to obtain the chemical elemental composition and for the mapping. A Jeol JSM-5910LV Scanning Electron Microscope was used, operating at the following conditions: 20 kV, LV mode (Pressure = 15 Pa), working distance 9 mm, spot size 37. The mineralogical composition was determined by means of X-Ray Diffraction (XRD) on randomly oriented powders of appropriate size (<150 mesh) using a Philips X' Pert Pro type PW

Samples	*Description*	*Location*
CH-02	Massive clay-rich Fe-oxides exhibiting small nodules ∅ = 3-5 mm	N 24°47′00″ E 74°35′00″
CH-03a	Massive and homogeneous clay-rich Fe-oxides exhibiting white variegations	N 24°47′00″ E 74°38′06″
CH-09a	Massive and homogeneous clay-rich Fe-oxides	N 24°52′18″ E 74°35′22″
CH-11b	Massive clay-rich Fe-oxides exhibiting off-white areas	N 24°47′06″ E 74°34′52″
CH-13b	Massive bauxite associated with minor clay-rich Fe-oxides	N 24°48′40″ E 74°35′04″
CH-15	Massive clay-rich Fe-oxides with off-white areas	N 24°49′02″ E 74°35′18″
CH-16	Centimetre massive Fe-oxides nodules intercalated with clay-rich Fe-oxides	N 24°24′06″ E 74°45′14″
CH-17	Massive and homogeneous clay-rich Fe-oxides; small nodules are visible	N 24°38′59″ E 74°31′40″

Tab. 1 – List of the collected samples, description and location.

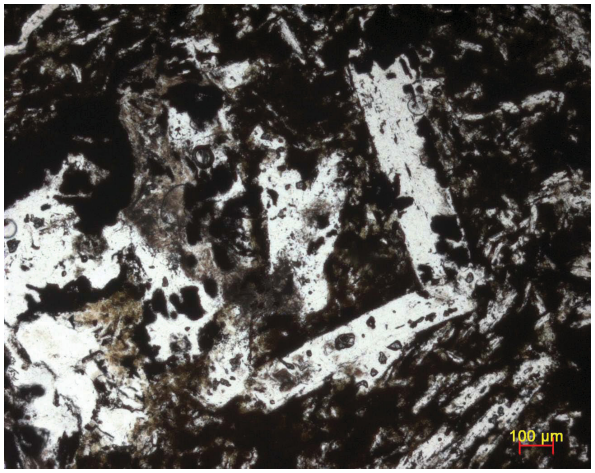


Fig. 2:1 – Sample CH15 (PPL). Plagioclase-like relics (pseudomorphs of clay minerals after plagioclase) in an isotropic ground mass (texture indicating basaltic source rock).

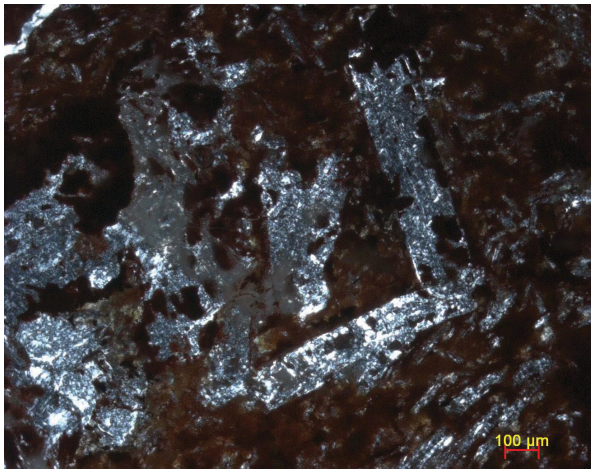


Fig. 2:2 – As figure 4:1, under XPOL.

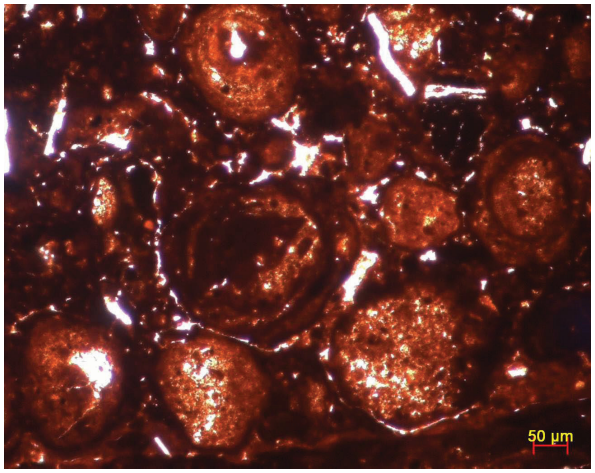


Fig. 2:3 – Sample CH02 exhibiting iron-rich glaebules cemented with secondary calcite (PPL).

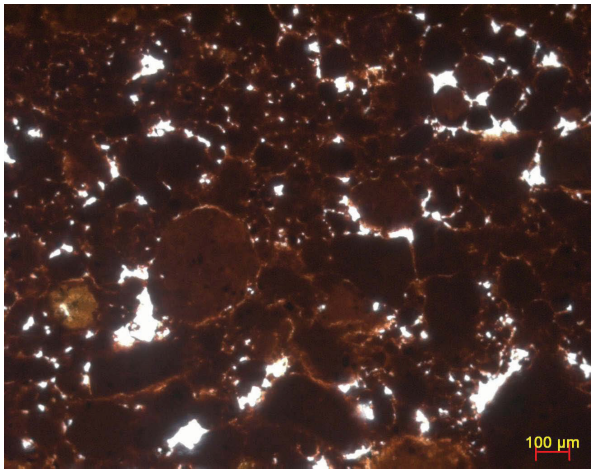


Fig. 2:4 – Sample CH17 exhibiting iron-rich glaebules cemented with secondary calcite (PPL).

Samples	*Description*
CH-02	Iron-rich based matrix and isotropic minerals having plagioclase shape. Sericite coming from the alteration of feldspars fills cavity and fissures. Presence of iron-rich ooids-like morphologies (glaebules) ∅~200-300 µm. Feldspars relics still visible.
CH-03a	Iron-rich based matrix and isotropic minerals having plagioclase shape.
CH-09a	Iron-rich based matrix and isotropic minerals having plagioclase shape.
CH-11b	Iron rich based matrix with secondary calcite veins.
CH-13b	Iron-rich based matrix associated with fine clay minerals with large crystals of calcite.
CH-15	Iron-rich based matrix associated with sericite and plagioclase shaped minerals. The basaltic texture of the mother rock is very well preserved.
CH-16	Iron-rich based matrix associated with traces of quartz, altered plagioclases and clay minerals.
CH-17	Iron-rich based matrix exhibiting iron-rich ooids-like morphologies (glaebules) ∅ ~100-200 µm; fractures are filled with secondary calcite. Rounded quartz grains are still preserved.

Tab. 2 – Characteristics of the collected samples under PLM.

3040/60; X-ray tube with Cu anti-cathode (40 kV, 20 mA). Working conditions: speed 1º 2θ/min, range 2°-65° 2θ.

XRF analysis of the major elements was performed at Wadia Institute of Himalayan Geology (India) on pressed pellets using Siemens SRS 3000 X-Ray Fluorescence Sequential Spectrometer. LOI (Loss on Ignition) contents were calculated as loss in weight after heating at 1000 °C and the elimination of hydration water at 110 °C.

4. RESULTS

4.1. Polarised Light Microscopy (PLM)

The characteristics of the studied samples under optical microscope are reported in table 2.

All the samples exhibit a reddish-brown isotropic groundmass and, in most cases, relics of plagioclase-like minerals (Fig. 2:1-2) where small and fibrous minerals are clearly visible (clay minerals); in other cases (samples CH02, CH17) rounded morphologies similar to ooids were detected. In particular, sample CH02 displays iron-rich glaebules with and without concentric fabric (Fig. 2:3); iron-rich glaebules in the sample CH17 do not show any concentric fabric (Fig. 2:4). The lack of concentric fabric corresponds to the undifferentiated fabric proposed by Brewer and Sleeman (1964). The iron-rich glaebules are the consequence of ferruginous segregation typical of tropical and sub-tropical regions (Singh & Gilkes, 1996).

Opaque minerals of irregular shape are quite abundant in all the samples. Deep red hexagonal crystals of hematite are clearly recognizable as very thin plates.

Samples CH11b, CH13b and CH17 show the presence of calcite as the cementing material derived from dissolution and re-precipitation processes; rhombohedral crystals showing multiple twinning are seen well preserved in the sample CH13b.

Detrital fraction is represented by small amounts of quartz (samples CH11b, CH17).

4.2. Scanning Electron Microscopy coupled with Energy-Dispersive X-Ray Spectrometer (SEM/EDS)

Selected areas of a few samples were examined under PLM and considered for in-depth studies (samples CH02, 15, 16, 17) focusing mainly on the materials exhibiting an ooid-like morphologies corresponding to glaebules (CH02 and CH17).

Sample CH02 exhibits different types of rounded morphologies ∅ ~100 µm where Si, Al, Fe and Ti have variable concentration. These microstructures are clearly distinguishable from the surrounding matrix and can be grouped as follows according to the relative amount displayed in the X-ray mapping (Fig. 3:1-5; Fig. 4:1-5):

- Type A: Fe-rich cores ∅ ~70 µm surrounded by a thin Al-rich rim where Fe and Al are individual

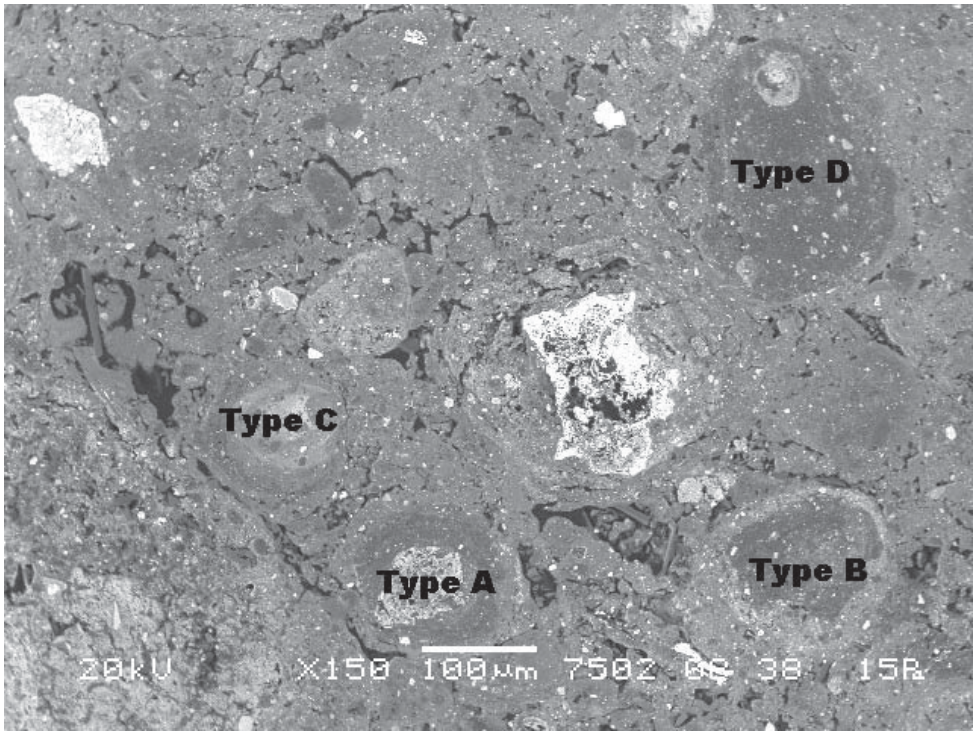


Fig. 3:1 – BSE image of an area corresponding to sample CH02. The four types A-D of glaebules are presented.

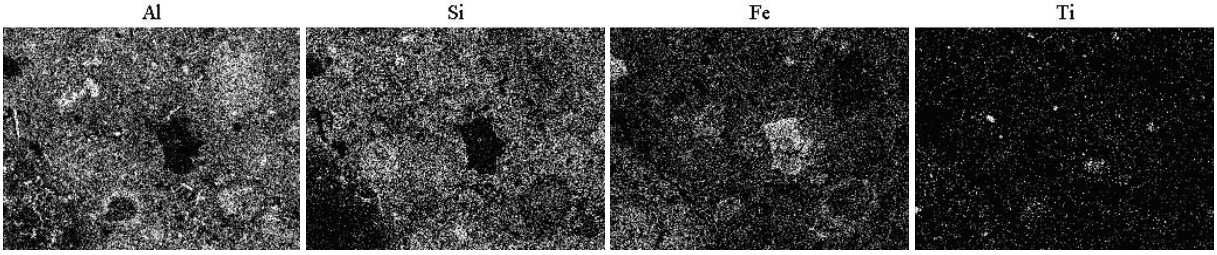


Fig. 3:2 – Al X-ray mapping. **Fig. 3:3** – Si X-ray mapping. **Fig. 3:4** – Fe X-ray mapping. **Fig. 3:5** – Ti X-ray mapping.

grains (Fe and Al oxides) and Al is also related with Si. It is not possible to exclude a correlation between Fe-Al-Si as well.

- Type B: Al-rich cores ∅ ~100 µm, occasionally ∅ ~250 µm, surrounded by a thin Fe-rich rim where Al is both related with individual grains (Al-oxides) and Si. Fe is in the form of individual grains (Fe-oxides) and a correlation between Fe-Al-Si cannot be excluded as well due to Al replacement.
- Type C: Al-Si rich cores ∅ ~85 µm where Al is both related to Al-oxides individual grains and to Si surrounded by a Al-Si rim.
- Type D: Al-rich sub-rounded particles ∅ ~130-210 µm where Al is both related to Al-oxides individual grains and to Si.

Al and Fe-based individual grains are normally very small having size ranging between 5-10 µm; Fe-based individual grains exhibiting irregular morphology (75 µm large and 115 µm long) are quite rare. Ti is spread within the Si-Al matrix.

Sample CH17 exhibits glaebules (∅ ~200-400 µm) without internal micro-structure composed of Si, Al and Fe and cemented with calcite (Fig. 5:1-6). A detailed analysis of one of them confirms the association between Al and Si (clay minerals of the kaolin group). Fe is spread and individual Fe, Ti and Fe-Ti-containing grains are clearly recognizable. It is not possible to exclude Al replacement by Fe in the clay minerals structure as for the previous groups.

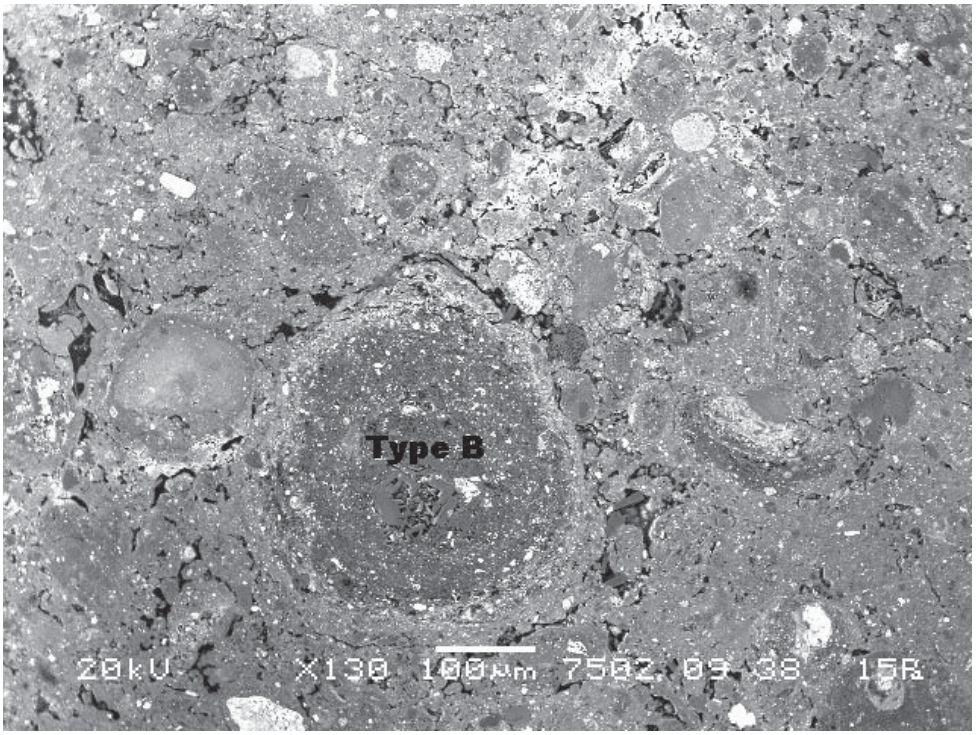


Fig. 4:1 – BSE image of an area corresponding to sample. CH02. Glaebule type B is displayed.

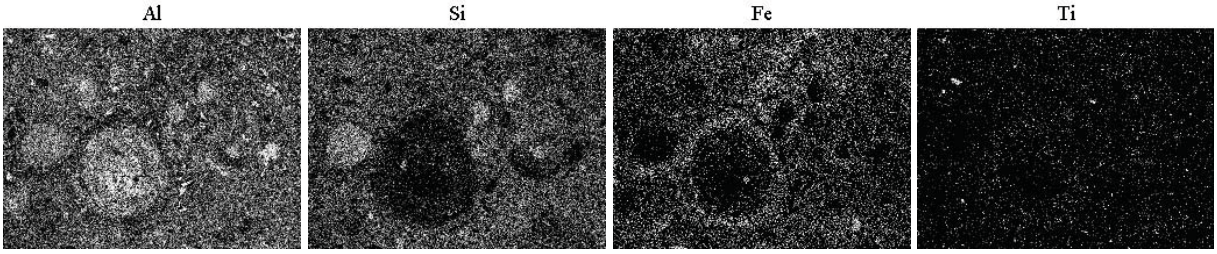


Fig. 4:2 – Al X-ray mapping. **Fig. 4:3** – Si X-ray mapping. **Fig. 4:4** – Fe X-ray mapping. **Fig. 4:5** – Ti X-ray mapping.

Many samples analysed under PLM (Cavallo & Pandit, 2008) exhibit tabular pseudo-crystals distributed randomly within the ferruginous matrix looking like plagioclases as reported in figure 2:1 and table 1. Al and Si elemental X-ray maps (sample CH15) suggest they correspond to clay minerals of the kaolin group (Fig. 6:1-6); minor quantities of Fe and Ti are associated as well. Crystals of hematite (maximum grain size ~200 µm) were also detected.

4.3. X-Ray Diffraction (XRD)

Mineral phases of the collected samples are reported in table 3.

All the samples contain kaolinite, hematite and anatase. Kaolinite exhibits different degrees of structural order-disorder (Brindley, 1984).

The sample CH13b (Fig 7) shows the basal reflections 001 and 002 at 12.4° and 24.9° 2θ sharp and intense; the reflections in the range 20°-33° 2θ are well defined; finally, in the range 35°-40° 2θ the reflections corresponding to the indices 131, 201 and basal 003, form two groups of triplets. All these reflections indicate an ordered structure.

In all the remaining samples the disorder increases (Fig. 8): the basal reflections 001 and 002

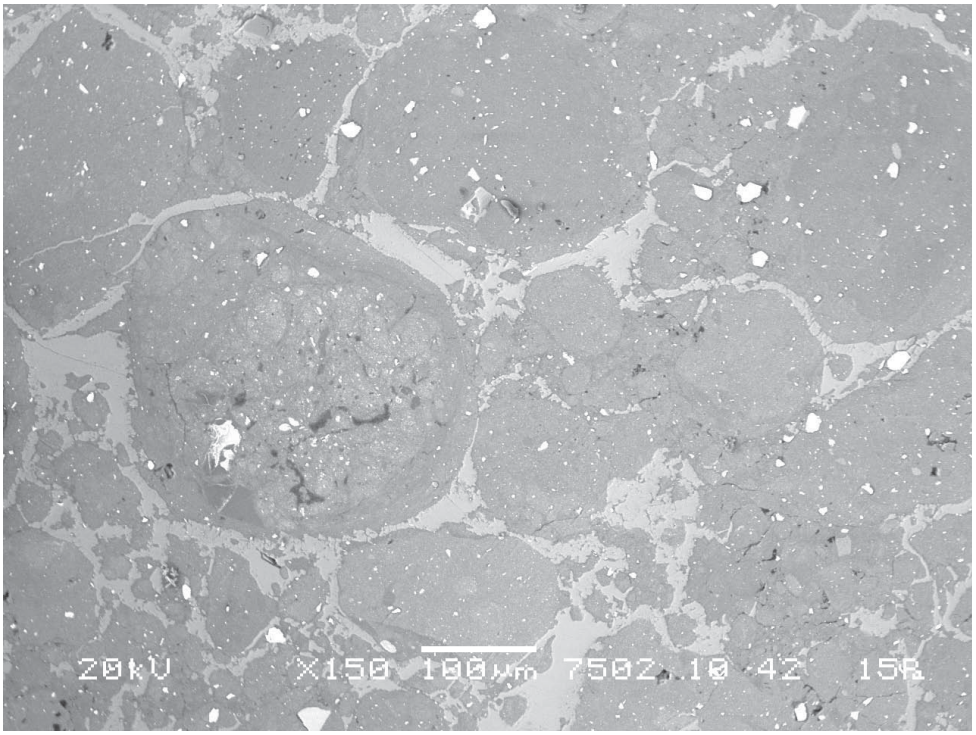


Fig. 5:1 – BSE picture of an area corresponding to sample n. CH17: glaebules type B showing shrinkage cracks and incorporation of detrital grains.

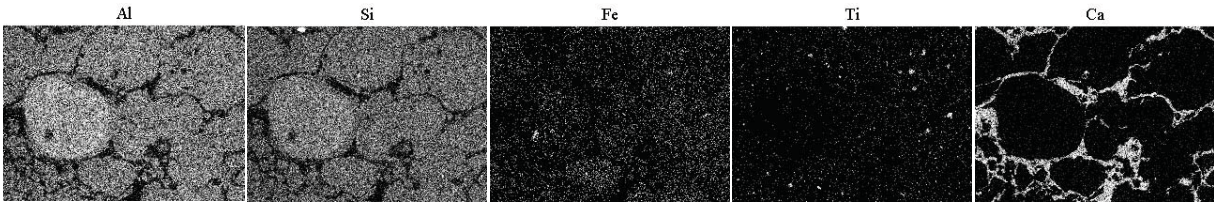


Fig. 5:2 – Al X-ray mapping.

Fig. 5:3 – Si X-ray mapping.

Fig. 5:4 – Fe X-ray mapping.

Fig. 5:5 – Ti X-ray mapping.

Fig. 5:6 – Ca X-ray mapping.

are less sharp; the reflections in the range 20°-33° 2θ are blurred (the reflection at about 20.4° 2θ is missing) and the two triplets become two doublets.

According to the characteristics of the reflections, kaolinite structure can be classified in two groups:

- Type I: ordered kaolinite (samples CH11b, CH13b, CH17);
- Type II: disordered kaolinite (samples CH02, CH3a, CH9a, CH15, CH16).

For all the samples the reflections due to hematite are broad indicating poor-crystalline mineral; the same considerations are valid for anatase. In the samples CH09a (probably), CH13b and CH16 hematite is associated with small quantities of goethite.

Gibbsite [$Al(OH)_3$] shows the sharp reflections 002 (100 %) and 110 (40 %) in all the samples where it was detected (CH02, CH13b).

Calcite [$CaCO_3$] was detected in the samples CH11b, CH13b, CH17. Quartz [SiO_2] in the samples CH11b, CH16, 17 and Zircon [$Zr(SiO_4)$] in the sample CH16 were finally detected.

4.4. X-Ray Fluorescence (XRF)

The results of XRF-analyses of the collected samples are presented in table 4.

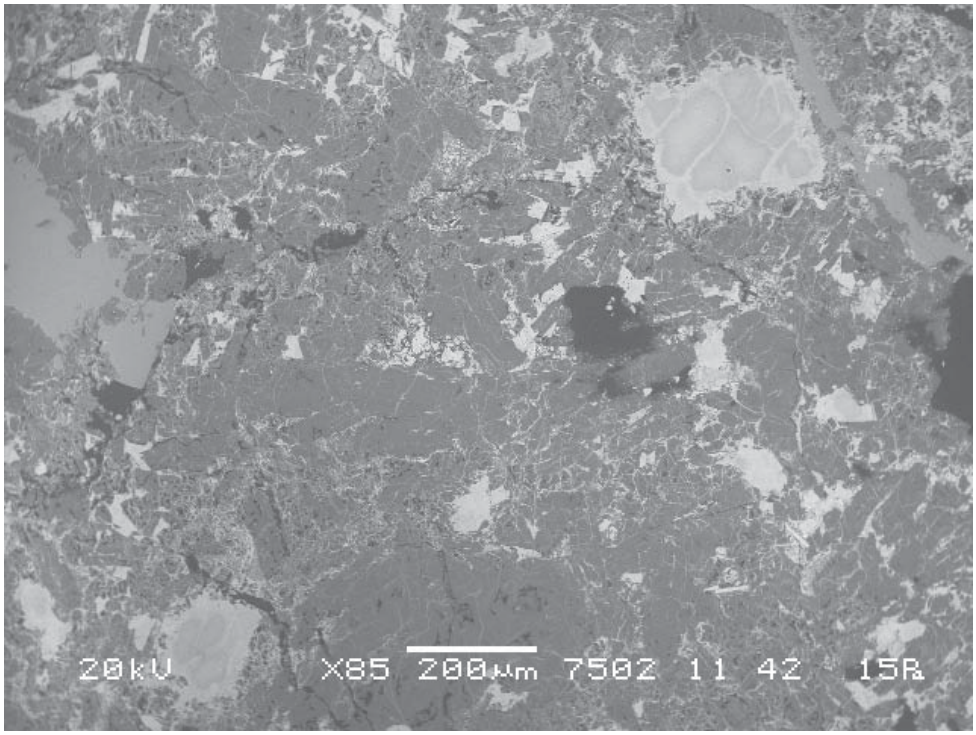


Fig. 6:1 – BSE image of an area corresponding to sample CH15. Crystals of hematite are high-reflective grains in the upper (right side) and lower part (left side) of the micrograph.

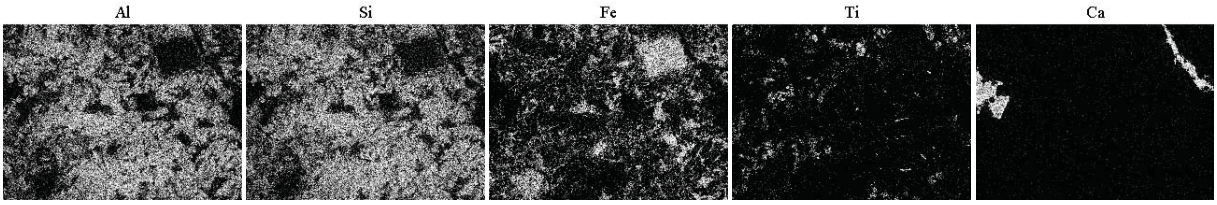


Fig. 6:2 – Al X-ray mapping.

Fig. 6:3 – Si X-ray mapping.

Fig. 6:5 – Ti X-ray mapping.

Fig. 6:4 – Fe X-ray mapping.

Fig. 6:6 – Ca X-ray mapping.

Samples	Minerals
CH-02	Hem, Gbs, Kln, Ant
CH-03a	Hem, Kln, Ant
CH-09a	Kln, Hem, Ant, Gt?
CH-11b	Qtz, Kln, Hem, Ant, Cal
CH-13b	Kln, Hem, Ant, Gt, Gbs, Cal
CH-15	Hem, Kln, Ant
CH-16	Qtz, Hem, Ant, Gt, Kln, Zrn,
CH-17	Kln, Hem, Cal, Ant, Qtz

Hem = hematite
Gbs = gibbsite
Kln = kaolinite
Ant = anatase
Gt = goethite
Qtz = quartz
Cal = calcite
Zrn = zircon

Tab. 3 – XRD of the samples with indication of the mineral phases.

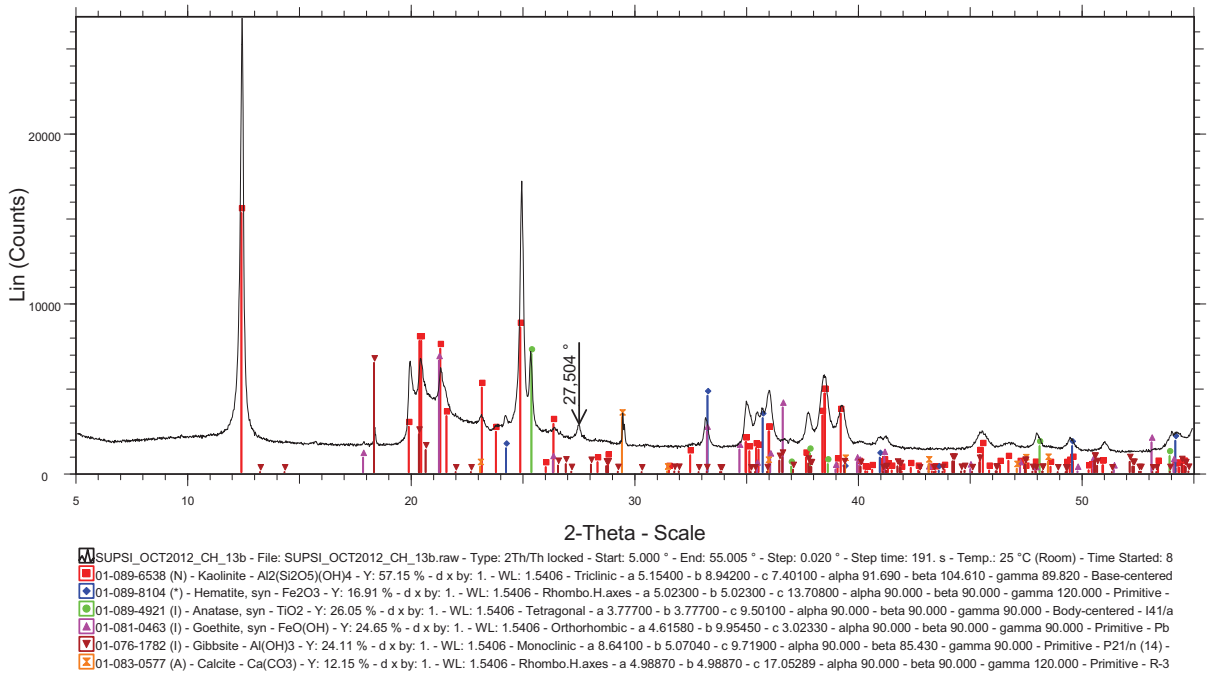


Fig. 7 – XRD of the sample CH13b displaying well-ordered kaolinite.

All samples have >10% LOI (except sample CH11b) underlining their heavily altered nature. Negligible alkali contents, further substantiate this interpretation as these are highly mobile in any crustal process. Both Al and Ti are extremely resistant and immobile during hydration and alteration processes. An inverse relationship between SiO_2 and TiO_2 also attests this proposition (Tab. 4:1).

TiO_2 values are unusually high and also correlate positively with Al_2O_3 (Tab. 4:2). The SiO_2 correlates positively with LOI, further confirming that the SiO_2 was the major component lost during alteration. High and variable Fe_2O_3 values suggest both an iron rich source rock as well as iron enrichment during alteration process; Fe_2O_3 enrichment is negatively correlated with SiO_2 (Tab. 4:3); SiO_2 is positively correlated with Al_2O_3 (Tab. 4:4) indicating both components related with kaolinite with the exception where quartz and gibbsite are present. Al_2O_3 values are negatively correlated with Fe_2O_3 (Tab. 4:5).

Lack of any systematic correlation between

Samples	SiO_2	Al_2O_3	CaO	MgO	Fe_2O_3	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	LOI
CH02	17.33	24.67	0.08	0.00	44.55	0.00	0.00	6.58	0.05	11.58
CH03a	25.23	21.38	0.13	0.00	35.52	0.00	0.00	4.62	0.23	11.24
CH09a	26.34	22.09	0.14	0.12	29.07	0.00	0.00	9.69	0.09	10.58
CH11b	33.02	16.60	1.16	0.00	35.35	0.00	0.14	3.19	0.04	8.16
CH13b	38.76	34.46	2.23	0.00	3.55	0.00	0.00	3.12	0.00	14.79
CH15	32.01	24.66	0.71	0.07	21.90	0.00	0.00	5.10	0.05	13.09
CH16	16.20	14.93	0.05	0.00	50.00	0.00	0.04	2.48	0.27	13.26
CH17	29.62	24.50	5.36	0.06	19.22	0.00	0.00	5.61	0.04	14.47

Tab. 4 – XRF analysis of the major elements (wt%).

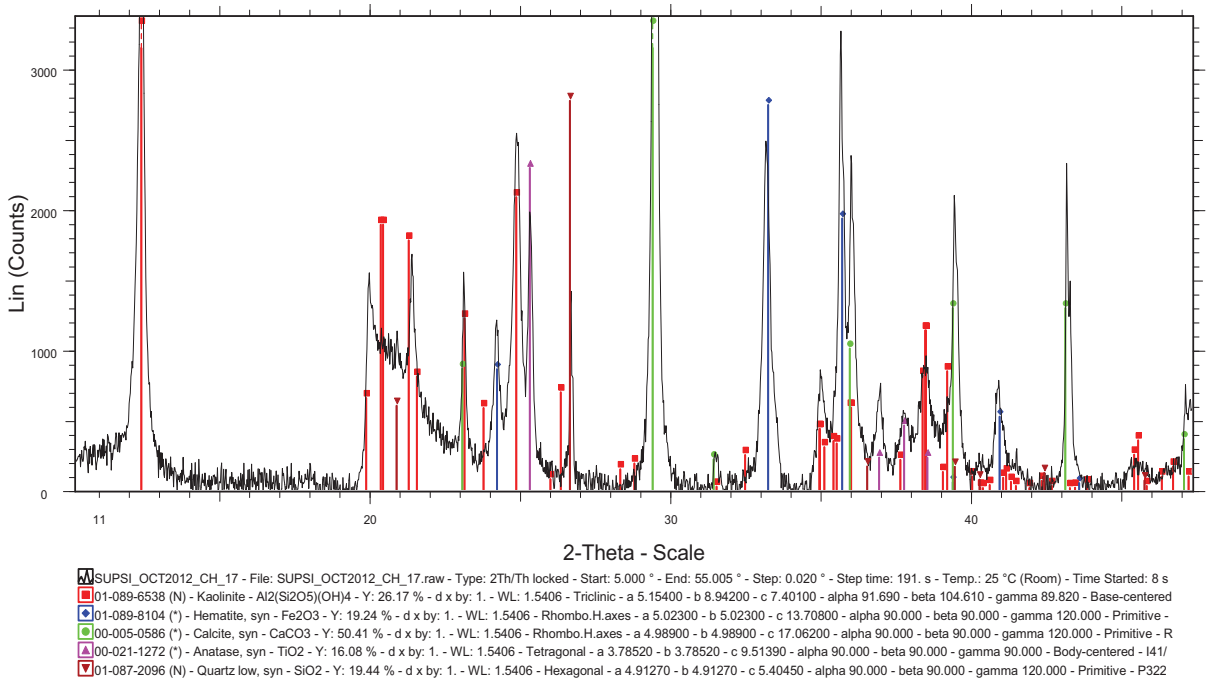


Fig. 8 – XRD of the sample CH17 displaying disordered kaolinite.

TiO_2 and Fe_2O_3 suggests secondary iron enrichment during alteration.

Overall geochemistry (low SiO_2, high Al_2O_3, TiO_2 and Fe_2O_3) indicate basic rocks (most likely, basalt) as the provenance for these iron rich clays.

5. Discussion

The petrographic examination of the studied samples was aimed at establishing the mineralogical composition of the detrital fraction and of the cementing material and the microstructure.

The detrital fraction is limited to quartz grains just in a few samples (samples CH11b, CH16, CH17) indicating an advanced alteration process and/or a basic source. The advanced alteration process is related with Fe enrichment as also confirmed by the geochemistry (Fig. 9:3). Samples CH11b, CH13b, CH17 contain calcite which is related to dissolution processes of carbonate rocks and to later precipitation in the form of secondary calcite cement.

Most of the samples exhibit plagioclase-like ghosts; microanalysis allowed to infer their nature which is correlated with the presence of kaolinite, as confirmed by XRD. The microstructure is very similar to basaltic rocks suggesting basic rocks as possible source material; in addition, the geochemistry (low SiO_2 and high Al_2O_3, TiO_2 and Fe_2O_3 contents) confirms the observations under PLM.

The majority of the samples have a massive structure and samples CH02 and CH17 exhibit glaebules. SEM/EDS analysis allowed to identify, in the first sample, four sub-types of glaebules on the basis of Fe, Al and Si distribution. According to the analytical data, it seems that the formation of these morphologies do not follow a specific trend as, in the same micro-area, four different distributions were detected.

In all the samples, Fe and Si+Al corresponding respectively to hematite and kaolinite, are simultaneously present and well cemented leading to a high stability. Such an interaction between iron oxides and kaolinite has also been documented in some other studies (Wei *et al.*, 2012; Sengupta *et al.*, 2008).

In the analysed samples kaolinite is generally disordered as the blurred reflections in the range 20°-33° 2θ and the two doublets instead of

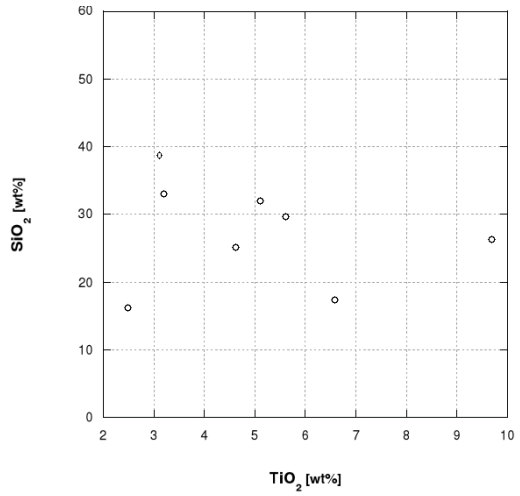


Fig. 9:1 – SiO_2-TiO_2 plot.

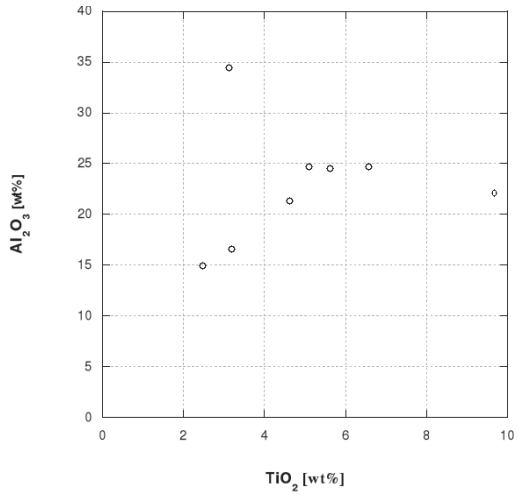


Fig. 9:2 – Al_2O_3-TiO_2 plot.

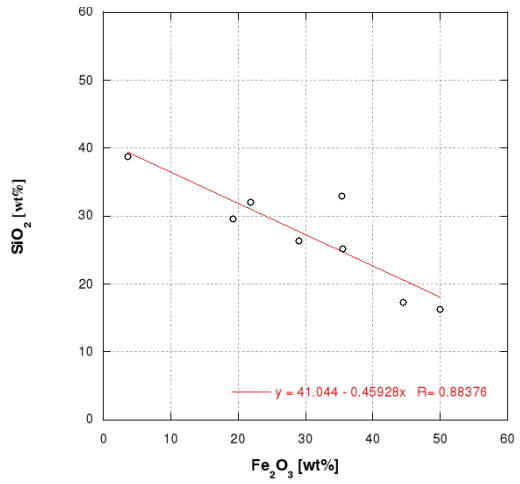


Fig. 9:3 – SiO_2-Fe_2O_3 plot.

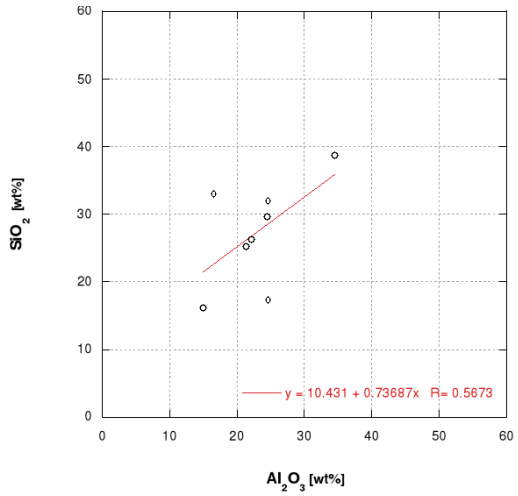


Fig. 9:4 – SiO_2-Al_2O_3 plot.

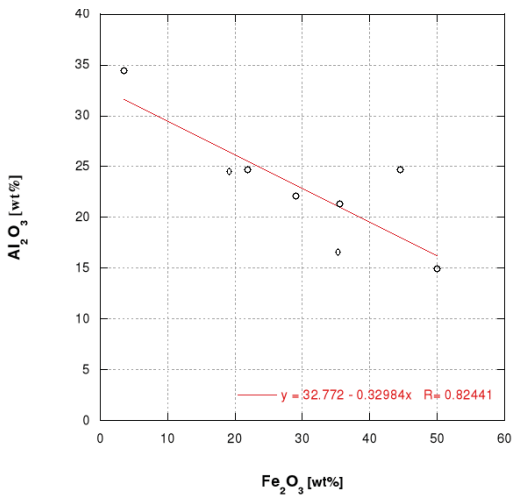


Fig. 9:5 – Al_2O_3-Fe_2O_3 plot.

the two triplets in the range 25°-40° 2θ clearly indicate. The disorder can be the consequence of an intense alteration and/or Al replacement by Fe in the kaolinite structure.

Hematite reflections are very broad indicating a poor-crystalline mineral phase.

The positive correlation between Al and Ti is not evident in all the samples even if a positive trend can be seen in a few samples indicating the progressive anatase enrichment with kaolinite progressive formation. The negative correlation between Al and Fe is more clear in almost all the samples, indicating a progressive hematite enrichment.

Finally mineralogical and geochemical data allow to infer basic rocks (most likely, basalt) as the provenance for these iron rich clays and related to a post Tertiary weathering and alteration of Deccan basalts.

6. CONCLUSION

The research carried out on kaolinitic hematite overlying the Precambrian formations of Chittourgarh area in Rajasthan State (NW India) allowed to differentiate the analysed materials on the basis of mineral composition, micromorphology, microstructure, kaolinite structure and geochemistry of the major elements.

The correlation with source rocks corresponding to Deccan basalts exposed in this region and volumetrically minor high silica ones can be associated with shale and sandstones belonging the Vindhyan Supergroup. It seems quite likely that the ochre represent partially preserved paleosols developed over the host rocks.

Our findings have shown that ochre chemistry and petrography can be interpreted in terms of host lithologies.

This research can be used to trace the provenance of iron-rich clays in historic and archaeological contexts aware that an in-depth study of the regional geology and geochemistry of minor and trace elements would be necessary.

Acknowledgements

We are thankful to the two reviewers for critical comments and very useful suggestions that have helped in improving the manuscript. The study is part of the project *Geology, Mineralogy and Geochemistry of ochre in Rajasthan (India)* partially supported by the Swiss Agency for Development and Cooperation SDC (grant no. P-0710-04).

Bibliography

BREWER R. & SLEEMAN J. R., 1964. Glaebules: their definition, classification and interpretation. *Journal of Soil Science*, **15** (1): 66-78.

BRINDLEY G. W., 1984. Order-disorder in clay mineral structure. *In*: G. W. BRINDLEY & G. BROWN (ed.), *Crystal Structure of Clay Minerals and their X-Ray Identification*. Mineralogical Society, Monography no. 5, London: 146-149.

CAVALLO G. & PANDIT M. K., 2008. Geology and petrography of ochers and white clay deposit in Rajasthan State, India. *In*: R. I. KOSTOV, B. GAYDARSKA & M. GUROVA (ed.), *Geoarchaeology and Archaeomineralogy*: 147-152.

CAVALLO G. & ZORZIN R., 2008. Preliminary data on the yellow ochers at the mine of Via Tirapelle in Verona. Italy. *X-Ray Spectrometry,* **37**: 395-398.

DELAMARE F. & GUINEAU B, 2000. *Colors. The story of pigments and dyes.* Harry N. Abrams Inc., New York.

DE WALL H., PANDIT M., K., CHAUHAN N. K, 2012. Paleosol at the Archean - Proterozoic contact in Udaipur. *Precambrian Research*, **216-219**: 120–131.

GRYGAR T., HRADILOVA J., HRADIL D., BEZDICKA P. & BAKARDJIEVA S., 2003. Analysis of earthy pigments in grounds of Baroque paintings. *Analytical* and *Bioanalytical Chemistry*, **375**: 1154-1160.

HELWIG K., 2007. Iron Oxide Pigments. Natural and Synthetic. *In*: B. H. BERRIE (ed.), *Artist's Pigments,* Washington: National Gallery of Art, **4**: 39-109.

HERON A. M., 1953. Geology of Central Rajputana. *Memoir Geological Society of India*, **79**: 339 p.

HRADIL D., GRYGAR T., HRADILOVA J. & BEZDICKA P., 2003. Clay and iron oxide pigments in the history of painting. *Applied Clay Science*, **22**: 23-236.

MINERAL DIRECTORY OF RAJASTHAN, 2008. *Mineral resources in Rajasthan*. Department of Mines and Geology, published by Government of Rajasthan.

PANDIT M. K., DE WALL H. & CHAUHAN N. K., 2008. Paleosol at the Archean – Proterozoic contact revisited: evidence for oxidizing conditions during palaeoweathering? *Journal of Earth System Sciences*, **117**: 201-209.

POPELKA-FILCOFF R. S., MIKSA E. J., ROBERTSON J. D., GLASCOCK M. D. & WALLACE H., 2008. Elemental analysis and characterization of ochre sources from Southern Arizona. *Journal of Archaeological Science*, **35**: 752-762.

SENGUPTA P., SAIKIA P. C. & BORTHAKUR P. G., 2008. SEM-EDX characterization of an iron-rich kaolinite clay. *Journal of Scientific & Industrial research*, **67**: 812-818.

SINGH B. & GILKES R. J., 1996. Nature and properties of iron-rich glaebules and mottles from southwest Australian soils. *Geoderma*, **71**: 95-120.

SHEKHAWAT M. S. & SHARMA V., 2009. Mineralogical characteristics and mineral economics of kaolinite deposit of Sawa area, Chiittaurgarh, Rajasthan. *Journal Geological Society of India*, **74**: 27-34.

SREENIVAS B., ROY A. B. & SRINIVASAN R., 2001. Geochemistry of sericite deposits at the base of the Paleoproterozoic Aravalli Supergroup, Rajasthan, India: evidence for metamorphosed and metasomatised Precambrian Paleosol. *Proceedings of the Indian Academy of Sciences, Earth and Planetary Sciences*, **110** (1): 39-61.

VAN LENTE B., ASHWAL L. D., PANDIT M. K., BOWRING S. & TORSVIK T. H., 2009. Neoproterozoic hydrothermally altered basaltic rocks from Rajasthan, northwest India: Implications for late Precambriam tectonic evolution of the Aravalli Craton. *Precambrian Research*, **170**: 202-222.

WEI S., TAN W., ZHAO W., FAN LIU Y. Y. & KOOPAL L. K., 2012. Microstructure, interaction mechanisms and stability of binary systems containing goethite and kaolinite. *Soil Science Society of America Journal*, **76** (2): 389-398.

Authors address:

Giovanni CAVALLO
Department of Earth and
Environmental Sciences
University of Pavia (Italy)
giovanni.cavallo01@ateneopv.it
and
Institute of Materials and Constructions
DACD-SUPSI
Canobbio (Switzerland)
giovanni.cavallo@supsi.ch

Manoj K. PANDIT
Department of Geology
University of Rajasthan
Jaipur 302003 (India)
manoj.pandit@gmail.com

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 105-119

Stratégies d'acquisition des matières colorantes dans l'Arc liguro-provençal au cours des VI^e^ et V^e^ millénaires cal. BCE

Jean-Victor PRADEAU, Didier BINDER, Chrystèle VÉRATI, Jean-Marc LARDEAUX, Stéphan DUBERNET, Yannick LEFRAIS, Ludovic BELLOT-GURLET, Paolo PICCARDO & Martine REGERT

Abstract

In the N.W.-Mediterranean area, exchange networks and social relationships gain an increasing complexity in the course of the Neolithic: varied goods diffuse in considerable quantities and distances. In particular, obsidian, Bedoulian and Oligocene flints, jadeite and eclogite are known to have been exchanged over long distances as shown by research that began thirty years ago.

Surprisingly, the place of colouring materials ("ochre", bauxite, cinnabar), naturally abundant in the Mediterranean Franco-Italian area, has received scant attention despite their technical and symbolic value; very few is thus known on the ways of their procurement and on their geographic and geological origin.

With this purpose, the study of colouring materials from both archaeological sites and putative sources was undertaken in the Liguro-Provençal arch. Geological surveys were carried out in order to establish a reference collection of colouring materials. Their geological nature has been determined by a combination of complementary imaging, elementary and structural techniques (petrography, SEM-EDS, X-ray diffraction).

By this way, a wide range of raw materials was determined: Permian sandstones, Middle Cretaceous bauxites, Toarcian or Hauterivian oolithic ironstone, Cretaceous oxidized marcasite and ferruginous rocks derived from weathered glauconitic limestones (in the same diagenesis conditions as Roussillon ochre).

In addition, two archaeological series, from Early and Middle Neolithic, were investigated by same methods: those of Pendimoun (Castellar, France), a rock-shelter site occupied by Impressa and Cardial groups (Early Neolithic: 5750-5200 cal. BCE) and those of the open-air site of Giribaldi (Nice, France) that belongs to Pre-Chassey and formative stages of Chassey culture (Middle Neolithic: 4700-4050 cal. BCE).

The results compared to the frame of reference highlight two contrasting economic systems: one based on the procurement of local resources (Pendimoun) and the second one that shows a more complex acquisition network (Giribaldi).

At Pendimoun which represents the colonization stages of the Early Neolithic, the colouring materials imported are varied and heterogeneous, but widespread in the rock-shelter itself or in the close environment (less than 5 km): oxidized marcasites, oolithic ironstone, goethitic calcareous rocks derived from glauconite. The sources are thus local and these results have to be considered in the context of an occupation assigned to specific functions (agriculture, pottery, sheep pen), as previously shown by other data.

At Giribaldi, colouring materials assemblage consists of close geological materials (ferruginous rocks derived from glauconite) but also of two types of exogenous rocks: yellow Permian sandstones and orange kaolinitic bauxites, respectively 60-70 and 70-90 km away. This Middle Neolithic settlement is known to be well inserted in complex exchange networks including western Provence (Bedoulian and Oligocene flint), French and Italian Alps (quartz, jadeite, eclogite), Liguria (jadeite, eclogite) and Lipari island (obsidian). The presence of these three types of rocks all along the occupation shows the permanence of exploitation of these colouring materials, which gives evidence of procurement regularity, the stability of exchange networks and the durability of relationships and technical practices.

Keywords*: sourcing, iron oxides, colouring materials, procurement strategies, exchange networks, Northwestern Mediterranean, Neolithic, Impresso-cardial, Chassey culture.*

Mots-clés : provenance, oxydes de fer, matière colorante, stratégies d'acquisition, réseaux d'échanges, Méditerranée nord-occidentale, Néolithique, Impresso-cardial, Chasséen.

1. INTRODUCTION

L'étude des réseaux d'acquisition de matières premières présente un intérêt majeur en Préhistoire récente car pour aborder le système techno-fonctionnel, social et culturel dans lesquels ils s'insèrent, il faut d'abord s'intéresser à des questions cruciales sur les propriétés exploitables de ces matériaux, de même que sur la territorialité et les systèmes de mobilité des populations qui les exploitent. À l'instar d'autres matières d'origine minérale, les matières colorantes se conservent relativement bien en contexte archéologique, où elles abondent parfois. De plus, elles sont de nature variée et diversement disponibles dans l'espace. Malgré ces qualités, les connaissances sur les chaînes d'acquisition des matières colorantes restent trop lacunaires en Méditerranée nord-occidentale pour les intégrer au débat des études de provenance. À ce titre, l'arc liguro-provençal (Fig. 1A) offre cependant un cadre géographique, géologique et archéologique particulièrement pertinent.

Délimité par la mer Méditerranée, la Durance, l'arc de Castellane, le massif du Mercantour/Argentera et les Alpes ligures, cet espace offre une diversité marquée de faciès géographiques, où s'opposent reliefs contrastés et bande côtière, bassins cloisonnés et chaînes abruptes de roches sédimentaires, ignées ou de granitoïdes. Les cols, les vallées, la façade maritime et les affluents, qui constituent autant d'axes de pénétration dans l'arrière-pays, facilitent, encore aujourd'hui, les flux matériels et humains.

Par ailleurs, cet espace géographique comprend de nombreux paysages et entités géologiques évocateurs des pigments, tant en son sein (corniche de l'Estérel, Dôme de Barrot, bauxites du Var) que sur ses marges (ocre et « Colorado provençal » de Rustrel et de Roussillon, cinabre de Toscane, terre de Sienne). La pluralité de ces matières premières nécessite une étude approfondie des différentes sources afin de les discriminer.

Enfin, la région considérée peut se prévaloir d'une solide tradition de recherche sur le thème de la provenance et de la circulation des divers matériaux mobilisés dans l'économie

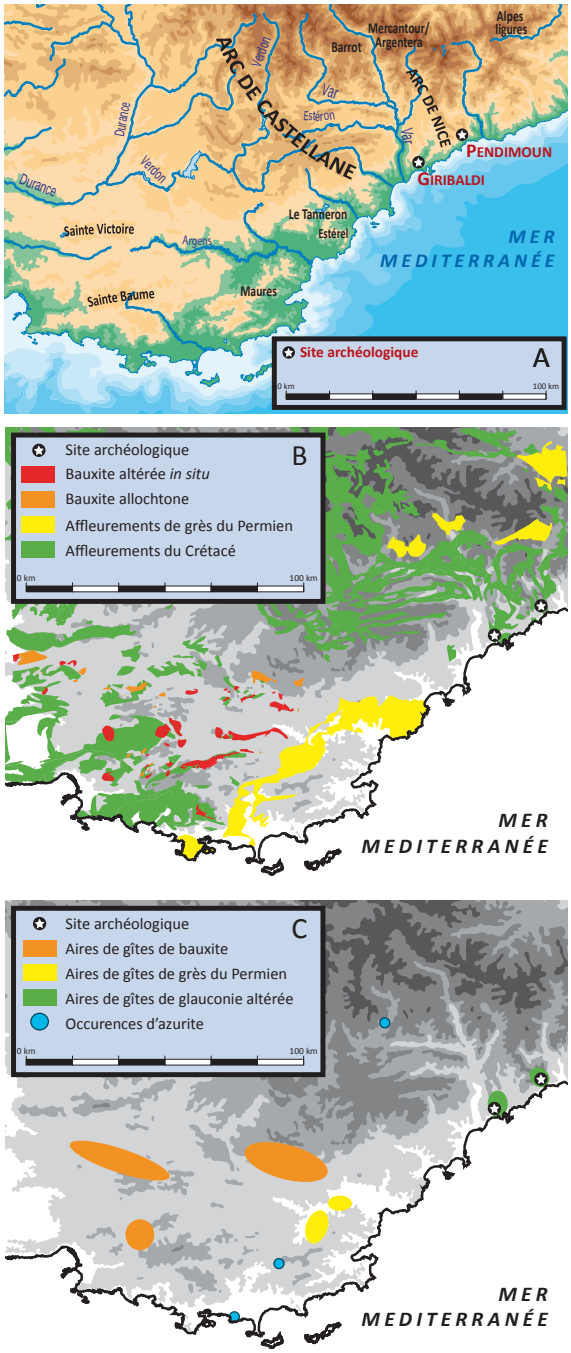


Fig. 1
A - Contexte géographique de l'Arc liguro-provençal et localisation des sites archéologiques.
Geographical context of Liguro-Provençal arch and location of archaeological sites.
B - Formations géologiques susceptibles de fournir des géomatières riches en oxydes de fer (goethite, hématite).
Geological formations providing iron oxides-rich materials (goethite, haematite).
C - Aires de répartition des gîtes de matières premières exploités au Néolithique ancien et moyen.
Geographical distribution of colouring material sources exploited during Early and Middle Neolithic.

des premiers agro-pasteurs[1] : silex bédoulien et oligocène (Binder, 1998 ; Léa, 2004 ; Gassin *et al.*, 2006 ; Vaquer, 2012), obsidienne (Binder & Courtin, 1994 ; Binder *et al.,* 2012 ; De Francesco & Crisci, 2007 ; Léa, 2012 ; Vaquer, 2007), roches vertes (Ricq-de Bouard, 1996, 2008) ou encore matériaux céramiques (Echallier, 1991 ; Echallier & Courtin, 1994 ; Basso *et al.,* 2006). Les modalités de distribution présentent des variabilités fortes en fonction des types de matières et des groupes culturels. Ce constat plaide pour l'intégration des données de tous les types de matériels archéologiques, y compris les matières colorantes, pour appréhender les systèmes économiques néolithiques.

Les sites de Pendimoun et Giribaldi ont été choisis pour mieux cerner l'évolution des réseaux économiques au cours des VI^e^ et V^e^ millénaires BCE. Ces deux sites clefs du Néolithique liguro-provençal ont livré d'importants corpus de matières colorantes, dont plusieurs centaines de blocs de matière première.

Castellar – Pendimoun est un site sous abri situé à 600 m d'altitude sur la façade ouest du Roc de l'Orméa, à 4 km de la façade maritime. Il a fourni l'une des plus anciennes séquences de l'Impresso-cardial (Néolithique ancien) de Méditerranée occidentale (Binder *et al.*, 1993 ; Binder & Maggi, 2001 ; Binder & Sénépart, 2010 ; Binder, 2013). La première occupation (5750-5500 cal. BCE) est une installation pionnière rattachée au complexe culturel *impressa* du sud et du centre de la péninsule italienne, tournée vers la production agricole, pastorale et céramique. Au cours de la deuxième étape du Néolithique ancien (Cardial, 5500-5200 cal. BCE), le spectre des activités du site évolue vers une intensification des pratiques pastorales et cynégétiques ; le début de cette étape est également marqué par un épisode funéraire. Le Cardial, qui montre une forte emprise environnementale, présente des affinités avec la sphère tyrrhénienne puis avec le domaine provençal.

L'établissement de plein air de Nice – Giribaldi (Binder, 2004a ; Binder *et al.*, 2008) a permis de documenter quatre étapes du processus de formation de la culture chasséenne entre 4700 et 4050 cal. BCE. Ces installations sont notamment caractérisées par des traces d'ateliers spécialisés dans des productions de céramique à fort investissement technique (finesse des formes, complexité des décors). Bien intégré dans un réseau d'échanges structuré et multidirectionnel (ouest vers le Vaucluse, nord vers les Alpes, nord-ouest vers la Ligurie, sud vers les îles tyrrhéniennes), Giribaldi est alimenté tout au long de la deuxième moitié du V^e^ millénaire BCE en géomatières diversifiées (silex bédouliens du Vaucluse, quartz hyalins des Alpes et des Préalpes, jadéite et éclogite du Monte Viso, obsidienne de Lipari).

Dès les opérations de fouilles (Binder, 2004b), des propriétés physiques (couleur, dureté) et minéralogiques diverses ont été relevées dans les deux assemblages de matières colorantes. Cette variabilité suggère que différentes roches ont été importées, tant au Néolithique ancien (Impresso-cardial) que moyen (Chasséen), selon des modalités mal définies.

En nous focalisant dans un premier temps sur les disponibilités géologiques mobilisables pour l'obtention de matières colorantes, nous avons entrepris la localisation, la description et la discrimination des sources de matière première. La caractérisation pétrologique et physicochimique des blocs archéologiques bruts ou semi-transformés de matières colorantes nous a permis d'appréhender les modes d'acquisition. Ces données ont été primordiales pour discuter des territoires exploités et de la valeur économique de ces ressources au Néolithique ancien puis moyen.

2. Matériels et méthodes

Afin de traiter au mieux un corpus archéologique de grande ampleur (443 blocs à Giribaldi et plus de 1700 à Pendimoun), un inventaire exhaustif des matières colorantes a été effectué après avoir défini un ensemble de critères descriptifs physiques et pétrographiques à l'aide d'une fiche-type. Les géomatières échantillonnées lors des prospections ont été décrites selon

1 Engagées dans les années 1980, ces recherches sont structurées et soutenues depuis 2009 par le Projet Collectif de Recherche « Évolutions, Transferts, Inter-Culturalités dans l'Arc Liguro-Provençal » (PCR ETICALP) dirigé par Didier Binder.

le même procédé. La méthodologie employée (Fig. 2) permet, d'une part, de déterminer la variabilité des matières premières exploitées et, d'autre part, de procéder à la caractérisation des matériaux à partir d'un échantillonnage raisonné au sein de classes reposant sur des critères distinctifs macroscopiques.

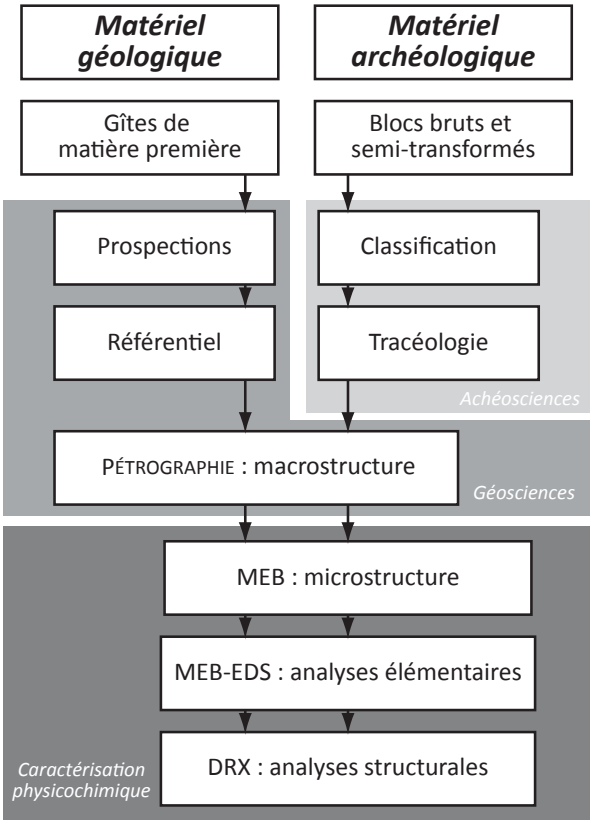


Fig. 2 – Méthodologie mise en œuvre.
Fig. 2 – *Methodology.*

2.1. Prospections géologiques

L'identification des sources potentielles se fonde sur (i) le dépouillement de la littérature[2] géologique et minière ; (ii) l'identification et l'évaluation qualitative et quantitative sur le terrain des gisements supposés ; (iii) leur échantillonnage afin de les caractériser et de constituer un référentiel.

Sur le terrain, le contexte géographique (coordonnées spatiales, paysages et reliefs, accessibilité) et géologique (formation échantillonnée, extension et variabilité du gisement, formations au mur et au toit) sont renseignés. Plusieurs contextes (marcassites, glauconie altérée) dont l'apport géologique et l'intérêt économique actuel sont limités, ne sont pas systématiquement mentionnés dans les notices des cartes géologiques. Certaines découvertes relèvent donc de la transposition des données de telle carte géologique à une autre, voire de la sérendipité. L'ensemble des données administratives, géographiques, stratigraphiques et pétrologiques de chaque gîte est compilé dans une base de données.

2.2. Critères descriptifs pétrographiques

L'observation de la surface (ou de la cassure dans le cas des blocs fragmentés) et de sections polies sous loupe binoculaire a conduit à une classification des différentes gammes de matières premières en fonction des inclusions (nature, quantité et granulométrie), de la matrice (homogénéité, texture) et de la géométrie des joints de grain (ou structure).

Plusieurs propriétés physiques ont par ailleurs été renseignées afin d'évaluer les propriétés exploitables et les implications en termes d'utilisation. Le pouvoir colorant peut être faible (ne colore pas par contact), moyen (colore la peau par simple contact) ou fort (la peau colorée colore à son tour par contact). Le degré de dureté (1, 2 ou 3 et plus sur l'échelle de Mohs) est évalué à l'ongle sur la surface de blocs-tests soigneusement sélectionnés (petits fragments au sein de lots, blocs portant des stigmates de fouille, etc.) pour limiter l'impact invasif sur le corpus archéologique.

2.3. Observations au MEB et analyses MEB-EDS

Des observations à l'échelle micrométrique ont été menées à l'aide de la microscopie électronique à balayage (MEB). Elles ont permis de renseigner la microstructure et la morphologie des cristaux. La composition élémentaire des constituants observés a été obtenue par analyses MEB-EDS.

2 Les indices bibliographiques de formations à matières colorantes sont nombreux : indications directes (hardground ferrugineux, bauxite, limonite, etc.), conditions de formation idéales (milieux marins à haute énergie pour les oolithes ou encore climat tropical), toponymes (Roussillon, Camparoux par exemple).

L'appareillage utilisé est un MEB JEOL JSM 6460LV, employé en mode Low Vacuum, à des valeurs de pression variant de 15 à 25 Pa, pour ne pas être contraints d'appliquer une couche conductrice sur les échantillons. Une tension de 20 kV et une distance de travail (WD) de 8 mm ont été employées pour des observations en mode électrons rétrodiffusés, sur section polie. Les analyses élémentaires sont semi-quantitatives et requièrent une certaine prudence dans les comparaisons entre différentes acquisitions. Le spectromètre à dispersion d'énergie employé est un système Oxford Xmax 20, doté d'un détecteur à semi-conducteur SDD, permettant la détection des éléments à partir du bore (Z = 5).

2.4. Caractérisation structurale par diffraction des rayons X

Les phases cristallines en présence ont été identifiées par diffraction des rayons X sur poudre.

La DRX a été effectuée avec un diffractomètre Bruker D8 Advance, équipé d'une anticathode en cuivre (λ = 1,54 Å) comme source de rayons X, d'un détecteur CCD multicanal PSD LynxEye. Il a été employé sous une tension d'utilisation de 40 kV et un courant de 40 mA (1.600 W). Les paramètres d'acquisition sont les suivants : la valeur de 2θ est comprise entre 3 et 60°, pour un pas de 0,02° et un temps d'acquisition de 4 $s.pas^{-1}$.

3. GÉOMATIÈRES DISPONIBLES, PROSPECTION ET CARACTÉRISATION

Dans l'arc liguro-provençal, les contextes géologiques susceptibles de fournir des matières colorantes exploitables ont une composante chromogène commune : les oxy(hydroxy)des de fer, principalement cristallisés sous forme d'hématite α-Fe_2O_3 et de goethite α-FeO(OH). Les types de terrains concernés sont relativement divers et parfois très étendus. Les résultats exposés ici représentent sans doute un maillage encore sommaire, qui nécessiterait d'être affiné par des campagnes supplémentaires. Cette réserve énoncée, il est tout à fait possible d'évoluer au sein du cadre général établi, pour identifier de grandes gammes de géomatières aux propriétés minéralogiques, chimiques et physiques bien discriminantes.

3.1. Grès du Permien

En Provence, les formations du Permien (Fig. 1B) affleurent principalement dans le Dôme de Barrot, le massif du Mercantour/Argentera et la « bande permienne » qui ceinture le massif des Maures (en trois grands bassins : Toulon-Solliès-Pont Cuers, le Luc, le bas-Argens-Estérel ; Toutin, 1980 ; Vinchon, & Toutin-Morin, 1987). Le Permien provençal est marqué par la pénéplanation des massifs issus de l'orogenèse hercynienne. L'important détritisme qui en procède est régi par la subsidence des bassins, le volcanisme et le climat tropical (Toutin-Morin & Delfaud, 1987). Ces conditions de diagenèse favorisent la formation de terrains gréseux rubéfiés riches en oxy(hydroxy)des de fer, qui présentent des variations minéralogiques, granulométriques et chimiques importantes. Ces différences permettent de discriminer plusieurs faciès intra et inter séquences entre les différents bassins (Vinchon, 1984 ; Vinchon, & Toutin-Morin, 1987).

Dans le bassin du Mercantour/Argentera et le Barrot, le Permien est représenté par trois cycles de dépôt (Vinchon, 1984 ; Vinchon, & Toutin-Morin, 1987) : conglomérats et pélites (respectivement la formation de l'Inferno et la Formation de Meraviglie : Bigot *et al.*, 1967 ; Faure-Muret & Fallot, 1957), puis grès arkosiques, pélites rouges et silts argileux (formations du Bego, de Capeirotto et du Cians) et enfin silts argileux et conglomérats gréseux (formations de la Roudoule et de Léouvé). Ces différentes formations ne semblent pas pouvoir être exploitées pour produire des matériaux colorants.

Les dépôts du bas-Argens-Estérel comprennent (Toutin, 1980 ; Toutin-Morin *et al.*, 1994a-b ; Toutin-Morin & Delfaud, 1987) des alternances de grès et argiles, à passées psammitiques ou feldspathiques. Ces dépôts sont plus récents que ceux du Barrot-Mercantour/Argentera à partir de la Formation des Pradineaux (rPr). Plusieurs niveaux exploitables pour leur richesse en oxy(hydroxy)des de fer ont été mis en évidence dans les bassins du Luc et du Bas-Argens (formations du Muy, du Mitan, de Bayonne, Formation Claire).

3.2. Concrétions ferrugineuses issues de l'oxydation de sulfures de fer dans les marno-calcaires du Mésozoïque

La paléogéographie provençale du Mésozoïque est majoritairement marine. Ce milieu réducteur est propice à la formation de sulfures de fer FeS_2, tels que la pyrite et son polymorphe, la marcassite, qui cristallisent respectivement dans le système cubique et orthorhombique. Dans les milieux carbonatés (marnes et calcaires), ces minéraux se présentent sous forme de nodules à structure radiaire et/ou concentrique, avec des cristaux pyramidaux en surface. Dans l'arc de Nice, elles sont particulièrement présentes dans les bancs calcaires du Jurassique supérieur (Kimméridgien-Tithonien) et du Crétacé (Fig. 1B).

Soumis à une atmosphère oxydante, les sulfures de fer forment l'acide sulfurique H_2SO_4 et des oxy(hydroxy)des de fer conservant la structure originelle. Le repérage et la récolte des nodules très denses résultant de cette altération sont facilités par leur morphologie et leur nature, très différentes de la roche encaissante (Deer *et al.*, 1966 ; Korbel & Novák, 1999).

3.3. Altérations de roches glauconieuses et oolithes ferrugineuses du Crétacé

Certains grès, marnes et calcaires formés en milieu marin au Crétacé présentent, suivant leurs conditions de diagenèse, une composante plus ou moins importante de glauconie ou d'oolithes ferrugineuses (ou OIS, *Oolithic ironstone*). Ces dernières sont relativement rares en Provence, seuls deux niveaux de faible extension sont mentionnés : l'un dans le Toarcien près de Brignoles (Debrand-Passard *et al.*, 1984), l'autre dans l'Hauterivien affleurant en quelques points dans l'arrière-pays de Nice (Debrand-Passard *et al.*, 1984 ; Gèze, & Nesteroff, 1996).

Les formations à passées glauconieuses sont en revanche fréquemment rencontrées en Provence. La glauconie est une association de minéraux argileux à forte teneur en Fe^{2+}, principalement composée de glauconite, d'illite et de smectite (Triat, 1982). Sous climat tropical (chaud et humide), ces minéraux s'hydrolysent en kaolinite, et le fer libéré forme la goethite, parfois déshydratée en hématite (Cornell, & Schwertmann, 2006 ; Kimberley, 1989). Ce processus est à l'origine de la formation des ocres du Vaucluse, de Bourgogne et du Berry (Odin & Matter, 1981 ; Triat, 2010).

Une prospection à large spectre de la Provence orientale révèle que de nombreux petits affleurements glauconieux du Crétacé présentent un faciès altéré, qui permet de récolter facilement des matières colorantes plus ou moins riches en goethite[3] (Fig. 1B).

3.4. Bauxites du médio-Crétacé

La bauxite[4] est une roche sédimentaire emblématique de Provence. *Stricto sensu*, elle contient des oxy(hydroxy)des d'aluminium souvent associés à des oxy(hydroxy)des de fer, de la kaolinite, du quartz et de la calcite (Valeton, 1996). Cette roche tendre a généralement une structure de pisolithes prises dans un ciment cryptocristallin. Sa couleur est tributaire de la teneur en oxy(hydroxy)des de fer : elle peut être blanche (pas ou très peu d'oxy(hydroxy)des de fer), jaune (goethite) ou rosée à lie-de-vin (hématite).

Les bauxites provençales se sont formées en contexte continental au cours de l'Aptien-Albien-Cénomanien inférieur. Elles sont exclusivement karstiques et comblent des lentilles orientées ouest-est dans les Bouches-du-Rhône et le Var et des petites poches dans le Haut-Var (Bardossy, 1982 ; Lajoine & Laville, 1979 ; Nicolas, 1968). La paragenèse dominante est boehmite-hématite-kaolinite, avec parfois de la gibbsite et de la

---

3 Bien qu'on les trouve fréquemment dans les mêmes gîtes, il est important de bien dissocier la glauconie « saine » verte et majoritairement composée de glauconite, de son état altéré riche en goethite. En Provence, la glauconite est en effet très exploitée, tout au long du Néolithique ancien et moyen, comme dégraissant céramique. Tout en prévenant bien les chocs thermiques, elle permet d'obtenir par brunissage des surfaces régulières et brillantes, à « consistance de cuir » (Binder, 2004a).

4 La littérature anglo-saxonne emploie deux termes : *bauxite*, qui recouvre l'ensemble des géomatériaux contenant des minéraux alumineux, et *bauxite ore*, pour désigner les matériaux contenant au moins 45 % de Al_2O_3 et moins de 20 % de Fe_2O_3 et 3-5 % de silicates, ce qui rend leur exploitation économiquement rentable (Valeton, 1996). La littérature francophone est plus floue. Le terme *bauxite* renvoie généralement au minerai ; les autres matériaux sont souvent appelés *latérites* ou *altérites*. Ces appellations sont trop imprécises, c'est pourquoi nous employons le terme *bauxite* dans son acception anglo-saxonne.

goethite (de Lapparent, 1930 ; Nicolas, 1968) ; les minéraux détritiques, dont le quartz, sont surtout présents dans les gîtes du nord-ouest (plus proches du Massif Central ; Debrand-Passard *et al.*, 1984). Les oxy(hydroxy)des d'aluminium se concentrent dans la partie médiane des profils, la base et le sommet étant enrichis en kaolinite et parfois en calcite à l'abord du toit.

Trois cas de genèse, qui influent sur la composition minéralogique et chimique, sont représentés en Provence et ont été échantillonnés en plusieurs points (Fig. 1B) :

- Dans les Alpilles et ponctuellement dans le Var, les bauxites autochtones ont été formées *in situ* aux dépens de marnes aptiennes ;
- Dans le Centre-Var, les grands gisements proviennent de l'altération *in situ* d'altérites allochtones ; certaines de ces formations (Val-Vins-Vieux-Canet, Tourves-Mazaugues-Camps et le Revest) sont très riches en alumine et ont fait l'objet d'une exploitation minière intense ; il est possible d'observer des pisolithes ferrugineuses irrégulières de dimensions centimétriques.
- Les petites poches des marges occidentale du Var et septentrionale de Provence sont constituées de matériel remanié, altéré avant dépôt. Elles sont généralement riches en kaolinite. Les pisolithes sont bien arrondies et de dimensions millimétriques à infra-millimétriques.

4. MATIÈRES COLORANTES ARCHÉOLOGIQUES, CLASSIFICATION ET IDENTIFICATION

La classification pétrologique des blocs archéologiques se fonde sur un faisceau de critères déterminants, qui peuvent varier selon les classes (Tab. 1). Pour certaines géomatières (marcassites et bauxites), l'identification à l'œil nu est aisée ; pour d'autres, il a fallu procéder par observation de cassures et sections polies sous loupe binoculaire.

Lors de cet examen, il est crucial de prendre en compte le fait que certains aspects de la roche ont pu être altérés ou modifiés par des actions anthropiques. Ainsi, certains blocs archéologiques rouges (hématite) peuvent provenir de géomatières jaunes (goethite) chauffées, volontairement ou non.

Une caractérisation physico-chimique (élémentaire et structurale) a été menée sur un échantillonnage de chaque classe. Elle a permis de confirmer le bien-fondé de celle-ci et de réunir des indices de provenance supplémentaires.

		Caractères physiques			*Caractères pétrologiques*		
Site	*Classe*	*Couleur*	*Pvr colorant*	*Dureté*	*Texture*	*Structure*	*Inclusions*
Pendimoun	A. Marcassites	Rouge ou jaune	Fort	3+	Lutite	Radiale	Marcassite
	B. Glauconie altérée	Jaune, rouge	Moyen, fort	1 à 3	Lutite	Massive, litée, caverneuse	Glauconite, phosphates
	C. Roche micacée	Rouge	Moyen, fort	2	Lutite, arénite	Massive	Muscovite, quartz
Giribaldi	D. Bauxite	Rouge orangé	Moyen, fort	2	Lutite	Massive	Pisolithes
	E. Grès psammitiques	Jaune, rouge	Moyen, fort	1, 2	Arénite	Massive, litée	Muscovite, quartz
	B. Glauconie altérée	Jaune, rouge	Moyen, fort	1 à 3	Lutite	Massive, litée	Glauconite

Tab 1– Classification et critères utilisés pour différencier les gammes de matières colorantes archéologiques (Pvr colorant : pouvoir colorant).

Tab 1– *Classification and discriminating characteristics of each range of archaeological colouring materials.*

4.1. Géomatières introduites à Castellar – Pendimoun

Castellar – Pendimoun a livré un assemblage de plus de 1700 blocs de matières premières, pour une masse totale de plus de 4430 grammes. Il faut souligner le grand nombre de blocs jaunes (48 % et 6 % de bicolores jaunes et rouges, contre 46 % de rouges et oranges).

Trois grandes classes de géomatières ont été introduites et exploitées à Pendimoun. Une partie du corpus (11 % des blocs, pour 14 % de la masse totale) n'a pas pu être incluse dans ces trois catégories, faute de critères discriminants, dont des blocs de dimensions infra-centimétriques d'oolithes ferrugineuses.

Les investigations physicochimiques ont été appliquées à six échantillons de la classe A, dix-sept de la B et huit de la C.

4.1.1. Classe A : Marcassites oxydées

Les blocs de marcassite (Fig. 3A), aisément identifiés dès les opérations de fouilles, ne représentent que 7 % du nombre de blocs, mais leurs grandes dimensions et leur densité portent leur contribution à 31 % de la masse totale de matières colorantes du corpus. Ils sont jaunes ou rouges, et présentent un degré de dureté élevé (degré 3+ dans notre classification). Cependant, la préparation des échantillons montre qu'une fois broyés, ces matériaux sont dotés de propriétés colorantes exceptionnelles.

L'habitus interne radiaire et externe pyramidal est caractéristique de la marcassite. La périphérie est bien cristallisée et très dense, le cœur est plus poreux, rarement pulvérulent. Les analyses élémentaires montrent une composition quasi exclusive d'oxy(hydroxy)des de fer, associés à peu de nickel, de soufre et de calcium. Des grains de quartz sont observés. Hématite et goethite bien cristallisées sont identifiées d'après des diffractogrammes aux pics bien définis.

Si le soufre a été substitué par l'oxygène, la structure des blocs nous permet tout de même de conclure que ces blocs sont des marcassites oxydées. Un gîte potentiel a été identifié à Sainte-Agnès – Pointe Siricocca, en face de Pendimoun, à moins de 4 km vers l'ouest ; des blocs similaires proviennent des mêmes formations crétacées situées en contrebas de l'abri mais difficiles à échantillonner en raison du fort recouvrement des marno-calcaires en place par des colluvions ou par des aménagements récents.

4.1.2. Classe B : Altérations de roche carbonatée glauconieuse

La grande majorité (72 % en nombre, pour 41 % de la masse) des matières colorantes de Pendimoun provient de l'altération de roche carbonatée glauconieuse (Fig. 3B). Les deux tiers des blocs sont jaunes ou bruns, les blocs rouges provenant probablement du traitement thermique des premiers. Certaines parties bien cristallisées sont relativement dures (degré 2 à 3+), mais fournissent une poudre au pouvoir colorant moyen à fort.

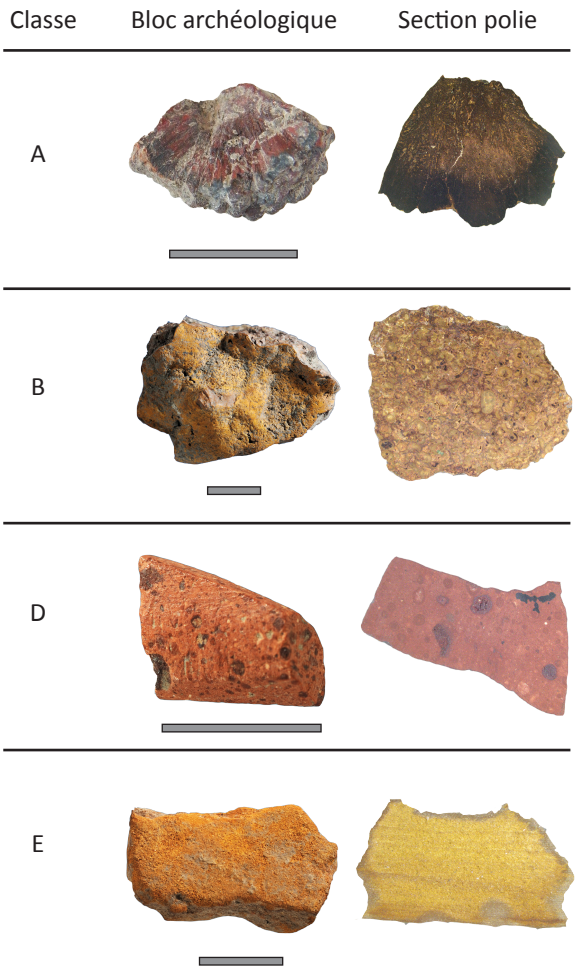


Fig. 3 – Clichés de blocs de matières colorantes archéologiques.
Fig. 3 *– Photos of some archaeological colouring material pieces.*

La structure de la matrice est massive, parfois caverneuse ou litée. Elle peut être bien cristallisée ou pulvérulente et englobe des oolithes blanches ou brunes. Des silicates (quartz, muscovite) et des grains de glauconite sont ponctuellement relevés. D'après les observations MEB et les analyses élémentaires, le fer (jusqu'à 20 % en pourcentage atomique) se trouve dans le ciment ou dans les oolithes brunes. Il est associé à l'arsenic et parfois au titane et/ou au chrome. Les oolites blanches sont de la fluorapatite. Les éléments magnésium, potassium, aluminium, silicium, fer sont bien détectés dans les grains verts. Les phases structurales identifiées par diffraction des rayons X sont la calcite, le quartz en faible quantité, la goethite et l'hématite.

Cette classe de géomatière correspond en tous points à un niveau bien identifié dans le Crétacé inférieur local. La notice géologique décrit ainsi « un banc glauconieux jaunâtre » ou encore des « niveaux corrodés et ferrugineux, parfois horizons à oolithes ferrugineuses » à la base de l'Hauterivien (Gèze & Nesteroff, 1996). Ce niveau affleure directement dans l'abri, et en plusieurs points en contrebas. La présence de petits fragments à oolithes ferrugineuses dans les couches archéologiques, évoquée *supra*, peut aussi être rapprochée de ce gîte.

4.1.3. Classe C : Altérations de roche glauconieuse micacée

La troisième gamme de matières colorantes identifiée à Pendimoun est une classe de calcaires gréseux ferrugineux (22 % en nombre, 27 % de la masse totale). Sur 369 blocs, 314 sont exclusivement rouges (85 % de cette classe). De dureté moyenne (degré 2), ils présentent un pouvoir colorant moyen à fort.

Cette roche à structure massive est macroscopiquement proche de la classe B, mais se distingue par ses nombreuses inclusions de silicates (quartz, feldspaths, muscovites). L'arsenic n'est pas détecté au MEB-EDS, qui révèle en revanche des grains de phosphate de calcium et de fluor. Les structures minéralogiques détectées en diffraction des rayons X sont l'hématite, la calcite, le quartz et la muscovite.

Définir la place de ce matériau au sein du corpus archéologique et du contexte géologique pose plusieurs problèmes. Par certains aspects, la classe C présente de fortes correspondances avec la classe B (structure) mais aussi des caractères antinomiques (absence de l'élément As). La concentration relative de certains constituants (oolithes de fluorapatite fréquentes en B, micas très présents dans C) plaide pour une origine génétique commune. Deux cas de figure peuvent être proposés : (i) soit on a affaire à deux faciès issus d'un même matériau et donc d'un même gîte (auquel cas le type de sédimentation a changé au cours du temps : le passage progressif à un contexte hémipélagique à l'Hauterivien a pu augmenter la contribution du détritisme pour la classe C) ; (ii) soit ce sont deux matériaux contemporains de gîtes distincts.

En l'état actuel, il est difficile de trancher. Mais si la géomatière de la classe C n'est pas issue du même gîte que celle de la B, il est plausible qu'elle provienne d'un des nombreux affleurements du Crétacé inférieur identifiés dans l'environnement géologique local, soit à moins de 5 km du site.

4.2. Géomatières introduites à Nice – Giribaldi

Le corpus étudié à Nice – Giribaldi est constitué de 443 blocs de matière colorante, pour une masse totale de 1166 grammes. Les blocs de couleur rouge-orange représentent 82 % du corpus ; 17 % sont jaunes, dont 5 % jaunes et rouges. Deux blocs noirs et deux petits fragments de dimensions millimétriques de matière colorante bleue ont aussi été mis au jour.

Trois grandes gammes de géomatières ont pu être identifiées. La portion qui n'a pas pu être classée correspond à 13 % du corpus en nombre de blocs, mais aussi à 19 % de la masse totale.

Les analyses physicochimiques ont été appliquées à onze échantillons de la classe D et sept de chaque autre gamme (E et B).

4.2.1. Classe D : Bauxites

La principale gamme de matières colorantes introduite à Giribaldi (47 % du nombre total de blocs pour 19 % de la masse totale) est constituée de matériau bauxitique orangé à rouge (Fig. 3D). Cohérents et tendres (degré 2 sur l'échelle de

Mohs), ces blocs ont été mis en œuvre par abrasion sur un support plan, d'après les traces observées (43 % des blocs portent d'une à quatre facettes planes ou plan-convexes, et 36 % des stries parallèles ou sub-parallèles). D'après les expérimentations, ce mode de réduction permet de produire une poudre fine homogène dotée de bonnes propriétés colorantes (Salomon, 2009 ; Salomon *et al.*, 2008).

L'identification macroscopique de cette classe est facilitée par ses caractères pétrologiques : roche massive à petites pisolithes millimétriques à infra-millimétriques, d'un rouge foncé (parfois à zonations plus claires), prises dans une matrice orangée cryptocristalline. On observe parfois des inclusions noires ou blanches néoformées. Les analyses MEB-EDS mettent en évidence que les pisolithes sont principalement composées de fer. Dans la matrice, le taux de fer monte jusqu'à 12 % ; celui de l'aluminium est souvent proche de celui du silicium, parfois plus important. Les éléments minoritaires sont le titane et le cobalt dans les pisolithes ferrugineuses et l'étain dans la matrice. Les inclusions noires sont riches en manganèse, titane, cobalt et magnésium ; les inclusions blanches et zonations claires des pisolithes sont majoritairement composées d'oxydes d'aluminium. Des grains de zircon sont fréquemment observés. Les phases cristallines mises en évidence sont la kaolinite, parfois associée à la boehmite dans les blocs les plus cohérents, l'hématite, le quartz et la calcite. L'anatase a été repérée dans un échantillon.

Le corpus de blocs bauxitiques importés à Giribaldi est plutôt homogène. Il est principalement constitué d'une roche orangée, à petits pisolithes arrondis. La teneur en aluminosilicates (kaolinite) est importante, au point de supplanter parfois les oxy(hydroxy)de d'aluminium (boéhmite). Les variabilités chimiques et minéralogiques sont peu importantes : la grande majorité des blocs de la classe D peut provenir d'un unique gisement.

Un examen comparatif pétrologique et chimique permet de rattacher ce gisement aux bauxites allochtones, riches en kaolinite et petites pisolithes, dont les poches plus ou moins étendues abondent dans les parties occidentale (Rians, Regagnas) et septentrionale (Ampus, Lorgues, Salernes, Tourtour, Villecroze) du département du Var. Ces dernières se situent à 70-80 km du site.

4.2.2. Classe E : Grès psammitiques du Permien

Nice – Giribaldi a livré un assemblage (13 % en nombre et 27 % en masse) de blocs jaunes friables (dureté 1 ou 2) au pouvoir colorant élevé (Fig. 3E).

Cette roche poreuse est constituée de nombreux petits grains de mica blanc et de quartz, englobés par une matrice fine ferrugineuse. L'agencement des grains suggère un compactage plus ou moins prononcé. Les cristallisations de calcite sont fréquemment observées. L'élément fer est diffusé dans la matrice et associé à de faibles taux de phosphore, de cobalt, de nickel et de titane, ce dernier n'étant pas systématiquement détecté. L'étain est détecté dans les grains de mica, à l'état d'élément minoritaire (moins de 1 %). Des grains de chlorite (biotite altérée) et de phosphate riche en éléments lanthanides (monazite) témoignent, une fois encore de l'origine granitique des apports détritiques. Les phases structurales identifiées sont la muscovite, la goethite, la sanidine dans un échantillon (feldspath très présent dans la rhyolite), le quartz et la calcite.

La gamme E est donc un grès psammitique (roche litée à micas blancs abondants) à ciment ferrugineux, alimenté par des produits de volcanisme et affecté dans le temps par des actions de compaction (recouvrement, tassement, déformation, etc.). Une comparaison avec le référentiel prospecté dans la vallée de l'Argens et le bassin du Luc permet de rattacher la classe E à la Formation Claire (rCl), ou à la Formation de la Paro (rPa).

4.2.3. Classe B : Altérations de roche carbonatée glauconieuse

Enfin une troisième gamme de matières colorantes a pu être discriminée (28 % en nombre et 34 % en masse). Les blocs sont rouges, jaunes ou bruns, avec une fraction microcristalline (dureté 1 ou 2) tendre et une autre bien cristallisée, plus dure (3+).

Dotée d'une structure massive ou litée, finement cristallisée, la matrice englobe de petits filons ferrugineux bien cristallisés, des grains de glauconite et des micas blancs. Sur trois blocs, des cristaux pyramidaux, peut-être de marcassite,

ont été observés. L'élément fer est principalement diffusé dans la matrice et dans les « filons », parfois associé au manganèse. Les phases structurales identifiées par diffraction des rayons X sont la calcite, le quartz, la goethite (blocs jaunes et bruns) et l'hématite (blocs rouges).

Cette classe de géomatière provient, comme la gamme B de Castellar – Pendimoun, de l'altération d'une roche carbonatée riche en glauconie. Il est cependant peu probable que les occupants de Giribaldi soient allés s'approvisionner précisément sur cet affleurement. En effet, les deux faciès présentent des différences sensibles (structure non vacuolaire, cortège d'éléments mineurs différents, présence de micas blancs). L'assemblage de Giribaldi paraît plus homogène. De nombreux niveaux glauconieux sont mentionnés localement, de l'Hauterivien à l'Albien compris. Plusieurs sources peuvent être avancées : le niveau hauterivien riche en glauconie et oolithes ferrugineuses affleure à moins de 2 km à l'est et 3 km au nord du site.

4.2.4. Cas particuliers : azurite et hématite oolithique

D'après une précédente étude, les deux petits fragments bleus sont des grains d'azurite (Binder, 2004b), un carbonate de cuivre de formule $Cu_3(CO_3)_2(OH)_2$. D'après la littérature géologique et minière, plusieurs sources potentielles peuvent être avancées dans l'arc liguro-provençal (Fig. 1C) :

- Des minéralisations de cuivre ont été repérées et parfois exploitées dès le Chalcolithique dans la partie occidentale du Massif des Maures, à Collobrières – Maraval, Pierrefeu-du-Var – Peyrol ou encore le Pradet – Cap Garonne (Renault *et al.*, 2005).
- Dans le nord des Alpes-Maritimes, des exploitations chalcolithiques sont évoquées à Daluis – Roua ou encore à Daluis – l'Hubac du Jourdan (Mari, 2002, 2008).

Un unique bloc d'hématite oolithique a été mis au jour à la base d'une fosse. De grandes dimensions (40 x 35 x 17 mm, pour 21 grammes), il porte quatre facettes planes qui permettent de déduire qu'il a été travaillé par abrasion. Ce fragment de calcaire à oolithes ferrugineuses peut provenir du Toarcien de Brignoles (proche des gisements de bauxites et de grès permiens) ou bien du Hauterivien de l'arrière-pays niçois (Saint-Laurent-de-l'Escarène) où il serait mitoyen de bancs de glauconie altérée.

5. STRATÉGIES ÉCONOMIQUES AU NÉOLITHIQUE ANCIEN ET MOYEN

5.1. Castellar – Pendimoun, site *impresso*-cardial

L'étude du matériel céramique et lithique de Pendimoun révèle son statut soit pionnier (*Impressa*), soit périphérique et tourné vers des activités saisonnières et spécialisées (Cardial). La production céramique s'appuie principalement sur les ressources offertes par l'abri (argile, eau, glauconie puis calcite en dégraissant), tandis que les silex locaux ne sont guère exploités que pour produire quelques éclats. L'industrie lithique mobilise des matières premières d'origine plus éloignée (Haut-Var, Vaucluse).

En plus des quelques fragments d'hématite oolithique, le corpus de matières colorantes de Pendimoun comprend trois principales gammes de roches :

- Des marcassites jaunes ou rouges oxydées, dures et riches en oxy(hydroxy)des de fer (classe A).
- Une roche microcristalline goethitique, vacuolaire ou massive, issue de l'altération de faciès carbonatés glauconieux (classe B) ; les blocs fournissent une poudre jaune soit par simple contact, soit par broyage dans le cas des fractions bien cristallisées.
- Une géomatière gréso-carbonatée altérée (classe C), probablement formée dans un contexte proche de la classe B ; ces blocs rouges ont un degré de dureté faible.

Les contextes géologiques permettant de se procurer ces matières premières sont bien répandus et facilement accessibles dans l'environnement local (inférieur à 5 km) du site, y compris dans l'abri (Fig. 1C). La glauconite a d'ailleurs été fortement exploitée comme dégraissant céramique.

L'économie des matières colorantes témoigne d'une exploitation à large spectre de roches répandues et la variabilité qualitative (dureté, degré de cristallisation, richesse en oxy(hydroxy) des de fer) des blocs de la classe B plaide aussi pour une récolte peu sélective. Cette acquisition a pu être effectuée directement par les occupants de l'abri.

5.2. Nice – Giribaldi, site de plein air au cœur d'un réseau au Chasséen

Le Chasséen est marqué par un accroissement des niveaux de spécialisation pour tous les aspects de la production matérielle et une dichotomie accrue entre activités domestiques peu investies et activités à fort investissement technique. Matériaux locaux et exogènes se côtoient au sein des assemblages et les chaînes opératoires elles-mêmes (acquisition, mise en forme, préparations, utilisations, etc.) sont fragmentées dans l'espace. Giribaldi capte ainsi des géomatières diverses (obsidienne, silex bédoulien et oligocène, quartz alpin, roches vertes) selon des modalités variées (nucléus bruts, préformes, outils finis pour ce qui concerne les roches taillées).

Pour les matières colorantes, deux logiques d'acquisition peuvent être mises en évidence à Giribaldi (Fig. 1C). D'une part, on observe l'exploitation de géomatières d'origine locale (inférieure à 5 km) : faciès glauconieux altérés (classe B) et hématite oolithique. De l'autre, deux gammes de matières exogènes, aux propriétés spécifiques, sont importées : (i) les bauxites riches en kaolinite et hématite du Haut-Var (classe D : 70-90 km) et (ii) les grès ferrugineux jaunes du Permien de Provence orientale (classe E : 60-70 km). Il est intéressant de remarquer que les blocs tendres de bauxites (et peut-être certains grès permiens) portent de nombreuses facettes qui attestent leur pulvérisation par abrasion. Les blocs de glauconie altérée ne portent pas de tels stigmates : ils peuvent être travaillés par broyage/concassage ou simple frottement sur support souple.

Les affleurements glauconieux, qui abondent dans l'environnement local du site, ont pu être visités directement par les occupants de Giribaldi. Les bauxites et les grès permiens, en revanche, sont trop distants pour faire l'objet d'expéditions journalières. Il n'est pas possible de savoir si leur transfert a été réalisé lors d'expéditions des habitants de Giribaldi, d'un groupe itinérant ou bien s'il s'agit d'une diffusion par échange. Cependant, leurs aires de répartition relativement adjacentes soulèvent l'hypothèse d'une mise en circulation en commun. Par ailleurs, les formations bauxitiques et permiennes constituent un possible jalon entre Nice – Giribaldi et les gîtes de silex bédoulien du Vaucluse, qui alimentent l'occupation en préformes ou en produits semi-finis entre 4550 et 4050 BCE.

6. CONCLUSION

Une prospection systématique à l'échelle de l'arc liguro-provençal, associée à la caractérisation pétrologique et physico-chimique des affleurements échantillonnés, a permis de mettre en lumière le riche potentiel d'approvisionnement en matières colorantes offert par la région considérée. Aux roches tendres issues de l'altération de glauconie, trop génériquement appelées « ocre », s'ajoutent les marcassites, les bauxites, les oolithes ferrugineuses et les grès permiens. Les conditions de genèse de ces matériaux impliquent des milieux de formation différenciés et une composition variable.

Cette diversité se retrouve également dans les assemblages archéologiques. Au cours du VI^{e} millénaire BCE, les groupes impresso-cardiaux qui occupent l'abri de Castellar – Pendimoun à des fins spécifiques (fabrication de poteries, grotte-bergerie, chasse), ont privilégié l'exploitation peu sélective de matériaux locaux hétérogènes. Malgré la variabilité de leurs propriétés physiques (cohérence, degré de dureté), ils permettent tous de produire une poudre colorante riche en oxy(hydroxy)des de fer.

Au Néolithique moyen, les habitants chasséens du village de Nice – Giribaldi se tournent vers une économie multipolaire : aux ressources locales déjà exploitées, s'ajoutent des matières exogènes : bauxites et grès permiens du Haut-Var. L'exploitation privilégiée de ces nouveaux matériaux suggère un rythme d'approvisionnement régulier, un réseau économique stable et des relations sociales accrues.

La reconstitution des modalités d'acquisition des matières colorantes apporte ainsi des précisions sur l'ensemble du système économique néolithique provençal. Il s'agit désormais d'appréhender l'origine de la dichotomie observée entre le corpus « opportuniste » de Pendimoun et l'assemblage complexe de Giribaldi. Celle-ci est peut-être moins liée aux choix culturels qu'à la hiérarchie des sites au sein du tissu techno-économique. Il conviendra pour cela de caractériser des corpus de matières colorantes provenant d'une part de sites plus « centraux » et pérennes du Néolithique ancien et, d'autre part, de sites « marginaux » saisonniers chasséens.

Bibliographie

BARDOSSY G., 1982. *Karst bauxites : Bauxite deposits on carbonate rocks*. Amsterdam : Elsevier scientific publishing company.

BASSO E., BINDER D., MESSIGA B. & RICARDI M.-P., 2006. The Neolithic pottery of Abri Pendimoun (Castellar, France): a petro-archaeometric study. *In* : M. MAGGETTI & B. MESSIGA (éd.), *Geomaterials in cultural heritage*. Bath: Geological Society Publishing House.

BIGOT M., DAMIANI L., DELLERY B. & DUROZOY G. (Cartographer), 1967. *Saint-Martine-de-Vésubie – le Boléron*.

BINDER D., 1998. Silex blond et complexité des assemblages lithiques dans le Néolithique liguro-provençal. *In* : A. D'ANNA & D. BINDER (dir.), *Production et identité culturelle, Actes des deuxièmes rencontres méridionales de Préhistoire récente,* Arles, 1996, Antibes, APDCA : 11-128.

BINDER D., 2004a. *Un chantier archéologique à la loupe. Giribaldi*. Nice : Musée d'archéologie - Nice Cimiez : 79 p.

BINDER D., 2004b. Giribaldi et la complexité des sociétés néolithiques. *In* : D. BINDER (éd.), *Un chantier archéologique à la loupe, Giribaldi*. Nice: Nice Musées : 70-72.

BINDER D., 2013. *Mésolithique et Néolithique ancien en Italie et dans le sud-est de la France entre 7000 et 5500 BCE cal : questions ouvertes sur les dynamiques culturelles et les procès d'interaction*. Paper presented at the Transitions, ruptures et continuité durant la Préhistoire, actes du XXVII^{e} Congrès préhistorique de France, Bordeaux, les Eyzies, 2010.

BINDER D., BROCHIER J.-E., DUDAY H., HELMER D., MARINVAL P., THIÉBAULT S. & WATTEZ J., 1993. L'abri Pendimoun, à Castellar (Alpes-maritimes) : nouvelles données sur le complexe culturel de la céramique imprimée méditerranéenne dans son contexte stratigraphique. *Gallia Préhistoire*, **35** : 177-251.

BINDER D. & COURTIN J., 1994. Un point sur la circulation de l'obsidienne dans le domaine provençal. *Gallia Préhistoire*, **36** : 310-322.

BINDER D. & MAGGI R., 2001. Le Néolithique ancien de l'arc liguro-provençal. *Bulletin de la Société Préhistorique Française*, **98** (3) : 411-422.

BINDER D., GRATUZE B. & VAQUER J., 2012. *La circulation de l'obsidienne dans le sud de la France au Néolithique*. Rubricatum, Revista del Museu de Gavà, 5 Actes del Congrés Internacional Xarxes al Neolític (VII-III millennium BC). Gavà, 2-4 février 2011, Gavà Bellaterra : 189-200.

BINDER D., LEPÈRE C. & MAGGI R., 2008. Épipaléolithique et Néolithique dans l'arc liguro-provençal : bilan et perspectives de recherche. *Bulletin du Musée d'Anthropologie préhistorique de Monaco, supplément 1* : 49-62.

BINDER D. & SÉNÉPART I., 2010. La séquence de l'Impresso-Cardial de l'abri Pendimoun et l'évolution des assemblages céramiques en Provence. *In* : C. MANEN, F. CONVERTINI, D. BINDER & I. SÉNÉPART (éd.), *Premières sociétés paysannes de Méditerranée occidentale : structure des productions céramiques. Séance de la Société Préhistorique Française. Toulouse, 11-12 mai 2007*. Paris : Société Préhistorique Française, **51** : 150-167.

CORNELL R. M. & SCHWERTMANN U., 2006. *The iron oxides : Structure, properties, reactions, occurrences and uses*. 2de éd., Weinheim : John Wiley & Sons.

DE FRANCESCO A. M., & CRISCI G. M., 2007. Provenance de l'obsidienne. *In* : J. GUILAINE, C. MANEN & J.-D. VIGNE (éd.), *Pont de Roque-Haute. Nouveaux regards sur la néolithisation de la France méditerranéenne*. Toulouse, Archives d'Écologie Préhistorique : 83-85.

DE LAPPARENT. J., 1930. *Les bauxites de la France méridionale*. Paris, Imprimerie nationale : 187 p. + fig. et pl.

DEBRAND-PASSARD S., COURBOULEIX S. & LIENHARDT M.-J., 1984. *Synthèse géologique du Sud-Est de la France, Stratigraphie et paléogéographie*. Orléans : BRGM Éditions, **125**.

DEER W. A., HOWIE R. A. & ZUSSMAN J., 1966. *An introduction to the rock-forming minerals*. Harlow : Longman.

ECHALLIER J.-C., 1991. La céramique. Les matières premières. *In* : D. BINDER (éd.), *Une économie*

de la chasse au Néolithique ancien. La grotte Lombard à Saint-Vallier-Thiey (Alpes-Maritimes). Paris : CNRS Éditions, **5** : 71-89.

ECHALLIER J.-C. & COURTIN J., 1994. Approche minéralogique de la poterie du Néolithique ancien de la Baume Fontbrégoua à Salernes (Var). *Gallia Préhistoire*, **36** : 267-297.

FAURE-MURET A. & FALLOT P., 1957. *Carte géologique détaillée de la France, Puget-Théniers 946*. Orléans, Éditions du Bureau de recherches géologiques et minières.

GASSIN B., LÉA V., LINTON J. & ASTRUC L., 2006. Production, gestion et utilisation des outillages lithiques du Chasséen méridional. *In* : L. ASTRUC, F. BON, V. LÉA, P.-Y. MILCENT, S. PHILIBERT (dir.), *Normes techniques et pratiques sociales. De la simplicité des outillages pré- et protohistoriques*, XXVI[e] Rencontres Internationales d'Archéologie et d'Histoire d'Antibes, Antibes. Éditions APDCA : 223-233.

GÈZE B. & NESTEROFF W., 1996. *Carte géologique détaillée de la France,* Menton-Nice 973. Orléans, Éditions du Bureau de recherches géologiques et minières.

KIMBERLEY M. M., 1989. Exhalative Origins of Iron Formations. *Ore Geology Reviews*, **5** : 13-145.

KORBEL P. & NOVÁK M., 1999. *The complete encyclopedia of Minerals*. Lisse, Netherlands, Rebo International : 296 p.

LAJOINIE J.-P. & LAVILLE P., 1979. *Les formations bauxitiques de la Provence et du Languedoc : dimensions et distributions des gisements*. Orléans, BRGM Éditions, **100**.

LÉA V., 2004. Centres de production et diffusion des silex bédouliens au Chasséen. *Gallia Préhistoire*, **46** : 231-250.

LÉA V., 2012. The Diffusion of Obsidian in the Northwestern Mediterranean: Toward a New Model of the Chassey Culture ? *Journal of Mediterranean Archaeology*, **25** (2) : 147-173.

MARI G., 2002. *Les Anciennes mines de cuivre du Dôme de Barrot (Alpes-Maritimes)*. Nice, Serre Éditeur.

MARI G., 2008. *Mines et minéraux de la Provence cristalline*. Nice : Serre Éditeur.

NICOLAS J., 1968. Nouvelles données sur la genèse des bauxites à mur karstique du sud-est de la France. Leur origine latéritique, leur transport et leur dépôt en milieu aqueux sous forme de bauxite déjà constituée. *Mineralium Deposita*, **3** : 18-33.

ODIN G. S. & MATTER A., 1981. De glauconarium origine. *Sedimentology*, **28** : 611-641.

RENAULT S., LÉA V., ROSTAN P. & THIRAULT É., 2005. Matières premières lithiques et exploitations minières. *In* : X. DELESTRE (éd.), *15 ans d'archéologie en Provence-Alpes-Côte d'Azur*. Aix-en-Provence, Edisud : 47-53.

RICQ-DE BOUARD M., 1996. *Pétrographie et sociétés néolithiques en France méditerranéenne. L'outillage en pierre polie*. Paris, CNRS Éditions, **16**.

RICQ-DE BOUARD M., 2008. L'outillage de pierre : les roches dures. *In* : J. TARRÊTE & C.-T. LE ROUX (éd.), *Archéologie de la France. Le Néolithique*. Paris, Éditions Picard et Ministère de la culture et de la Communication : 180-186.

SALOMON H., 2009. *Les matières colorantes au début du Paléolithique supérieur : sources, transformations et fonctions*. Doctorat, Université de Bordeaux I, Bordeaux, France.

SALOMON H., VIGNAUD C., COQUINOT Y., PAGÈS-CAMAGNA S., POMIÈS M.-P., GENESTE J.-M. & DAVID F., 2008. Les matières colorantes au début du Paléolithique supérieur. Caractérisation chimique et structurale, transformation et valeur symbolique. *Technè, Hors-série* : 15-21.

TOUTIN N., 1980. *Le Permien continental de la Provence orientale (France)*. Doctorat, Université de Nice, 2 vol. : 594 p.

TOUTIN-MORIN N. & DELFAUD J., 1987. Les facteurs régissant le détritisme permien dans le bassin du bas-Argens (Provence orientale). Leur expression dans la pétrographie des sédiments. *Géologie Alpine*, **13** : 47-56.

TOUTIN-MORIN N., CREVOLA G., GIRAUD J. D., DUBAR M., BROCARD C., DARDEAU G., BULARD P. F., MEINESZ A., BONIJOLY D., 1994a. *Carte géologique de la France (1/50 000 feuille Fréjus-Cannes (1024)*. Orléans, Éditions du Bureau de recherches géologiques et minières.

TOUTIN-MORIN, N., BONIJOLY, D., BROCARD, C., BROUTIN, J., CRÉVOLA, G., DARDEAU, G, DUBAR M., FERAUD J., GIRAUD J. D., GODEFROY P., LAVILLE P., MEINESZ A., 1994b. *Notice explicative de la carte géologique de la France (1/50 000 feuille Fréjus-Cannes (1024)*. Orléans, Éditions du Bureau de recherches géologiques et minières : 187 p.

TRIAT J.-M., 1982. *Géologie des ocres de Provence : paléoaltérations dans le Crétacé supérieur de Provence rhodanienne*. Strasbourg : Université Louis-Pasteur, Institut de géologie.

TRIAT J.-M., 2010. *Les Ocres*. Paris, CNRS Éditions : 198 p.

VALETON I., 1996. *Bauxites*. Amsterdam, Elsevier.

VAQUER J., 2007. Le rôle de la zone nord-tyrrhénienne dans la diffusion de l'obsidienne en Méditerranée nord-occidentale au néolithique. *In* : J. CESARI, A. D'ANNA, L. OGEL & J. VAQUER, *Actes du 128e Congrès National des Sociétés Historiques et Scientifiques « Corse et Sardaigne préhistoriques : relations et échanges dans le contexte méditerranéen » (Bastia, 14-21 avril 2003)*. Éditions du CTH, Paris : 99-119

VAQUER J., 2012. Réflexions sur échanges de biens matériels lithiques entre le Midi de la France et le nord de la péninsule ibérique au Néolithique et au Chalcolithique. *Rubricatum, Revista del Museu de Gavà, 5 Actes del Congrés Internacional Xarxes al Neolític (VII-III millennium BC). Gavà, 2-4 février 2011, Gavà Bellaterra* : 565-574.

VINCHON C., 1984. *Sédimentogénèse et métallogénèse du Permien du Dôme du Barrot : Alpes-Maritimes, France*. Thèse d'État. Orléans, Éditions du Bureau de recherches géologiques et minières, 70 : 445 p.

VINCHON C. & TOUTIN-MORIN N., 1987. Convergence de faciès et paléoenvironnements dans les bassins sédimentaires du Permien supérieur de l'Argentera-Barrot et de Provence orientale. *Géologie Alpine*, **13** : 57-67.

Adresse des auteurs :

Jean-Victor PRADEAU
Didier BINDER
Martine REGERT
CEPAM
UMR 7264 CNRS – UNS
Campus SJA 3
24, Avenue des Diables Bleus
06 357 Nice Cedex 4 (France)
jean-victor.pradeau@cepam.cnrs.fr
didier.binder@cepam.cnrs.fr
martine.regert@cepam.cnrs.fr

Chrystèle VÉRATI
Jean-Marc LARDEAUX
Géoazur
UMR 7329 CNRS – UNS
250 rue Albert Einstein Sophia Antipolis
06560 Valbonne (France)
chrystele.verati@unice.fr
lardeaux@unice.fr

Stéphan DUBERNET
Yannick LEFRAIS
IRAMAT – CRP2A
UMR 5060 CNRS – Bordeaux Montaigne
Maison de l'Archéologie
33607 Pessac (France)
stephan.dubernet@u-bordeaux-montaigne.fr
yannick.lefrais@u-bordeaux-montaigne.fr

Ludovic BELLOT-GURLET
MONARIS UMR 8233 CNRS
UPMC
4, Place Jussieu
75252 Paris Cedex 05 (France)
ludovic.bellot-gurlet@upmc.fr

Paolo PICCARDO
Metallurgia DCCI
Università di Genova via Dodecaneso 31
16146 Genova (Italia)
paolo.piccardo@gmail.com

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 121-135

Le minerai de Fer fort des plateaux du Bajocien des régions frontalières du Pays-Haut (France), de la Gaume (Belgique) et du Gutland (Grand-Duché de Luxembourg)

Jean-Paul FIZAINE, Dominique HARMAND & Vincent OLLIVE

Abstract

The "Fer fort", a non-oolitic ironstone located in the Eastern Paris Basin on the top of the Dogger cuesta in the border regions of France (Pays-Haut), Belgium (Gaume) and Grand-Duchy of Luxembourg (Gutland), was already used during the Iron Age, together with Jurassic oolitic ironstones. The "Fer fort" ironstone corresponds to the Borne de Fer ferricrete and clastic blocks of ferricrete reworked in karstic cavities of the Dogger plateau and in the entrenched valleys. Ferricretes are the results of a subtractive weathering profile on upflipted regions under climates with tropical affinities, during Early Cretaceous or/and Palaeogene periods. The "Fer fort" ironstone has numerous features specified by thin sections and chemical and mineralogical analyses, but it is almost characterized by the presence of goethite, the great content of Fe (generally more than 50 %), and the lack of phosphorus allowing its use before the Industrial era.

Keywords: *ferricrete, ironstone, palaeokarst, pisolith, Paris Basin, Dogger Cuesta, Pays-Haut, Gaume, Gutland.*

Mots-clés : cuirasse ferrugineuse, minerai de fer, paléokarst, pisolite, Bassin parisien, côte du Dogger, Pays-Haut, Gaume, Gutland.

1. INTRODUCTION

Dans la région frontalière située aux confins de la France (Pays-Haut), de la Belgique (Gaume) et du Grand-Duché de Luxembourg (Gutland), existent plusieurs minerais : le Minerai de fer oolithique jurassique, le Rasenerz (ou Minerai de Fer des Prés, issu du précédent, Riezebos *et al.*, 1990) et le Fer fort. Ce dernier qui doit son appellation à la forte teneur en fer, souvent supérieure à 50 % (jusqu'à plus de 80 % de Fe_2O_3), était exploité sur les plateaux avant le XIXe siècle (Jacquot, 1849, 1854 ; Jacquot *et al.*, 1868 ; Hottenger, 1923 ; Gardet & Moulinet, 1932). À l'opposé, le minerai de fer jurassique a été appelé « Minette » en raison de sa faible teneur en fer (environ 30%) et de la présence de phosphore qui rendait la fonte cassante avant l'adoption du procédé Thomas-Gilchrist. Pourtant, la Minette fut à l'origine du développement de la sidérurgie lorraine et luxembourgeoise à partir du dernier quart du XIX^{e} siècle. Antérieurement, les trois minerais ont été utilisés depuis l'Âge du Fer (Leroy, 1993), mais le minerai de Fer fort a souvent été privilégié en raison de sa teneur en fer. Il a d'ailleurs été exploité sous l'Empire allemand jusqu'en 1882 à la Borne de Fer (Aumetz).

L'objectif principal de cet article consiste à présenter la diversité des gisements et sites de minerais de Fer fort d'une région frontalière et de montrer les potentialités de leur exploitation par les sociétés anciennes depuis l'Antiquité. En effet, il est fondamental de caractériser les faciès des minerais de fer exploitables dans le cadre des recherches en paléométallurgie actuelles et futures.

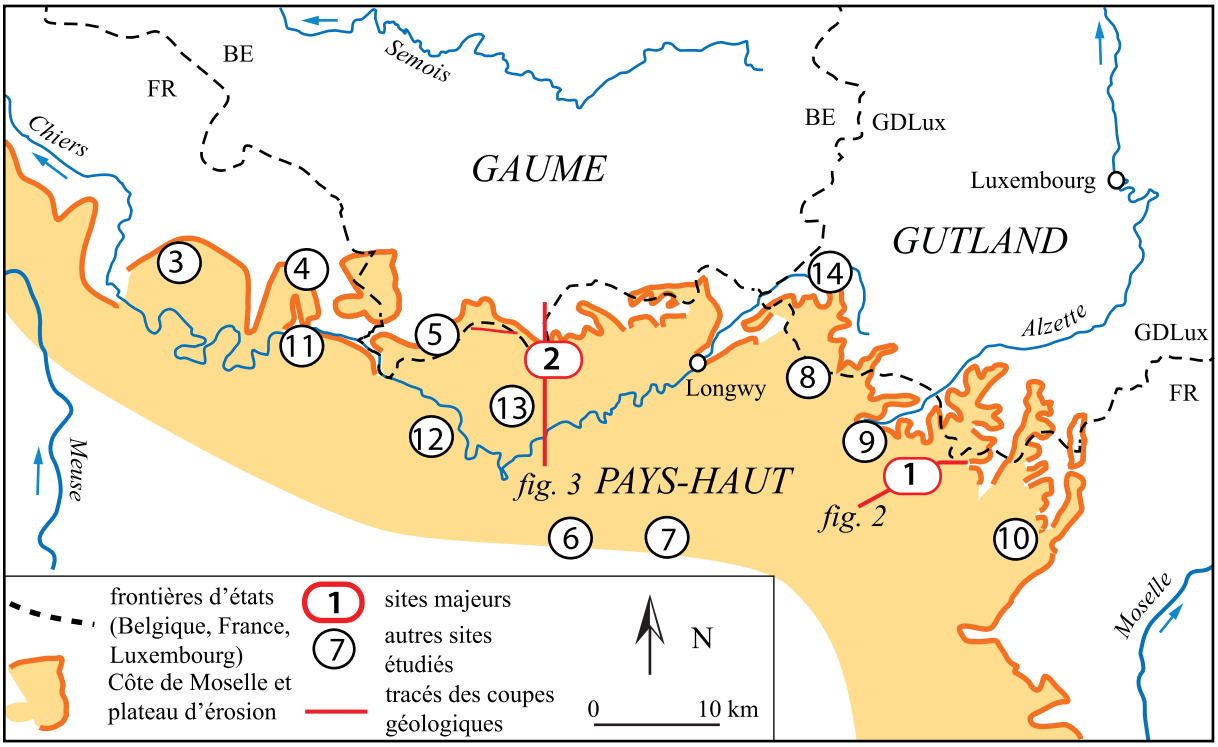
Ce s éléments s'appuient sur les recherches récentes en géomorphologie et en particulier sur la thèse doctorale de Jean-Paul Fizaine défendue à l'Université de Lorraine en décembre 2012 et intitulée : « Les paléokarsts et les formations ferrugineuses associées dans le Bassin parisien et ses bordures : caractérisations et évolutions géomorphologiques »

2. LE CONTEXTE GÉOLOGIQUE, GÉOMORPHOLOGIQUE ET HISTORIQUE

2.1. Le cadre morphostructural

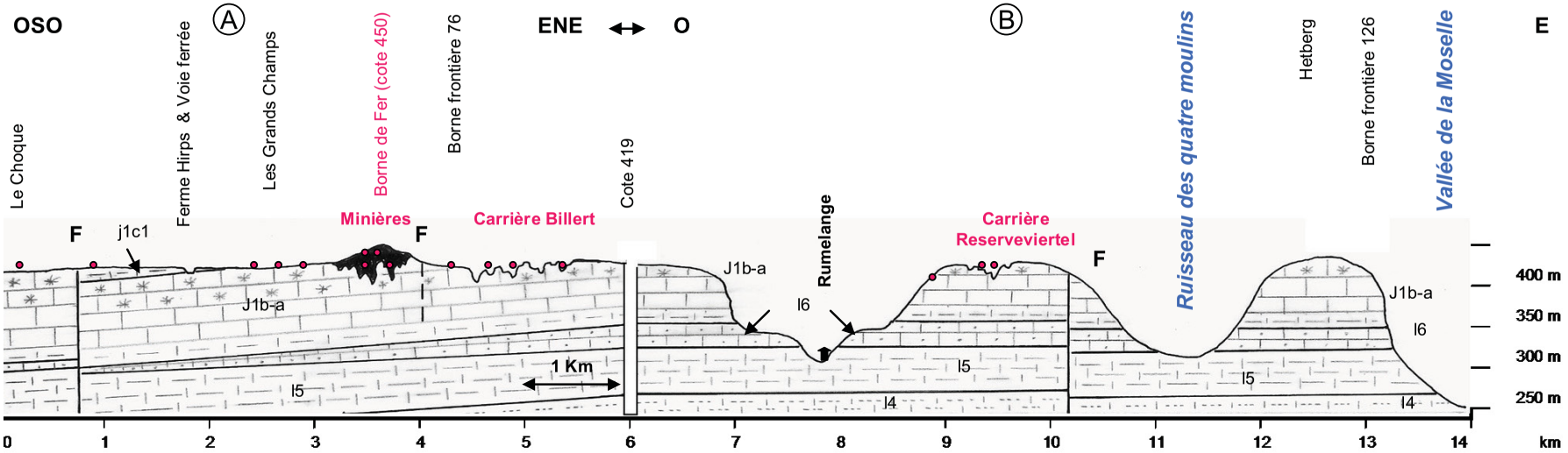
Les formations ferrugineuses impliquées se situent sur le plateau des calcaires bajociens qui constitue le revers de la côte de Moselle,

localisé, pour sa plus grande partie, en France, dans le Pays-Haut (Fig. 1). Elles se situent plus précisément sur le plateau d'érosion situé vers 400 m d'altitude, à la limite des bassins versants de la Meuse et du Rhin, sur les interfluves des vallées de la Chiers et de l'Alzette, et de leurs affluents (Figs 2-3). Ce plateau correspond à une surface d'érosion régionale, appelée « surface des 400 m », qui existe au sommet des principales côtes lorraines (côtes de Lorraine, de Moselle, de Meuse et des Bars) et en bordure du socle du Massif schisteux rhénan (Liedtke *et al.*, 2010). Dans le Pays-Haut, le plateau d'érosion recoupe les calcaires du Jurassique moyen (Bajocien), notamment les Calcaires à Polypiers, l'Oolithe de Doncourt et l'Oolithe de Jaumont (Mégnien *et coll.*, 1980). Sur cette surface, on trouve, dans plusieurs secteurs de l'Est du Bassin parisien, les vestiges d'un paléokarst. Dans le Pays-Haut, ce paléokarst se caractérise par des couloirs de directions nord-est – sud-ouest et nord-nord-ouest – sud-sud-est, comme à Saint-Pancré (Jacquot, 1849 ; Fig. 4), des galeries et des puits révélés par l'exploitation du minerai de fer. À Aumetz, à la Borne de Fer, Jacquot (1849) signale le fonçage d'un puits dans une poche de plus de 30 m sans que l'on ait rencontré la roche calcaire encaissante.



Sites de plateau - 1 : Borne de Fer, 2 : Saint-Pancré, 3 : Signy-Montlibert, 4: gîtes de Verneuil-Grand et Thonne-la-Long, 5 : minières d'Allondrelle-la-Malmaison, 6 : la Caüatte à Pierrepont, 7 : la Couleuvre à Mercy-le-Bas, 8 : minières d'Hussigny-Godbrange, 9 : bois de Butte à Villerupt, 10 : carrière de Reserveviertel à Volmerange-les-Mines. *Sites de vallées* - 11 : minières de Villécloye, 12 : méandre abandonné de la Chiers à Charency-Vézin, 13 : gouffre-minière du Haut des Scieries à Viviers-sur-Chiers, 14 : Pétange (Minerai de Fer des Prés).

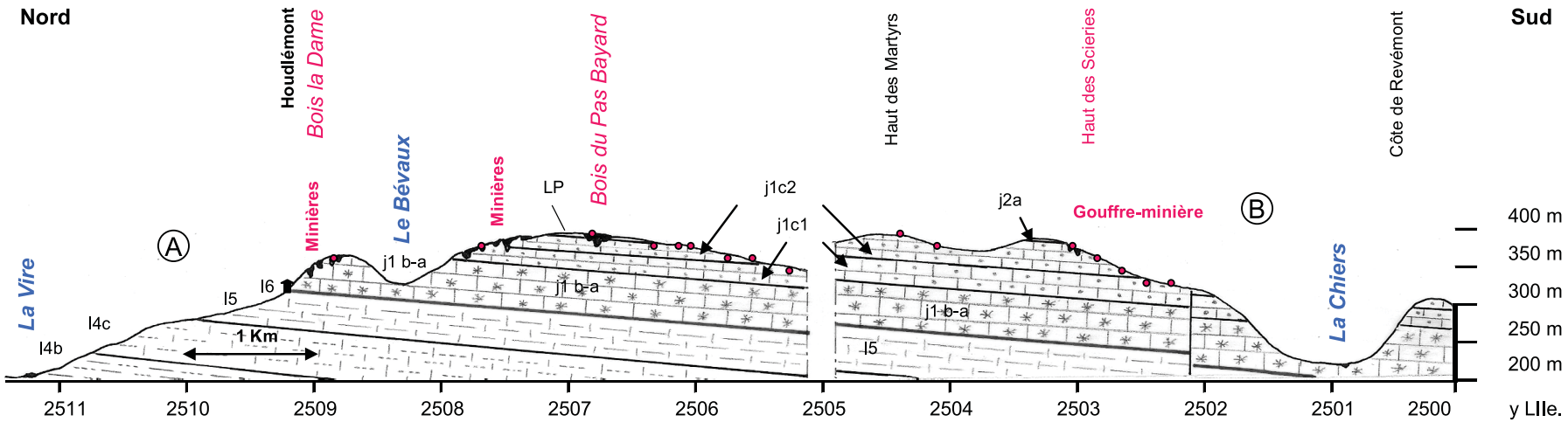
Fig. 1 – Carte des minières de Fer fort des régions frontalières de la France, de la Belgique et du Grand-Duché de Luxembourg, situées à l'Est de la Chiers (Pays-Haut, Gaume, Gutland, Fizaine, 2012, redessinée par D. Harmand).
Fig. 1 *– Map of the surface mine of Fer fort ironstone of the border regions of France, Belgium and Grand-Duchy of Luxembourg, Eastern Chiers River (Pays-Haut, Gaume, Gutland, Fizaine, 2012, redrawn by D. Harmand).*



j1c1	Bajocien supérieur	Oolithe de Doncourt, Niveau des Clapes, Oolithe de Jaumont, Marnes de Longwy (52 m)
j1b-a	Bajocien inférieur et moyen	Calcaires à polypiers supérieurs (23 m), Marnes d'Audun-le-Tiche (10 m), Calcaires d'Audun-le-Tiche (30 m), Calcaires à polypiers inférieurs (47 m), Calcaires de la Hutie (10 m), Calcaires de Haut-Pont et d'Ottange (40 m), Marnes micacées (39 m)
I6	Aalénien	Minerai de fer oolithique (20 à 60 m)
I5	Toarcien	Marnes et grès médioliasique (35 à 150 m)
I4b	Pliensbachien supérieur	Grès de Dippach (Grès médioliasique) (45 m)

Fig. 2 – Coupes géologiques du gîte de la Borne de Fer, des carrières Billert et Reserveviertel :
– (A) Coupe de direction WSW-ENE du gîte de la Borne de Fer et de la carrière Billert ;
– (B) coupe de direction W-E, au droit de la carrière de Reserveviertel (Fizaine, 2012).

Fig. 2 *– Geological cross-sections of the surface mine of the "Fer fort" ironstone, the Billert and Reserveviertel open quarries:*
– (A) WSW-ENE geological cross-section of the surface mine of the "Fer fort" ironstone and the the Billert quarry;
– (B) W-E geological cross-section, East of the Reserveviertel quarry (Fizaine, 2012).



j2a	Bathonien inférieur	Caillasses à *Anabacia* et marnes à *Terebratula globata* (7 à 8 m)
j1c2	Bajocien supérieur	Oolithe de Doncourt (15 m) Niveau des Clapes (2 m)
j1c1		Oolithe de Jaumont (25 m)
j1b-a	Bajocien inf. et moyen (Aalénien sup.)	Calcaires à polypiers supérieurs (17 m)
		Calcaires cristallin à *Echinotis* (12 à 15 m)
		Calcaires à polypiers inférieurs (45 m)
		Calcaires de Haut-Pont et Calcaires d'Ottange (24 m)
		Marnes micacées (4 à 5 m)
I6	Toarcien sup. (Aalénien)	Minerai de fer oolithique (10 m)
I5	Toarcien	Marnes et schistes de Grandcourt (Schistes-cartons) (35 à 150 m)
I4c	Pliensbachien	Macigno d'Aubange (grès médioliasique) (45 m)
I4b		Macigno de Messancy

Fig. 3 – Coupes géologiques du gîte de Saint-Pancré et du gouffre-minière du Haut des Scieries
– (A) Coupe géologique de direction N-S des gîtes de Ville-Houdlémont (bois la Dame) et de Saint-Pancré (bois du Pas Bayard) ;
– (B) coupe géologique, également de direction N-S, du gouffre-minière du Haut des Scieries à la Chiers (Fizaine, 2012).

Fig. 3 – *Geological cross-section of the Saint-Pancré surface mine and the mine cave of the "Haut des Scieries":*
– *(A) N-S geological cross-section of the Ville-Houdlémont (Wood of La Dame) and Saint-Pancré (Wood of the Pas Bayard) surface mines;*
– *(B) N-S geological cross-section from the mine cave of the "Haut des Scieries" to the Chiers (Fizaine, 2012).*

2.2. Types d'affleurements, origine et âge présumé du Fer fort

Dans le Pays Haut, le Fer fort était exploitable dans trois types d'affleurements. Le premier type correspond à une ferricrète (ou cuirasse ferrugineuse), la Borne de fer, constituée de minerai de Fer fort exploité *in situ* (Fig. 1). Le deuxième coïncide avec les blocs de Fer fort mélangés aux argiles et sables qui scellaient à l'origine les dépressions karstiques des plateaux. Le troisième type correspond aux éléments ferrugineux remaniés lors du creusement des vallées et déposés dans des galeries karstiques (grotte-minière du Haut des Scieries – ou du Haut de Séry – à Viviers-sur-Chiers), sur des terrasses (par exemple dans le méandre fossile de Charency-Vezin correspondant à la terrasse Ch 8 de la Chiers situées à +85 m d'altitude relative, Harmand, 2004) ou sur des versants (éléments de conglomérats ferrugineux de Villécloye, près de Montmédy).

En fait, les différents faciès du Fer fort appartiennent aux horizons typiques des cuirasses ferrugineuses. C'est une altérite à forte recristallisation caractérisée par la précipitation massive de substances dissoutes et dominées par un composant chimique (ici, en l'occurrence le fer).

L'altération latéritique est généralement liée aux ceintures climatiques chaudes et humides telles que nous les connaissons (zone intertropicale actuelle). En Europe, on retrouve ces conditions climatiques à affinités tropicales au Crétacé inférieur et au début du Tertiaire, jusqu'à l'Éocène moyen (Quesnel, 2003 ; Thiry *et al.*, 2006). Or, les données paléomagnétiques effectuées sur la cuirasse de « Fer fort » de la

Fig. 4 – Photographie d'une « ruelle » des minières du bois du Pas Bayard à Saint-Pancré (Fizaine, 2012).
Fig. 4 *– Picture of a karstic corridor of the Pas Bayard surface mine at Saint-Pancré (Fizaine, 2012).*

Borne de Fer donnent un âge d'environ 120 Ma (Théveniaut *et al.*, 2007). Il est à noter que l'âge barrémien (Crétacé inférieur) est celui de la formation des bauxites de Provence et du Languedoc (Tardy, 1993) sur des aires en surrection, comme dans le Pays-Haut. En effet, le début du Crétacé correspond, dans les régions situées au sud de la Mer du Nord, à un bombement lithosphérique marqué (qui aurait atteint 2000 m dans le Brabant et 700 m environ à la Borne de Fer) en réponse au rifting avorté de la Mer du nord (Quesnel, 2003 ; Wyns *et al.,* 2003). Les altitudes n'ont vraisemblablement pas atteint ces valeurs en raison de l'altération et de l'érosion progressives des couches sédimentaires jurassiques au Sud de l'Ardenne. La longue période d'érosion continentale (20 millions d'années depuis le début du Crétacé) avant la transgression albienne (fin du Crétacé inférieur) permet d'expliquer la réalisation de profils d'altération ferralitique dans le Pays-Haut et sur ses bordures. Ainsi, les plateaux d'érosion karstifiés et à altération ferralitique situés à l'Est du Bassin parisien correspondent à la surface infracrétacée exhumée. Cette surface façonnée au Crétacé inférieur a, ultérieurement, été fossilisée par les sédiments marins essentiellement d'âge crétacé supérieur ; ces derniers ayant été érodés vraisemblablement au début du Tertiaire, Le Roux et Harmand, 2003).

La période d'altération continentale du début du Tertiaire a probablement généré le remaniement de profils d'altération ferralitique *in situ* ou remaniés dans le karst (Quesnel, 2003), tant que le creusement plio-quaternaire des vallées est responsable d'un démantèlement de ces éléments de cuirasses (Harmand, 2004).

2.3. Les gîtes et sites majeurs

En France, les principaux sites de minières de Fer fort s'échelonnent du Pays de Montmédy à l'ouest, à la partie septentrionale du Pays-Haut à l'est.

Deux sites majeurs et représentatifs se dégagent. Ce sont :

2.3.1. Les minières de la Borne de Fer à Aumetz

Le gîte de la Borne de Fer (Figs 1-2, 5) est le seul qui coïncide avec une cuirasse ferrugineuse en place. Les minières qui s'étendent sur environ 125 ha, se trouvent sur le territoire de la commune d'Aumetz, à 5 km d'Esch-sur-Alzette (Grand-Duché de Luxembourg). Le gîte, matérialisé par une butte surbaissée qui culmine à 450 m, domine d'une trentaine de mètres le plateau d'érosion du sommet de la côte du Dogger et surplombe de plus de 150 m, la dépression argilo-marneuse du Lias.

Les profils d'altération ont une épaisseur comprise entre 15 et 40 m (Quesnel *et al.,* 2006). Ils recouvrent les Calcaires à polypiers supérieurs (Maubeuge, 1959). La coupe dégagée au sommet de la butte sur 3,35 m de hauteur montre l'alternance de bancs fortement cuirassés (jusqu'à 50 cm), de blocs de cuirasses et de niveaux argileux, certains d'entre eux contenant des sables fins quartzeux (Fizaine, 2012). Ces derniers expliquent les faciès gréseux observés en lames minces.

L'évaluation approximative du gîte était estimée en 1849 à 2.500.000 tonnes de minerai. La fermeture définitive est intervenue en 1881, date concomitante à l'installation par le maître de forge (de) Wendel, à Hayange, d'une première aciérie Thomas de quatre convertisseurs qui permettaient l'affinage des fontes phosphoreuses issues de la « Minette » lorraine.

Fig. 5 – Photographie de la cuirasse à faciès métanodulaire de la base de la Borne de Fer (Aumetz, Photo Fizaine, 2012).
Fig. 5 *– Picture of the basis of the Borne de Fer ferricrete (metanodular facies, (Aumetz, Fizaine, 2012)*

2.3.2. Les minières de Saint-Pancré

On comprend sous le nom de minières de Saint-Pancré, les exploitations qui s'étendent sur le territoire de sept communes situées entre 4 et 8 km à l'ouest de Longwy.

Le site principal étudié (Fig. 1), situé à 8 km à l'W de Longwy, se développe sur le sommet de la côte de Moselle à des altitudes comprises entre 350 et 400 m. La roche encaissante du minerai est constituée selon la position dans le profil (Figs 3-4), à la base par la Formation des Calcaires à polypiers supérieurs (Bajocien moyen) et au sommet par les calcaires du Bajocien supérieur représentés par l'Oolithe de Doncourt et l'Oolithe de Jaumont.

Toutefois, l'aspect actuel est celui d'un paléokarst vidé de son contenu, mis à part un bloc de plusieurs tonnes de Fer fort. Le paléokarst se décline en couloirs de plusieurs mètres de largeur de direction N60°E, de dolines et de lapiaz.

La profondeur maximale des couloirs est de 9 m, toutefois, la profondeur initiale était plus grande lors de l'exploitation, les couloirs ont largement été remblayés naturellement par les éboulis issus des parois calcaires.

Plusieurs auteurs (Baeckeroot, 1929 ; Maubeuge, 1969) ont signalé la présence sur le site de blocs et de galets de Pierre de Stonne, quartzite pédogénétique d'âge paléogène formé sous des paléoenvironnements chauds et secs du Paléocène ou de l'Éocène qui jalonne la surface continentale éocène (Quesnel, 1993).

Les minières de Saint-Pancré, étaient déjà connues au Moyen-Âge (mention de 1201 dans les archives de l'Abbaye d'Orval, propriétaire de la Forge de Buré sur le Dorlon). Elles cesseront toute activité le 31 décembre 1865 en raison des coûts devenus prohibitifs de l'exploitation (à la fin de l'exploitation, une tonne de minerai lavé nécessitait l'extraction de 15 tonnes de « terre à mine »).

2.3.3. Les autres sites

Ils se déclinent, d'une part en sites des plateaux, à proximité du front de côte et d'autre part, en site de vallées sous forme d'éléments remaniés (Fig. 1).

Sur le territoire belge, les gîtes se limitent aux incursions de la cuesta du Bajocien, notamment sur les territoires de Ruette-Grandcourt et, dans une moindre mesure, à Halanzy, à Couvreux et à Montquintin (Delhez, 2004).

Il en est de même pour les sites de Fer Fort, désigné sous le terme de "Bohnerz", du Grand-Duché du Luxembourg, limités aux avancées de la cuesta dominant la dépression du Gutland et les localités de Differdange et Rumelange.

3. LES TYPES DE MINERAIS ET LEURS CARACTÉRISTIQUES MACROSCOPIQUES ET MICROSCOPIQUES

3.1. Les types de minerais

Les données pétrographiques permettent de déterminer trois types de minerais (Fizaine, 2012) :

- des minerais de « Fer fort » issus d'une même cuirasse ferrugineuse ;
- des minerais de deuxième génération ayant subi plusieurs stades de transformation ;
- des grès ferrugineux définis par la présence de nombreux grains de quartz détritiques cimentés par des oxydes de fer.

Concernant les relations entre les formations ferrugineuses et le karst, Jean-Paul Fizaine (2012) a défini quatre grands types de formations :

- des vestiges de cuirasses *in situ* associées à un karst profond. Entrent dans cette catégorie, la ferricrète de la Borne de Fer et les restes de la cuirasse de Saint-Pancré observés dans la doline de la Blanche-Haye ;
- des éléments de cuirasse démantelée, piégés dans le karst profond, notamment de puits de plusieurs dizaines de mètres de profondeur ;
- des éléments de cuirasses piégés dans un karst de quelques mètres de profondeur ou situés à la surface des plateaux ;
- des éléments remaniés, voire transformés, issus de cuirasses démantelées, situés sur les versants ou dans des cavités karstiques en relations avec un paléoexutoire.

3.2. Caractéristiques des différents types de minerais

3.2.1. Les faciès de la Borne de Fer

La ferricrète de la Borne de Fer présente un caractère quasi-unique à cette latitude sur le territoire national, voire en Europe occidentale, car on peut y observer, *in situ*, cinq des huit stades d'aggradation / dégradation d'une cuirasse ferrugineuse, définis par Tardy (1993) :

- **Stade nodulaire de l'aggradation (stade 4)**. Ce stade, qui correspond au passage de la carapace à la cuirasse, est situé dans la partie basse accessible du gîte de la Borne de Fer et est visible sur un

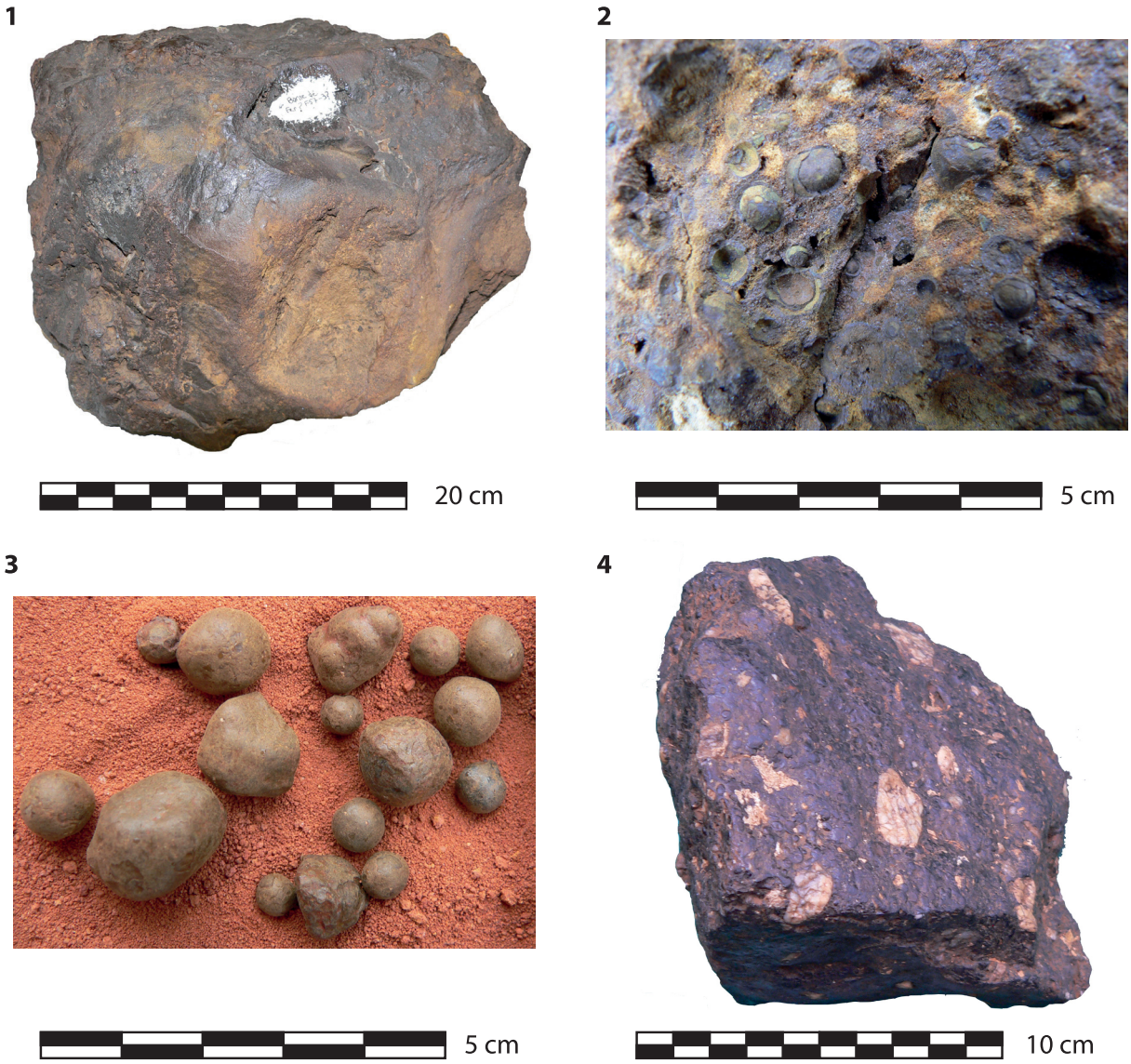


Fig. 6 – Planche photographique de faciès de Fer fort (Photos Fizaine) :
(1) : Bloc de cuirasse à faciès massif (Borne de Fer, Aumetz) ; (2) : bloc de cuirasse dégradée à faciès protopisolitique, Borne de Fer) ; (3) : Pisolites sphériques ou ovoïdes libres (Borne de Fer) ;
4) : coupe du conglomérat à pisolites et à galets de quartz (Les Minières, Villécloye).
Fig. 6 *– Pictures of "Fer fort" facies (Photos Fizaine):*
(1): block of ferricrete with massive facies (Borne de Fer, Aumetz); (2): block of degraded ferricrete with protopisolithic facies, Borne de Fer); (3): isolated spherical pisolites (Borne de Fer);
(4): section of the pisolithic and conglomeratic ferricrete with quartz pebbles (Les Minières, Villécloye)

dénivelé de 10 à 15 mètres (Fig. 5). Tardy (1993) a montré que le passage à la cuirasse s'est opéré par une réduction des vides, une rubéfaction du fond matriciel et une augmentation du nombre mais surtout de la taille des nodules. L'aggradation s'est développée par concrétionnement, ferruginisation et induration du plasma nodulaire et internodulaire en même temps que se perdait l'arrondi des nodules par coalescence ou par densification du fond matriciel.

- **Stade du faciès massif, épicentre du télescopage de l'aggradation / dégradation (stade 5)**. Ce stade qui se développe à environ 1 m sous le niveau actuel du sol atteint une puissance d'ordre métrique. Il correspond au cuirassement ultime. Le faciès est très massif et très homogène (Fig. 6:1). Le fond matriciel du stade nodulaire s'est progressivement enrichi en fer, les nodules se sont dilués. Le cuirassement a atteint le paroxysme de l'accumulation du fer en milieu déshydratant. Les structures pisolitiques sont à peine observables à l'œil nu, le recours à l'examen microscopique s'avère nécessaire (Fig. 7:1). Ce dernier montre un plasma constitué d'oxydes de fer plus ou moins hydratés de couleur jaune à brun foncé. Le squelette est formé de grains de quartz détritiques très nombreux de diamètres compris entre 50 et 500 µm et de très petits grains néoformés (20 à 50 µm). Les traits pédologiques sont surtout représentés soit par des nodules sans cortex (P1), soit par protopisolites présentant une zone corticale marquée (P2).

- **Stades 6 et 7 de la dégradation (protopisolitique, parapisolitique)**. Les nodules se sont transformés progressivement en pisolites. On assiste à la dégradation du fond matriciel et à la formation de cortex de grande taille, soit à partir du faciès massif, soit directement à partir du stade métanodulaire. La dégradation s'est mise en place par développement des cortex et des cernes, en même temps que se perfectionnait l'arrondi des pisolites (Fig. 6:2). Les concentrations de silice (sous forme d'un grès très fin) et de fer sont nettement discernables à l'examen au microscope métallurgique (Fig. 7:2).

- **Stade final de la dégradation (stade 8) : l'horizon de démantèlement**. Les pisolites finissent par se détacher les unes des autres pour former un horizon caillouteux ou graveleux de surface meuble, résultant du démantèlement sur place, sans transport des pisolites formées au sein même de la cuirasse (Fig. 6:3). La forme arrondie ou sphérique des pisolites est obtenue par altération *in situ* des nodules ou du faciès massif de la cuirasse et non pas par transport de surface et arrondi mécanique. Le cortex est constitué essentiellement de gœthite alumineuse. Les cernes de gœthite séparent ainsi deux domaines : le premier, à l'intérieur des pisolites est hématique, finement poreux et induré, le second à l'extérieur est plus riche en gœthite (Nahon, 1976). Les nodules à cœur d'hématite prennent une forme sphérique. Ce sont des pisolites "vraies" dont la taille diminue vers le haut du profil.

La mise en évidence de ces différents stades caractéristiques, permet de pouvoir considérer la Borne de Fer comme une véritable cuirasse ferrugineuse telle que décrite par différents auteurs (Nahon, 1976 ; Tardy, 1993). Toutefois, les stades 1 (horizon tacheté) à 3 (carapace à faciès paranodulaire) de Tardy (1993) n'ont pas été identifiés.

3.2.2. Les autres faciès

Des éléments de cuirasse démantelée, piégés dans le karst profond ou remaniés dans les vallées présentent également des faciès caractéristiques. Ainsi, l'analyse microscopique d'un échantillon de Fer fort à faciès massif issu du lapiaz (crêtes de largeur décimétrique à métrique séparées par des rainures ou couloirs de dissolution karstique) du bois Bayard à Saint-Pancré (type B, voir ci-dessus), révèle la présence d'un plasma constitué surtout d'oxydes de fer de couleur brun foncé à rouge vif et d'un squelette formé de cristaux de quartz néoformés de 50 µm à 1,5 mm (Fig. 7:3). Le plasma est marqué par la présence d'accrétions ferrugineuses plus ou moins hydratées. L'échantillon de Fer fort à faciès massif provenant des minières d'Hussigny-Godbrange (type C) révèle la présence de nombreux grains de quartz. L'examen au microscope métallurgique fait, quant à lui, apparaître des pisolites avec ou sans cortex (Fig. 7:4).

Les minerais de type D sont représentés en premier lieu par un remplissage d'une galerie karstique (le Haut de Séry) en connexion avec un paléoniveau de la Chiers dominant le fond de vallée d'environ 150 m et en second lieu par des éléments épars de fer fort situés sur une terrasse dégradée de l'Othain, affluent de la rive gauche de la Chiers.

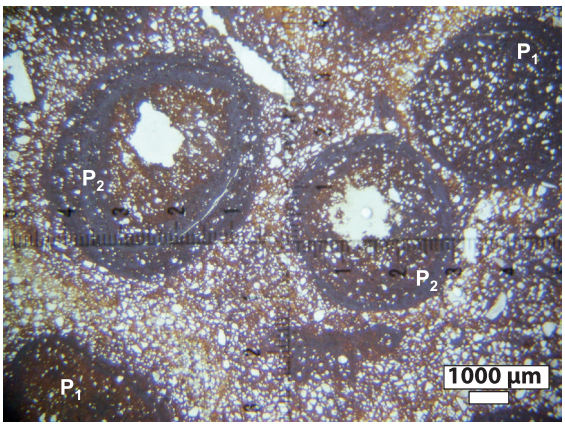
La grotte-minière du Haut de Séry a conservé les restes d'un remplissage essentiellement argileux contenant de très nombreuses micro-pisolites autrefois exploitées par les mineurs (Fig. 8). L'observation en lame mince a révélé la présence dans les pisolites de très nombreux micro-grains de quartz (Fizaine, 2012).

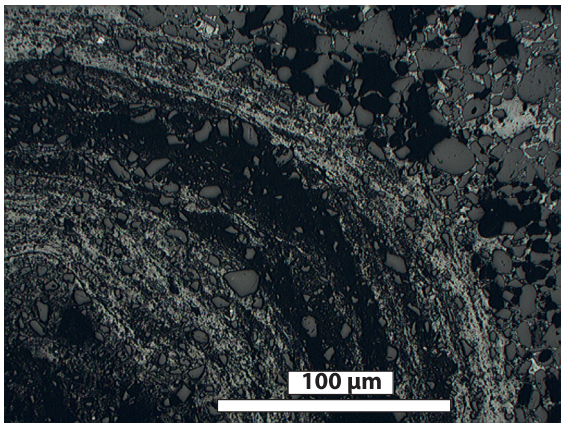
L'échantillon issu des minières de Villécloye situées sur le versant d'une vallée affluente de la Chiers (Othain) est l'un des plus originaux puisqu'il présente un faciès conglomératique avec des galets de quartz de dimensions centimétriques associés à des pisolites ferrugineuses, entières ou brisées, à cortex multiple ou unique (Figs 6:4, 7:5).

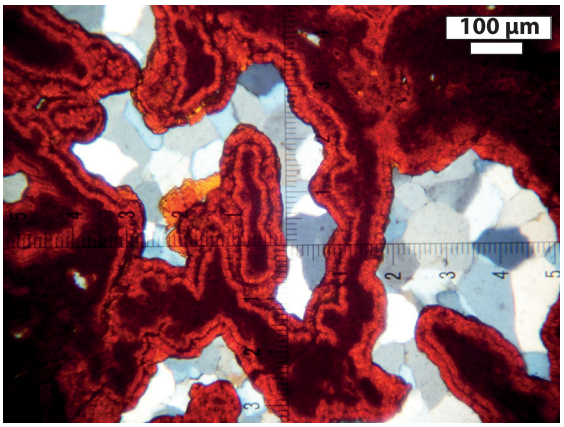
4. CARACTÉRISTIQUES CHIMIQUES ET MINÉRALOGIQUES

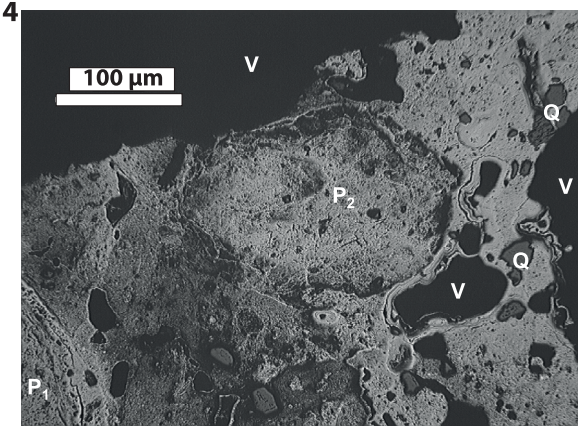
4.1. Les analyses chimiques

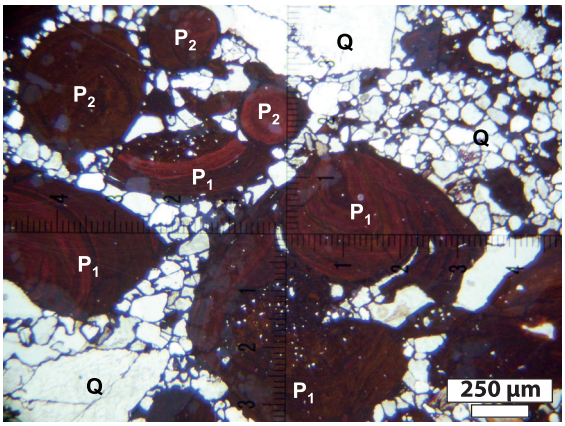
Dans la région qui s'étend des Crêtes pré-

1


2


3


4


5


ardennaises à l'Est du Pays-Haut, 37 analyses ont été effectuées (dont 29 concernent le secteur situé à l'Est de la Chiers).

En général, les minerais sont très riches en Fe_2O_3 (Fig. 9). Ainsi, on observe une teneur supérieure à 50 % pour 87 % des gîtes et deux échantillons atteignent, voire dépassent les 80 %. En revanche, la teneur en silice est très disparate (entre 2,34 et 52,73 %). Les faciès gréseux ou protopisolitiques présentent évidemment les teneurs les plus élevées. Ceci confirme, si besoin était, l'équilibre fer / silice.

Concernant les autres éléments chimiques, leur part est en général très faible. C'est le cas pour l'alumine, la totalité des échantillons montrant des spécimens peu bauxitisés (moyenne : 3,27 % Al_2O_3).

La caractéristique majeure concerne le très faible pourcentage de phosphore (qui rendait la fonte cassante avant l'utilisation du procédé Thomas-Gilchrist à partir des années 1880), la teneur médiane étant de 0,25 %. En revanche, la teneur en phosphore du Minerai de fer des Prés à Pétange (*Rasenerz*) issu du minerai de fer oolithique jurassique est de 1,58 %. Ainsi la forte teneur en fer et la faible teneur en phosphore donnait une importance au minerai de Fer fort.

Les teneurs en calcium sont faibles et, pour 65 % des gîtes, comprises entre 0 et 0,20 %. Pour les autres résidus alcalins (MgO, Na_2O, K_2O), les teneurs médianes sont, du fait du lessivage, conformes aux autres ferricrètes et se réduisent respectivement à 0,13 % ; 0,03 % et 0,05 %. Les teneurs des autres métalloïdes (MnO et TiO_2), comprises dans les mêmes écarts (entre 0 et 0,91 %), ne sont pas significatives.

Les résultats des analyses par pertes au feu (principalement dues aux groupements OH des hydroxydes et oxy-hydroxydes de fer) présentent des valeurs disparates, comprises entre 1,39 et 15,50 %. Il apparaît que les grès ferrugineux possèdent une perte au feu moindre que les faciès plus altérés de Fer fort.

L'indice d'altération et de lessivage (Φ_{jp}) est fourni pour les analyses récentes (Fizaine, 2012). Cela permet de distinguer pour le Pays-Haut, des populations de minerai en fonction de l'intensité de lessivage et de l'altération depuis des valeurs faibles (0,05) jusqu'à des valeurs très élevées (0,10 - 0,36).

Fig. 7 – (page opposée) Planche photographique de lames minces de Fer fort (Photos Fizaine) : (1) : organisation interne d'un faciès massif de la Borne de Fer, Aumetz ; P1 : nodule sans cortex ; P2 : protopisolite avec un cœur évidé (LN x8 ; 1 graduation = 125 µm) ; (2) : microscopie métallurgique d'un faciès protopisolitique de la Borne de Fer avec pisolite à cortex multiples (microscope métallurgique : LAM Jarville) ; (3) : microscopie d'un faciès massif de deuxième génération (Bois du Pas Bayard, à Saint-Pancré). NB : la photographie a été réalisée par adjonction d'une lame retardatrice (¼ λ) pour augmenter le contraste entre les minéraux LPA x100 (1 graduation = 10 µm) ; (4) : microscopie métallurgique d'un rognon de Fer fort à faciès massif (Les Minières, Hussigny-Godbrange ; P1 : pisolite avec cortex avec un diamètre estimé à 800 µm, P2 : pisolite sans cortex. Les grains de quartz (Q) et les vides (V) apparaissent en teinte plus sombre ; (5) microphotographie du conglomérat à pisolites et à galets de quartz de Villécloye : blanc : squelette constitué de grains de quartz (Q) hétérométriques ; brun : pisolites "vrais" à cortex multiples (P1) et les pisolites à cortex unique (P2), sous forme intégrale ou de débris ; LPNA x10 (1 graduation = 100 µm).

Fig. 7 *– (opposite page) Pictures of thin sections of "Fer fort" (Photos Fizaine): (1): inner frame of the Borne de Fer massive facies (Aumetz); P1: nodule without cortex; P2: protopisolith with a hollowed out heart (LN x8; 1 graduation = 125 µm); (2): metallurgical microscopy of a protopisolithic facies with a multiple cortex of the Borne de Fer (metallurgical microscope: LAM Jarville); (3): microscopy of a second generation massive facies (Wood of the Pas Bayard at Saint-Pancré). NB: the photography was realized by addition of a retarding blade (¼ λ) to increase the contrast between minerals LPA x100 (1 graduation = 10 µm); (4): metallurgical microscopy of a "Fer fort" nodule with a massive facies (Les Minières, Hussigny-Godbrange; P1: pisolith with cortex with a diameter estimated at 800 µm, P2: pisolith without cortex. Quartz grains (Q) and space (V) appear darker color; (5) microphotography of the pisolithic and conglomeratic ferricrete with quartz pebbles of Villécloye; white: clastic quartz grains (Q); brown: multiple cortex pisolites (P1) and one cortex pisolite (P2); LPNA x10 (1 graduation = 100 µm).*

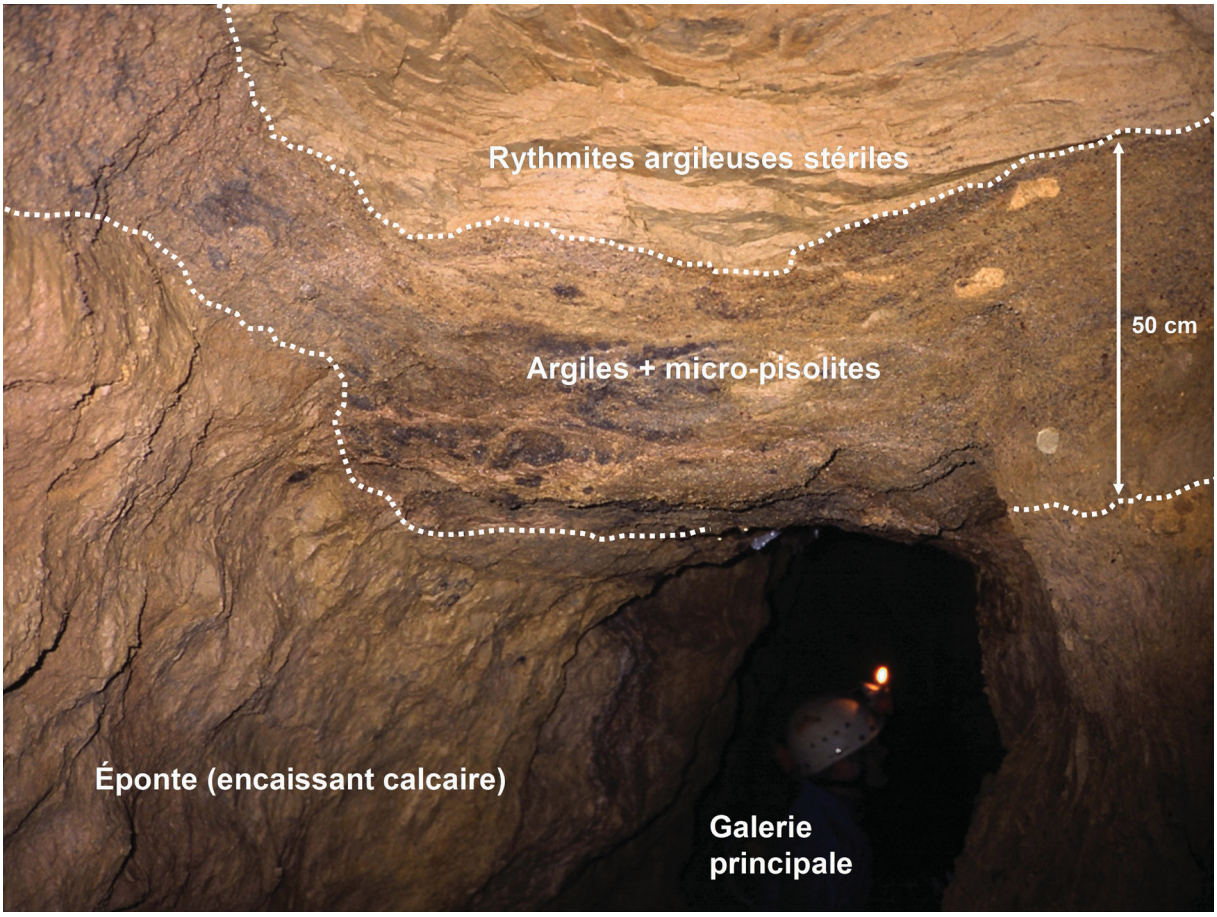


Fig. 8 – Gouffre-minière du Haut des Scieries, détail du remplissage (Viviers-sur-Chiers). Le cliché permet d'examiner les vestiges du remplissage abandonné par les mineurs au sommet de la galerie : à la base du remplissage conservé, on observe encore des lits d'argiles avec une forte densité de granules ferrugineux ou papules et au sommet, des rythmites argileuses, affaissées au centre et totalement exemptes d'éléments ferrugineux (Fizaine, 2012).

Fig. 8 *– Mine cave of the "Haut des Scieries", detail of the filling (Viviers-sur-Chiers). The picture shows the remains of the filling at the top of the gallery after their abandonment by the miners: the filling correspond to beds of clays with a strong density of ferruginous granules or papules at the basis, and upper, to subsided clayey rythmites without ferruginous nodules (Fizaine, 2012).*

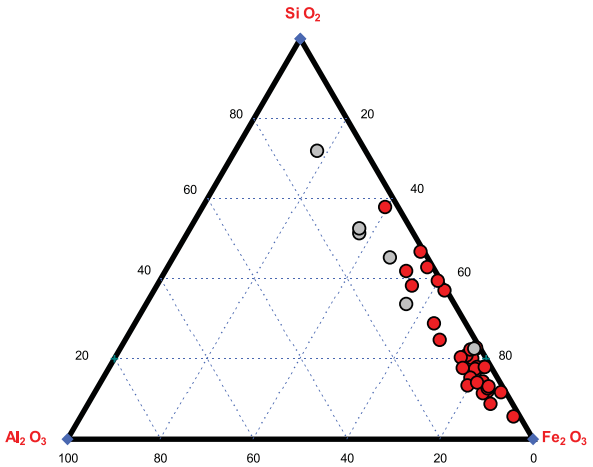


Fig. 9 – Graphique ternaire des principaux composants (Fe_2O_3, SiO_2 et Al_2O_3) des minerais de Fer fort du Pays-Haut, de la Gaume et du Gutland (rouge : analyses récentes, gris : analyses anciennes, Fizaine, 2012).

Fig. 9 *– Ternary graph of the main components (Fe_2O_3, SiO_2 and Al_2O_3) of the "Fer fort" ironstone of the Pays-Haut, the Gaume and the Gutland (red: recent analyses, grey: former analyses, Fizaine, 2012).*

3.2. Les analyses minéralogiques

Pour la région étudiée située entre les Crêtes ardennaises et la Moselle, nous disposons de sept analyses diffractométriques. La composition minéralogique des échantillons de minerai de fer se résume pour l'essentiel à un seul oxy-hydroxyde de fer : la gœthite systématiquement accompagnée de quartz. Seul, le conglomérat de pisolites de Villécloye tranche singulièrement avec cette monotonie, en affichant de l'hématite qui est peu commune dans le Bassin parisien.

6. CONCLUSIONS

Le minerai de Fer fort du sommet de la côte de Moselle présente en réalité de multiples faciès liés d'une part aux processus d'aggradation/dégradation des cuirasses ferrugineuses, et d'autre part au démantèlement des ferricrètes originelles et au remaniement des éléments ferrugineux dans le karst et dans les vallées qui drainent le plateau du Dogger, essentiellement la Chiers et ses affluents.

Les faciès du minerai de Fer fort ont donc présenté à toutes les périodes précédant la Révolution industrielle un grand intérêt en raison de la teneur élevée en fer et de la quasi-absence de phosphore. Mis à part les sites de la Borne de Fer et peut-être de Saint-Pancré où une cuirasse ferrugineuse existait encore avant son exploitation (Jacquot, 1849), les minières coïncidaient avec des sites relativement exigus situés le plus souvent en contexte karstique, ce qui était compatible avec une exploitation artisanale, mais ne l'était plus à l'époque industrielle qui demandait une quantité plus volumineuse de minerai. En outre, l'épuisement progressif des minières (par exemple le site de Saint-Pancré est épuisé dès 1865) conduit à leur abandon dès avant l'exploitation massive de la Minette.

Notons également que les sites, situés sur les plateaux, à proximité des villages et dans les terroirs mis en culture, étaient très accessibles. Les minerais pouvaient être acheminés rapidement vers les lavoirs de minerais situés à proximité, en général dans le même finage (comme à Saint-Pancré où les lavoirs se situaient sur le versant au droit des sources ou dans la vallée échancrant la côte. Les forges se situaient, quant à elles, dans les vallées.

Les matériaux à base de goethite donnent par abrasion une poudre ocre jaune à ocre brun. Après chauffage du matériau à plus de 350°C, la goethite est transformée en hématite rouge donnant alors par broyage ou abrasion une poudre de couleur rouge intense. Notons encore que la présence de grains de quartz permet une auto-abrasion aisée du matériau et que l'occurrence éventuelle de minéraux argileux peut conférer des propriétés particulières à la poudre, notamment concernant l'adhérence de la poudre sur un support sur lequel elle serait appliquée.

Ainsi, les recherches récentes sur le Fer fort, notamment sur la variété des faciès et leur localisation précise permettent d'envisager des études géoarchéologiques futures qui permettront d'étoffer les nouveaux travaux dans le domaine de la paléométallurgie à différentes époques, de l'Âge du Fer à la période proto-industrielle.

Bibliographie

BAECKEROOT G., 1929. Sur l'existence de la Pierre de Stonne entre la Meuse et la Moselle. *Bulletin de la Société Géologique du Nord*, **LIV** : 87-94.

DELHEZ J.-C., 2004. *Les mines de fer du pays gaumais*. Chez l'auteur – 55600 Thonne-la-Long : 223 p.

FIZAINE J.-P., 2012. *Les paléokarsts et les formations ferrugineuses associées dans le Bassin parisien et ses bordures : caractérisations et évolutions géomorphologiques*. Thèse de géographie physique, Université de Lorraine. Tome I : 468 p, Tome II (annexes) : 172 p.

GARDET G. & MOULINET G., 1932. Le minerai de « Fer fort » du front de la côte bajocienne de la région de Longuyon - Longwy – Villerupt. *Bulletin de l'Association des Anciens Élèves de l'École des Mines de Douai (25 mai 1932)° :* 408-434, carte.

HARMAND D., 2004. *Genèse et évolution du réseau hydrographique (creusement des vallées et captures) dans les régions de moyennes latitudes : exemple de l'Est du bassin de Paris*. Mémoire d'habilitation à diriger des recherches. Université de Nancy 2 : 272 p.

HOTTENBERG G., 1923. Les anciennes minières de fer fort de Saint-Pancré et d'Aumetz. *Bulletin de la Société Industrielle de l'Est*, **167-168** : 37 p.

JACQUOT E., 1849. Les mines et les minières de fer de la partie occidentale du département de la Moselle. *Annales des Mines*, **16** : 427-494.

JACQUOT E., 1854. *Esquisse géologique et minéralogique de la Moselle*. Pallez et Rousseau, Metz : 436 p., 3 pl.

JACQUOT E, TERQUEM O. & BARRÉ A., 1868. *Description géologique et minéralogique du département de la Moselle*. Raçon et C^{ie}, Paris : 32 p.

LE ROUX J. & HARMAND D., 2003. Origin of the hydrographic network in the Eastern Paris Basin and its border massifs. Hypothesis. *In* : F. QUESNEL (coord.), *Structural, Morphologic and Hydrologic consequences*. Special conference on paleoweathering and paleosurfaces in the Ardenne-Eifel region at Preizerdaul (Luxembourg) on 14 to 17 may 2003, *Géologie de la France*, **1** (4) : 105-110.

LEROY M., 1993. *La sidérurgie ancienne en Lorraine avant le haut-fourneau*. Thèse (archéologie), Université de Franche-Comté : 447 p.

LIEDTKE H, DESHAIES M., GAMEZ P., HARMAND D. & PREUSSER H., 2010. *Die Oberflächenformen in der Grenzregion Saarland–Lothringen–Luxembourg / Les formes de relief dans la région frontalière Sarre-Lorraine-Luxembourg / Veröffentlichungen des Instituts für Landeskunde im Saarland*. Saarbrücken, Band 48. Forschungen zur deutschen Landeskunde. Liepzig, Band **259** : 367 p + 1 carte h. t. (carte à 1/300 000 de l'espace Saar-Lor-Lux).

MAUBEUGE P.-L., 1959. *Carte géologique de France à 1/50 000^{e}* (feuille Longwy – Audun-le-Roman, n° 113) *et notice explicative :* 8 p. BRGM, Orléans.

MAUBEUGE P.-L., 1969. *Carte géologique de France à 1/50 000^{e}* (feuille Longuyon-Gorcy, n°112) *et notice explicative* : 11 p. BRGM, Orléans.

MÉGNIEN C. (coord.), 1980. *Synthèse stratigraphique du Bassin de Paris. Vol. I: stratigraphie et paléogéographie*. Mémoire B.R.G.M., **101 :** 466 p., 182 fig. ; Vol. II: *Atlas* Mémoire B.R.G.M., **102** : 55 pl. ; Vol. III : *Lexique des noms de formations*. Mémoire B.R.G.M., **103 :** 467 p.

NAHON D., 1976. *Cuirasses ferrugineuses et encroûtements calcaires au Sénégal et en Mauritanie - Systèmes évolutifs : géochimie, structures, relais et coexistence*. Sciences Géologiques Mémoires : 232 p.

QUESNEL F., 2003. Paleoweathering and palaeosurfaces from northern and eastern France to Belgium and Luxembourg: geometry, dating and geodynamics implications. *In* : F. QUESNEL (coord.), *Structural, Morphologic and Hydrologic consequences*. Special conference on paleoweathering and paleosurfaces in the Ardenne-Eifel region at Preizerdaul (Luxembourg) on 14 to 17 may 2003, *Géologie de la France*, **1** (4) : 95-104

QUESNEL F., YANS J., DUPUIS Ch., WYNS R., THÉVENAUT H. & DEMOULIN A., 2006. Paléoaltérations mésozoïques et cénozoïques en Ardenne et ses bordures : caractérisation, datation et reconstitution géométrique des paléosurfaces associées et analyse de leurs déformations successives. *Géologie de la France*, **1** (2) : 99-102.

RIEZEBOS P. A., TEN KATE W. G. H. Z. & de BRUIN M., 1990. *Eluvial derivation of Rasenerz concretions from the Minette formation (Luxembourg); evidence based on numerical classification of geochemical data*. Service géologique du Luxembourg. Bulletin, **15** : 35 p.

TARDY Y., 1993. *Pétrologie des latérites et des sols tropicaux*. Masson, Paris : 459 p.

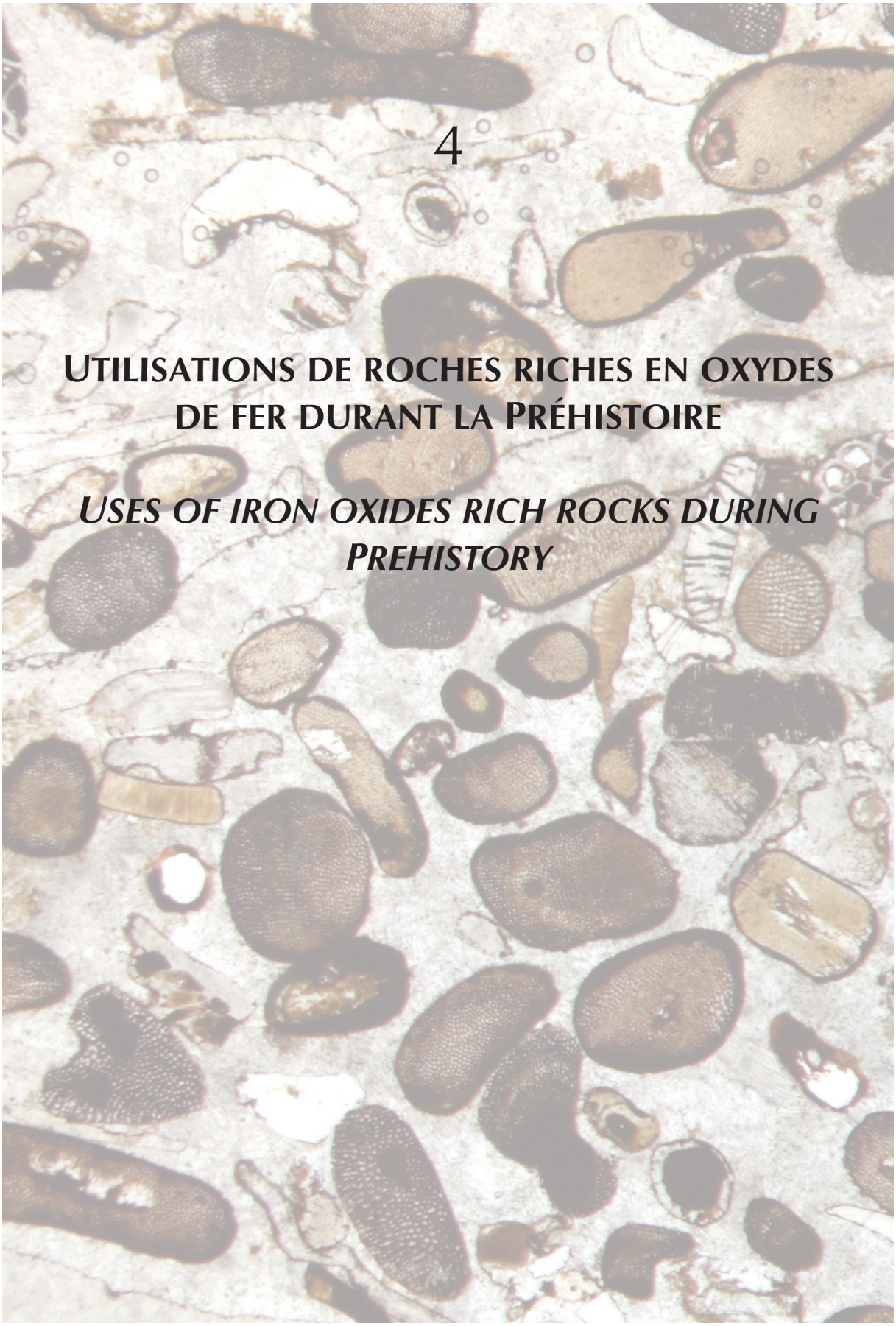
THÉVENAUT H., QUESNEL F., WYNS R. & HUGUES G., 2007. Palaeomagnetic dating of the "Borne de Fer" ferricrete (NE France): Lower Cretaceous continental weathering. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology,* **253** : 271–279.

THIRY M., QUESNEL F., YANS J., WYNS R., VERGARI A., THÉVENAUT H., SIMON-COINÇON R., RICORDEL C., MOREAU M.-G., GIOT D., DUPUIS C., BRUXELLES L., BARBARAND D. J. & BAELE J.-M., 2006. Continental France and Belgium during the Early Cretaceous: paleoweatherings and paleolandforms. *Bulletin de la Société géologique de France,* **177** (3) : 155-175.

WYNS R., QUESNEL F., SIMON-COINÇON R., GUILLOCHEAU F. & LACQUEMENT F., 2003. Major weathering in France related to lithosphere deformation.. *In* : F. QUESNEL (coord.), *Structural, Morphologic and Hydrologic consequences*. Special conference on paleoweathering and paleosurfaces in the Ardenne-Eifel region at Preizerdaul (Luxembourg) on 14 to 17 may 2003, *Géologie de la France*, **1** ((4) : 79-87.

Adresses des auteurs :

Jean-Paul FIZAINE
Dominique HARMAND
Vincent OLLIVE
Laboratoire de géographie LOTERR
Université de Lorraine (France)
jean-paul.fizaine@univ-lorraine.fr
dominique.harmand@univ-lorraine.fr
vincent.ollive@univ-lorraine.fr



4

UTILISATIONS DE ROCHES RICHES EN OXYDES DE FER DURANT LA PRÉHISTOIRE

USES OF IRON OXIDES RICH ROCKS DURING PREHISTORY

Image au microscope optique polarisant d'un minerai de fer oolithique belge (Famennien, Synclinorium de Namur, BE)

4.1. CHALMIN É, CASTETS G., DAVID B., BARKER B., DELANNOY J.-J., LAMB L., GENESTE J.-M., SOUFI F., PAIRIS S., HOERLÉ S., BOCHE É & KATHERINE M., 2016. Étude des pigments rouges du panneau du « Genyornis », Terre d'Arnhem, Australie : origines de l'hématite ? : 139-160.

4.2. TRĄBSKA J., OLIVA M., GAWEŁ A. & TRYBALSKA B., 2016. Dolní Věstonice I female grave (DV3). Red colourants and other components of the burial fill up and grave floor : 161-178.

4.3. KITZIG J. & RAMMINGER B., 2016. Use and distribution of colourants in Western LBK sites : 179-186.

4.4. THEVENET C., 2016. Quelques hypothèses quant à l'usage des matières colorantes rouges dans les sépultures du Néolithique ancien du Bassin parisien : 187-199.

4.5. JODRY F., MINNI D. & VAN ES M., 2016. L'acquisition et l'exploitation des roches riches en oxydes de fer en Alsace du Néolithique à La Tène : 201-218.

In : C. BILLARD *et al.* (éd.), *Autour de l'hématite / About haematite. Actes de / Acts of Jambes, 7-8/02/2013, Volume 2*, Liège, ERAUL, **143** – Anthropologica et Præhistorica, **126/2015**.

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 139-160

Étude des pigments rouges du panneau du « Genyornis » Terre d'Arnhem, Australie : origines de l'hématite ?

Émilie CHALMIN, Géraldine CASTETS, Bruno DAVID, Bruce BARKER, Jean-Jacques DELANNOY, Lara LAMB, Jean-Michel GENESTE, Fayçal SOUFI, Sébastien PAIRIS, Stéphane HOERLÉ, Élisa BOCHE & Margaret KATHERINE

Abstract:

Study of red pigments from the "Genyornis" panel, Arnhem Land, Australia: what are the origins of the haematite?

Western Arnhem Land's rock art is world famous yet very poorly dated. Understanding its history over tens of thousands of years has major implications for understanding Aboriginal cultural history in Australia. In particular, very little is known about the composition of paints and the techniques used to make Rock Art. Here we investigate the pigments and rock surfaces of an undated rock painting that has been argued in the literature to represent the extinct megafaunal bird Genyornis newtoni, thought to have become extinct across Australia 40-45 000 years ago. Small flakes of pigmented and unpigmented rock were sampled from the so-called Genyornis panel in order to address three major questions concerning: i) the constituents of the pigments used and their modes of preparation (mixing with extender(s) or binder(s); grinding; heat treatment); (ii) the geological formations which provided such pigments; and (iii) the antiquity of paintings on the rock walls. Following macroscopic observations, pigment compositions were analyzed by scanning electron microscopy coupled with energy-dispersive X-ray spectrometry (SEM-EDX) and Raman microspectroscopy. Complementary structural information was obtained using X-ray diffraction (XRD). Both unprepared samples and cross-sections of resin-embedded samples were analyzed to obtain morphological, chemical and structural characterizations.

Iron oxides (hematite Fe_2O_3 and goethite FeOOH) were identified in the paint layer. A white alumino-phosphate-rich matrix was identified as a weathering, microstratigraphically basal bedrock layer on the rock wall. The punctual presence of gypsum ($CaSO_4$, $2H_20$) was observed as an underlayer below the pigment and could be explained by the weathering process of the quartzite support.

This study highlights the difficulty of obtaining information on ancient pigments significantly modified through time in a relatively open site and distinguishing poorly crystallized iron oxides, which result from the weathering of rocks and the sub-micronic iron oxide crystals in the leached paint layer.

Keywords: *rock art, red pigment, Jawoyn, Arnhem Land (Australia), physico-chemical analyses, weathering processes.*

Mots-clés : art rupestre, pigment rouge, Jawoyn, Terre d'Arnhem (Australie), analyses physico-chimiques, processus d'altération.

1. INTRODUCTION

Les représentations pariétales constituent un mode d'expression fréquent dans de nombreuses cultures, des plus anciennes du Paléolithique supérieur en Europe (36 500 BP pour la grotte Chauvet (Clottes *et al.*, 1990) et aux environs de 40 000 BP en Espagne (Pike *et al.*, 2012) et en Indonésie (39 900 BP pour Sulawesi, (Aubert *et al.*, 2014) ou datant du Pléistocène supérieur en Australie (David *et al.*, 2013), jusqu'à plus récemment dans le reste du monde (art dit traditionnel comme l'art rupestre San (Drakensberg, Afrique du Sud, (Lewis-Williams, 2006) ou l'art Aborigène ethnographique australien). Ces dessins ou ces peintures peuvent être datés à partir de mesures relativement directes [(méthode du ^{14}C) (Valladas *et al.*, 2001, 2005)] ou de façon plus indirecte [datation d'encroûtement de calcite (Pike *et al.*, 2012), corrélation et croisement avec les fouilles archéologiques (David *et al.*, 2011), comparaison stylistique....]. Malgré une diversité de temps, d'environnements (grotte, abri sous roche, escarpement, plein air), de supports (grès, calcaire), de

styles et de thèmes (animaux, scène de chasse, fécondité, figures abstraites, représentation humaine, sexualité), l'élément commun de tout cet art rupestre, lorsqu'il n'est pas gravé, est l'utilisation de pigments.

Il existe quatre couleurs majoritairement utilisées en peinture pariétale : le rouge, le noir, le jaune et le blanc. La nature de ces pigments interroge toujours les archéologues et les ethnoarchéologues afin d'accéder aux modes de préparation, aux sources de matières premières et de comprendre les relations avec les vestiges enfouis. Depuis les premières analyses de pigments réalisées sur des blocs par G. Courty (Courty, 1902) et sur des figures par H. Moissan (Moissan 1902, 1903) à l'aube de la reconnaissance de l'art préhistorique en Europe de l'ouest (Cartailhac & Breuil, 1903), on caractérise avec de plus en plus de finesse les constituants des pigments.

Depuis les années 1980-1990, les développements méthodologiques et analytiques permettent de mieux définir la composition des pigments préhistoriques, mais également d'identifier certaines ressources employées ainsi que des mélanges possibles de minéraux (Clottes *et al.*, 1990; Lorblanchet *et al.*, 1988; Menu & Walter, 1992). Les résultats relèvent que les noirs peuvent être obtenus à partir soit d'oxyde de manganèse, soit de charbon de bois ; les couleurs « ocrées » variant du jaune au rouge en passant par le brun peuvent être obtenues par des oxydes de fer (Fe_2O_3, FeOOH) ou ocres, argiles riches en oxyde de fer. Bien que théoriquement des pigments organiques soient susceptibles de produire du rouge (par exemple près de Kawonyama dans l'ouest de la Péninsule de Cap York au nord de l'Australie, une tradition locale du peuple Aborigène utilise un pigment rouge extrait de racines d'arbre (observation personnelle de Bruno David), aucune trace n'a pour l'instant été identifiée en contexte archéologique. Quant au blanc, couleur moins fréquente au Paléolithique en Europe, il s'agit de kaolinite, de gypse, de talc ou autre minéral blanc (calcaire, coquille réduite en poudre), suffisamment friable pour être transformé en poudre et dont la nature est souvent corrélée à la géologie régionale.

Depuis le développement de techniques analytiques plus appropriées, une attention particulière est portée à la nature des pigments utilisés dans les peintures pariétales et aux modes opératoires, de la collecte, à la préparation jusqu'à l'utilisation (Baffier *et al.*, 1999 ; Bonneau *et al.*, 2012 ; Bontempi *et al.*, 2008 ; Chalmin *et al.*, 2003, 2006 ; Clot *et al.*, 1991 ; Darchuk *et al.*, 2010, 2011 ; de Balbin Behrmann & Gonzalez, 2009 ; Hernanz *et al.*, 2006 ; Jezequel *et al.*, 2011 ; Menu & Walter, 1992). On voit également se développer les analyses *in situ* sans prélèvement pour éviter toute détérioration (Beck *et al.*, 2012a ; Huntley, 2012 ; de Sanoit *et al.*, 2005 ; Tournié *et al.*, 2010 ; Zoppi *et al.*, 2002). Il ressort de ces nombreuses études que le pigment rouge est systématiquement obtenu à partir d'oxyde de fer (Fe_2O_3), appelé hématite, au très fort pouvoir colorant, et pouvant être associé naturellement à des argiles dans le cas des ocres en différentes proportions, conférant ainsi une large palette de nuances.

Au-delà de la reconnaissance du pigment, son étude revêt une autre dimension : accéder aux connaissances techniques mises en œuvre par les différentes cultures passées et récentes (art rupestre). En effet, les questions centrales concernant les pigments préhistoriques sont relatives à toute la chaîne opératoire, depuis leur exploitation et leur diffusion territoriale (source), leur production (broyage) et leur préparation de mélanges spécifiques (addition de charges et de liants pour modifier les propriétés mécaniques et d'adhérence de la matière picturale à la paroi) et voire, de leur changement de couleur (traitement thermique pour transformer le jaune en rouge (Pomiès *et al.*, 1999). Identifier les phases associées au pigment lui-même est essentiel dès lors qu'on engage des comparaisons entre pigments d'un même panneau, entre panneaux, voire entre sites d'un même ensemble culturel dans le but de distinguer des pratiques artistiques propres à une culture ou une période de temps donnée. Ce travail vise également à identifier des schémas généraux dans les chaînes opératoires.

Ce travail de caractérisation a été mené sur un site d'art rupestre Jawoyn (Terre d'Arnhem ; Northern Territory, Australie). Sur le territoire Jawoyn, un site d'art rupestre majeur a été redécouvert et étudié : le site du « *Genyornis* ». L'étude des figures rouges et jaunes du panneau principal vise à appréhender les techniques artistiques utilisées par les « premiers » hommes du continent australien. Bien qu'aucune datation n'ait pu être

menée directement sur les peintures, les archéologues pensent que ces peintures peuvent remonter au Pléistocène supérieur, juste avant la période d'extinction de la mégafaune il y a plus de 40 000 ans (Gunn *et al.*, 2011). Le panneau principal de ce site présente deux figures d'oiseaux, dont l'une serait à mettre en relation avec la mégafaune endémique australienne (grand oiseau de la famille des Dromornithidae ; Taçon *et al.*, 2011). Des concordances faites sur la base de données paléontologiques laissent suggérer que l'animal représenté serait un *Genyornis newtoni*. Les plus récentes coquilles d'œuf connus de cette espèce remontent à environ 45 000 ans : âge qui est souvent associé à l'extinction de cette mégafaune (Bird *et al.*, 2003; Miller *et al.*, 1999). Le site de « *Genyornis* » soulève plusieurs questions : les peintures remontent-elles à plus que 40 000 ans (date de l'extinction supposée du *Genyornis newtoni*) ou cette espèce aurait-elle survécu plus longtemps dans l'ouest de la Terre d'Arnhem, que ne laissent supposer les données paléontologiques ? La mémoire collective des peintres aurait-elle gardé des détails précis d'animaux disparus pendant plusieurs milliers d'années ? L'étude des cultures orales récentes et actuelles tend à montrer une augmentation d'inexactitudes historiques et descriptives après plusieurs centaines d'années. En était-il de même dans les cultures plus anciennes ?

Les datations directes des peintures ne sont pas possibles sur le site du « *Genyornis* » compte tenu de la nature minérale des pigments. L'étude de ceux-ci a été menée afin d'extraire des informations pouvant renseigner sur l'ancienneté de ces représentations pariétales. En effet, l'étude microstratigraphique de ces peintures peut conduire à une reconstitution chronologique ainsi qu'à une connaissance sur l'altération des peintures et de leur support. De plus, l'identification de la nature des pigments, des phases organiques et minérales qui leur sont associées constitue des indices permettant d'accéder aux sources d'approvisionnement. Dans cette étude, les méthodes utilisées pour analyser les prélèvements à la fois de peinture et de substrat rocheux sont des méthodes microscopiques (microscope optique, microscope électronique à balayage) et spectroscopiques (spectroscopie Raman), permettant d'obtenir des informations sur la composition chimique, la nature des minéraux et la présence éventuelle de constituants organiques. Ces analyses ont été complétées pour obtenir des teneurs en éléments majeurs et traces grâce à la méthode de PIXE (Particle Induced X-Ray Emission).

2. PRÉSENTATION DU SITE DU « *GENYORNIS* »

2.1. Contexte scientifique

Ces travaux s'intègrent dans un programme de recherche interdisciplinaire et internationale répondant à une demande exprimée par la population Aborigène Jawoyn pour étudier les sites d'art rupestre présents sur leurs territoires traditionnels (http://connectingcountry.arts.monash.edu.au/). Les premiers travaux archéologiques et géomorphologiques sur ces sites ont mis en avant leur très haute valeur patrimoniale et archéologique (David *et al.*, 2011 ; Delannoy *et al.*, 2012 ; Geneste & David, 2012) ; ils sont les témoins des toutes premières occupations humaines du continent australien (45 – 50 000 ans BP).

Environ 1 000 sites ont été relevés sur le seul territoire des Jawoyns (Gunn & Whear, 2007) et les premiers travaux de l'équipe pluridisciplinaire du projet « *Connecting Country* » soulignent la portée scientifique de ces sites (Geneste *et al.*, 2010). Les récents travaux menés sur ces sites (2010, 2011 et 2012) soulèvent de nouveaux questionnements dont un certain nombre sur les modes de préparation ainsi que sur l'origine des pigments utilisés dans l'art Jawoyn.

2.2. Description du site archéologique du « *Genyornis* »

Le site du « *Genyornis* », localisé au centre du plateau de la Terre d'Arnhem, à proximité de la source de la Katherine River, est un abri sous roche soumis directement aux conditions climatiques et aux usages anthropiques (feux de brousse contemporains). Ce site se caractérise par d'anciennes générations de représentations pariétales, dont la plus emblématique est celle représentant apparemment la mégafaune (*Genyornis* ; Gunn *et al.*, 2011). Il fait l'objet de relevés pariétaux (Fig. 1) et de fouilles archéologiques (en cours). Autour de ce site, existent de nombreux autres sites ornés : neuf autres sites ont été relevés et deux sont en cours d'étude (ARN-0124).

Le site de « *Genyornis* » s'apparente à un gros pinacle isolé développé dans des quartzites. Ce pinacle est soumis aux actions de l'érosion et de phénomènes gravitaires (écroulement de pans de paroi) à l'origine de petits abris sous roche. Le panneau étudié est situé sur le mur nord d'un abri rocheux peu profond (Fig. 1). Le surplomb abritant la peinture mesure près de 5 m de long et 3 m de haut, avec une avancée de 1,5 m. Le panneau est légèrement orienté vers le nord-est. Un tel abri semble avoir offert une certaine protection de l'œuvre peinte vis-à-vis des rayons solaires qui auraient pu constituer un facteur majeur dans l'altération des pigments et la désagrégation de la roche. Le panneau est toutefois sujet aux ruissellements des eaux.

L'image du « *Genyornis* » est la figure centrale et la plus grande des 28 peintures présentes sur ce flanc du pinacle. La surface rocheuse sur laquelle a été peinte l'ensemble de ces figures présente un faciès altéré ; il s'apparente à une fine couche blanche d'altération plus ou moins visible sur l'ensemble du mur (Fig. 1). Une série de mains négatives de couleur rouge a été réalisée avant celle du « *Genyornis* », et au moins quatre motifs lui ont été superposés (peintures rouges et jaunes, et un dessin à l'ocre rouge). La figure masculine grande et massive a été attribuée à une période plus récente (Gunn *et al.*, 2011).

2.3. Les prélèvements

Au total, une sélection de 15 prélèvements a été réalisée à la fois sur la roche mère, sur la surface du panneau sans pigment et sur les différentes figures du site. Seuls les échantillons de roche mère présentent une taille supérieure à plusieurs centimètres. Les prélèvements de paroi avec et sans peinture ont été réalisés à l'aide d'un scalpel en minimisant la quantité de matière pour réduire la détérioration du panneau (Fig. 2). La description des prélèvements et leur localisation sont présentées dans le Tableau 1.

3. MÉTHODES

Un premier examen, réalisé sous loupe binoculaire, est nécessaire pour mener à bien la caractérisation de chaque pigment. Il permet d'examiner la surface et la texture du pigment ainsi que du support, d'appréhender l'état de conservation,

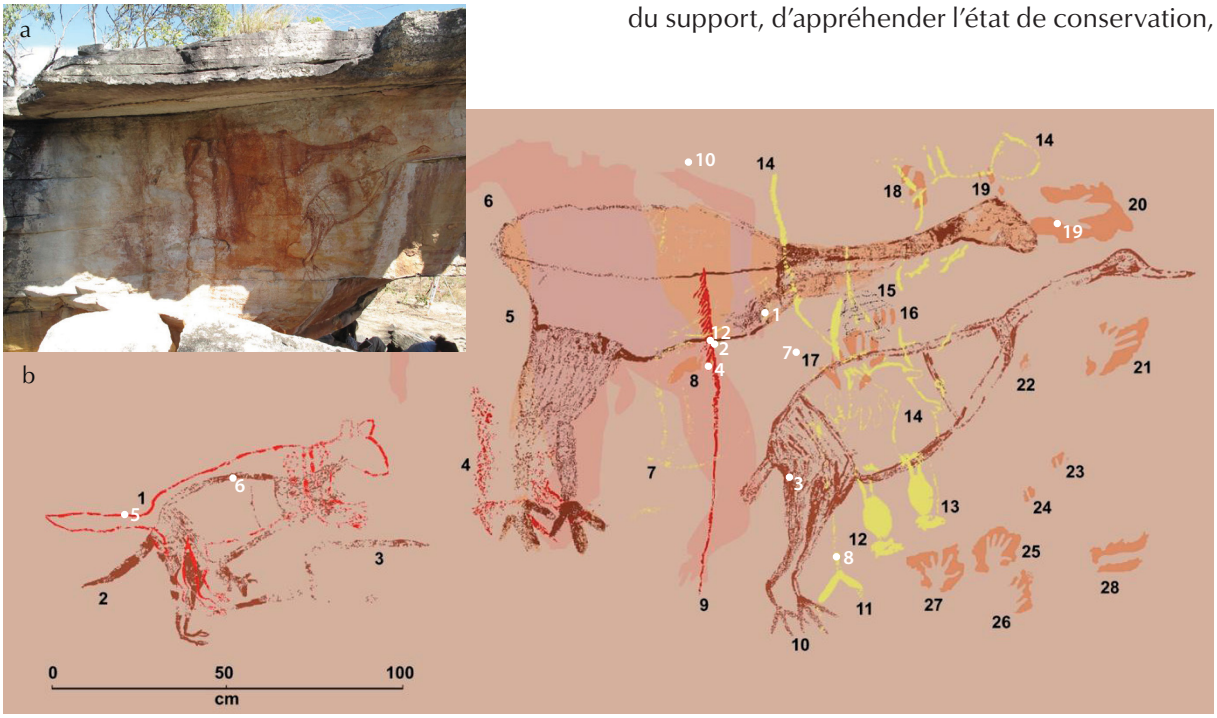


Fig. 1 – a. Photographie du panneau du '*Genyornis*' (Terre d'Arnhem, Australie).
b. Tracé digital avec numérotation des figures (en noir).
et position des prélèvements (numéro en blanc) (Gunn *et al.*, 2011).

Fig. 2 – Micrographie de l'échantillon GN1-5 et macrophotographie lors de son prélèvement.

d'observer la cohésion de l'ensemble support/couche picturale. Cette étape est primordiale pour repérer les spécificités propres à chaque échantillon (encroûtements, veinules, zones plus ou moins altérées, etc. ; description dans le Tableau 1).

Un premier tri a permis de sélectionner quelques fragments qui ont été enrobés dans la résine avant de procéder à une coupe transverse permettant d'accéder à la structure interne de l'échantillon enrobé. Il est également possible d'observer la stratigraphie de l'ensemble « roche mère – altération de la roche – couche picturale – altération de la couche picturale ou recouvrement de cette dernière ». Des lames minces ont été préparées à partir des échantillons de roche saine et altérée, puis observées par microscopie optique en lumière polarisée (MOLP).

L'ensemble des échantillons (coupes polies et non préparés) a été étudié au microscope électronique à balayage couplé à un détecteur de fluorescence X (MEB-EDX, LEO Stereoscan 440 couplé à un SDD Bruker X-FLASH 4030). Certains seulement ont bénéficié d'une observation avec une meilleure résolution à fort grandissement, avec un MEB à canon à émission de champ (MEB-FEG pour Field Emission Gun) avec une plus faible tension d'accélération (3-15kV) (ZEISS-Ultra+ couplé à un détecteur SDD Bruker X-FLASH 4010, de l'Institut Néel). Toutes les analyses élémentaires obtenues avec le détecteur dispersif de rayons X (EDX) ont été réalisées avec une tension accélératrice de 20 kV.

L'identification des phases minérales et organiques a été réalisée par microspectrométrie Raman (Jobin-Yvon-Horiba, modèle T64000, couplé à une caméra couleur intégrée dans l'appareil permettant de visualiser l'échantillon en lumière blanche et le point d'impact du faisceau laser vert (514,5 nm). Les mesures ont été faites avec un objectif ×50 et une puissance du laser de 0,8 mW (pour un grossissement à ×10). La résolution spectrale est de 4 cm^{-1}.

Les analyses chimiques ont été menées à partir d'une technique non destructive (PIXE) et n'impliquant aucune préparation de l'échantillon au préalable. L'analyse PIXE a été réalisée avec l'accélérateur de particule AGLAE, installé au Centre de Recherche et de Restauration des Musées de France (C2RMF). Les nouvelles performances de l'installation ont permis l'acquisition d'imagerie quantitative avec un faisceau de protons de 3 meV avec une résolution spatiale de 10 µm. L'acquisition se fait à partir de cinq détecteurs Si(Li), un dédié pour les éléments légers (BE0), les quatre autres pour les éléments plus lourds équipés de différents filtres (HE1, HE2 et HE3 avec 50 µm d'Al, HE3 complété par 20 µm de Cr et 150 µm de Mylar, HE4 avec 100 µm de Be, selon le protocole développé par Beck *et al.*, 2012b). La quantification et l'extraction des spectres se font grâce au logiciel GupixII (Maxwell *et al.*, 1995).

N°	*Emplacement*	*Couleur*	*Description*	*Composition chimique (en % massique, en ppm) obtenue par PIXE*					
				Si	Al	K	P	Fe	Traces
GN1-1	*Genyornis*	R	Coloration homogène Veinules rouges	-	-	-	-	-	-
GN1-2	Lance (intersection)	R + J	Coloration hétérogène	-	-	-	-	-	-
GN1-3	Petit émeu	**R** + r	Coloration hétérogène Zone brillante	**21,4**	**8,3**	**0,9**	**8,6**	**6,9**	Na, Mg, **S**, Cl, **Ca**, Ti, Mn, Zr, Sr, Ba
GN1-4	Lance	**R** + r	Coloration hétérogène Zone brillante	**33,9**	**4,0**	**0,8**	**3,7**	**4,1**	Na, Mg, **S**, Cl, Ca, Ti, Mn, Zr, S, Ba
GN1-5	Kangourou 1	R	Coloration homogène Encroûtements blancs et gris	**37,9**	**4,8**	**0,8**	**0,5**	**2,0**	**Na**, **Mg**, **S**, Cl, **Ca**, **Ti**, Mn, Zn, Zr, S, Ba
GN1-6	Kangourou 2	R	Coloration homogène Encroûtements blancs et gris	**41,3**	**3,4**	**0,3**	**0,2**	**1,4**	**Na**, **Mg**, **S**, Cl, **Ca**, **Ti**, Mn, Zn, Zr, S, Ba
GN1-7S	Entre les 2 oiseaux	B-J-G	Inhomogénéité des teintes Texture cristalline	-	-	-	-	-	-
GN1-8	Ligne verticale	J	Coloration homogène	-	-	-	-	-	-
GN1-9	Panneau nord	**R**	Coloration hétérogène Encroûtements gris	-	-	-	-	-	-
GN1-10S	Au-dessus de l'homme	B	Coloration homogène Texture compacte	**20,1**	**7,9**	**0,7**	**15,2**	**3,9**	Na, Mg, Ca, Cl, S, Ti, Zr, Sr, Ba
GN1-11	*Genyornis*	R	Coloration hétérogène	**20,7**	**8,0**	**0,8**	**11,3**	**3,5**	**Na**, **Mg**, **S**, **Cl**, **Ca**, **Ti**, Mn, Zn, Zr, S, Ba
GN1-16	Panneau ouest - oiseau	**R** + r	Coloration hétérogène	-	-	-	-	-	-
GN1-17	Registre inférieur du panneau du '*Genyornis*'	R	Coloration homogène	-	-	-	-	-	-
Roche Saine	Sommet du rocher, même banc que *Genyornis*	B	Cristallin et homogène	**45,6**	**9,5**	**4,1**	*287 ppm*	*218 ppm*	Na, Mg, Ca, Cl, Ti, Zr, Sr, Ba
Roche altérée	Sommet du rocher, même banc que *Genyornis*	B au R	Texture homogène et pulvérulente	**44,7**	**11,3**	**7,6**	*929 ppm*	**0,2**	Na, Mg, S, Cl, Ti, Zr, Sr, Ba

Tab. 1 – Description des échantillons de surface avec et sans pigment et de la roche (couleurs : B = blanc, R = rouge, **R** = rouge foncé, r : rouge clair, J = jaune, G = gris).

4. RÉSULTATS ET DISCUSSION

4.1. La roche et son altération

4.1.1. Les constituants minéraux

L'observation des lames minces de la roche complétée avec des mesures en spectroscopie Raman confirme la présence majoritaire de quartz [(SiO_2)(bandes à 208, 353, 394-402, 462, 710, 819 and 1170 cm^{-1})], dont la taille des cristaux est de l'ordre de plusieurs centaines de microns. Entre les cristaux, on peut observer un nourrissage de fluide siliceux et de fins joints de grains pour les faciès non altérés (zone du bas de la Fig. 3a). Ce nourrissage disparaît au profit de plus larges joints de grains dans les zones plus altérées (dans la partie supérieure de la Fig. 3a).

D'autres petits cristaux de la taille d'une dizaine de microns sont également reconnaissables en microscopie à lumière polarisée de part leur couleur et leur forme (Fig. 3). Il pourrait s'agir de cristaux d'apatite [$Ca_5(PO_4)_3(OH)$] possédant un faible indice de réfraction et de cristaux de zircon ($ZrSiO_4$) sans biréfringence et apparaissant opaques en lumière polarisée analysée. Quelques petits grains rouges semblent être des oxydes métalliques.

L'analyse chimique par MEB-EDX et par PIXE confirme une large teneur en Si, mais précise la présence d'une teneur non négligeable en Fe, Al, K et P. À partir d'une cartographie chimique, il ressort que ces éléments sont présents entre les joints de grains de quartz. D'après la morphologie observée au MEB, cette phase d'aluminosilicate peut être attribuée à des feldspaths potassiques. L'analyse fine par PIXE permet de détecter des éléments traces tels que le Na, Mg, Ca, Ti, Zr, Sr et Ba dont la teneur reste stable quel que soit l'état d'altération de la roche.

Une telle dissolution privilégiée des zones de nourrissage a été observée lors des processus de latérisation de sols constitués de quartzite (Howard *et al.*, 1995), lors de la formation de néogrès (Martini, 1987), ainsi que lors de la formation de pseudo-karsts dans les quartzites (Wray, 2003). Ces dissolutions sont associées à une augmentation des teneurs en Fe et Al, voire de K, au détriment du Si, conduisant à la formation d'oxydes de fer et d'oxydes d'aluminium.

On retrouve fréquemment dans les faciès altérés de quartzite la présence de kaolinite et d'hématite, mais également de phases moins stables tels que des micas et feldspaths (Howard *et al.*, 1995 ; Prieto *et al.*, 2000 ; Wray, 1997, 2003). Pourtant la présence et l'enrichissement en P sont moins remarqués (Prieto *et al.*, 2000), il pourrait s'agir d'une phase d'alumino-phosphate encore mal identifiée et qui semble non cristalline (résultats DRX non présentés).

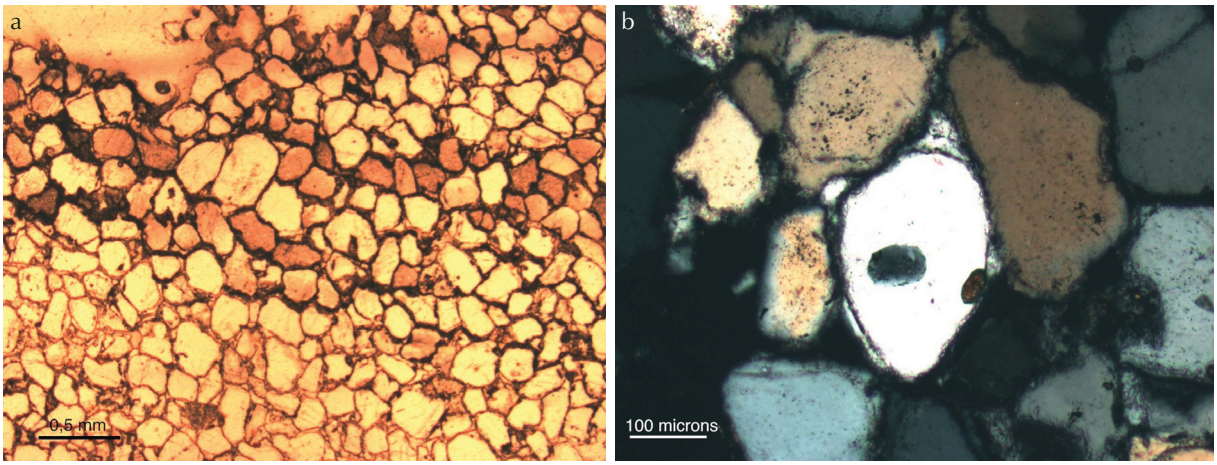
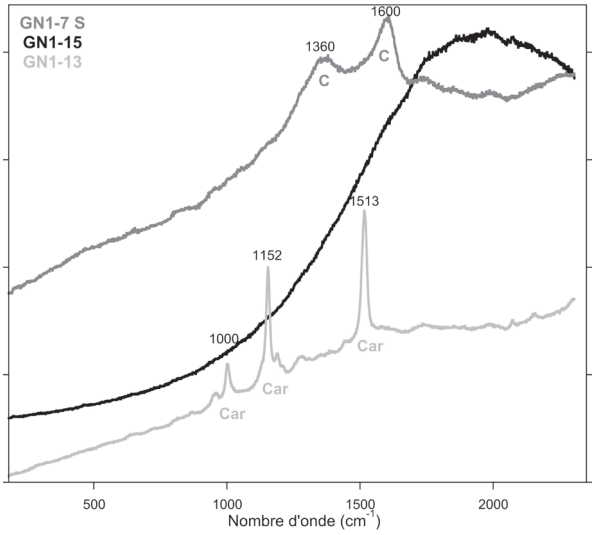
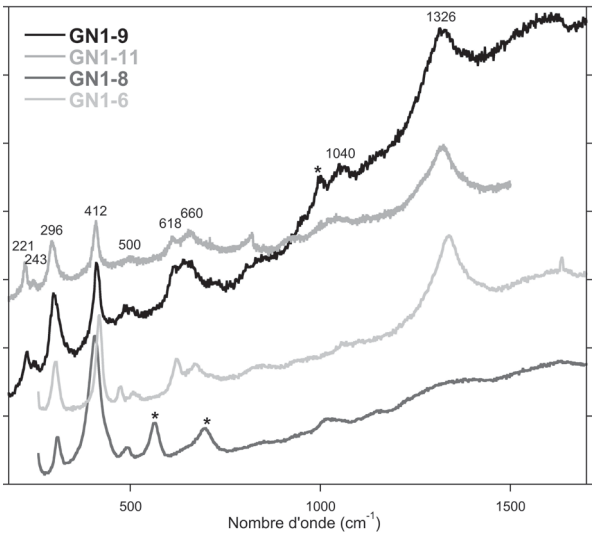


Fig. 3 – Observation d'une lame mince de la roche mère en lumière polarisée non analysée (a, x20) et en lumière polarisé analysée (b, x100).

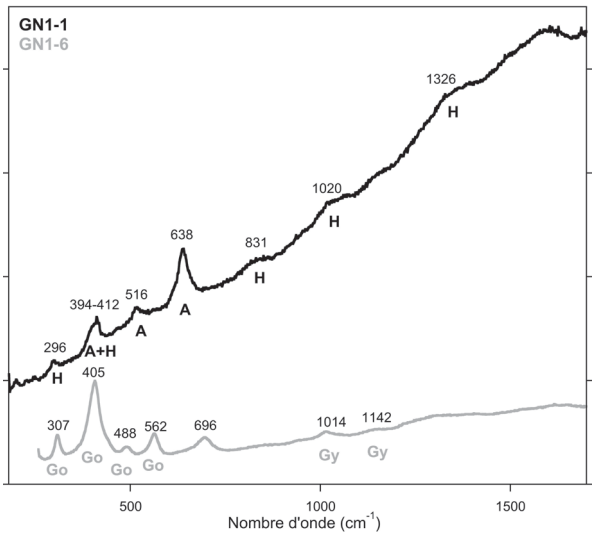
a



b



c



4.1.2. Les phases organiques

Les cartographies chimiques réalisées au MEB-EDX sur les coupes polies de roche révèlent dans les joints de grains la présence de carbone non corrélée à la présence d'oxygène, excluant alors la possibilité de phase carbonatée. L'analyse de ces mêmes joints de grains par spectrométrie Raman suggère la présence de matière organique dans la roche mère. En effet, il existe un fond de fluorescence assez intense dès que l'on tente de réaliser un spectre en dehors d'un cristal de quartz (Fig. 4a). De plus la présence de caroténoïde est clairement identifiée à l'intérieur d'un joint de grains grâce aux bandes à 1000, 1152 et 1513 cm^{-1} (Schulz *et al.*, 2005 ; Fig. 4a). Le manque de spectres de référence acquis dans les mêmes conditions ne nous permet pas de préciser la nature de ce pigment naturel (β-carotène, α-carotène ou lutéine) dont l'origine proviendrait ici d'un lichen, d'une mousse ou encore d'un champignon.

En comprenant ces phénomènes d'altération de la roche, on peut ainsi mieux appréhender le substrat et donc la surface sur laquelle ont été réalisées ces peintures.

4.2. Compréhension du substrat et des encroûtements de surface

4.2.1. Les constituants minéraux

Les prélèvements de parois sans peinture possèdent des morphologies et des couleurs variant en fonction de la zone de prélèvement. En effet, les prélèvements GN1-7S et GN1-10S proviennent de deux zones différentes : GN1-7S se situe dans une zone où la paroi est de couleur hétérogène, de blanc à ocre, entre les deux oiseaux en bordure d'une zone d'exfoliation et GN1-10S se situe au-dessus du panneau, protégé par le pla-

Fig. 4 – Spectres Raman sans correction de ligne de base : a. des composés organiques rencontrés dans les prélèvements de roche (GN1-13 et GN1-15 pour le fond de fluorescence) et surface sans pigment (GN1-7S) ; b. d'hématite obtenus sur différents échantillons de peinture (GN1-6, GN1-8, GN1-9 et GN-11) ; c. de l'anatase et du gypse trouvés associés au pigment hématite ou goethite dans les prélèvements avec pigment (GN1- 1 et GN1-6). A = Anatase, C = carbone amorphe, Car = Caroténoïde, H = hématite, Go = goethite, Gy = gypse, * = pics non identifiés.

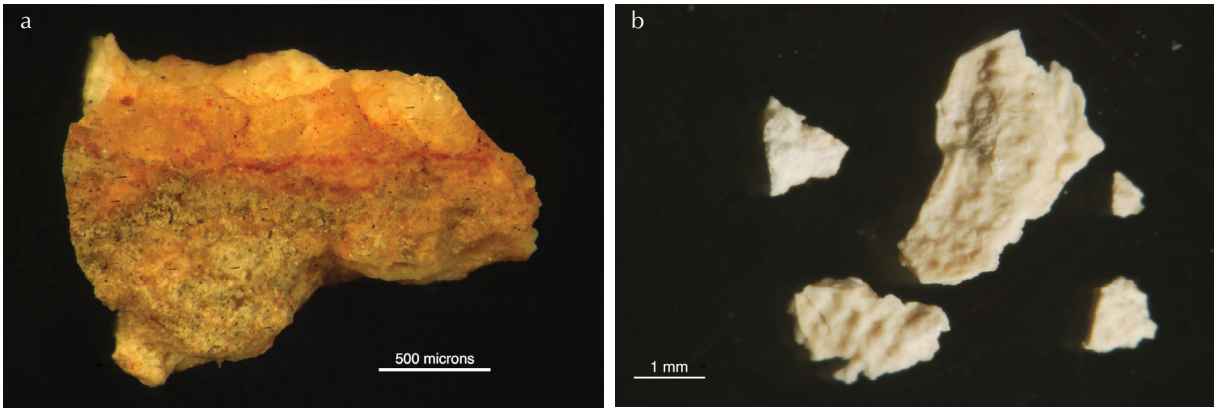


Fig. 5 – Observation à la loupe binoculaire des échantillons de surface sans pigment (a) GN1-7S et (b) GN1-10S .

fond dans une zone plus saine et plus blanche. Après observation à la loupe binoculaire, les fragments de l'échantillon GN1-7S présentent une large gamme de couleurs, du gris au jaune avec quelques fines veinules rouges (Fig. 5a). L'échantillon GN1-10S est plus friable et de couleur homogène blanche (Fig. 5b).

La présence de quartz sous forme de cristaux de taille inférieure à 100 µm est confirmée pour les deux prélèvements par la composition chimique (environ 20 % en masse de Si), l'observation au MEB ainsi que par Raman. D'un point de vue chimique, la présence d'Al, K, P et Fe reste cohérente par rapport à la roche mère altérée, bien que les teneurs en P et Fe quantifiées par PIXE soient beaucoup plus importantes (15,2 et 3,9 % respectivement, Fig. 6). Cette forte augmentation peut s'expliquer par un état d'altération plus avancé de la surface par rapport à la roche mère plus saine. Le P est probablement présent sous forme phosphatée bien que la détermination par spectroscopie Raman ou même FTIR n'ait pas pu être confirmée. Le Fe se trouve sous forme d'oxydes difficiles à détecter par spectroscopie Raman et par MEB en raison d'une petite taille et d'une faible cristallinité. La position de bandes de faible intensité permet pourtant d'identifier de l'hématite Fe_2O_3 et de la goethite FeOOH dans le prélèvement GN1-7S (Tab. 2). Les éléments traces trouvés dans ces deux prélèvements sont cohérents avec ceux retrouvés dans la roche mère (Na, Mg, Ca, Ti, S, Cl, Zr, Sr, Ba). Il semble que le titane se trouve sous forme de petits grains d'oxydes visibles au MEB avec un diamètre de l'ordre de 2 à 10 µm. Dans le prélèvement GN1-7S, a été observé un grain brillant d'une quarantaine de micromètres et de composition métallique de type alliage Al-Fe-Cu, non naturel, pouvant avoir une origine éolienne (Gunn & Whear, 2009).

4.2.2. Les phases organiques

De même que pour les échantillons de roche mère, les échantillons de surface de paroi présentent de la matière organique. Plusieurs petites bandes à grand nombre d'ondes au-delà de 1500 cm^{-1} suggèrent également la présence de liaisons C=C, C-C aromatiques et au-delà de 3000 cm^{-1} des liaisons =C-H et O-H. La spectroscopie Raman permet également d'identifier sur de petits grains noirs de 2 à 5 µm de diamètres deux bandes larges et intenses à 1360 et 1600 cm^{-1} spécifiques de carbone amorphe, tel que la suie (Fig. 4). Ces grains noirs carbonés peuvent avoir plusieurs origines : soit en lien avec l'altération de la roche mère, soit issus de la combustion de bois dont les particules sont transportées par le vent [*bushfires* (Gunn, 2011 ; Gunn & Whear, 2009)].

4.3 Les pigments

4.3.1 Les pigments rouges et jaunes

Les prélèvements de peinture ont tous fait l'objet d'une observation minutieuse à la loupe binoculaire pour déterminer les tailles et les couleurs des phases constitutives. Tous présentent une même structure avec en surface une fine couche de pigment recouvrant une matrice blanche similaire aux prélèvements de surface sans pigment. La couleur de cette couche de pigment varie du rouge intense au rouge clair et un prélèvement seulement présente une couche de couleur jaune

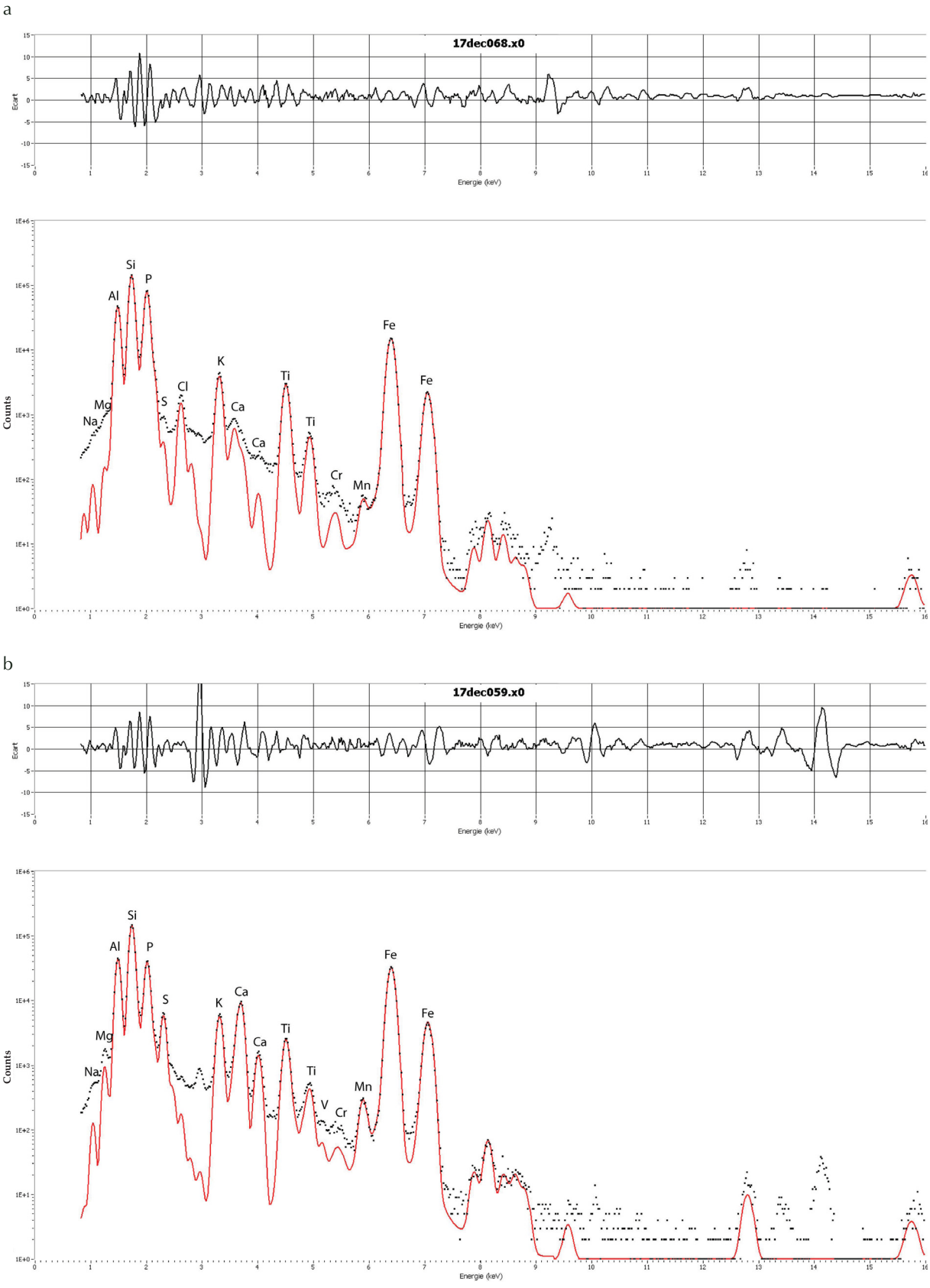


Fig. 6 – Spectres de fluorescence obtenus sur le détecteur basse énergie en PIXE : a. GN1-10 ; b. GN1-3 (ligne pointillée noire = spectre acquis, ligne rouge = *fit* obtenu avec GUPIX, ligne noire en haut = écart résiduel).

(Tab.1). La répartition de cette couche de pigment à la surface de l'échantillon est variable et peut être plus ou moins homogène en fonction de la microtopographie de l'échantillon. Les creux permettent une meilleure conservation ou piégeage de la matière colorante. Surmontant cette couche picturale, certains échantillons présentent des encroûtements ou dépôts opaques de couleur blanche ou grise et répartis de façon hétérogène (GN1-9, GN1-6 et GN1-5, cf. Fig. 2a).

À partir de cette première observation, un choix de préparation en coupe polie a été proposé permettant d'accéder à la structure et à la stratigraphie de l'échantillon. L'observation de ces coupes polies confirme la présence d'une très fine couche de pigment estimée à partir de l'observation à la loupe binoculaire entre 20 et 500 µm (Fig. 7a). Cette plus grande taille correspond à une couche de pigment protégée par un encroûtement blanc (GN1-6). Plus généralement cette couche colorée

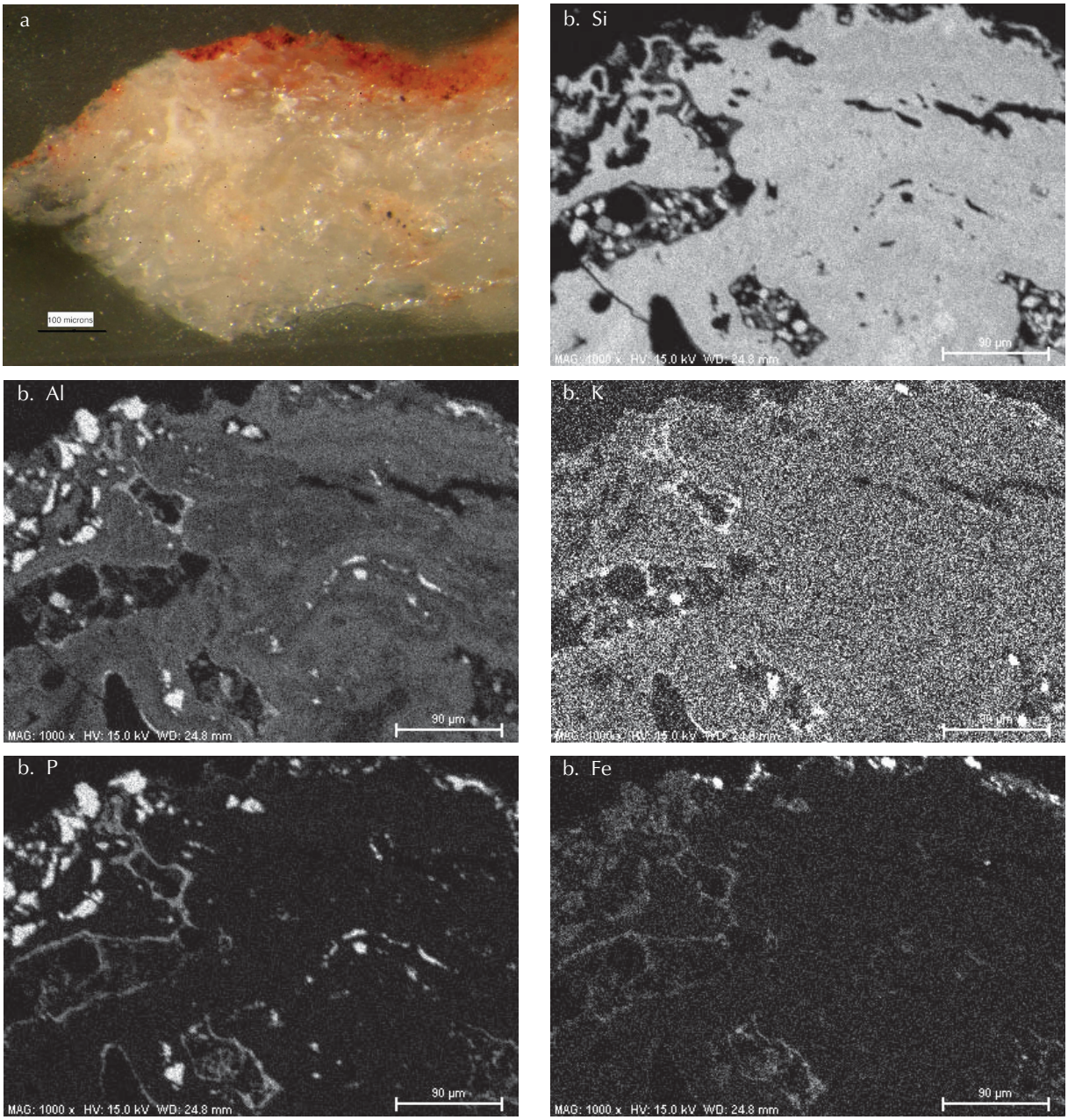


Fig. 7 – a. Coupe polie de l'échantillon GN1-3 mis en résine ;
b. Cartographie chimique de la zone supérieure de l'échantillon,
répartition des éléments Si, Al, K, P et Fe (MEB-EDX, tension accélératrice : 15 kV).

N°	*Positions des bandes Raman en cm^{-1}*	*Identification des phases*	*Phases identifiées en EDX*
RUFF	207 250 304 390 420 493 550 225 245 293 420 500 611 660 805 1035 1320 208 353 394 402 462 710 819 1170	Goethite (Go) Hématite (Hé) Quartz (Q)	
GN1-1	223 249 296 413 - - 637 - - 1326 - 244 295 409 - 608 657 - - 1320 395 511 636 208 - - - 461	Hématite Anatase Quartz	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe
GN1-2	225 247 296 411 505 612 649 - 1032 1324 1356 1602 202 - - - 476	Hématite Carbone amorphe Quartz	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe TiO_2
GN1-3	224 - 294 406 - 612 651 - - 1317 224 - 292 408 503 614 657 - - 1317 217 - 282 390 489 593 1007 1320 1591 208 - - - 461	Hématite Hé ou Goe ? Gypse Carbone amorphe Quartz	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe $ZrSiO_4$
GN1-4	220 - 293 404 488 601 656 - - 1317 - 247 300 396 - - - 816 883 1103 1181 1456 1605 1742	Hématite Goethite Non identifiée	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe
GN1-5	228 248 298 415 - - 644 - - 1320 1381 1583 637	Hématite Carbone amorphe Anatase	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe NaCl
GN1-6	229 243 291 434 - 611 - 812 - 1326 - - 308 412 468 620 669 - - 1330 224 242 296 408 497 613 658 828 - - 558 690 1007 1374 1589 645 476	Hématite Gypse Carbone amorphe Anatase Quartz	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe Pépites métalliques (Cr-Ni-Mn-Fe) $ZrSiO_4$
GN1-7S	468 1356 1602 228 - 303 417 467 618 655 - - - 220 252 304 415 -	Quartz Carbone amorphe Hématite Hé ou Goe	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe TiO_2 Pépites métalliques (Al-Fe-Cu)
GN1-8	- - 301 389 550 - - 307 403 570 223 248 294 408 612 657 - - - 227 250 300 412 491 610 640 828 - 1319 522 652 208 - - 468 1392 1600	Goethite Hématite Pyrolusite Quartz Carbone amorphe	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe TiO_2 Pépites métalliques (Al, Fe)
GN1-9	227 250 300 412 491 610 640 828 - 1319 228 - 297 409 496 614 649 - - 1327 467 530 657 643	Hématite Quartz Pyrolusite Anatase	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe $CaSO_4$
GN1-10S	-	-	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe
GN1-11	225 244 296 411 497 615 658 828 1039 1323 222 244 296 411 497 612 655 - 1042 1320 1007	Hématite Gypse	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe $ZrSiO_4$ $CaSO_4$
GN1-16	220 237 291 404 - 620 650 - 1045 1337 207 261 351 460	Hématite Quartz	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe $MgCO_3$
GN1-17	220 241 294 408 - - - - 1034 1330	Hématite	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe
RS	205 - 462	Quartz	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe
RA	205 - 462 1000 1152 1513	Quartz Caroténoïde	SiO_2 Al-PO_4-K-Fe

reste inférieure à 100 µm. L'analyse des images en électrons rétrodiffusés obtenues au MEB permet de faire une estimation de l'épaisseur de la couche d'oxyde de fer, constituant principal de cette couche picturale, entre 3 et 15 µm pour les zones externes (Fig. 7b Fe). Cette couche de pigment recouvre donc une phase blanche compacte de même composition que le substrat contenant majoritairement du Si, de l'Al et du P.

En observant la surface des échantillons au MEB-EDX (Fig. 8a), on remarque une répartition des grains d'oxyde de fer très aléatoire d'une zone à une autre qui peut expliquer la variation de l'intensité de coloration. Plus la densité des oxydes de fer est importante et plus la couleur est intense. Cet oxyde de fer est de très petite taille et l'observation de la morphologie de cristaux n'est possible qu'avec une très bonne résolution accessible grâce au microscope électronique à balayage à effet de champ (MEB-FEG). Ces cristaux sont de taille submicronique (inférieure au micromètre, Fig. 8b). La morphologie est souvent peu caractéristique et indique une faible cristallinité ou encore une altération par dissolution partielle après dépôt Pourtant quelques très petites plaquettes hexagonales (de taille inférieure au micron) ont pu être observées, caractéristiques de l'hématite. Seule une observation à une échelle encore plus petite permettrait une meilleure estimation de cette morphologie, une meilleure estimation de l'état cristallin ainsi qu'une attribution de nature de phase (au microscope électronique à transmission par exemple couplant analyse élémentaire et diffraction des électrons pour l'information structurale).

En ce qui concerne la nature de ces oxydes de fer, la micro-spectroscopie Raman permet d'identifier les grains individuellement en fonction de leur couleur. Pour les grains rouges, l'hématite Fe_2O_3 est identifiée à partir des positions des bandes principales (296, 412 et 1326 cm^{-1}) pouvant varier de quelques cm^{-1} en nombre d'onde d'un spectre à un autre (Fig. 4b). Pour les grains jaunes, en particulier dans l'échantillon GN1-8 et GN1-6, le spectre Raman permet d'identifier la goethite FeOOH grâce aux bandes principales à 307 et 405 cm^{-1} (Fig. 4c), malgré un décalage par rapport aux positions relevées dans les bases de données (Tab. 2, RUFF). La qualité du spectre n'est pas toujours suffisante pour détecter l'ensemble des bandes caractéristiques de l'hématite et de la goethite, seules les bandes de forte intensité sont alors détectables (Tab. 2). La position de ces bandes peut varier d'un grain à un autre ainsi que les rapports d'intensité et la largeur des bandes. La variation de ces deux paramètres peut être reliée à une variabilité de l'état de cristallinité de ces oxydes, mais pour permettre de conclure quant à nos échantillons, l'acquisition d'une base de données spécifique constituée d'hématite et de goethite avec différents degrés de cristallinité serait nécessaire. D'après la combinaison des analyses morphologique, chimique et structurale, les pigments utilisés sur le site de « *Genyornis* » ne s'apparentent pas à des ocres, si l'on définit une ocre comme un mélange d'oxyde de fer dans une matrice argileuse majoritaire.

4.3.2 Les phases associées

Les échantillons de peinture présentent un point commun avec les prélèvements de surface non colorée : la matrice. On note que la plus grande partie de ces prélèvements est constituée d'une matrice blanche similaire à celle décrite dans les prélèvements de surface. La composition chimique reste identique avec la présence majoritaire d'une phase d'alumino-phosphate enrichie en K et en Fe. À la surface des échantillons, on remarque également la présence d'encroûtements blancs (souvent sous forme de veinules) ou gris comme décrits dans le tableau 1 (Fig. 2a). L'analyse chimique attribue les encroûtements blancs à une composition proche de la « matrice », il s'agit de la même phase d'alumino-phosphate, pour laquelle aucune identification plus précise n'a été obtenue par spectrométrie Raman. En ce qui concerne les encroûtements gris, ceux-ci sont constitués d'un mélange de sel NaCl et de carbone recouvrant le pigment (GN1-5, Fig. 2a). Il peut s'agir d'un dépôt ou encroûtement, postérieur au dépôt de pigment, et en lien avec les conditions environnementales.

Le manganèse a été détecté à plusieurs reprises souvent à l'état de trace mais aussi ponctuellement associé au Fe lors d'analyse par EDX. La micro-spectroscopie Raman a également permis

Tab. 2 – (ci-contre) Identification des phases constitutives des prélèvements à partir des spectres Raman (position des bandes comparées avec les valeurs issues de la base de données RUFF) et de l'observation par MEB-EDX.

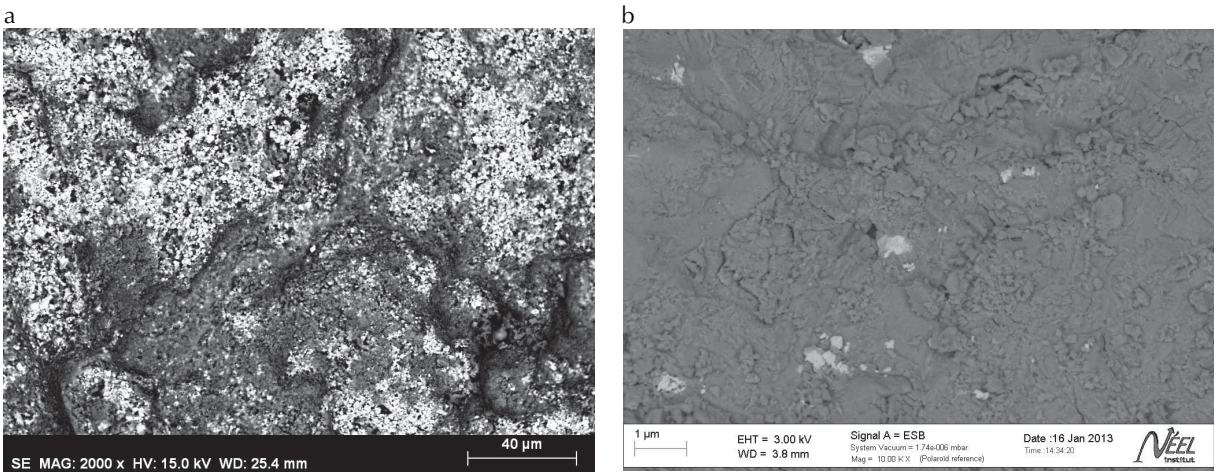


Fig. 8 – a. Image en électrons rétrodiffusés de la surface externe de l'échantillon GN1-3 (MEB, BSE, tension accélératrice = 15 kV) ;
b. Morphologie des cristaux d'oxyde de fer du prélèvement GN1-11 vue en électrons rétrodiffusés, les zones blanches indiquent la présence d'élément lourd attribué au Fe (MEB-FEG, BSE, tension accélératrice = 3kV).

d'identifier de la pyrolusite (MnO_2) dans deux échantillons (GN1-8 et GN1-9) malgré les difficultés connues pour l'analyse de phase noire et absorbante de l'oxyde de manganèse (Bouchard & Smith, 2003). Il s'agit de très petits grains qui peuvent être naturellement associés à l'hématite ou à la goethite. La présence de ce type d'oxyde ne donne pas d'indication sur le mode de préparation, par contre, il peut être un indice lors de la recherche de source d'approvisionnement (recherches ultérieures).

À partir de l'analyse élémentaire (EDX ou PIXE) la présence des éléments Ca et S est attestée à de nombreuses reprises (GN1-3, GN1-4, GN1-5, GN1-6, GN1-9, GN1-11). Cette association Ca-S, comme dans GN1-9, ne présente pas de morphologie spécifique. L'analyse par PIXE permet d'obtenir des valeurs quantitatives et de calculer un ratio Ca:S et de le comparer au ratio théorique du gypse ($CaSO_4$, $2H_2O$) de 1,25. De plus la présence de gypse est confirmée par spectrométrie Raman avec la présence de bandes à 1010 et 1040 cm^{-1}. La répartition de ce gypse est observée à partir de la cartographie chimique de coupes polies sur les échantillons GN1-3 et GN1-6. Une couche de Ca-S apparaît alors sous-jacente au dépôt de pigment. Il semble que le gypse soit un encroûtement recouvrant de façon aléatoire la surface de la paroi. Le gypse est connu comme étant un sel provenant majoritairement de l'altération du grès, conduisant à un effet de desquamation de la surface (Doehne, 2002 ; Hernanz *et al.*, 2007), comme c'est le cas de la paroi principale du « *Genyornis* ». La précipitation du gypse en surface a aussi été observée sur des surfaces altérées dans d'autres sites ornés extérieurs (Hernanz *et al.*, 2007), ou en grotte (Goodall *et al.*, 2009). La cristallisation de gypse peut expliquer la fragilité de la paroi (Tournier *et al.*, 2010).

Un autre type de sel a été détecté à la surface d'un seul échantillon, GN1-16 provenant du panneau ouest. Il pourrait s'agir de magnésite $MgCO_3$ étant donné la morphologie, la répartition et la composition chimique (Mg, C et O) identifiées au MEB-FEG-EDX (Fig. 9). L'origine de ce sel n'est pas résolue, il peut s'agir comme pour le gypse d'un sel provenant du processus d'altération de la roche, pourtant son absence sur un témoin de paroi à proximité de cette figure et sur l'ensemble des autres prélèvements suggère une autre hypothèse. Il est possible qu'une préparation particulière ait été faite pour cette peinture qui présente une couleur plus claire et plus spécifique pour cette figure, à partir d'un mélange d'hématite et de magnésite blanche permettant l'obtention de cette couleur. Le cas de la magnésite pose le problème sur l'existence d'un mélange naturel ou anthropique. Il est nécessaire de vérifier également qu'il ne peut pas s'agir d'une précipitation naturelle observée à la surface de la paroi. D'autres investigations en particulier en coupe polie sont nécessaires pour permettre de conclure.

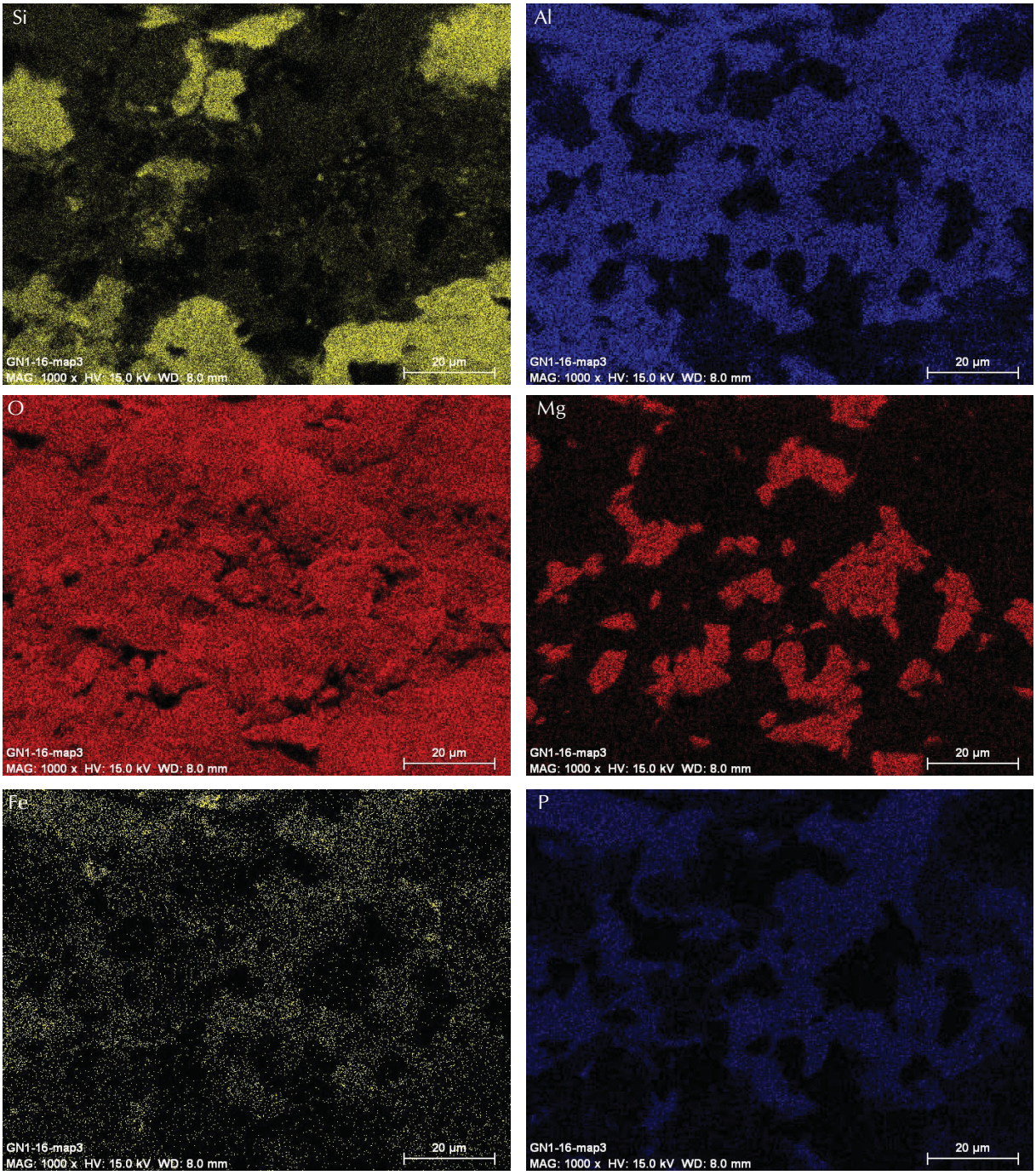


Fig. 9 : Cartographie chimique obtenue sur l'échantillon GN1-16 (MEB-FEG-EDX, tension accélératrice 15 kV).

L'analyse EDX couplée à l'imagerie en électron rétrodiffusé (*backscattered electron*, BSE) permet de détecter dans les échantillons GN1-6 et GN1-8, la présence d'éléments métalliques comme Al-Fe ou Cr-Al-Fe-Ni avec une teneur très faible en oxygène, ce qui suggère de petits éclats métalliques (taille observée au MEB de l'ordre de 1 à 2 µm) dont l'origine n'est ni naturelle, ni identifiée. De petits grains de 2 µm de diamètre sont également visibles (GN1-6 et GN1-11) de composition Zr, Si et O pouvant s'apparenter à des grains de zircon $ZrSiO_4$, connus pour être présents dans la roche mère (quartzite). L'analyse par PIXE confirme la présence de Zr pour tous les échantillons de pigment entre 60 et 240 ppm. La teneur en Ba varie entre 1200 et 2700 ppm

et quelques grains diffus de Ba sans morphologie spécifique s'observent au MEB (GN1-3).

La teneur en Ti de ces prélèvements avec pigment varie entre 2000 et 4600 ppm d'après les mesures réalisées en PIXE, alors que cette teneur est en dessous de 0,5 % dans la roche. Ces teneurs sont similaires à celles trouvées dans les prélèvements sans pigment (jusqu'à 0,46 %). La forme minérale de ce Ti a été identifiée comme de l'anatase (TiO_2) à partir de la bande à 636 cm^{-1} associée aux bandes à 511 et 395 cm^{-1} présentes régulièrement sur les spectres Raman. La bande la plus intense connue pour l'anatase située à 143 cm^{-1} n'est pas accessible dans nos conditions de mesure (à partir de 180 cm^{-1}). La microscopie électronique à balayage permet de visualiser cet oxyde de Ti sous forme de petits cristaux d'environ 5 µm de diamètre sans morphologie spécifique (GN1-8, GN1-2, GN1-3). La cartographie chimique des coupes polies renseigne sur la localisation de ces oxydes de Ti qui ne semblent pas associés aux oxydes de fer et donc à la couche picturale. Ces grains dont la taille peut atteindre jusqu'à une vingtaine de microns se répartissent plutôt autour des grains de quartz associés aux phases d'altération. Il semble donc que cette anatase, phase d'oxyde de Ti est liée au substrat. Bien que présent à l'état de trace dans la roche, le procédé d'altération de la roche conduit à un enrichissement en Ti, ceci est lié au fait que le Ti est l'un des éléments les plus résistants à l'altération (Young & Nesbitt, 1998).

La présence de matière organique dans ces échantillons est également suspectée dans un premier temps par la présence de petites zones noires en image en électrons rétrodiffusés au MEB et par la présence de C en grande quantité détecté par l'analyse élémentaire. Cette matière organique est confirmée par spectroscopie Raman, comme pour les échantillons de surface (GN1-7S et GN1-10S) par la présence d'un niveau important du fond de fluorescence et également de carbone amorphe (Fig. 4). Des analyses complémentaires seront nécessaires en particulier en microscopie infrarouge pour identifier au mieux la nature de cette matière organique et ainsi en déterminer l'origine et confirmer qu'elle est intrinsèque à la roche. Une addition volontaire de ce type de matériau associé au pigment est une autre piste bien qu'il soit peu probable de trancher en faveur d'un ajout volontaire dans le passé étant donné les conditions environnementales de conservation (abri sous roche, conditions climatiques extrêmes, ruissellement de paroi, rayonnement solaire, etc. (Gunn *et al.*, 2011).

4.3.3. Comparaison entre les figures

L'analyse de ces pigments révèle la présence d'un certain nombre de phases organiques et minérales recensées plus haut. Malgré une homogénéité globale de la nature du pigment utilisé, l'hématite, il semble important de comparer d'une figure à l'autre et d'un panneau à l'autre, les indices à partir des associations possibles et la présence de traces.

Le « *Genyornis* » apparaît dessiné en aplat par un mélange pictural, alors que la lance qui semble le transpercer est réalisée par un trait net. Il peut s'agir de deux manières différentes de dessiner pouvant impliquer des modes différents d'application de la peinture. De plus l'appréciation de la couleur des deux figures laisse supposer une couche picturale différente. En effet, l'échantillon du « *Genyornis* » (GN1-1) présente un pigment rouge clair réparti uniformément alors que les prélèvements au niveau de la lance (GN1-2 et GN1-4) présentent un rouge encore plus clair ainsi que des zones jaunes réparties de façon hétérogène. La présence d'une sous-couche de gypse est à noter pour la lance mais doit être confirmée pour le prélèvement du « *Genyornis* ». L'observation de la coupe polie du prélèvement GN1-2 aurait pu révéler la superposition de 2 couches de pigment étant donné que celui-ci a été prélevé à l'intersection même des deux figures. Pourtant l'état de conservation de cette couche picturale ne permet pas la lecture d'une quelconque superposition.

Deux échantillons ont été prélevés sur la lance ; l'un au niveau de la lance même (GN1-2) et l'autre sur une sorte de plume (GN1-4). Les deux prélèvements présentent le même type d'hétérogénéité dans la couleur rouge avec des zones jaunes. Pourtant seul le prélèvement GN1-2 présente une sous-couche de gypse observée à partir de la coupe polie. Un autre type de sous-couche a été identifiée pour GN1-4, une application homogène de goethite. Cette sous-couche peut provenir d'un aplat non figuratif sous-jacent de couleur jaune. Le second oiseau (GN1-3) diffère du « *Genyornis* » dans sa représentation, et le mode de remplissage de l'arrière-train laisse supposer

une application de type « crayonné ». La couleur des contours semble être la même pour les représentations des deux oiseaux. La présence de gypse en sous-couche est également observée comme pour la lance (GN1-2). Cette couche de gypse bien que répartie de façon hétérogène sur le panneau est bien liée à un processus d'altération de la roche et n'est pas attribuée à un ajout intentionnel de la part de l'homme.

Concernant la comparaison des deux kangourous, l'épaisseur du trait pour le kangourou n° 2 est deux fois plus large que celui du kangourou n° 1 (Fig. 1). De plus ce kangourou n° 2 présente des pattes arrières remplies par un aplat de couleurs. La comparaison des échantillons GN1-5 (kangourou n° 2) et GN1-6 (kangourou n° 1) indique le même type d'encroûtements à la surface gris (identifiés comme un sel de NaCl) et blancs, (de composition chimique similaire au substrat), le même type de couleur et de texture, et une composition chimique similaire. Les peintures représentant les kangourous sont situées sur une zone du panneau exposée au ruissellement des eaux et présentent des dépôts en surface, spécifiques à cette localisation. En effet, ce type de dépôt n'est pas retrouvé sur les autres pigments rouges. Seul l'échantillon GN1-6 a été préparé en coupe polie et révèle la présence d'une sous-couche de gypse (similaire à GN1-3). La présence de pépites métalliques n'est révélée que pour le prélèvement GN1-6. Pourtant ces petites différences ne permettent pas de donner des indications quant à la chronologie de ces peintures, ni concernant des préparations de pigment différentes, mais elles peuvent indiquer des matières premières différentes utilisées pour ces différentes figures.

La flèche jaune à droite de l'oiseau (figure numérotée 11 sur le relevé, GN1-8, Fig. 1) diffère évidemment par sa couleur jaune, dont la répartition est homogène, sans présence de dépôt. Cette figure est située au niveau d'une zone d'exfoliation. Tout autour de la figure se distinguent des encroûtements blancs. Les analyses élémentaires du prélèvement GN1-8 montrent qu'au-delà de la présence de goethite, la composition du prélèvement est semblable à celle des prélèvements rouges.

L'échantillon GN1-9, prélevé sur une figure du panneau nord, révèle une couleur rouge sombre. La figure est peinte en aplat, dans une zone plus à l'abri, expliquant la teinte foncée et hétérogène observée. Cette coloration sombre est en lien avec une grande densité en fer à la surface de l'échantillon et peut s'expliquer par la présence de pyrolusite (MnO_2 de couleur noire à l'état pur). Est-il possible pour autant de faire un rapprochement avec le prélèvement GN1-8 de couleur jaune présentant également de la pyrolusite ? En effet, on peut noter la présence des mêmes phases issues de l'altération de la paroi (en particulier le gypse suggéré, l'anatase et l'alumino-phosphate) ainsi que la présence d'oxyde de manganèse. Il n'est pas impossible d'avoir une même origine géologique d'une hématite et d'une goethite, pouvant coexister au sein d'une même couche géologique.

Enfin, le prélèvement du panneau sud-ouest (GN1-16) est le seul à présenter une spécificité dans sa composition par la présence de magnésite qui ne semble pas être expliquée par la nature du substrat. La couleur rouge clair se justifie, d'une part, par une faible densité de fer à la surface de l'échantillon et, d'autre part, par une répartition homogène de la magnésite de couleur blanche ayant donc un pouvoir éclaircissant (Fig. 9). Cette spécificité peut être considérée comme un indice dans l'interprétation de la chronologie de réalisation, mais ne permet pas de conclure quant à l'ancienneté de cette peinture par rapport aux autres.

De façon générale, la disparité des couleurs entre le rouge clair et le rouge foncé est un effet d'optique qui s'explique par la microtopographie du support lithique qui présente des zones de creux plus propices à piéger et conserver les pigments. D'un point de vue chimique et minéral, rien ne permet de distinguer différentes hématites en fonction de leurs couleurs. Seule une distribution et une densité de pigment à la surface de l'échantillon (Fig. 8a) peut permettre de faire un lien avec l'intensité de la couleur.

5. CONCLUSIONS

L'analyse physico-chimique des prélèvements du panneau du « *Genyornis* » a permis de définir la nature des pigments utilisés : l'hématite et la goethite. L'observation de ces prélèvements préparés en coupe polie révèle une couche extrêmement fine de pigment, suggérant une érosion de celle-ci au cours du temps. Il semble évident

que ce « résidu » de pigment ne soit plus qu'un « fantôme » de la matière picturale qui a été déposée. Comment estimer ce qui a été emporté par les lessivages ? Cette couche actuelle est-elle représentative de la matière telle qu'elle a été déposée ? On constate que la couleur rouge ou jaune a été obtenue par de l'oxyde de fer pur et non associé à de l'argile. La phase argileuse étant moins lessivable que les autres éléments, son absence indique clairement que le pigment a été déposé brut et sans ajout de charge. Qu'en est-il pour les autres phases associées ? Certains des encroûtements présents sur la paroi jouent un rôle partiellement protecteur vis-à-vis du pigment, ouvrant ainsi un champ possible d'analyse en accédant aux couches de pigment non érodées ; les premiers travaux réalisés montrent que ces pigments présentent une composition globale similaire avec des singularités (pépites métalliques, éléments traces, oxyde de manganèse) suggérant des origines différentes. Ces premières observations révèlent que la composition de la couche picturale a peu évolué au cours du temps malgré les conditions météoriques. Il n'est malheureusement pas possible d'estimer ici une date pour le dépôt du pigment à partir d'un taux d'érosion de la paroi comme cela a été réalisé pour des roches gravées (Pillans & Fifield, 2013).

Malgré l'altération du support et la présence d'encroûtements liés aux variations de paramètres environnementaux, on peut considérer une bonne adhérence du pigment sur le substrat. Une distribution des oxydes de fer dans les anfractuosités de la surface de la paroi a pu être observée à partir des cartographies chimiques. En connaissant au mieux les processus d'altération du support rocheux, il est alors possible de distinguer les phases dont l'origine est extérieure à ces phénomènes et mieux comprendre le mode de préparation des matières colorantes. Pourtant, certains phénomènes et la nature de certaines phases posent encore des problèmes d'identification comme la phase d'alumino-phosphate . En effet, les taux de P sont variables selon la zone des échantillons et une sur-concentration est observée au niveau de la surface des échantillons, ce phénomène restant incompris.

Cette étude soulève la difficulté d'étudier des prélèvements archéologiques de façon générale lorsqu'il faut faire la part entre les constituants utilisés pour la confection de ces objets ou peintures archéologiques, de ce qui relève de leur évolution depuis leur application. Les paramètres physico-chimiques et les paramètres environnementaux constituent les facteurs principaux d'évolution des objets et peintures archéologiques, ceux-ci pouvant varier en fonction des conditions d'enfouissement ou de conservation. La prise en compte de cette évolution ou altération en fonction de ces paramètres est désormais bien intégrée dans l'approche des archéomatériaux sous le nom de taphonomie. En effet ce terme ne désigne plus seulement l'évolution des ossements, mais bien l'histoire de ces matériaux issus d'une activité anthropique au cours du temps (Huntley, 2012 ; Mas *et al.*, 2013). Cette notion de taphonomie appliquée à une paroi correspond à l'ensemble des processus d'altération et de changement d'état qui ont affecté la paroi depuis la mise en place de l'œuvre préhistorique jusqu'à sa découverte, et voire son évolution actuelle (Plassard *et al.*, 2015). En considérant le moment initial de réalisation, on peut alors distinguer ce qui est survenu dans l'histoire de cet objet ou peinture qui aurait pu laisser des empreintes, des stigmates accessibles grâce aux méthodes d'analyse. Cette approche taphonomique rejoint la démarche géomorphologique qui discrimine les différents processus à l'origine de l'état actuel des parois en les remettant dans une chronologie d'événements (des plus récents aux plus anciens).

Mieux comprendre ces processus d'altération de la roche en relation avec les paramètres environnementaux extérieurs permettrait d'éventuellement estimer un taux d'érosion de la paroi et donc de la peinture (Pillans & Fifield, 2013). De plus la présence de certains encroûtements ou dépôts de surface peuvent être indicateurs de zones humides ou sèches tel que le gypse ou les oxalates (Goodall *et al.*, 2009 ; Hernanz *et al.*, 2007). Cette connaissance à plus long terme permet également de proposer des solutions de conservation de ce patrimoine.

Remerciements

Les auteurs remercient la région Rhône-Alpes pour le soutien financier apporté à cette étude (projet CIBLE, 2012-2013). Nous remercions l'association Jawoyn pour avoir sollicité et soutenu cette recherche. Bruno David remercie l'*Australian Research Council* pour les postes QEII et *DORA* DP0877782 et DP130102514, ainsi que la bourse *Linkage* LP110200927. En ce qui concerne les ac-

cès, la mise à disposition des appareillages et pour l'acquisition des données, sont remerciés Olivier Romeyer pour le MEB-EDX (Université de Savoie), Valérie Reita et Denis Testemale pour l'accès à la microspectroscopie Raman (Institut Néel) et Quentin Lemasson et FIXLAB pour l'accès à la plateforme AGLAE (PIXE). Enfin, un grand merci à Ludovic Bellot-Gurlet pour son aide lors de la détermination des phases en spectroscopie Raman.

Bibliographie

AUBERT M., BRUMM A., RAMLI M., SUTIKNA T., SATOMO E. W., HAKIM B., MORWOOD M. J., VAN DEN BERGH G. D., KINSLEY L. & DOSSETO A., 2014. Pleistocene cave art from Sulawesi, Indonesia. *Nature*, **514** : 223-227.

BAFFIER D., GIRARD M., MENU M. & VIGNAUD C., 1999. La couleur à la Grande Grotte d'Arcy-sur-Cure (Yonne). *L'anthropologie*, **103** : 1-21.

BECK L., ROUSSELIÈRE H., CASTAING J., DURAN A., LEBON M., LAHLIL S. & PLASSARD F., 2012a. Analyse in situ des dessins préhistoriques de la grotte de Rouffignac par fluorescence X et diffraction X portable. *ArchéoSciences*, **36** : 139-151.

BECK L., SALOMON H., LAHLIL S., LEBON M., ODIN G. P., COQUINOT Y. & PICHON L., 2012b. Non-destructive provenance differentiation of prehistoric pigments by external PIXE. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **273** : 173-177.

BIRD M. I., TURNEY C. S. M., FIFIELD L. K., SMITH M. A., MILLER G. H., ROBERTS R. G. & MAGEE J. W., 2003. Radiocarbon dating of organic- and carbonate-carbon in Genyornis and Dromaius eggshell using stepped combustion and stepped acidification. *Quaternary Science Reviews,* **22** : 1805-1812.

BONNEAU A., PEARCE D. G. & POLLARD A. M., 2012. A multi-technique characterization and provenance study of the pigments used in San rock art, South Africa. *Journal of Archaeological Science*, **39** : 287-294.

BONTEMPI E., BENEDETTI D., MASSARDI A., ZACCO A., BORGESE L. & DEPERO L. E., 2008. Laboratory two-dimensional X-ray microdiffraction technique: a support for authentication of an unknown Ghirlandaio painting. *Applied Physics A,* **92** : 155-159.

BOUCHARD M. & SMITH D. C., 2003. Catalogue of 45 reference Raman spectra of minerals concerning research in art history or archaeology, especially on corroded metals and coloured glass. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, **59** : 2247-2266.

CARTAILHAC E. & BREUIL H., 1903. Les peintures préhistoriques de la grotte d'Altamira à Santillane (Espagne). *Comptes rendus des séances de l'Académie des Inscriptions et Belles-lettres,* **46** : 256-265.

CHALMIN E., FARGES F., VIGNAUD C., SUSINI J., MENU M. & BROWN JR G. E., 2006. Discovery of Unusual Minerals in Paleolithic Black Pigments from Lascaux (France) and Ekain (Spain). *In* : P. HEDMAN & P. PIANETTA (éd.), *X-ray Absorption Fine Structure XAFS13*. American Institute of Physics, Stanford (US).

CHALMIN E., MENU M. & VIGNAUD C., 2003. Analysis of rock art painting and technology of Palaeolithic painters. *Measurement Science and Technology,* **14** : 1590.

CLOT A., MENU M. & WALTER P., 1991. Manières de peindre des mains à Gargas et Tibiran (Hautes-Pyrénées). *L'Anthropologie,* **99** : 221-235.

CLOTTES J., MENU M. & WALTER P., 1990. La préparation des peintures magdaléniennes des cavernes ariégoises. *Bulletin de la société préhistorique française,* **87** : 170-192.

COURTY G., 1902. Examen chimique de deux matières colorantes trouvées dans les stations préhistoriques du Périgord. *Bulletins de la Société d'anthropologie de Paris,* serie **V :** 840.

DARCHUK L., ROTONDO G. G., SWAENEN M., WOROBIEC A., TSYBRII Z., MAKAROVSKA Y. & VAN GRIEKEN R., 2011. Composition of prehistoric rock-painting pigments from Egypt (Gilf Kebia area). *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy,* **83** : 34-38.

DARCHUK L., TSYBRII Z., WOROBIEC A., VAZQUEZ C., PALACIOS O. M., STEFANIAK E. A., GATTO ROTONDO G., SIZOV F. & VAN GRIEKEN R., 2010. Argentinean prehistoric pigments' study by combined SEM/EDX and molecular spectroscopy. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy,* **75** : 1398-1402.

DAVID B., BARKER B., PETCHEY F., DELANNOY J.-J., GENESTE J.-M., ECCLESTON M., LAMB L. & WHEAR R. L., 2013. A 28,000 year old excavated painted rock from Nawarla Gabarnmang, northern Australia. *Journal of Archaeological Science,* **40** : 2493-2501.

DAVID B., GENESTE J.-M., WHEAR R. L., DELANNOY J.-J., KATHERINE M., GUNN R. G., CLARKSON C., PLISSON H., LEE P., PETCHEY F., ROWE C., BARKER B., LAMB L., MILLER W., HOERLÉ S., JAMES D., BOCHE E. L., APLIN K., MCNIVEN,I. J., RICHARDS T., FAIRBAIRN A. & MATTHEWS J., 2011. Nawarla Gabarnmang, a 45,180±910 cal BP Site in Jawoyn Country, Southwest Arnhem Land Plateau. *Australian Archaeology,* **73** : 73.

DE BALBÍN BEHRMANN R. & GONZÁLEZ J. J. A., 2009. Les colorants de l'art paléolithique dans les grottes et en plein air. *L'Anthropologie,* **113** (3-4) : 559-601.

DELANNOY J.-J., GENESTE J.-M., DAVID B., KATHERINE M., GUNN R. G. & WHEAR R. L., 2012. Apports de la géomorphologie dans l'aménagement et la construction sociale de sites préhistoriques. Exemples de la grotte Chauvet-Pont-d'Arc (France) et de Nawarla Gabarnmang (Australie). *Paleo,* **23** : 85-104.

DE SANOIT J., CHAMBELLAN D. & PLASSARD F., 2005. Caractérisation in situ du pigment noir de quelques oeuvres pariétales de la Grotte de Rouffignac à l'aide d'un système portable d'analyse par fluorescence X (XRF). *ArchéoSciences*, **29**.

DOEHNE E., 2002. Natural stone, weathering phenomena, conservation strategies and case studies. *Geological Society*, London, **205** : 55-64.

GENESTE J.-M. & DAVID B., 2012. The origins of ground-edge axes: New findings from Nawarla Gabarnmang, Arnhem Land (Australia) and global implications for the evolution of fully modern humans. *Cambridge Archaeological Journal,* **22** : 1-17.

GENESTE J.-M., DAVID B., PLISSON H., CLARKSON C., DELANNOY J.-J., PETCHEY F. & WHEAR R. L., 2010. Earliest evidence for ground-edge axes: 35,400±410 cal BP from Jawoyn country, Arnhem Land. *Australian Archaeology,* **71** : 66-69.

GOODALL R. A., DAVID B., KERSHAW P. & FREDERICKS P. M., 2009. Prehistoric hand stencils at Fern Cave, North Queensland (Australia): environmental and chronological implications of Raman spectroscopy and FT-IR imaging results. *Journal of Archaeological Science,* **36** : 2617-2624.

GUNN R. G., 2011. The Impact of bushfires and fuel reduction burning on the preservation of shelter rock art. *Rock Art Research,* **28**.

GUNN R. G., DOUGLAS L. & WHEAR R. L, 2011. What bird is that? Identifying a painting of Genyornis Newtoni in Western Arhnem Land. *Australian Archaeology*, **73** : 1-12.

GUNN R. G. & WHEAR R. L., 2007. The Jawoyn Rock Art and Heritage project. *Rock Art Research*, **24** : 5-20.

GUNN R. G. & WHEAR R. L., 2009. Bushfire-induced heat and smoke patterns within an aboriginal rock art shelter. *Rock Art Research*, **26**.

HERNANZ A., BEATRIZ M. M. & HERNÁNDEZ G. B., 2006. Raman microscopy and IR spectroscopy of prehistoric paintings from Los Murciélagos cave (Zuheros, Córdoba, Spain). *Journal of Raman Spectroscopy*, **37** : 492-497.

HERNANZ A., GAVIRA-VALLEJO J. & RUIZ-LÓPEZ J., 2007. Calcium oxalates and prehistoric paintings. The usefulness of these biomaterials. *Journal of optoelectronics and advanced materials*, **9** : 512-521.

HOWARD J. L., AMOS D. F. & DANIELS W. L., 1995. Micromorphology and dissolution of quartz sand in some exceptionally ancient soils. *Sedimentary Geology*, **105** : 51-62.

HUNTLEY J., 2012. Taphonomy or pain recipes: In situ portable x-ray fluorescence analysis of two anthropomorphic motifs from the Woronora Plateau, New South Wales. *Australian Archaeology*, **75** : 78-94.

JEZEQUEL P., WILLE G., BENY C., DELORME F., JEAN-PROST V., COTTIER R., BRETON J., DURE F. & DESPRIEE J., 2011. Characterization and origin of black and red Magdalenian pigments from Grottes de la Garenne (Valleé moyenne de la Creuse-France): A mineralogical and geochemical approach of the study of prehistorical paintings. *Journal of Archaeological Science*, **38** : 1165-1172.

LEWIS-WILLIAMS J. D., 2006. The Evolution of Theo-

ry, Method and Technique in Southern African Rock Art Research. *Journal of Archaeological Method and Theory*, **13** : 341-375.

LORBLANCHET M., LABEAU M. & VERNET J. L., 1988. Première étude des pigments des grottes ornées quercinoises. *Préhistoire quercinoise*, **3** : 79-94.

MARTINI J., 1987. Les phénomènes karstiques des quartzites d'Afrique du Sud. *Karstologia*, **9** : 45-52.

MAS M., JORGE A., GAVILAN B., SOLIS M., PARR E. & PEREZ P.-P., 2013. Minateda rock shelters (Albacete) and post-palaeolithic art of the Mediterranean Basin in Spain: pigments, surfaces and patinas. *Journal of Archaeological Science*, **40** : 4635-4647.

MAXWELL J. A., TEESDALE W. J. & CAMPBELL J. L., 1995. The Guelph PIXE software package II. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **95** : 407-421.

MENU M. & WALTER P., 1992. Prehistoric cave painting PIXE analysis for the identification of paint "pots". *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **64** : 547-552.

MILLER G. H., MAGEE J. W., JOHNSON B. J., FOGEL M. L., SPOONER N. A., MCCULLOCH M. T. & AYLIFFE L. K., 1999. Pleistocene Extinction of Genyornis newtoni: Human Impact on Australian Megafauna. *Science*, **283** : 205-208.

MOISSAN H., 1902. Chimie analytique - Sur les matières colorantes des figures de la grotte de Font-de-Gaume. *Compte-rendu de l'Académie des Sciences,* **134** : 1539-1540.

MOISSAN H., 1903. Chimie Analytique - Sur une matière colorante des figures de la grotte de la Mouthe. *Compte-rendu de l'Académie des Sciences*, **136** : 144-146.

PIKE A. W. G., HOFFMANN D. L., GARCIA-DIEZ M., PETTITT P. B., ALCOLEA J., DE BALBIN R., GONZÁLEZ-SAINZ C., DE LAS HERAS C., LASHERAS J. A., MONTES R. & ZILHÃO J., 2012. U-Series Dating of Paleolithic Art in 11 Caves in Spain. *Science*, **336** : 1409-1413.

PILLANS B. & FIFIELD L. K, 2013. Erosion rates and weathering history of rock surfaces associated with Aboriginal rock art engravings (petroglyphs) on Burrup Peninsula, Western Australia, from cosmogenic nuclide measurements. *Quaternary Science Reviews*, **69** : 98-106.

PLASSARD F., KERVAZO B., FERRIER C., REICHE I., KONIK S., CASTAING J., ROUSSELIÈRE H. & AUJOULAT N. (†), 2015. Altérations et dépôts sur les parois de la grotte de Rouffignac : premiers résultats d'analyses. *Paleo*, sous presse.

POMIÈS M.-P., MENU M. & VIGNAUD C., 1999. Red palaeolithic pigments: natural haematite or heated goethite? *Archaeometry*, **41** : 275-285.

PRIETO A. C., JIMÉNEZ J., PÉREZ B. & LEAL L., 2000. Analytical techniques for characterizing polychromated coatings on quartzite samples from a prehistorical cave. *9th International Congress on Deterioration and Conservation of Stone*, Venice.

SCHULZ H., BARANKA M. & BARANKI R., 2005. Potential of NIR-FT-Raman spectroscopy in natural carotenoid analysis. *Biopolymers*, **77** : 212-221.

TAÇON P. S. C., BRENNAN W. & LAMILAMI R., 2011. Changing perspectives in Australian archaeology, part XI. Rare and curious thylacine depictions from Wollemi National Park, New South Wales and Arnhem Land, Northern Territory. *Technical Reports of the Australian Museum*, **23** : 165-174.

TOURNIÉ A., PRINSLOO L. C., PARIS C., COLOMBAN P. & SMITH B., 2010. The first in situ Raman spectroscopic study of San rock art in South Africa: procedures and preliminary results. *Journal of Raman Spectroscopy*, **42** : 399-406.

VALLADAS H., CLOTTES J., GENESTE J.-M., GARCIA M. A., ARNOLD M., CACHIER H. & TISNERAT N., 2001. Palaeolithic paintings: Evolution of prehistoric cave art. *Nature*, **413** : 479.

VALLADAS H., TISNÉRAT-LABORDE N., CACHER H., KALTNECKER E., ARNOLD M., OBERLIN C. & ÉVIN J., 2005. Bilan des datations carbone 14 effectuées sur des charbons de bois de la grotte Chauvet. *Bulletin de la Société préhistorique française*, **102** : 109-113.

WRAY R. A. L., 1997. A global review of solutional weathering forms on quartz sandstones. *Earth-Science Reviews*, **42** : 137-160.

WRAY R. A. L., 2003. Quartzite dissolution: karst or pseudokarst? *Speleogenesis and Evolution of Karst Aquifers*.

YOUNG G. M. & NESBITT H. W., 1998. Processes controlling the distribution of Ti and Al in wearthering profiles, siliciclastic sediments and sedimentary rocks. *Journal of Sedimentary Research*, **68** : 448-455.

ZOPPI A., SIGNORINI G. F., LUCARELLI F. & BACHECHI L., 2002. Characterisation of painting materials from Eritrea rock art sites with non-destructive spectroscopic techniques. *Journal of Cultural Heritage*, **3** : 299-308.

Adresses des auteurs :

Émilie CHALMIN
Géraldine CASTETS
Jean-Jacques DELANNOY
Fayçal SOUFI
Élisa BOCHE
Laboratoire EDYTEM
UMR CNRS 5204
Université de Savoie
Avenue du Lac d'Annecy
73370 Le Bourget-du-Lac (France)
chalmin-aljanabi@univ-savoie.fr

Bruno DAVID
Monash Indigenous Centre
Monash University
20, Chancellors Walk
Victoria 3800 (Australie)

Bruce BARKER
Lara LAMB
School of Humanities
and Communication
Public Memory Centre
University of Southern
Queensland Toowoomba
4350 Queensland (Australie)

Jean-Michel GENESTE
Stéphane HOERLÉ
Élisa BOCHE
Centre National de Préhistoire
38, Rue 26ème Régiment d'Infanterie
24000 Périgueux (France)

Sébastien PAIRIS
Université Grenoble Alpes
Institut Néel
CNRS/UJF UPR2940
25, rue des Martyrs, BP 166
38042 Grenoble cedex 9 (France)

Jean-Michel GENESTE
Stéphane HOERLÉ
Laboratoire PACEA
UMR 52109
Université de Bordeaux 1
Bordeaux (France)

Margaret KATHERINE
Jawoyn Association
Aboriginal Corporation
Pandanus Plaza
First Street, PO Box 371
0851 Northern Territory (Australie)

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 161-178

Dolní Věstonice I female grave (DV3). Red colourants and other components of the burial fill up and grave floor

Joanna TRĄBSKA, Martin OLIVA,
Adam GAWEŁ & Barbara TRYBALSKA

Abstract

Red powdery and crusty concentrations from the fill-up and bottom of a female burial DV3 from the Dolní Věstonice I site, representing Pavlovian culture, as well as some red raw material from the site were examined. Burial floor and fill-up is composed of marly substrate mixed with bone powder, charcoal ash and red, rounded, relatively hard particles, composed of burnt iron bearing aluminosilicates. Red crusts, present on it (maybe also within it), applied probably as suspension, are composed of unburnt iron bearing aluminosilicates. The raw material for powders is assumed to come from the site hearths red ash. Red iron artifacts, macroscopically almost identical, occur on the site also as an assemblage of loose red lumps. They are petrographically inhomogeneous and their sources are localized up to 150 km from the site. Raw material similar to the one of some of red lumps may have been used for burial ceremony.

Keywords: Dolní Věstonice I, red raw material, hematite, grave DV3.

1 INTRODUCTION

Red ferruginous materials are known from the oldest sites, where remains of the genus Homo were found (Rosso *et al.*, 2013). They were used for different practical purposes (eg. Audouin & Plisson, 1982; Wadley, 2005) and were also of symbolic significance (Petru, 2006; Wreschner, 1980). They play an important role in the study of emergence of modern human behavior (Henshilwood *et al.*, 2002). The red ferruginous materials may have been exploited in areas of particular importance, away from hunting and flint (and other raw materials) trails (Aboriginal customs are an example, Jercher *et al.*, 1998). Therefore, it is important to track the routes of circulation of this special resource. It is also important to document and attempt to interpret the conscious processing of red ferruginous materials (eg. Roebroeks *et al.*, 2012). Thus, specific applications of red ferruginous materials in Paleolithic communities can be pointed out.

Pavlovian communities are known for their technological advancement (eg. Soffer & Vandiver, 1997; 2005; Vandiver *et al.*, 1989) and the use of a wide range of raw materials (Valoch, 1996). The latter were searched for to the north through the valley of the river Vah, the Moravian Gate (*op. cit.*) as well as to the southwest (Svoboda *et al.*, 1996), the areas rich in red ferruginous raw materials of different origins (Cháb *et al.*, 2007). Interest in raw materials is not limited to these areas: Svoboda *et al.* (2002) emphasize that Gravettian communities penetrated vast areas of Europe. Svoboda *et al.* (1996) also underline that various Gravettian cultures likely demonstrated preferences for certain raw materials (although they did not make any remarks on red ones).

Dolní Věstonice I site, excavated by K. Absolon (Absolon 1938a; 1938b), B. Klíma (1963; 1983; 1995) and Oliva (2014; Fig. 1) belongs to an assemblage of the Pavlovian sites (Early Gravettian) of the Southern Moravia (Czech Republic), together with the Dolní Věstonice II and III, Pavlov I-VI, Milovice I and IV and the Middle Moravia Basin sites (Oliva, 2007; Svoboda *et al.*, 2009). Dolní Věstonice I as well as other Southern Moravian sites were located at the foothill of Pavlovske Vrchy, close (*ca.* 0.5 km) from the Dyje river (Oliva, 2007).

Red iron compounds occur at the Moravian Pavlovian sites in a variety of ways; as loose clumps, usually in size of few millimeters, raw and intentionally processed; in a powdery form on the surfaces of the items (grinders, palletes) and spatially connected with the remains of the dead (on the bones and their proximity); as well as red layer spatially associated with hearths (Oliva, 2007). Previous studies of colorful raw material of the Moravian Pavlovian were conducted for the Pavlov I NE (Vandiver, 1997) and Pavlov I SW (Diez & Vinagre, 2005). Features of microartefacts were examined at Pavlov I NW site, but exclusively to study the suitability of their raw materials for pigments (Vandiver, 1997: 378).

At the Dolní Věstonice I site, red raw materials occurred in various forms: ground on palettes and surfaces of pebbles, lumps of various size (Absolon 1938a: 39; 1938b: 68) usually of few millimeters, of irregular shape, some resembling tetragonal figures, striated or/and facetted

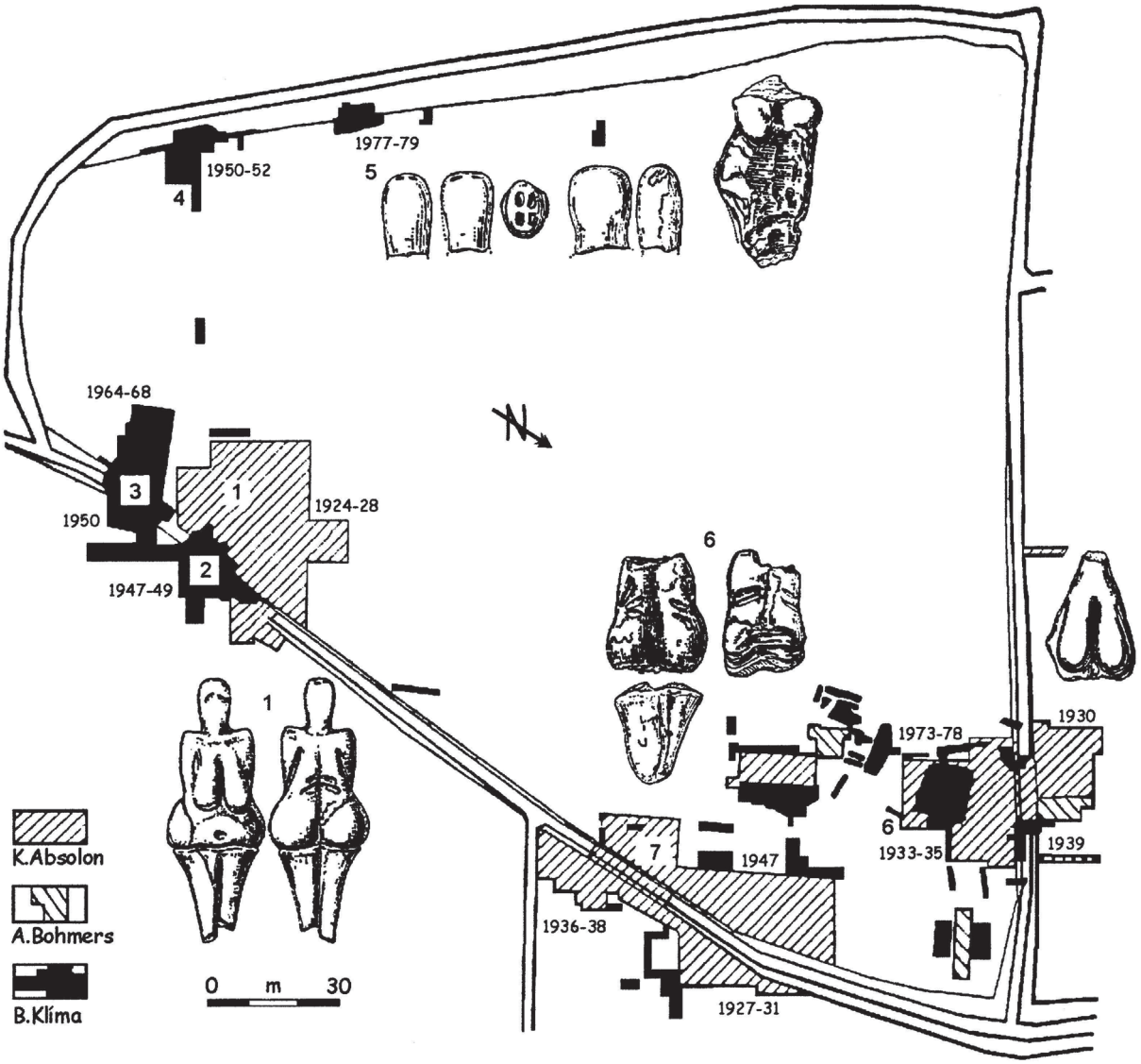


Fig. 1 – Dolní Věstonice I, a sketch of excavations. 1: central hearth with the Venus 1; 2: structure 1 with the female burial DV 3; 3: large accumulation of mammoth bones; 4: structure 2 - "a shamanic hut"; 5: settlement of the highest floor (level?); 6: middle part of the site with numerous ceramic statuettes; 7: lower (Aurignacian) layer in the middle part of the site. After Klíma 1983, completed by M. Oliva (2007).

pieces and red burnt clay lumps (Oliva, 2007: 13, 2014: fig. 50). They were dispersed in various site areas (Klíma 1963: 178-181; Oliva 2007: 9-65). Some red concentrations (forming up to 10 cm thick layers) occurred in profiles of hearths, they covered charcoal layers (Klíma, 1963: 206-220, *fide* Oliva, 2007). They are present also within marly silt from the female grave, labeled as DV3, discovered in 1949 (area 2 in the Fig. 1). No study of origin of the Dolní Věstonice I red raw materials has been conducted so far.

The DV3 burial was found in the cultural layer of the first settlement object. The grave pit was dug into the Pleistocene marly silt mixed with limestone debris. The sediment was formed as a result of solifluxion of the nearby Tertiary sediments. Grave pit with the flexed body of a middle aged woman was covered by red coloring agent, greyish marly fill-up and two mammoth scapulae contacting tightly one with the other. They are covered by a compacted layer of calcareous debris with an ash and "dye" (as specified by Klima, 1963: 139-140). This layer was present only in the burial pit and in the immediate vicinity of it.

The upper part of the skeleton, especially the skull was covered with red material. Colouring continued in the vicinity of isolated bones. A woman's body, according to Klíma's field observations (1963: 149) probably was smeared with marly soil with immersed red powder. Staining was visible also under the temporal bone. Perhaps, after the decomposition of soft body parts the red particles infiltrated to bone surfaces tinting them (Klíma, *op. cit*).

Numerous red ferruginous pieces and lumps were present out of the DV3 grave. Klíma (1963: 179) points at the local sources (up to 1 km from the site) of red raw materials, e.g. Mn-Fe concretions from the Ždanice Middle Oligocene flysch, limonite concretions from Eocene sediments near Milovice and goethite (xantosiderite originally in the Klíma's text) from the vicinity of the Pavlovske Hills (Fig. 3, see also detailed contemporary geological map (http://www.geology.cz). Nevertheless, geology of the area in some dozen kilometers is much more complex and numerous other rocks may have been sources of red iron oxides, including, among others, terra rosa of unknown (but probably Eocene) age, variegated shales from Oligocene-Miocene and Paleocen-Middle Eocene flysh, red claystones (Ždanice-Hustopeče Formation), Cretaceous spongolite at the Dyje river, Inner Carpathian pyrite-pyrhotine with their red weathering crusts, neohercynian hematite veins and stockwerks (also along the Vah valley), red continental Lower Permian sediments and Visean flysh (culm) facies with variegated shales. In 150 km radius Považsky Inovec (Kohút, 2006) and Jeseníky Mts. metamorphosed Devonian sedimentary-volcanogenic rocks of Lahn-Dill (Tyraček, 2005; Přichystal, 2009) type were also available for Pavlovian societies (Biely *et al.*, 1966; Cháb *et al.*, 2007; Lexa *et al.*, 2004). Practically all mentioned rocks may bear fine grained, soft, red ferruginous concentrations..

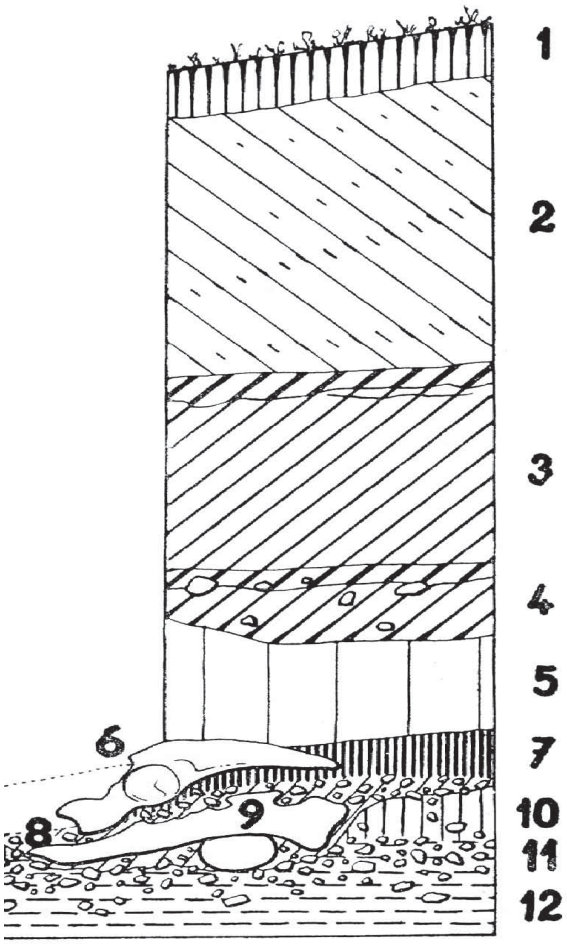


Fig. 2 – Profile in the DV3 grave location.
1: topsoil; 2-4: earth fill (overburden) after excavations in 1927; 5: loess; 6: mammoth hip bone; 7: culture layer; 8 and 11: calcareous debris – talus; 9: mammoth shoulder blades; 10: pseudogley; 12: Pleistocene marl with limestone debris (after Klíma, 1963: 140).

Research objectives set out in this work are twofold. On the one hand we were interested in the diversity of petrographic origin and processing of red raw ferruginous red lumps found on the site beyond the grave DV3. On the other hand, we ask about the nature of red microartifacts associated with a sepulchral context: what is their composition and origin? Were they intentionally processed? Is there one or more varieties of sediments in the burial? Do the red powders of burial sediment (or sediments) have any relationship with red lumps from beyond the grave, or they are specific in origin and processing? Could they be a deliberately burnt raw material?

2 MATERIAL

Samples derive from a collection of the material from the Dolní Věstonice I excavations, now in the Anthropos Institute of the Moravian Museum in Brno, Czechia. The samples are of threefold origin: (a) from the female grave DV3 fill-up and floor (Klíma, 1963: 137-152) now preserved in a form of red and black stained, loose, *ca.* 2 cm large, marly pieces, (b) as above, but samples form red cherry crusts on grey, marly pieces, (c) from other areas of the site (their original position remains unknown), as some millimeters large loose pieces of red rocks. Their macroscopic fea-

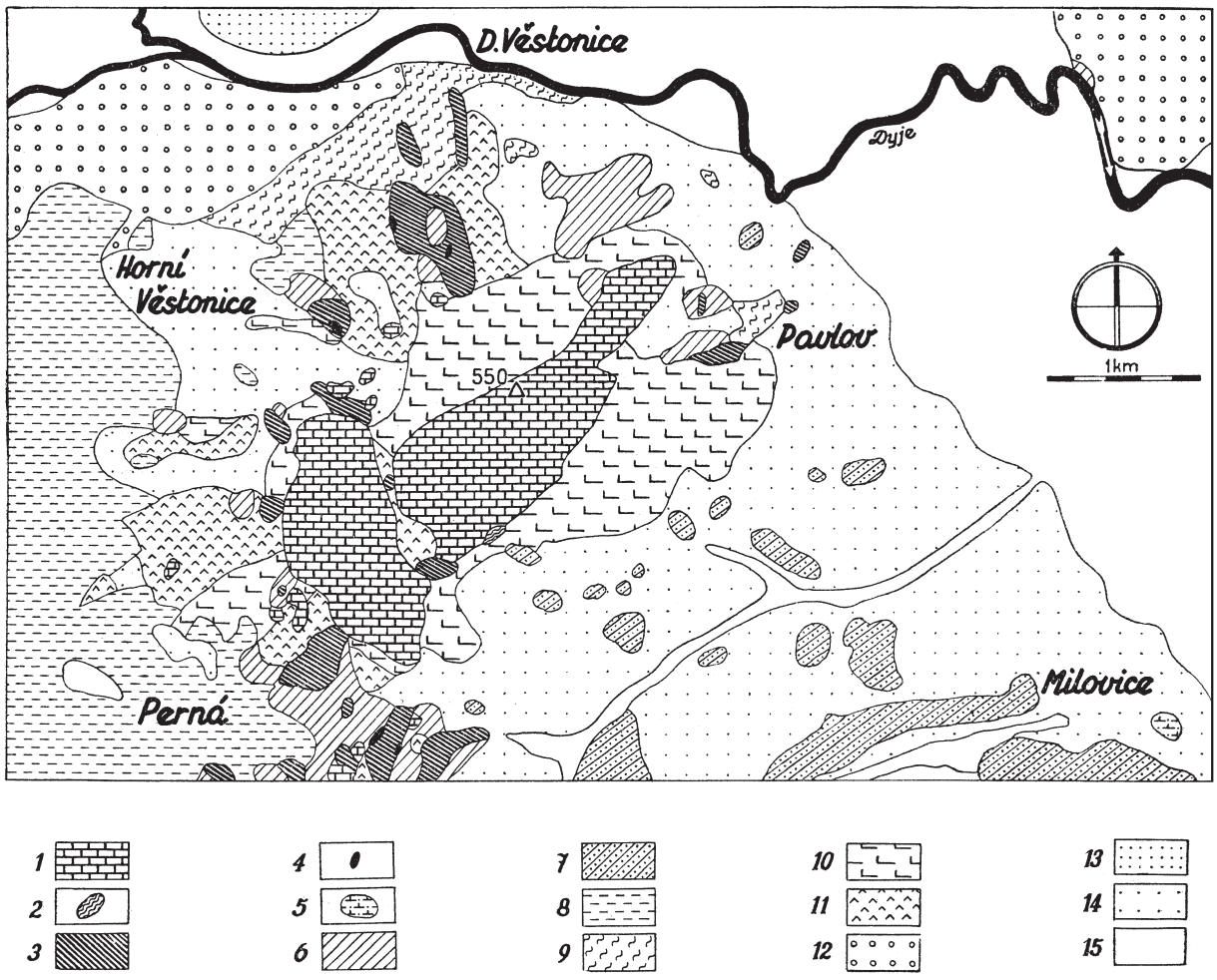


Fig. 3 – Geological map of the site area. 1: Jurassic limestone; 2: Cretaceous white marl; 3: Eocene/Lower Oligocene variegated silt; 4: Menilite slates; 5: Palaeogene conglomerate; 6: Middle Oligocene marl with sandstone; 7: Palaeogene sandstone; 8: Neogene calcareous silt and sandstone; 9- Pleistocene gray clay, in lower parts with sand; 10: Pleistocene loess enriched in debris; 11: Pleistocene calcareous debris on silt; 12: Pleistocene sandstone rubble; 13: Pleistocene eolian sands; 14: Pleistocene loess and loessic clay; 15: Holocene sands and silts (after Klima, 1963).

tures are listed in Table 1. Samples have been selected and coded arbitrarily because no specific labels were attached to them. For this reason no spatial analysis can be performed.

3 METHODS

Plane polarized light microscopy (PLM) was applied with an Olympus BX 51 apparatus, photographs were taken also with the camera Olympus DP 25 attached to the microscope. For one sample reflected light observation, with the use of the same microscope, was performed.

Scanning microscopy with X-ray microanalyser (SEM/EDS) with Nano Nova FEI Company/ EDAX Oxford apparatus at low vacuum measurement conditions was used. Samples were coated with graphite and spectra were collected at 18 keV. In some cases the analysis were performed on surfaces of thin sections.

Micro-FTIR microspectroscopy (FTS 40 Pro f-y Digilab, with UMA 500 microscope Digilab) was applied and the reflected light focus diameter was *ca.* 10-20 micrometer.

XRD Powder diffractograms of non-oriented samples were recorded in the range $2\theta = 2$ to 73° with constant step equal to 0.05°, using a Philips PW APD 3020 X'Pert instrument with the the $CuK_{(\alpha)}$ radiation and graphite monochromator. Phases were identified according to the data in ICDD catalogue included in the XRAYAN programme (2007). In all samples a size of hematite crystallites was measured on the basis of FWHM (Full Width at Half Maximum) of 104 (d = 2.70Å) diffraction peak, perpendicularly to (104) cell lattices, following the Scherrer method (Klug & Alexander,1954). Red material was separated from the marly surrounding by a needle to avoid, as much as possible, contamination.

4 RESULTS

4.1 Grey marly silt with red particles and red and cherry crusts from the female grave DV3

Grey and dark grey host rock is a marly silt composed of micritic calcite, clay minerals and quartz with feldspars as skeleton grains, randomly distributed in the massive fabric (Figs 4-5). Some parts of the rock are enriched in rectangular and lense-shaped micritic grains as well as scarce rounded sparite grains, producing more blocky texture. The fines fabric is here more turbated (Figs 9-10). Sediment must have been bioactive (due to roots or faunal movement) which is pointed out by channels and rounded or ellipsoidal

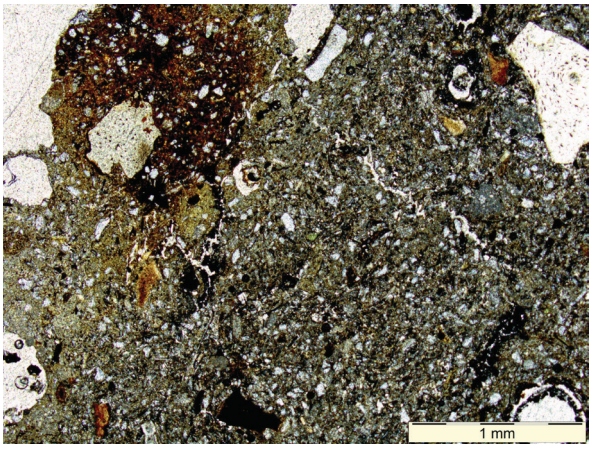


Fig. 4 – Marly silt with a natural concentration of iron compounds or a red particle (labelled in the text as „a"), with a bone piece inside. Bone particles, both colourless and opaque, are dispersed also in the marly surrounding (DVI 15, // nicols).

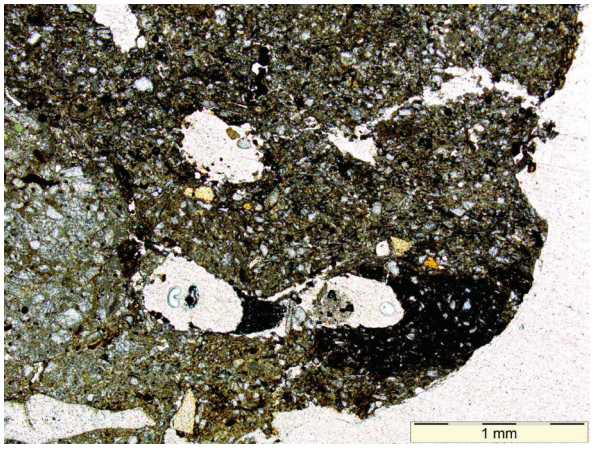


Fig. 5 – Marly, vesicular silt with embedded red powder (labeled in the text as "b"; lower hand-right quadrant) partially destroyed by microorganisms. Faecal pellet and bone fragments are visible (sample DVI 9, X nicols).

Sample code	Character of red concentrations	*Macroscopic descriptions of samples*	*Research methods*
DVI 3	A lump	Cryptocrystalline, homogeneous red substance, resembling weathering crust	PLM, XRD, SEM/EDS
DVI 4	A lump	Fine-grained, psammitic, homogeneous, of ferruginous weathering crusts shape	PLM
DVI 5	A lump	A fragment of calcitic-haematite rock, the red component is cryptocrystalline and homogeneous	PLM
DVI 7	A lump	Cryptocrystalline, homogeneous red substance, resembling weathering crust	PLM, SEM/EDS
DVI 8	A lump	Cryptocrystalline, homogeneous red substance, resembling weathering crust	PLM, XRD, SEM/EDS
DVI 9	Red powder and crust from the grave	Dark grey marly silt with white micritic lenses up to 7 mm, charcoal particles up to 2 mm, red rounded particles and bone particles up to 1 mm and continuous, thin (*ca*. up to 1mm thickness) crust. Texture is chaotic	PLM, SEM/EDS
DVI 10	A lump	Red brownish, cryptocrystalline with parallel texture, moderately soft, ca. 3 in the Mohs' scale	PLM
DVI 11	Red powder and crust from the grave	Dark grey marly silt with charcoal and bone particles up to 2 mm. Cherry iron compounds form a crust and infiltrate into the marly substrate	PLM, μFTIR
DVI 13	A lump	Cryptocrystalline, homogeneous red substance, resembling weathering crust. The object is 5 mm long, spindle-like	XRD, SEM/EDS
DVI 14	A lump	Like the DV13 sample, of rectangular shape, *ca*. 6/6/6 mm.	XRD, SEM/EDS
DVI 15	Red crust and powder from the grave	Dark grey and dark red (with brownish shade) intermixture with charcoal up to *ca*. 1 mm as well as white bone grains, red rounded particles of *ca*. 1 mm and micritic lumps, up to 4 mm. Red component is fine grained, cryptocrystalline, soft. It constitutes a compact, uneven layer *ca*. 2 mm thick on a grayish underneath and penetrates into it in a cloudy manner	PLM, XRD, SEM/EDS
DVI 16	Red crust and powder from the grave	Like the DV15 sample but with scarce charcoal. This one was supposedly an edge of a certain structure	PLM, SEM/EDS
DVI 17A	Powder from the grave	Chaotic intermixture of dark red, fine grained, homogeneous substance, forming a rectangular, compact lump of ca. 17/12/10 mm immersed in a dark grey, fine grained porous matrix with charcoal and a dark grey slate, both up to 8 mm. White bone powder up to 1 mm and white, elongated calcareous lumps up to 13 mm are present. Beside well defined red brownish lumps irregular concentrations of cherry pinkish areas of blurred shape are present. Dark grey substance bear traces of negatives of some vascular plants	PLM, XRD, SEM/EDS
DVI 17B	Cherry crust from the grave	Like the DV15 sample but with scarce charcoal	PLM
DVI 18	Several lumps	Like the DV13 sample (all lumps are macroscopically identical)	PLM, SEM/EDS
DVI 19	A lump	Silvery, hard, needle-like haematite rock of Lahn-Dill type	SEM/EDS, XRD

Tab 1 – A list of examined samples of red ferruginous material from the Dolní Věstonice I site.

voids up to *ca*. 3 mm of diameter. In the miccro-aggregate areas the fabric becomes more porous: the pores are irregular, more or less rounded, long and narrow, likely due to dessication (comp. Todisco & Bhiry, 2008).

In microscopic image marly silt contains anthropic admixtures of: (a) sharp edged black particles of vesicular plants of various size (from 1 mm to 5 mm), (b) white, sharp, irregularly edged particles of calcined bones, *ca*. 2 mm size (Figs 4-5, Fig. 8), (c) reddish and black (the latter cracked) bone particles, up to 1 mm. The nature of white and black bone particles was confirmed by micro-FTIR. Crystallinity of apatite in the white ones was higher than in the black, (d) red particles of sharp or dizzy edges, from around 0,3 to 1 mm. Occasionally they are rectangular, larger to 10 mm. The particles are randomly distributed within the rock volume. Some powders have been partially deformed by burrowing organisms, producing voids with foecal pellets in some of them (Fig. 5), and movements of the ground, deshaping primary structures and resulting in red and cherry infiltrations.

In the PLM image two types of red powders are discernible: (a) translucent, light-red-brown, slightly fuzzy, almost devoid of detritic grains (Fig. 4), (b) opaque, with sharp boundaries, rounded, with detritic grains, sometimes without them (Fig. 5, Fig. 8). Iron compounds form in both cases cryptocrytalline concentrations (Fig. 6).

Bright red powders consist almost exclusively of potassium, magnesium, iron, manganese, and calcium aluminosilicates. Calcium compounds may have permeated from the ground. In a group of opaque powders detritic grains usually occur, which are: sericite, quartz, fibrous dolomite, calcite. XRD analysis revealed presence of quartz, illite, hematite, albite, clinochlore and stilbite (Tab. 2, Fig. 12). Here, low concentrations of phosphorus and sulfur were detected.

Within red powders some other microartefacts may be present: bone and some organic substances. In both powder types ("a" and "b") bone particles were observed (Fig. 4, Fig. 8): they are characterized by varying degrees of combustion (Fig. 4-5, Fig. 8).

Some dark red powder (sample DVI 9) concentrate irregular organic matter (Fig. 7). It is not supposed to be a resin used to manufacture the thin section because such evidences were not observed anywhere else except the sample DVI 16 (Wesełucha-Birczyńska *et al.*, 2012).

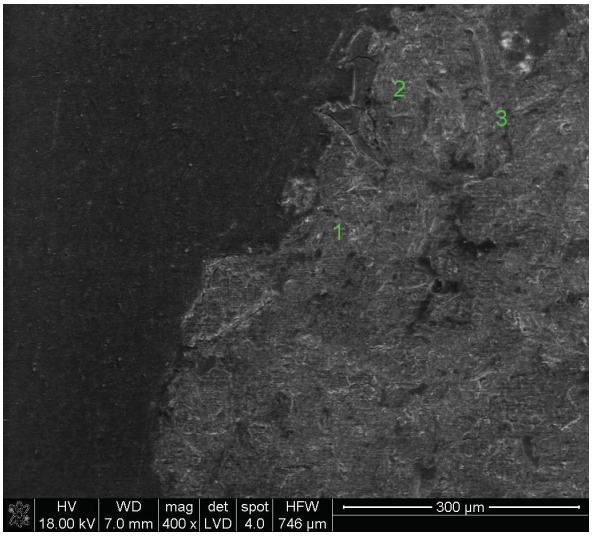


Fig. 6 – Cryptocrystalline particle „b". Si, Al, Fe, Mn in the 1 and 2 points, elevated concentrations of Mn and C are present in the 3 (DVI 9).

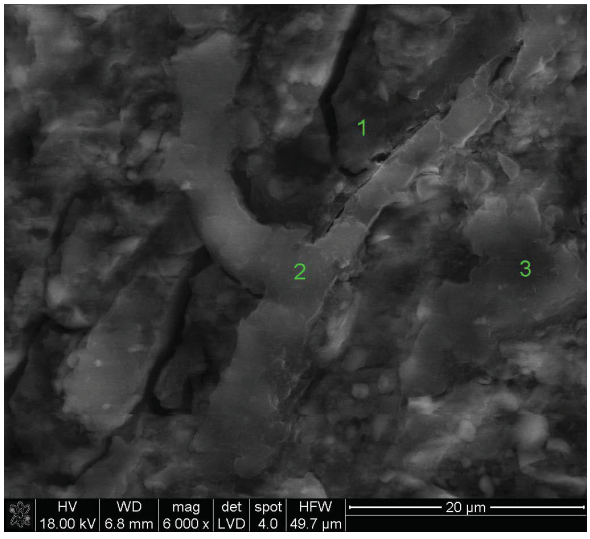


Fig. 7 – Organic substance of unknown origin within a particle „b". C, Si, Al, Ca, Fe, Mn, Mg occur in the points 1, 2, 3, with the highest carbon concentration in the 2 (DVI 9).

Coccoliths were observed in some powders but their plates likely penetrated from marly surroundings.

In the "a" and "b" powders there were no morphological evidences of heating discernible under PLM or SEM microscopes - except the contextual information: presence of bone ash particles. However, phase analysis revealed (sample DVI 17a, type "b", see Fig. 10) stilbite (Fig. 12).

Klíma (1995, pp.104-105), describing the grave sediment, writes about pine resin remnants. Our observations revealed particles of vesicular plant charcoal. Nevertheless, no plant resins were found within red powders (Wesełucha-Birczyńska *et al.*, 2012). Irregular concentration in the particle of the opaque powder (Fig. 4) is of unknown origin.

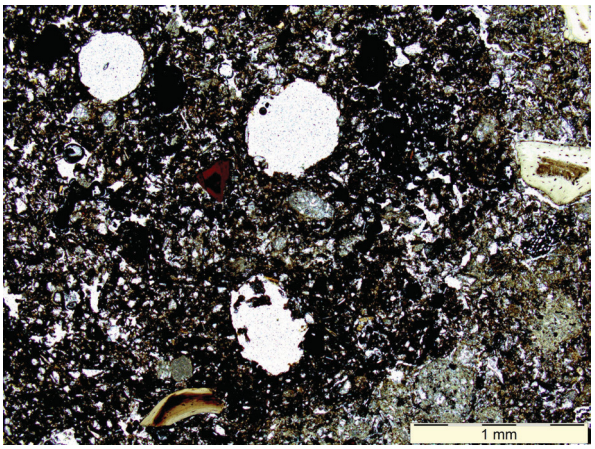


Fig. 8 – Red particle, labeled as "b", with vesicles and burnt (in a various degree) bones within and outside. Boundary between marly silt and the powder is sharp (DVI 17a, X nicols).

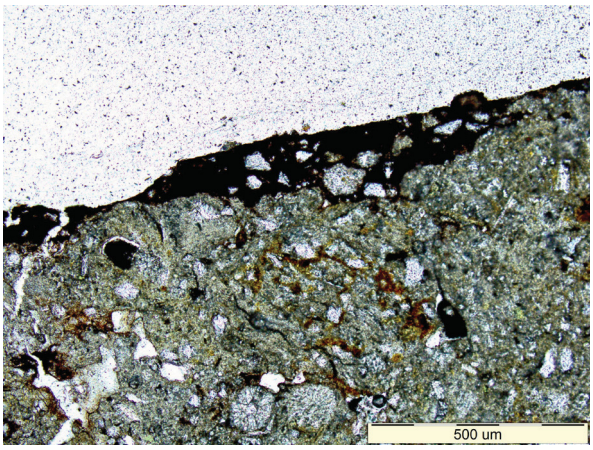


Fig. 9 – A fragment of red crust on a marly underneath, with a smooth surface. The crust is enriched in rectangular grains, detached from the underlying sediment. Marly silt is slightly porous, the pores are elongated, cross-cutting the crust. Groundmass is non-homogeneous, unsorted (DVI 15, //nicols).

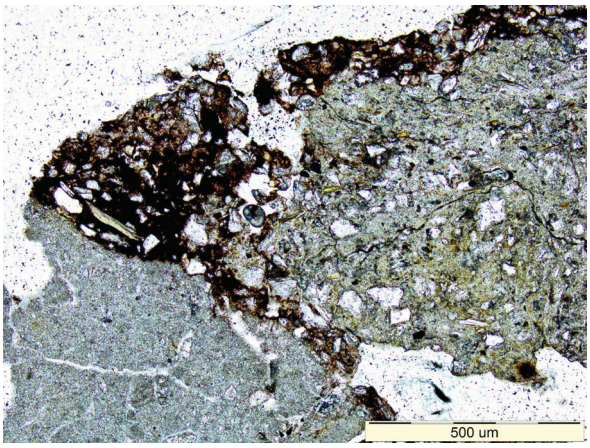


Fig. 10 – Red crust (liquid?) forming an intergrain microinjection marly-micritic microaggregate (DVI 17a, //nicols).

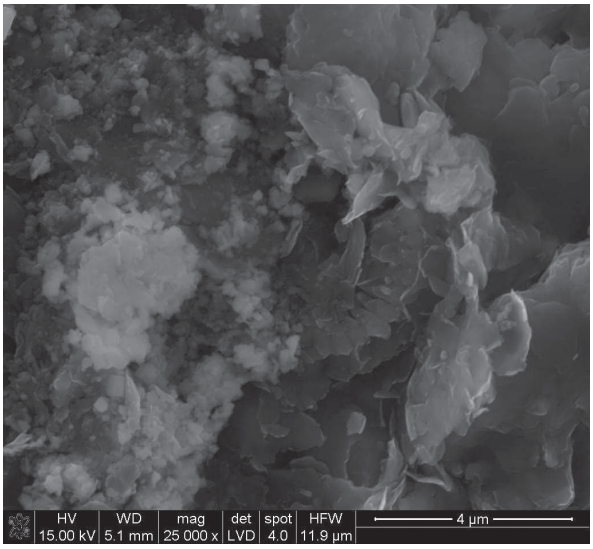


Fig. 11 – Red crust. Coccolith (present also in marly silt), flaky aluminosilicates and irregular lumps of iron compounds (DVI 17a).

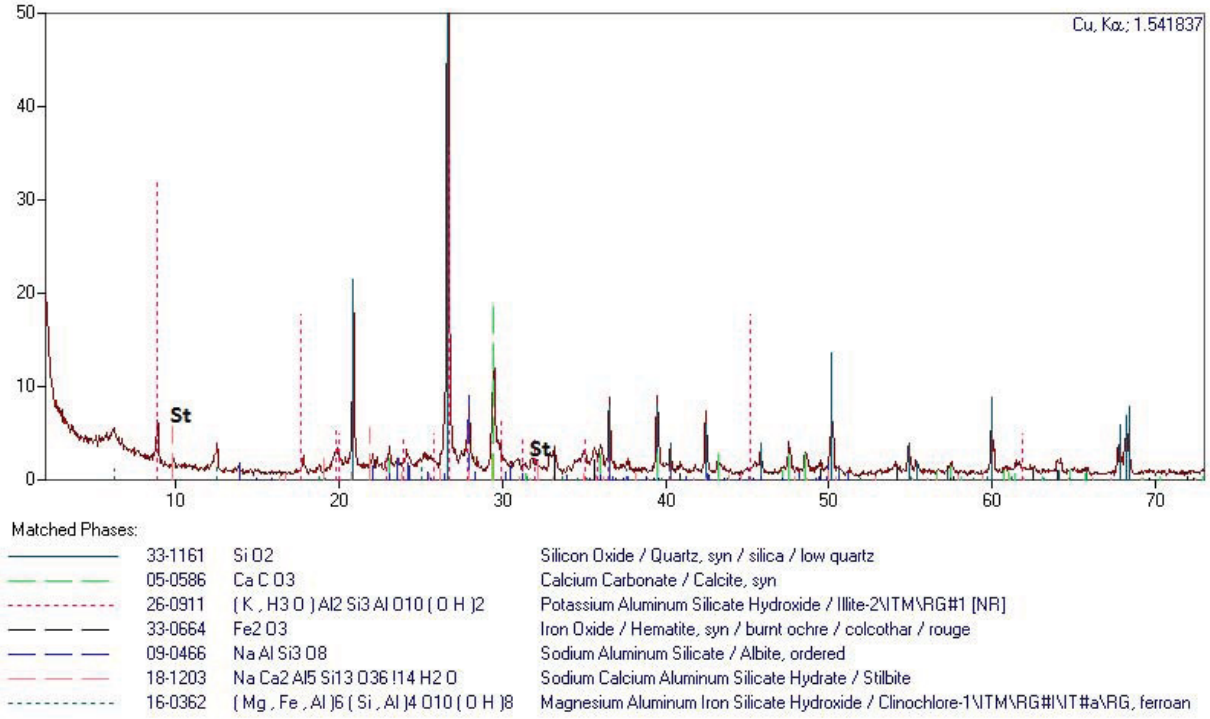


Fig. 12 – Diffractogram of the red powder sample (DVI 17a) from the female grave DV3. St: the most intense diffraction peaks of stilbite.

The crust, macroscopically red or light cherry, is composed of iron bearing aluminosilicates (terra rosa, limonite, ferruginous crust, other weathered rocks) (Fig. 9 and 10, Table 2). The crusts are uneven, up to 2 mm thick, in some areas with smooth surfaces (Fig. 9). Their contact with the marly underneath vary from sharp to warped, fuzzy, infiltrating (Fig. 10). Some areas are cut by thin, thread-like cracks (Fig. 9). EDS spectra revealed low concentration of phosphorus and sulfur within the red crust, sulfur also within the marly silt. Coccoliths were identified within both, originating likely from the marly silt (Fig. 11).

Sample	*Phase composition*	*Size of hematite crystallites [nm]*
DV I 11 crust	Quartz, hematite, calcite, plagioclase, K-feldspar, illite, kaolinite	130
DVI 11 powder	Montmorillonite (heated?), quartz, carbonates, lignite	(-) µFTIR
DV I 15 crust	Quartz, calcite, hematite, illite, albite (ordered), microcline, clinochlore	76
DVI 16 powder	Hematite, traces of goethite, maghemite, epothin resin	Ordered hematite (Raman spectroscopy)
DV I 16 crust	Quartz, hematite, calcite, plagioclase, kaolinite	130
DV I 17a powder	Quartz, calcite, illite, hematite, albite (ordered), stilbite, clinochlore	30

Tab. 2 – Phase composition and haematite crystallite size in powder and crust samples (Trąbska, 2015 ; Wesełucha-Birczyńska *et al.*, 2012).

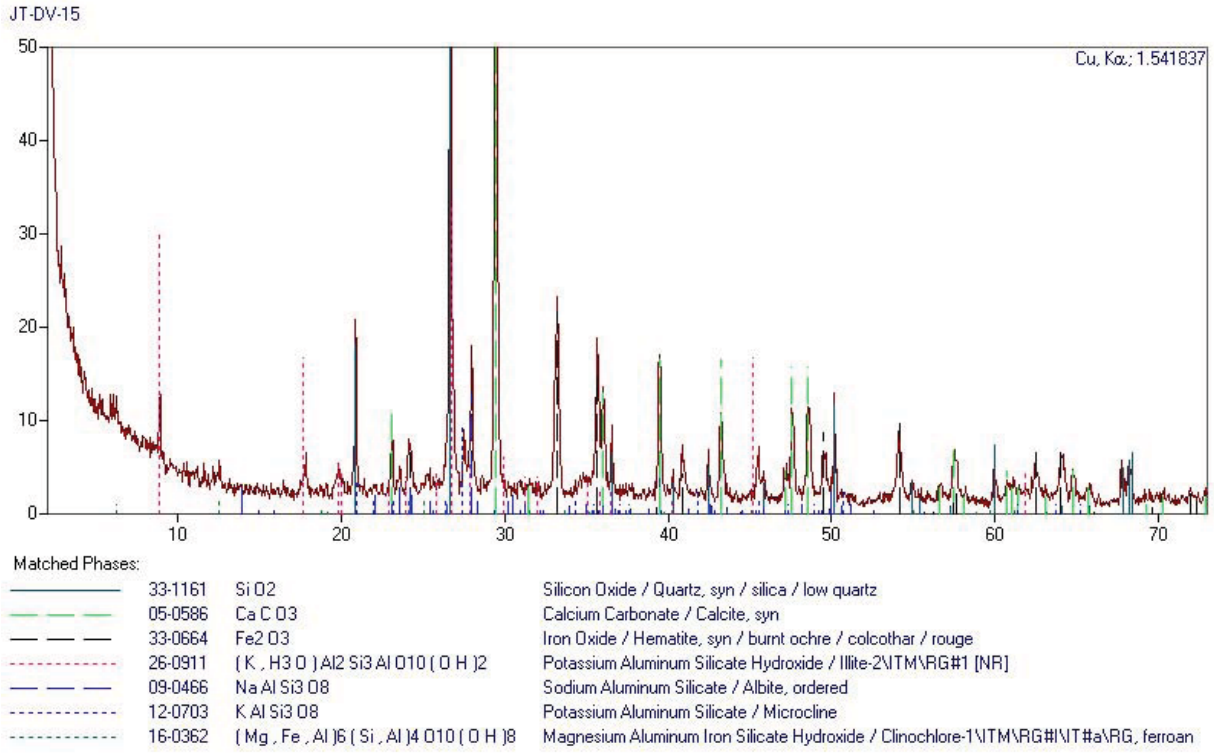


Fig. 13 – Diffractogram of the red crust from the grave DV3 (sample DVI 15).

4.2 Loose red lumps from the outside of the grave

Selected loose red lumps were analysed to test the petrographic features of the assemblage and to examine a likely relationship between raw ferruginous material dispersed in the site and the red substance applied for the burial ceremony (Tab. 3). Samples DVI 3 and DVI 19, due to very large hematite crystallite size as well as macro- (Tab. 1) and microstructure features (Fig. 14) most likely represent, respectively weathered and unweathered Lahn-Dill type rocks. DVI 3 is composed predominantly by hematite and quartz accompanied by illite and moderately ordered kaolinite (Fig. 20), in DVI 19 a rare phase $Ca_3SiO_5 \cdot 1{,}5H_2O$ was detected.

Some other samples (DVI 4, 7, 8, 10) represent cryptocrystalline, weathered iron oxides/hydroxide concentrations (Fig. 15, Fig. 17). Some are enriched in detritic grains of various size (Fig. 15). The red rock DVI 5 is a hematitised calcite (Fig. 16), the DVI 18a represents a ferruginised spongolite (Fig. 18).

Sample DV 13 bears features of sinter: it is composed of uneven grains of various shapes, very closely adhering one to another. Parental rock is hard to define (Fig. 19). Sanidine was detected by XRD (Fig. 21). Phosphorus was detected within sample 3, 7, 8, 13, 14 and sulfur in sample 13.

5 DISCUSSION

5.1 Marly silt with brick-red powders and red or cherry crust from the female grave DV3

Suggestion of Klima (1963: 149) that the Pleistocene marly silt explored from the grave pit may have been used as a fill-up seems very probable, but it must be confirmed by the comparison with a field reference material, not available in this project. Marly silt was, according to the results of our study, mixed with ashes consisting of a powdery bone, charcoal and red powder. Their co-occurrence suggests that they originate from

a layer (or several layers) of hearths. Indeed, on the site there were documented hearths with red layers, black charcoal and ash bone (e.g. Oliva, 2007). Bone dust from the fill-up is characterized by various shape, size (not exceeding 1 mm) and degree of burnout. These are typical features of bone ash observed also in other sites (Marquer *et al.*, 2010).

A substrate of the grey fill-up is composed basically of marly silt, which consists of calcite, detrital quartz, feldspars and single grains of glauconite. Macroscopically grey and compacted, it seems to be the same both in a host rock for red powder ash as well as co-occurring with red crusts. In all examined samples from the grave the mixture has occurred, although in the samples DVI 16 and 17b the content of ash is much more lower. Whether it is a rule or an accident, it must be examined on a larger set of samples.

Brick-red, cryptocrystalline powders are of aleuritic-pelitic fabric. They are rounded, of sharp or, less frequently, blurred boundaries. The

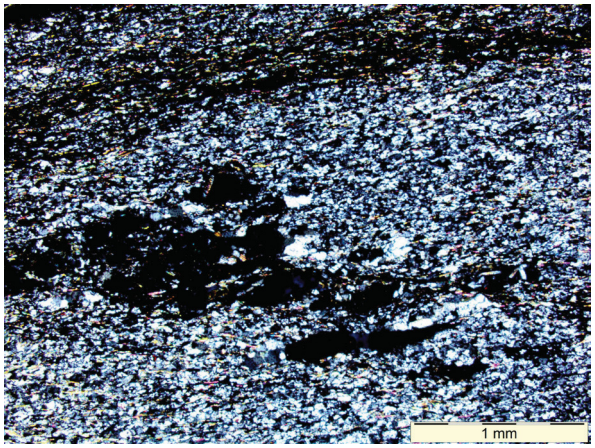


Fig. 14 – Micrograph of a weathered Lahn-Dill type raw material. Dark patches: weathered concentrations of macroscopically cherry hematite. White ones: crystalline hematite with quartz (DVI 3, X nicols).

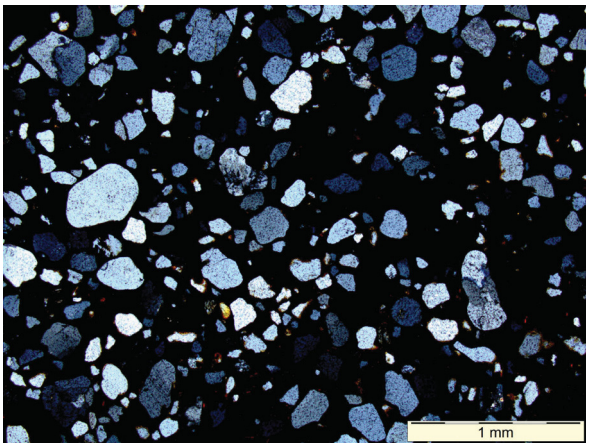


Fig. 15 – Micrograph of iron weathering crust with variably rounded detritic grains (DVI 4, X nicols).

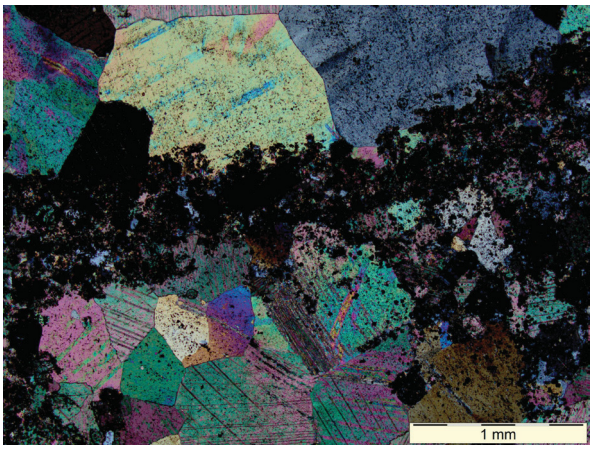


Fig. 16 – Coarse grained calcite with fuzzy patches of hematite (DVI 5, X nicols).

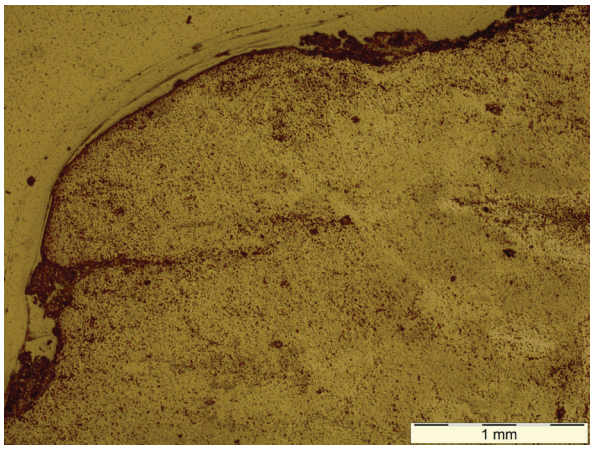


Fig. 17 – Extremely cryptocrystalline raw material, with Si, Al, K, Fe, sometimes Mg and P. Scarce platy crystals concentrate Fe (DVI 7, reflected light).

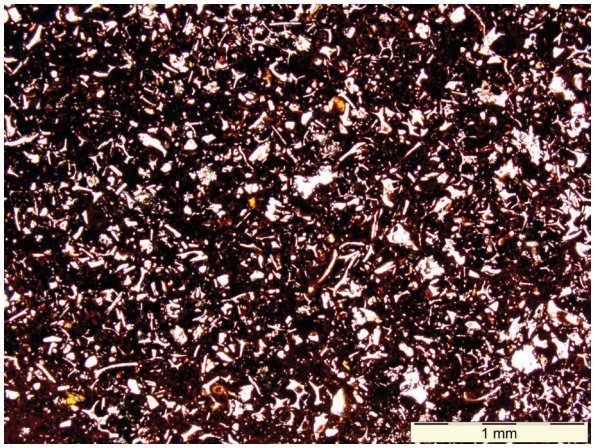


Fig. 18 – Fragment of spongolite: spicula are immersed in cryptocrystalline iron compounds (DVI 18a, // nicols).

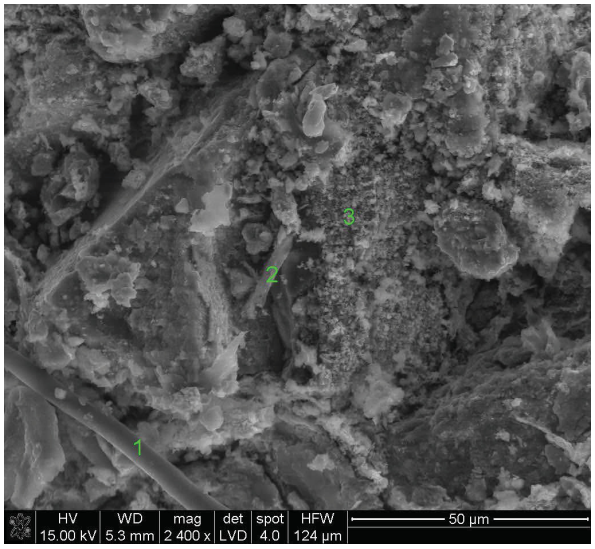


Fig. 19 – Probably burnt lump of iron-aluminosilicate raw material. 1: C, Fe with minor Si, Al, K, Ca; 2: Si with minor Al, Fe, K, Ca; 3: Fe with minor Si, Al (DVI 13).

latter are probably clusters of migrant iron compounds of natural origin (Todisko & Bhiry, 2008). In a powder with sharp borders (only they will be discussed further) stilbite was identified. It is the zeolite group mineral, stable between approx. 60 and 470°C at high vapor pressure (Bolewski & Manecki, 1993; Rykl & Pechar, 1985; www.iza-online.com). Here it can be anthropogenic. Stilbite was identified in the porcelaine-like sinters from cremation stacks (Trąbska, 2003). Anthropogeneity of this phase is also suggested by a lack of parageneses characteristic for this mineral (eg. Paulis *et al.*, 2011) (although in weathering crusts accompanying phases may not appear) and small crystallite size of accompanying hematite (30 nm). In volcanogenic rocks (a common stilbite environment, Bolewski & Manecki, 1993; Rykl & Pechar, 1985; www.iza-online.com) and their weathering crusts this parameter is much larger, 100 nm and more (Trąbska, 2015). Precursors of low crystalline hematite were likely aluminosilicates enriched in iron. They could come from loess used to extinguish or moderate fire, as suggested by one of us (MO). In some cases it might be a "pellet sand", loess with clasts generated by solifluction (Svoboda *et al.*, 1996). Nevertheless, a size of hematite crystallites in experimentally heated loess (900°C, 13h) reached only 9 nm and no pebble-like concentrations appeared (Trąbska & Gaweł, 2007). So that, also another variety of an aluminosilicate raw material should be considered.

In the chemical composition of red powders, beside aluminosilicates a small amount of sulfur (sample DVI 9, 16) and phosphorus (sample DVI 9) was observed. P and S may result from the breakdown of bones and the tissue, Statheropoulos *et al.*, 2005).

Examinations of hearths layers composition, not performed up to now, could reveal whether: (a) ash described by us corresponds to the ash from hearths, (b) hearths ash was directly applied to a funeral ceremony, or the ashes from the grave DV3 were deliberately prepared or processed, (c) stilbite is in hearths ashes regularly present, indicating their "wet" nature, or a presence of the mineral in the fill-up ash is a consequence of certain funeral rites?

Red crusts form uneven but not exceeding a few mm thick film. Their surface is generally strongly corrugated, only rarely smooth. Features of crusts (the fact that this is an incrustation penetrating deep into the marly silt) indicate that red ferruginous material could be used in a form of a suspension. Their contact with an uneven ground is either sharp and horizontal or (more often) infiltrative. It is difficult to determine a nature of their spatial relationship with the body of the deceased.

Sample	*Phase composition*	*Size of hematite crystallites [nm]*
DV I 3	Hematite, quartz, illite, kaolinite	300
DV I 8	Hematite, quartz, illite, goethite	9
DV I 13	Quartz, hematite, albite (ordered), sanidine (disordered)	25
DVI 14	Quartz, hematite, calcite, illite, albite (ordered), stilbite, dolomite, sanidine (disordered), Fe-clinochlore	104
DV I 19	Hematite, quartz, plagioclase, illite, chlorite, $Ca_3SiO_5 \cdot 1{,}5H_2O$ phase	>400

Tab. 3 – Phase composition of loose red lumps out of burial (Trąbska, 2015).

Mineral composition of red crusts is similar to red ash powder (except for the presence of stilbite), but a crystallite size of hematite differs (Tab. 2-3). Phase composition indicates the origin of the raw material from a weathering zone (or zones). Unfortunately, there are no indicative minerals that may precise a ground rock. Also hematite habit in the SEM image is non-specific. Calcium carbonate may result from the genesis of raw material (eg. terra rosa) or from contamination.

High crystallite size of hematite (130 nm, crust samples DVI 11, 16) is common in the mineral from volcanic, hydrothermal or metamorphic rocks and their weathering crusts (Trąbska, 2015). A sample of 76 nm hematite crystallite size (DVI 15) may have been collected from the above mentioned environments but also from certain varieties of terra rosa or variegated shales (Trąbska, 2015). The two latter occur in the immediate vicinity of the site and a distance of several kilometers (Cháb *et al.*, 2007).

Within red crusts and surrounding marly silt phosphorus and sulfur of low concentration (not higher than 2%) occur. Probably these elements come from the decay of the body of the dead woman (cf. comments above).

Coccoliths observed within red crusts and powders as well as within marly silt probably originate from Pleistocene marly silts and clays. However, an exact attribution must be performed by a specialist.

The marly ground was not subjected to high-temperature impact, as indicated by the intact coccoliths plates and features of fabrics. The fill-up was touched by bioturbation processes, which is proved by presence and shape of vesicles as well as presence of foecal pellets. Both, intentional action and criogenic processes may have influenced a chaotic arrangement of fabric (Todisco & Bhiry, 2008).

5.2 Loose lumps from the site outside of the grave DV3

Loose red lumps (without inventory numbers) are similar to each other macroscopically in terms of red color and cryptocrystallinity. The exceptions are dark-cherry weathering crust on a Lahn-Dill type rock (sample DVI 3), silvery, needle-like (due to crenulated hematite plates) sample DVI 19 and cherry, hard hematite-calcite rock (sample DVI 5). A larger part of materials collected by a Dolní Věstonice community is formed by macroscopically cryptocrystallinic concentrations of red iron oxides and hydroxides (DVI samples 4,7,10,13,14,18). Among them there is a ferruginous spongolite (sample DVI 18a). In a cryptocrystalline sample DVI 14 hematite is characterized by large crystallites (about 100 nm). It indicates an area of weathering of rocks with a large size crystallite hematites. Sanidine in this sample (Tab. 3) suggests a provenance from volcanogenic areas (Huang & Willie, 1974). The assemblage is therefore petrographically diversified, though raw materials could have come from not distant areas. Some of these materials occur and occurred in the site vicinity (terra rosa, spongolite, weathered iron oxides). Weathered volcanic rocks are more distant - about 50 km from the site. The most distant is the rock type Lahn-Dill, a minimum of about 150 km from the site (Cháb *et al.*, 2007).

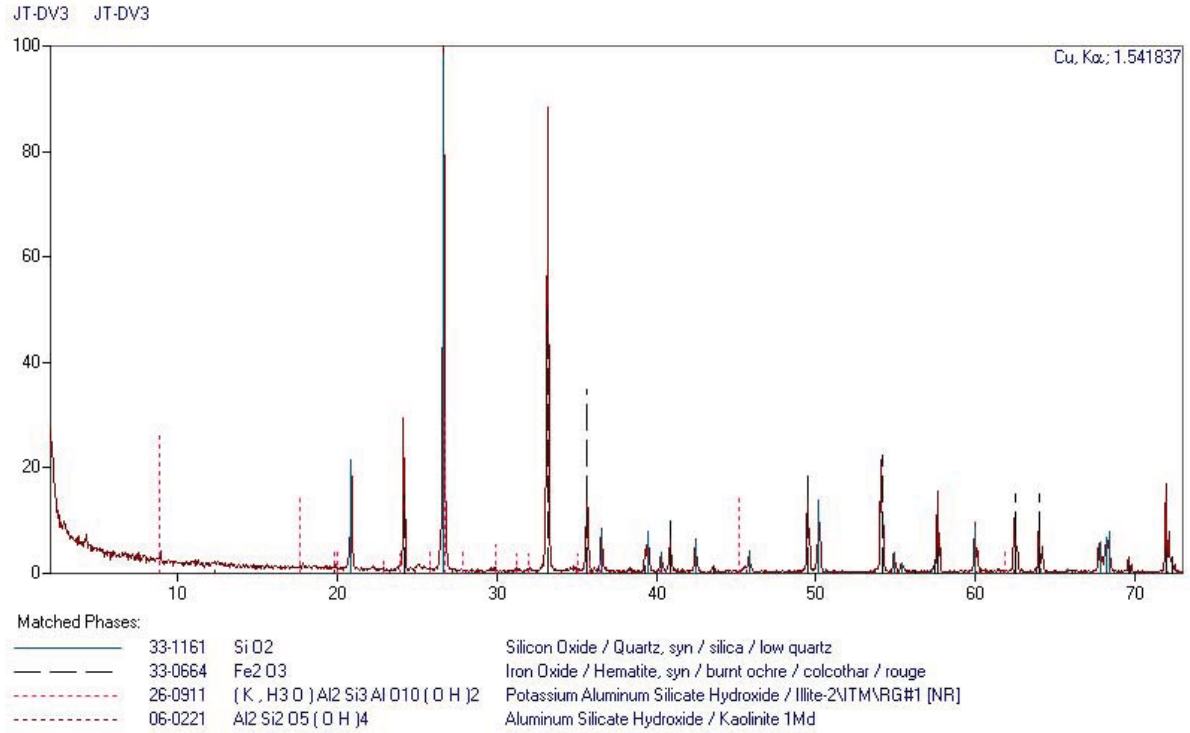


Fig. 20 – Diffractogram of the red lump, sample DVI 3 (Trąbska, 2015).

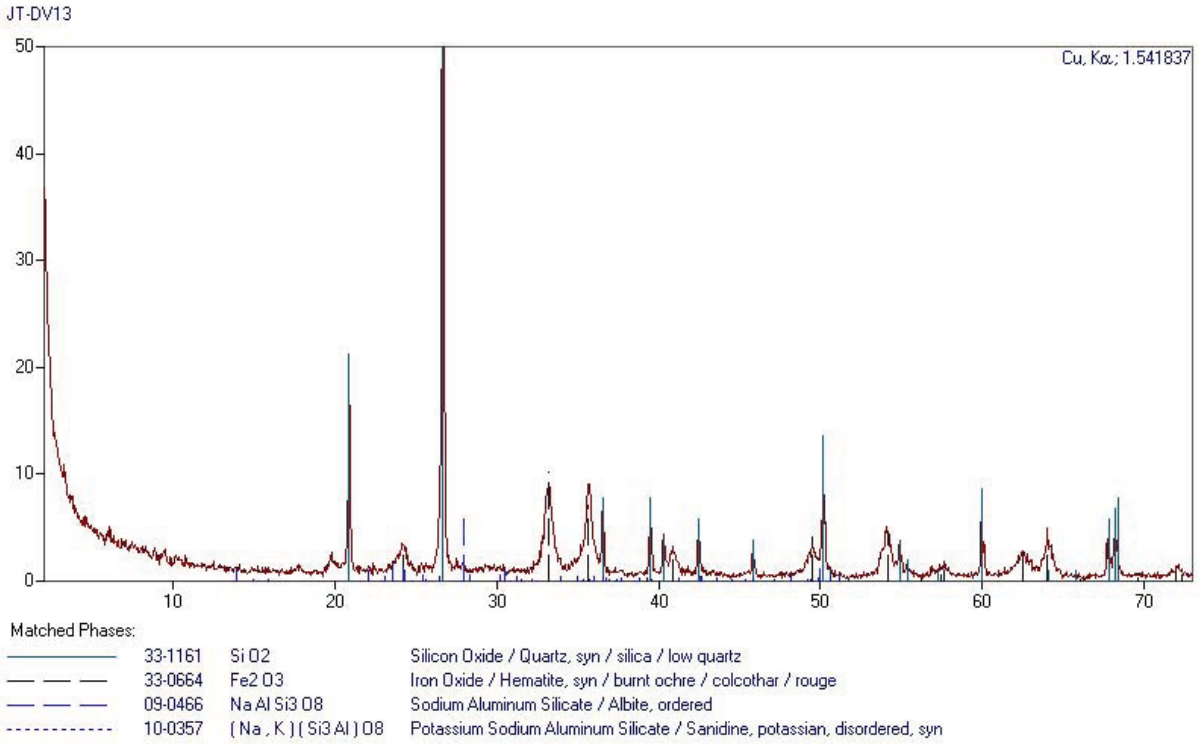


Fig. 21 – Diffractogram of the red lump, sample DVI 13 (Trąbska, 2015).

In a DVI 14 sample coccolith, morphologically similar to other ones, above mentioned, was detected. Its presence may be also a result of contamination by Pleistocene marly silt.

At least one of the examined samples was burnt (DVI 13): in the SEM image it resembles sinter. A size of hematite crystallites is here low: only 25 nm. Hematite crystallite size is significantly higher in sanidine-bearing rocks (Trąbska, 2015) but it decreases when the mineral is heated below 600°C (Cornell & Schwertmann, 2003: 108). TEM observations of hematite would allow to precise a nature of heating (Pomiès *et al.*, 1999). Low hematite crystallinity may be a result of heating but anthropic origin of sanidine cannot be excluded as well. Anthropic felspatoids (though not feldspars) were detected by one of us in porcelain-like sinters from cremation burials (Trąbska, 2003).

A rare phase [$Ca_3SiO_5(1.5H_2O)$], detected in a sample DVI 19 (Tab. 3), resembles hatrurite (www.mindat.org/hatrurite), a mineral occurring in, among others, calcareous scarn (which might precise the area of origin of the raw material) but on the other hand, the phase was identified in anthropogenic ashes (Filippidis & Georgakopoulos, 1992). However, macroscopically and under SEM image no heating evidences or ash presence could be proved.

Within all samples, except sample 5 DVI, phosphorus (DVI 3, 7, 8, 14) or sulfur (DVI 13) was observed. Unfortunately, a primary location of samples on the site is not known, so that no unambiguous explanations can be proposed.

Some of this (or similar) material could have been used for the funeral ceremony, both to prepare red powder and a suspension. No specific raw materials connected with the burial context were identified.

5.3 Reconstruction of the burial ceremony in the aspect of the use of red raw materials

The bottom of the grave could have been prepared as follows: after digging the burial niche substrate has been (or was) partly moistened and plastified at least in some places. Moisture could be intentional, it could also be caused by rain. Pulverised unburnt terra rosa or another iron-bearing, red aluminosilicate, would be mixed with a liquid (probably water) and spilled over the corpse and over the grave floor. Then ash from hearth(s), containing red powders, charcoal, bone ash, would be mixed with marly silt exploited from the grave niche. This substance would be used to cover the corpse and mammoth pelvis.

6 CONCLUSIONS

Two different red material concentrations occur in the context of the female grave DV3: (a) red powder dispersed in marly silt of a fill-up, together with charcoal and variably burnt bone particles, (b) red crusts adhering to marly underneath. Marly substrate is the same in the both cases. The two red raw materials differ in hematite crystallite size and probably a way of processing: the suspension material was not heated. Red powders may originate from the ashes of the neighbouring hearth(s). Thorough examination of layers of hearth(s) should be conducted to explain their exact nature and answer a question whether they vary from an ash from the burial context. Red powders are natural mixtures of aluminosilicates and iron compounds, i.e. their raw materials may have been iron crusts, limonite, terra rosa, variegated shale or loessy silt. It is possible that some (less numerous) red concentrations appeared due to iron migration. Red-cherry ferruginous crust likely covered some parts of the floor surface or parts of female body. Red material was applied probably in a form of suspension. The raw materials of the loose lumps may orginate from various sources and distances: they may be local, from about 50 km, and even about 150 km radius.

Bibliography

ABSOLON K., 1938a. Die Erforschung der diluvialen Mammut-jäger-Station von Unter-Wisternitz an den Pollauer Bergen in Mähren. Arbeitsbericht über das erste Jahr 1924, *Palaeoethnologische Serie*, **5** (7). Brünn: Verlag Barvic & Novotny.

ABSOLON K., 1938b. Die Erforschung der diluvialen Mammut-jäger-Station von Unter-Wisternitz an den Pollauer Bergen in Mähren. Arbeitsbericht über das zweite Jahr 1925, *Palaeoethnologische Serie,* **6** (9). Brünn: Verlag Barvic & Novotny.

AUDOIUN F. & PLISSON H., 1982. Les ocres et leurs témoins au Paléolithique en France: enquête et expériences sur leur validité archéologique. *Cahiers du Centre de Recherches Préhistoriques*, **8** : 33-80.

BIELY A., BUDAY T., DUDEK A., FUSÁN O., CHLUPÁČ I., KAISER T., KODYM O., KOPECKY L., KUTHAN M., MALECHA A., MALKOVSKY M., MATĚJKA A., PEŠEK J., SENEŠ J., SOUKUP J., SVOBODA J., TÁSLER R. & ZOUBEK V., 1966. *Geological Map of Czechoslovakia, 1:1 000 000 000*. Praha: Česká Geologicka Služba.

BOLEWSKI A. & MANECKI A., 1993. *Mineralogia szczegółowa* (Detailed Mineralogy, in Polish). Warszawa: Wydawnictwa Geologiczne.

CHÁB J., STRÁNIK Z. & ELIÁS M. (ed.), 2007. *Geologická Mapa České Republiky*. Praha: Česká Geologicka Služba.

CORNELL R. M. & SCHWERTMANN U., 2003. *The Iron Oxides. Structure, Properties, Reactions, Occurrences and Uses*. Weinheim: Wiley-VCH.

DIEZ G. M. & VINAGRE A. T., 2005. Mineral dyes. In: SVOBODA J. (ed.), *Pavlov I Southest. A Window into the Gravettian Lifestyle*. Brno: The Academy of Sciences of the Czech Republic: 167-186.

FILIPPIDIS A. & GEORGAKOPOULOS A., 1992. Mineralogical and chemical investigations of fly ash from the Main and Northern lignite fields in Ptolemais, Greece. *Fuel*, **71** (4): 373-376.

HENSHILWOOD C. S., D'ERRICO F., YATES R., JACOBS Z., TRIBOLO C., DULLER G. A. T., MERCIER N., SEALY J. C., VALLADAS H., WATTS I. & WINTLE A., 200. Emergence of Modern Human Behavior: Middle Stone Age Engravings from South Africa. *Science*, **295**: 1278.

HUANG W. L. & WYLLIE P. J., 1974. Melting relations of muscovite with quartz and sanidine in the K2O-Al2O-SiO2-H2O system to 30 kilobars and an outline of paragonite melting relations. *American Journal of Science*, **274**: 378-395.

JERCHER M., PRING A., JONES P. G. & RAVEL M. D., 1998. Rietveld X-Ray diffraction and X-Ray fluorescence analysis of Australia Aboriginal ochres. *Archaeometry*, **40** (2).

KLÍMA B., 1963. *Dolní Věstonice. Výzkum tábořiště lovců mamutů v letech 1949-1952*. Praha: Československa akademie věd.

KLÍMA B., 1983. *Dolní Věstonice, tábořiště lovců mamutů*. Praha: Academia.

KLÍMA B., 1995. *Dolní Věstonice II. Ein Mammutjägerrastplatz und seine Bestattungen*. The Dolní Věstonice studies. Liège: Études et Recherches Archéologiques de l'Université de Liège (ERAUL). Liège, **73**: 183 p.

KLUG H. P. & ALEXANDER L. E., 1954. *X-ray diffraction procedures for polycrystalline and amorphous materials*. London: J. Wiley and Sons Inc., New York: Chapman and Hall, Ltd.

KOHÚT M., 2006. Do we have a remnant of the hanseatic Terrane and/or Rheno-Hercynian Ocean in the Western Carpathians? A case study from the Devonian of the Považsky Inovec Mts. *GeoLines*, **20**: 67-68.

LEXA J., BAČO P., CHOVAN M., PETRO. M. & ROJKOVIČ I., TREGER, A.M., 2004. *Metallogenetic Map of Slovakia, 1:500 000*. Bratislava: Štátny geologický ústav.

MARQUER L., OTTO T., NESPOULET R. & CHIOTTI L., 2010. A new approach to study the fuel used in hearths by hunter-gatherers at the Upper Palaeolithic site of Abri Pataud (Dordogne, France). *Journal of Archaeological Science*, **37**: 2735-2746.

OLIVA M., 2007. *Gravettien na Moravě*. Disertationes archaeologicae bruneneses/pragensque 1. Praha- Brno: Masaryk University-Charles University.

OLIVA M., 2014. *Dolní Věstonice I (1922-1942) Hans Freising - Karel Absolon - Assien Bohmers.* Brno: Moravské Zemské Muzeum.

PAULIŠ P., HEŘMÁNEK J., JEBAVÁ I. & ZAHRADNIČEk L., 2011. Stilbite-Ca z amfibolitového kamenolomu Markovice u Čáslavi (Česká Republika). *Bulletin minerologicko-petrologického oddělení Národniho muzea v Praze*, **19**: 52-55.

POMIÈS M.-P., MENU M. & VIGNAUD C., 1999. Red palaeolithic pigments: natural hematite or heated goethite? *Archaeometry,* **41**: 275-285.

PETRU S., 2006. Red, black or white? The dawn of colour symbolism. *Documenta Praehistorica,* XXXIII, 1-6.

PŘICHYSTAL A., 2009. *Kamenné suroviny v pravěku. Východní části střední Evropy*. Brno: Masaryk University.

ROEBROEKS W., SIERK M. J., NIELSEN T. K., DE LOECKER D., PARES J. M., ARPS C. A. S. & MUCHER H. J., 2012. Use of red ochre by early Neandertals. *PNAS*, **7**: 1889-1894.

ROSSO D. E., D'ERICCO F. & ZILHAO J., 2013. Stratigraphic and spatial distribution of ochre and ochre processing tools at Porc Epic Cave, Dire Dawa, Ethiopia. *Quarternary International*, **343**: 85-99.

RYKL D. & PECHAR F., 1985. Thermal decomposition of the natural zeolite stilbite. *Zeolites*, **5** (6): 389-392.

SOFFER O. & VANDIVER P., 1997. The ceramics from Pavlov I – 1957 excavation. In: *Pavlov I northwest*. Brno: Academy of Sciences of the Czech Republic: 383-401.

SOFFER O. & VANDIVER P., 2005. Ceramic fragments. In: *Pavlov I southeast. A Window into the Gravettian Lifestyles*. Brno: Academy of Sciences of the Czech Republic, Institute of Archaeology at Brno, Polish Academy of Sciences, Institute of Systematics and Evolution of Animals: 415-431.

STATHEROPOULOS M., SPILIOPOULOU C. & AGAPIOU A., 2005. A study of volatile organic compounds evolved from the decaying human body. *Forensic Science International*, 153: 147-155.

SVOBODA J., LOŽEK V. & VLČEK E., 1996. *Hunters between East and West. The Paleolithic of Moravia*. New York and London: Plenum Press: 307.

SVOBODA J., HAVLÍČEK P., LOŽEK V., MACOUN J., MUSIL R., PŘIHYSTAL A., SVOBODOVÁ H. & VLČEK E., 2002. Paleolit Moravy a Slezska. *Dolni Vestonice Studies*, **8**.

SVOBODA J., KRÁLÍK M., ČULÍKOVÁ V., HLADILOVÁ S., NOVÁK M., NYVLTOVÁ-FIŠÁKOVÁ M., NYVLT D. & ZELINKOVÁ M., 2009. Pavlov VI: an Upper Palaeolithic living unit. *Antiquity*, **83**: 282-295.

TODISCO D. & BHIRY N., 2008. Micromorphology of periglacial sediments from the Tayara site, Qirkitaq Island, Nunavik (Canada). *Catena*, **76**: 1-21.

TRĄBSKA J.,2003. Pęcherzykowata substancja z grobów ciałopalnych z cmentarzyska z okresu wpływów rzymskich w Chmielowie Piaskowym (Porous porcelanie-like substance from cremation burials, Roman Period, Chmielów Piaskowy site). *Materiały Archeologiczne,* **XXXIV** (summary in German).

TRĄBSKA J., 2015. *Mikrostrukturalne przesłanki do oceny pochodzenia i przetworzenia czerwonych surowców żelazistych ("ochr") na przykładzie wybranych stanowisk górno paleolitycznych* (Microstructural evidences to assess the origin and processing of the raw materials of the red ferruginous artifacts („ocher") based on selected Upper Paleolithic sites. Rzeszów: Wydawnictwo Uniwersytetu Rzeszowskiego.

TRĄBSKA J. & GAWEŁ A., 2007. Microstructural features of powdered hematite as a promising factor in provenance studies. *Sprawozdania Archeologiczne (Archaeological Reports),* **59**: 41-48.

TYRAČEK J., 2005. Geologický a geomorfologický vývoj širšího okolí lokality Bečov IV. In: FRIDRICH J. & SYKOROVÁ I., *Bečov IV – sídelní areál středopaleolitického človeka v severozápadních Čechach*. Praha: The Academy of Sciences of the Czech Republic: 141-156.

VALOCH K., 1996. Le Paléolithique en Tchéquie et Slovaquie. *Collection L'Homme des Origines, Série „Préhistoire d'Europe" **3***, Grenoble: Édition Jérôme Million.

VANDIVER P., 1997. Pavlov I pigments and their processing. *In*: KLIMA B., SVOBODA J. (éds), Škrdla P. (assistant ed.), *Pavlov I - Northwest. The Upper Palaeolithic burial and its settlement context*. Brno: The Academy of Sciences of the Czech Republic: 373-381.

VANDIVER P., SOFFER O., KLIMA B. & SVOBODA J., 1989. The Origins of Ceramic Technology at Dolni Vestonice, Czechoslovakia. *Science*, **246** (4933): 1002-1008.

WADLEY L., 2005. Putting ochre to the test: replication studies of adhesives that may have been used for hafting tools in the Middle Stone Age. *Journal of Human Evolution,* **49**: 587-601.

WESEŁUCHA-BIRCZYŃSKA A., TRĄBSKA J. & OLIVA M., 2012. Composition of a floor from an Upper Palaeolithic skeletal grave – a case from Dolní Věstonice (Moravia, Czechia, Central Europe). *Vibrational Spectroscopy,* **60**: 129-132.

WRESCHNER E., 1980. Red Ochre and Human Evo-

lution: A Case for Discussion. *Current Anthropology*, **21** (5).

XRAYAN, 2007. *Powder Diffractometry Data Handling System*, version 4.0.5.

http://www.geology.cz/app/ciselniky/lokalizace/show_map.php?mapa=g50&y=599183&x=1194957&r=10000&s=1&legselect=0 (access 10.02.2015).

http://www.iza-online.org/natural/Datasheets/Stilbite/Stilbite.html (access 14.03.2015).

http://www.mindat/org/hatrurite (access 14.03.2015).

Authors address:

Joanna TRĄBSKA
University of Rzeszow,
Institute of Archaeology
Moniuszki 10 str,r
35-015 Rzeszow (Poland)
joanna.trabska@archeologia.rzeszow.pl

Martin OLIVA
Anthropos Institute
Zelny Trh 6
659 37 Brno (Czech Republic)
moliva@mzm.cz

Adam GAWEŁ
Barbara TRYBALSKA
University of Science and Technology
Mickiewicza 30 A
30-059 Kraków (Poland)
agawel@uci.agh.edu.pl
barbara.trybalska@wp.pl

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 179-186

Use and distribution of colourants in Western LBK sites

Julia KITZIG & Britta RAMMINGER

Résumé

La présence de pierres semi-précieuses sur les sites d'habitat et de sépultures rubanés a fait l'objet d'une étude dans le cadre d'un mémoire de Master qui explore la question de savoir si l'utilisation des pierres semi-précieuses au néolithique ancien a été un phénomène autant régional que chronologique. Pour réaliser cette enquête, 168 sites d'habitat et 41 sites de sépultures attribués à la culture rubanée ont été observés dans la région germanophone, ainsi que dans le Nord de la France et les pays du Benelux. Par rapport aux sépultures, l'habitat rubané, lui, renfermait plus de pierres semi-précieuses. L'étude de la répartition des pierres a révélé une plus forte concentration et une utilisation plus intense sur les sites se trouvant à l'ouest la zone de fouille par rapport aux sites se trouvant à l'est.

Alors que la goethite est exclusivement associée à l'habitat rubané, les minéraux tels que l'hématite, la limonite, le graphite, le manganèse et autres roches sédimentaires sont tout aussi présents sur les lieux d'habitat que dans les sépultures.

***Mots-cles** : Néolithique ancien, diversité de colorants, cimetières, habitats, étude comparative.*

Keywords: Early Neolithic, colourant diversity, cemeteries, settlements, comparative study.

1. INTRODUCTION

Haematite and other colouring minerals are a regular part in Linear Pottery Culture (LBK) inventories, but synthetic publications of these artefacts are quite rare until now. A recently published master's thesis at the University of Hamburg examines the occurrence of colouring stones in the settlement and burial contexts of the Western Pottery Culture (Kitzig, 2013). The thesis paper considered the question whether there are regional emphases in the usage of colourants in Early Neolithic times, attributed to different traditions of colouring elements or to differences in access to resources.

While ceramics, rock and flint artefacts had functional significance in Early Neolithic life, colouring stones were primarily decorative objects. This implies that the observed colour scattering in graves could have happened for aesthetic reasons. This provides the opportunity to look at the life of Early Neolithic people from a different, creative perspective. The question of the significance of colourants can be investigated by showing their distribution.

The group of colouring stones is made up of those minerals and ores found in processed and unprocessed forms in LBK settlements and burials. In total 37 different raw materials are mentioned in the primary publications[1] for the recorded settlements and cemeteries. They have been grouped into the mineral classes haematite, goethite, limonite, graphite, manganese and other metalliferous sediments.

2. USE OF COLOURING STONES IN THE LINEAR POTTERY CULTURE

During the Early Neolithic, colourants of different shapes and colours were used in everyday life as well as in funeral rites. Depending on the purpose of use they were utilised as whole pieces, crushed or pulverized. Pulverized and in combination with binders such as fat, colour pigments could be used for the decoration of ceramics (e.g. Löhr & Zimmermann, 1977; Ramminger, 2003; Ramminger, 2007). Such ceramic incrustations are present in white and red, with the former dominating in the Linear Pottery spectrum (Meier-Arendt, 1966). In addition to the creative component, colouring stones could also be used in the manufacture of ceramic vessels (e.g. Kloos, 1997; Clad-

1 Information on the raw materials used is taken from the primary publications; own rock identifications were not carried out.

ders, 1997; Fröhlich, 2006; Mecking *et al.*, 2012). Recent studies on a series of Linear Pottery shards with potential haematite tempering have shown that this is most likely not an intentionally added tempering component, but rather natural iron concretions in the raw clay (Ramminger *et al.*, 2013). The use of graphite for tempering is also discussed, based on findings from the Austrian settlement of Rosenburg (Götzinger & Lenneis, 2009; Lenneis, 2009) and settlements of Bavaria (Brink-Kloke 1990: 443, Anm. 60; Prechtl, 2011). It was also utilised in the earliest LBK for the decorations on the outer vessel wall (Lenneis, 1977; Pieler, 2004; Götzinger & Lenneis, 2009).

Alongside the ornamentation of ceramics, red plaster may also have played a role in Early Neolithic wall paintings (Zimmermann, 1988). The usage of colouring stones or coloured powder for tanning and dyeing leather has been discussed (e.g. Kegler-Graiewski, 2007: 412; Krahn, 2006: 493). Colourants were even used for making jewellery. Several polished pieces with perforation suggest a function as pendants (Ramminger, 2007: 326; Kitzig, 2013: 7).

Ochre scatterings, alongside prepared colour stones and raw pieces, are known from Early Neolithic burial rites as was also the case for Mesolithic grave contexts (e.g. Sachs, 1999). The function and significance of these variations of ochre use may be symbolic. However, it could also have had a preservative effect (Schmidgen-Hager, 1993: 175). In addition, red powder was given as a grave good inside a vessel (Richter, 1969: 170; Schmidgen-Hager, 1993: 124), while other vessels were highlighted by scattering ochre (Modderman, 1970: 59; Schmidgen-Hager, 1993: 132).

The colouring stones were prepared for their intended purpose through different processes, aided by various devices. Across LBK settlements, two kinds of objects with corresponding colour traces are represented: milling/grinding stones and hammer stones, the former being recorded even from grave contexts (Kitzig, 2013: 9).

3. COLOURANTS FROM LINEAR POTTERY CULTURE CEMETERIES

Colouring stones are known from the majority of cemeteries in the Western Linear Pottery Culture. Only 14 (34 %) of the examined 41 cemeteries do not have any colour residues. The distribution of burial sites did not show any noteworthy regionalization; rather, colouring stones occur in graves across the whole research area (Fig. 1). However, a lower incidence of cemeteries with colourants is recorded in the east compared to the west. In the east, there are 12 cemeteries with colouring stones against nine cemeteries without such objects. In contrast, in the western area the cemeteries with colourants dominate. 15 out of 20 cemeteries contained such items (Kitzig, 2013: 18). Regional differences are even stronger concerning the relative number of graves with colouring stones on burial sites. The percentage frequency of graves with colourants in the cemeteries of Rhineland-Palatinate, Baden-Württemberg and Bavaria varies from 3.7 % to 13.3 %. The exception is the site of Worms "Adler Berg" with 50 % (Kahlke, 1954: 97), due to low numbers of graves. In the north-eastern study area, the dead were given colourants even more frequently than at other sites. Whereas only 2.7 % of the graves in the cemetery of Halberstadt "Sonntagsfeld" contained colourants (Fritsch *et al.*, 2008: 132), between 10.3 % and 56 % of graves from other cemeteries in that area contained such items. With a share of 38.9 %, the burial ground of Kleinhadersdorf (Lebzelter & Zimmermann, 1936: 1) in Austria has a similarly high value. It is the only LBK burial site in Austria which had colouring stones in its inventory. At Niedermerz (28 %) (Schmidgen-Hager, 1993) and Elsloo (20 %) (Modderman, 1970) in the north-western part of the study area, almost every fourth or fifth grave has colourants. The highest frequency of colourants is in the south-western study area, with such objects found in six of the nine French burials grounds studied, in four cases in the form of colour scatterings only. This is in accordance to the study of Jeunesse (Jeunesse, 1997). At Rixheim, at least 88.9 % of the dead had colouring stones. While respectively 18 % and 20 % of graves from the sites of Hoenheim-Souffelweyersheim and Quatzenheim have colouring stones, Wettoldsheim is the only burial site without colourants in France.

3.1. Colour scattering

In addition to finds of colouring stones in form of fragments there are graves with colour scatterings, either over the entire grave or across

parts thereof. Colour scattering is documented in 14 of the 41 cemeteries. Consequently every third cemetery comprises graves with colour scattering. At six of these sites, only scatterings were present (Kitzig, 2013: 20). Four of the burial sites with exclusively scattered ochre are located west of the Rhine, in modern-day France (Fig. 1). In addition, the burial grounds of Mangolding (Nieszery, 1995: 161) and Halberstadt "Sonntagsfeld" (Fritsch *et al.*, 2008: 81) show analogous residues. The remaining eight cemeteries have both colour scatterings and colouring stones in their inventories and are distributed throughout the complete study area. Overall, there is a preference for the use of colour scatterings in the western study area located (Kitzig, 2013: 20). With the exception of the colour scatterings at Oberschaeffolsheim-Itterheim (Kahlke, 1954: 102) and Osthofen-Breuschwickersheim (Kahlke, 1954: 102) in Alsace, where the exact material is unknown, ochre and haematite were used for the scattering (Kitzig, 2013: 21).

3.2. Raw materials

The spectrum of colourants on each cemetery ranges from one to three raw materials (Kitzig, 2013: 23). The most widely used is haematite, which is present throughout almost the entire study area. Only in Southern Alsace and Picardy, where all colour scatterings are made using ochre or an unknown black material, is haematite not scientifically proven. It is usually found alone or in combination with the raw materials graphite, manganese, ochre and other metalliferous sediments. Ochre is known especially from the French archaeological sites (Kitzig. 2013: 23-24).

Together, the grey to black materials manganese and graphite have a wide distribution. Except for the western regions – the Rhineland, the Netherlands and France – manganese or graphite were documented in all areas; however, a division of the study area is observed. The boundary runs roughly from Berlin in the northeast to Munich

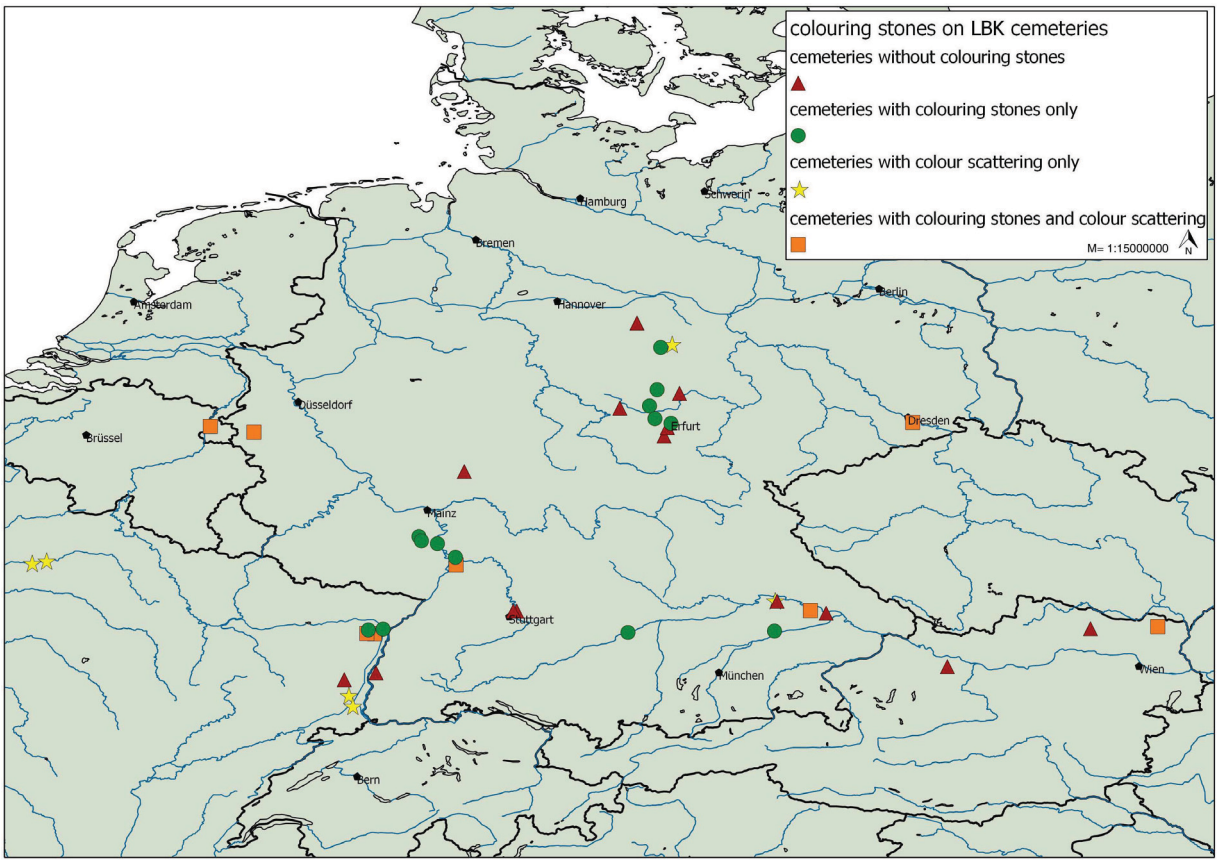


Fig 1 – LBK burial grounds with and without colouring stones and colour scatterings (Kitzig, 2013).

in the southeast. While cemeteries west of this line mainly use manganese as "dark" colouring stones, graphite is known almost exclusively from the eastern sites. Although no obvious regional groups were identified in the use of red-brown or gray-black colouring materials, the preferences postulated by Nieszery (1995), according to whom graphite was preferentially used in the East, can be already covered.

4. Colouring stones from Linear Pottery settlements

168 settlements of the Linear Pottery culture were considered in this study[2]. 121 (72 %) of them have colourants in their finds inventory. This comprises both processed and raw colouring stones, as well as colour residues on stone tools. In the case of the remaining 47 sites (28 %) there were no finds indicating the response of colouring stones (Kitzig, 2013: 27). The geographical distribution of all LBK sites with and without colourants is shown on figure 2. Strong differences in the ratio between settlements with and those without colourants can be identified. Whilst the sites in the northern study area yielded no colourants, all sites in North Hesse did. A strong dominance of settlements with colouring stones is also observed in Southern Hesse. There are 44 settlements with colourants versus seven settlements without such finds. The use of colourants in the Linear Pottery sites of Rhineland-Palatinate and Luxembourg is also well marked. Whilst the excavations in Trier-Euren (Schmidgen-Hager, 2003) revealed no colourants, the other ten settlements in this region all have such items.

An ambiguous ratio in terms of colouring stone finds can be seen in the Early Neolithic settlements of the Rhineland and the neighbouring

2 For this study well excavated and well publicized sites were included only and exceptionally some settlements that are known by surface finds for Hesse.

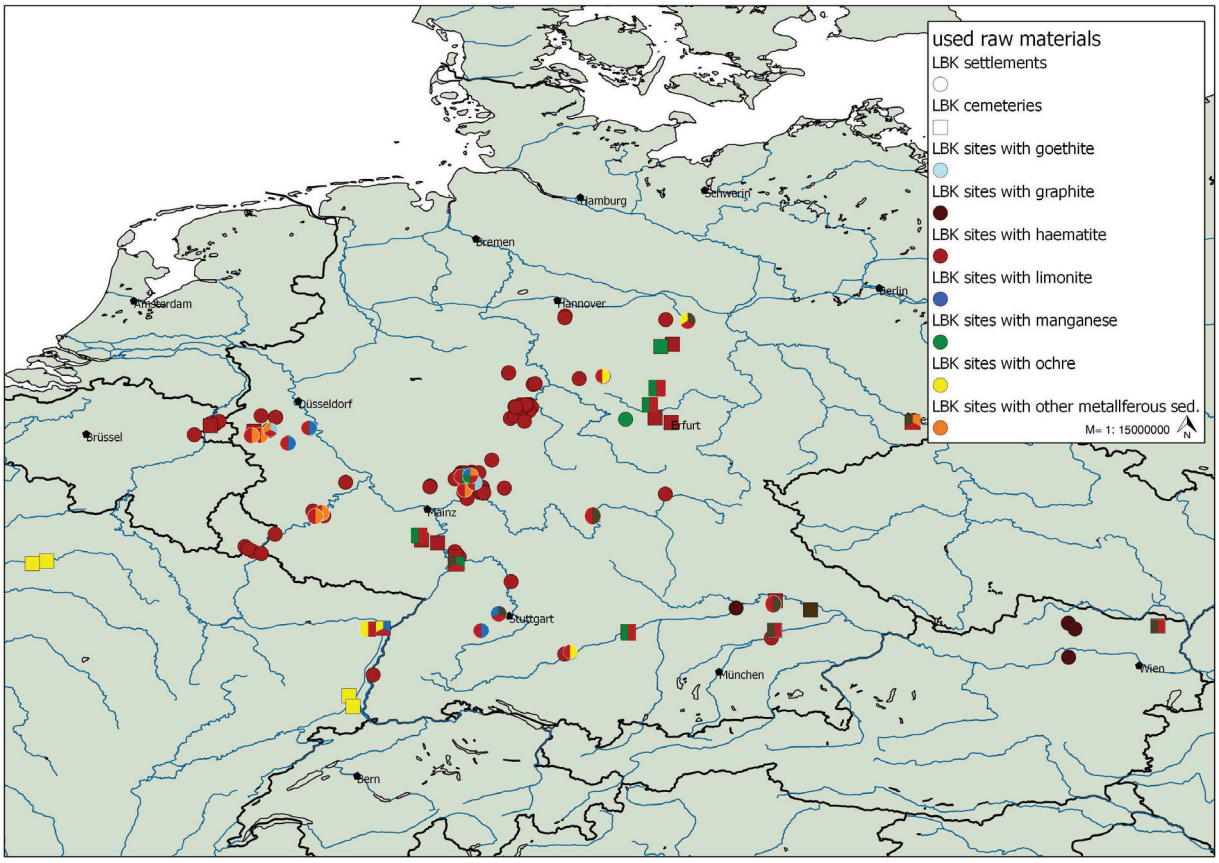


Fig 2 – On LBK sites used raw materials (Kitzig, 2013).

sites in the Netherlands and Belgium. Nearly two thirds of the 35 main sites had colouring stones. However, in the other study areas - South-East Germany and Austria -, there is a balance between settlements with and without colouring stones (Kitzig, 2013: 35).

Regional differences are also indicated by the raw material supply. Settlements in the western study area had more than three colouring stones per house on average. In contrast, the eastern sites have fewer than three colouring stones per house on average. Collectively, the settlements in Hesse were the best supplied with up to six colouring stones per house (Kitzig, 2013: 78).

4.1. Raw materials

Identifications of the raw material were carried out for 118 of the 121 settlements with colouring stone. The materials haematite, graphite and manganese are the only colour raw materials that were documented, either alone or in combination with other minerals. In settlements, ochre, which in burial contexts can also occur on its own, is known exclusively in combination with other raw materials. In graves, ochre occurs pulverized as well as in pieces, while in settlements this material is only available as whole nodules. The haematite weathering products goethite and limonite are also exclusively found in connection with other raw materials. Goethite is always associated with haematite on four settlement sites. At Behringen, Wartburgkreis (Lörler, 2006: 122), manganese is the only raw material identified; in two other sites it occurs in combination with other colouring materials. Graphite has also been observed either individually or in combination with other raw materials (Kitzig, 2013: 35-36).

Haematite is documented from 113 (95.8 %) of the 118 sites with known colouring stones. As a consequence, this mineral is by far the most frequently attested material in the study area. A haematite mining site is known from Bad Sulzburg in the Black Forest (Goldberg *et al.*, 1998)

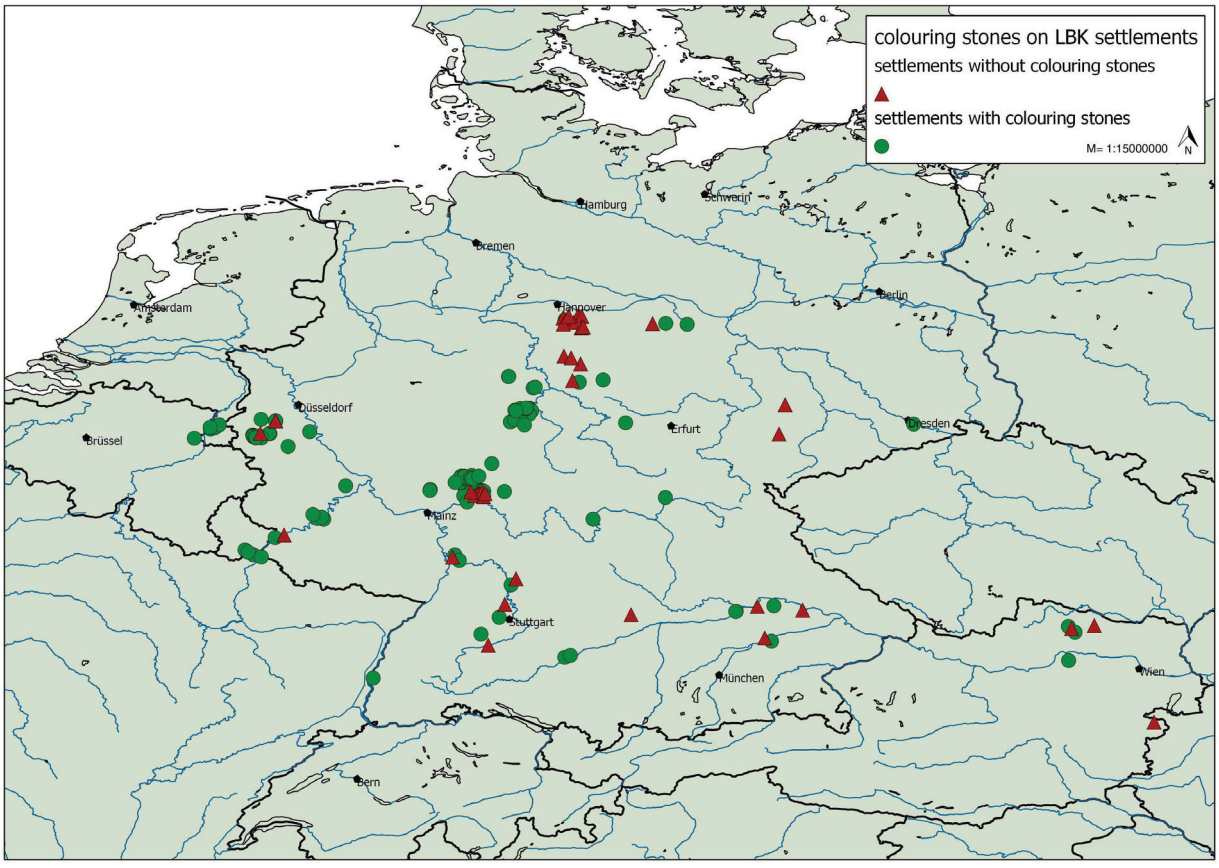


Fig 3 – LBK settlements with and without colouring stones (Kitzig, 2013).

and additional sources probably existed in the Lahn-Dill area and Hesse (Schade, 2004; Ramminger, 2007). In contrast to the places of mining in Hesse to the mining site Bad Sulzburg approval of settlements are missing who can be placed unambiguously in connection with the mining site. Although the material from the 38 km distant site of Bischoffingen Kaiserstuhl is visually similar to the material from Bad Sulzburg, only future geochemical studies will be able to clarify whether the documented haematite does in fact come from this mine (Hoeper *et al.*, 2011: 74). In comparison to haematite, the use of other materials appears negligible. All remaining materials are represented less than ten times in the study area, so a general preference for haematite is evident.

Due to its popularity, it is not surprising that haematite is geographically widespread in the study area. With the exception of Austria, this mineral has been used in all regions of the western Linear Pottery culture. It is the only material which enjoys a comprehensive distribution, except for the extreme southeast. The Linear Pottery sites of the Netherlands, Belgium and Luxembourg invariably use haematite as a colouring stone. In addition, the use of graphite in Early Neolithic settlements reveals a pattern. Except for the graphite finds from Eilsleben, Kr. Wanzleben (Kaufmann, 1981: 185) in Saxony-Anhalt, this material has been exclusively observed on settlements in southern Germany and in Austria.

5. CONCLUSION

Throughout the study area, colouring stones are documented in settlements as well as burial grounds. There are regional differences. In the southwest, for instance, the Mesolithic burial ritual (e.g. Jeunesse, 1997) of ochre scattering continues in the Early Neolithic, as illustrated by the high frequency of graves with this kind of treatment. East of the Rhine, however, colour scatterings in the context of burials are an exception. It is possible that the archaeologically documented materials correspond to those available in the environs of the sites. If different raw materials of similar colour occurred around the same archaeological site, the different quality of the materials could have led to a preference for specific sources. The regional differences in the frequency of different colouring stones could be attributed to differential access to existing sources, an aspect which remains to be discussed, in particular for the haematite-rich regions in Hesse. Furthermore, it must be taken into account that the consumption of colouring stones was more important than their preservation. Therefore, it is impossible to exclude that sites with a small amount of preserved colourants would actually have been as well supplied as those with larger assemblages. Conversely, it is also possible that sites with more finds in fact specialized in the mining and processing of colouring stones and supplied other settlements. This could indicate possible regional and supra-regional trade connections. Equally, this could have evened out regional supply shortages. To answer the exciting question of an exchange of colouring stones, a comprehensive investigation is required. For this purpose, a geochemical analysis of samples from natural deposits as well as from archaeological artefacts will be essential.

Bibliography

BRINK-KLOKE H., 1990. *Das linienbandkeramische Gräberfeld von Essenbach-Ammerbreite, Ldkr. Landshut, Niederbayern.* Germania, **68** (2): 427-481.

CLADDERS M., 1997. *Befunde und Keramik des Siedlungsplatzes Hambach 21, Gem. Jülich, Kr. Düren. In*: J. LÜNING (ed.), *Studien zur neolithischen Besiedlung der Aldenhovener Platte und ihrer Umgebung.* Bonn, Rheinische Ausgrabungen, **43**: 131-228.

FRITSCH B., CLASSEN E., MÜLLER U. & DRESSELY V., 2008. Die linienbandkeramischen Gräberfelder von Derenburg „Meerenstieg II" und Halberstadt „Sonntagsfeld", Lkr. Harz. *Jahresschrift für mitteldeutsche Vorgeschichte,* **92***: 25-230.*

FRÖHLICH N, 2006. Der bandkeramische Siedlungsplatz Bad Homburg-Ober-Erlenbach: Häuser und Keramik. *In*: J. LÜNING & H. M. VON KAENEL (eds), *Ausgrabungen zur Bandkeramik, Bronze- und Römerzeit in Bad Homburg v.d.H.–Ober-Erlenbach 2001-2002.* Bonn, Universitätsforschungen zur prähistorischen Archäologie, **136**: 1-160.

GÖTZINGER M. A. & LENNEIS E., 2009. Mineralische Rohstoffe und Steinrohstoffe aus den Grabungen bei Rosenburg. *In*: E. LENNEIS (ed.), *Ro-*

senburg im Kamptal, Niederösterreich. Ein Sonderplatz der älteren Linienbandkeramik. Bonn, Universitätsforschungen zur prähistorischen Archäologie, **164**: 108-109.

HOEPER M., LÖHLEIN W., KAISER M., REUTHER N., BRÄUNING A. & HAASIS-BERNER A., 2011. Erste Langhäuser der Bandkeramik im Breisgau aus Bischoffingen. Archäologische *Ausgrabungen Baden-Württemberg 2010*: 72-75.

JEUNESSE Chr., 1997. *Pratique funéraires au Néolithique ancien. Sépultures et nécropoles danubiennes 5500-4900 av. J.-C.*. Collection des Hespérides. Paris, Édition Errance.

KAHLKE D., 1954. Die Bestattungssitten des Donauländischen Kulturkreises der jüngeren Steinzeit, Teil I. Linienbandkeramik. *Bandkeramisches Gräberfeld Sondershausen, Ausgrabungen*, **51/1949**.

KAUFMANN D., 1981. Neue Funde der ältesten Linienbandkeramik von Eilsleben, Kreis Wanzleben. *Beiträge zur Ur- und Frühgeschichte I, AFD Beih. Arbeits- und Forschungsberichte zur sächsischen Bodendenkmalpflege*,**16**: 129-143.

KEGLER-GRAIEWSKI N., 2007. *Beile – Äxte – Mahlsteine: Zur Rohmaterialversorgung im Jung- und Spätneolithikum Nordhessens*. PhD thesis, Universität zu Köln.

KITZIG J., 2013. *Gebrauch und Verbreitung von Farbsteinen in der westlichen Linienbandkeramik*. Hamburg, Unpublished, Universität Hamburg.

KLOOS U., 1997. Die Tonware. *In*: LÜNING, J. (ed.), *Ein Siedlungsplatz der ältesten Bandkeramik in Bruchenbrücken, Stadt Friedberg/Hessen*. Bonn, Universitätsforschungen zur prähistorischen Archäologie, **39**: 151-256.

KRAHN Chr., 2006. Die bandkeramischen Siedlungen im oberen Schlangengrabental: Studien zur bandkeramischen Besiedlung der Aldenhovener Platte. *Rheinische Ausgrabungen,* **57**.

LEBZELTER V. & ZIMMERMANN G., 1936. Neolithische Gräberfelder aus Klein-Hadersdorf bei Poysdorf in Niederösterreich. *Mitteilungen der Anthropologischen Gesellschaft in Wien*, **66**: 1-16.

LENNEIS E., 1977. Siedlungsfunde aus Poigen und Frauenhofen bei Horn: ein Beitrag zur Erforschung der Linear- und Stichbandkeramik in Niederösterreich. *Prähistorische Forschungen*, **8**: 112 p.

LENNEIS E., 2009. *Rosenburg im Kamptal, Niederösterreich. Ein Sonderplatz der älteren Linienbandkeramik*. Bonn, Universitätsforschungen zur prähistorischen Archäologie, **164**.

LÖRLER M., 2006. Eine linienbandkeramische Siedlung bei Behringen, Wartburgkreis. *Neue Ausgrabungen und Funde Thüringen*, **2**: 15-122.

LÖHR H. & ZIMMERMANN A., 1977. Feuersteinartefakte. *In*: R. KUPER, H. LOEHR, P. STEHLI, J. LUENING & A. ZIMMERMANN (eds), *Der bandkeramische Siedlungsplatz Langweiler 9, Gemeinde Aldenhoven, Kreis Düren*. Bonn, Rheinische Ausgrabungen, **18**.

MECKING O. & BEHRENDT S., & HOHLE I. & WOLFRAM S., 2012. Geochemische und technologische Keramikanalysen zum Übergang von Ältester zu älterer Linienbandkeramik in Eythra und Zwenkau-Nord, Lkr. Leipzig. *In*: R. SMOLNIK (ed.), *Siedlungsstruktur und Kulturwandel in der Bandkeramik. Beiträge der Internationalen Tagung „Neue Fragen zur Bandkeramik oder alles beim Alten?" Leipzig 23. Bis 24. September 2010*. Dresden: 261-273.

MEIER-ARENDT W., 1966. *Die bandkeramische Kultur im Untermaingebiet*. Veröffentlichungen des Amtes für Bodendenkmalpflege im Regierungsbezirk Darmstadt, **3**. Frankfurt a.M.

MODDERMAN P. J. R., 1970. Die Ausgrabungen von Elsloo. *In*: P. J. R. MODDERMAN (ed.), *Linear-bandkeramik aus Elsloo und Stein*. Textband. Analecta Praehistoria Leidensia, **III**: 1-76.

NIESZERY N., 1995. *Linearbandkeramische Gräberfelder in Bayern*. Internationale Archäologie, Leidorf, **16**.

PIELER F., 2004. *Der bandkeramische Siedlungsplatz Ratzersdorf bei St. Pölten (Niederösterreich)*. Universitätsforschungen zur prähistorischen Archäologie, **112**.

PRECHTL J., 2011. Die neolithische Graphitnutzung in Südbayern. *In*: K. SCHMOTZ (ed.), *Vorträge des 29. Niederbayerischen Archäologentages*. Rahden/Westf: 349-432.

RAMMINGER B., 2003. Zur bandkeramischen Besiedlung im unteren Niddertal. *In*: J. LUENING (ed.), *Siedlungsarchäologie III*. Universitätsforschungen zur prähistorischen Archäologie, **94**. Bonn: 91-262.

RAMMINGER B., 2007. *Wirtschaftsarchäologische Untersuchungen zu alt- und mittelneolithischen Felssteingeräten in Mittel- und Nordhessen. Archäologie und Rohmaterialversorgung*. Internationale Archäologie. Rahden/Westf, **102**.

RAMMINGER B., STILBORG O. & HELFERT M., 2003. Hematite tempering in Linear Band Ceramics. *In*: B. RAMMINGER, O. STILBORG & M. HELFERT (eds), N*aturwissenschaftliche Analysen vor- und frühgeschichtlicher Keramik III: Methoden, Anwendungsbereiche, Auswertungsmöglichkeiten*. Bonn, Universitätsforschungen zur prähistorischen Archäologie, **238**: 305-328.

RICHTER I., 1969. Die bandkeramischen Gräber von Flomborn, Kreis Alzey, und vom Adlerberg bei Worms. *Mainzer Zeitschrift*, **63/64**: 158-179.

SACHS C., 1999. *Ocker in der urgeschichtlichen Zeit: Farbe der Toren und Werkstoff der Lebenden*. Unpublished, Universität Hamburg. Hamburg.

SCHADE Chr. C. J., 2004. *Die Besiedlungsgeschichte der Bandkeramik in der Mörlener Bucht/Wetterau*. Bonn, Universitätsforschungen zur prähistorischen Archäologie, **105**.

SCHMIDGEN-HAGER E., 1993. *Bandkeramik im Moseltal*. Bonn, Universitätsforschungen zur prähistorischen Archäologie, **18**.

SCHMIDGEN-HAGER E., 2003. Das Steininventar der bandkeramischen Siedlung Trier-Euren „Schloß Monaise". Aspekte der Rohmaterialversorgung und Beobachtungen zur Dechselschäftung. *In*: J. ECKERT (ed.), *Archäologische Perspektiven. Analysen und Interpretationen im Wandel. Festschrift für Jens Lüning zum 65. Geburtstag*. Internationale Archäologie Studia honoraria , **20**. Rahden/Westf: 407-415.

ZIMMERMANN A., 1988). *Steine*. *In*: U. BOELICKE & D. VON BRANDT, J. LUENING, P. STEHLI & A. ZIMMERMANN (eds), *Der bandkeramische Siedlungsplatz Langweiler 8, Gmd. Aldenhoven, Kr. Düren*. Rheinische Ausgrabungen. Köln: 569-786.

Authors address:

Julia KITZIG
Weidenweg, 8
22869 Schenefeld (Germany)
julia.kitzig@gmail.com

Britta RAMMINGER
Universität Hamburg
Edmund-Siemers-Allee, 1
20146 Hamburg (Germany)
Britta.Ramminger@uni-hamburg.de

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 187-199

Quelques hypothèses quant à l'usage des matières colorantes rouges dans les sépultures du Néolithique ancien du Bassin parisien

Corinne THEVENET

Abstract

When other element are lacking, the presence of colouring matter concentrations in graves can be considered as a diagnostic criteria. It is so regularly present in Early Neolithic graves, that it is considered as a diagnostic feature for Northern France funerary rituals. However, its presence remains enigmatic and raises several questions. Firstly, the use of the term of "ochre" is problematic, as it only reflects a general assumption, not a definite identification. Indeed, it is attested in about 80 % of LBK graves of the Paris Basin, but the diversity of raw materials used in unknown. The same diversity is observed in BQY/VSG graves, but in different proportions (pigments are present in less than 30 % of the graves), although we usually use the term of powdering and we ignore the exact modalities of its making and use. An important diversity of situations is reported for its use in early Neolithic graves, suggesting that pigments can be used in different ways, some funeral, others not.

About 170 LBK graves are known at present in the Paris Basin. There are no graveyards, but only settlement graves. We retained 108 graves, distributed between 31 sites in the main alluvial valleys, according to the reliability of chronological attributions and the quality of documentation. The geographical and chronological distribution of this sample is representative of the original corpus. Graves localisation is similar during BQY/VSG, but the corpus is more limited: only 45 graves, distributed between 19 sites.

Our purpose here is to understand the presence of colouring matter in graves, that is the modalities of its use, but also its possible functions during burials. Combining the analysis of pigment localizations and the taphonomic analysis of the corpse allows for several hypothesis. At least three different situations are observed in LBK graves. In most cases, colouring matters are associated with the skeleton (57 %). It can also be present on objects, as pearls or ceramics (11 %). Finally, coloured spots in the filling sediment are also observed (11 %). The cases distribution is different in BQY/ VSG graves, where the most frequent situation is the presence of coloured spots (two thirds of graves). In addition, combining the colouring matter distribution and the taphonomic analysis we can suggests the use of different organic objects, such as clothes and soft material envelopes or mats, containers. In fact, colouring matters are sometimes the last trace these various coloured organic objects. Colouring matters are thus present at various moments of the burial, sometimes connected to the preparation and deposit of the body, or to the deposit of funeral objects. The traceologic analysis of coloured grinding tools shows that they were used to work hides, but their use with vegetable fibres is also attested for these periods. The presence or absence of colouring matter in these graves could testify to the use of different materials (animal skins vs vegetable fibers) for objects occurring at various moments of burial, during pre-sepulchral and sepulchral stages.

In this paper we advocate for the development of analytical protocols dedicated to the characterization of colouring matter use in funerary contexts.

Keywords*: graves, red colouring matter, taphonomic analysis, Early Neolithic, Paris Basin.*

Mots-clés : sépultures, matière colorante rouge, analyse taphonomique, Néolithique ancien, Bassin parisien.

La présence de matières colorantes rouges dans les sépultures du Néolithique ancien du Bassin parisien, particulièrement au Rubané, est perçue comme caractéristique. C'est là tout le paradoxe : si sa présence paraît typique des pratiques funéraires, elle demeure énigmatique. Ni la nature exacte du matériau, ni les modalités de son utilisation et encore moins sa fonction au cours des funérailles ne sont connues. Au sein de l'analyse des sépultures, les matières colorantes rouges sont généralement traitées avec le mobilier alors que, recouvrant souvent complètement le squelette, elles semblent relever davantage du dépôt du corps. La principale limite réside dans le fait que ces matières minérales rouges sont abordées en terme de présence ou d'absence, ce qui a oblitéré

la diversité de leurs localisations à l'intérieur d'une sépulture et par conséquent, la diversité potentielle de leurs utilisations. On ignore en définitive ce qui est signifiant : est-ce le pigment utilisé ; est-ce la couleur engendrée ; ou est-ce le geste technique dont ces restes colorés pourraient constituer un ultime témoin ?

Pour tenter de comprendre l'utilisation des matières colorantes dans les tombes, c'est-à-dire non seulement leurs modalités, mais surtout leur(s) éventuelle(s) fonction(s) au sein des funérailles, il est nécessaire de détailler leurs différentes localisations dans les tombes et par rapport aux restes du défunt. Croisées à l'analyse taphonomique du

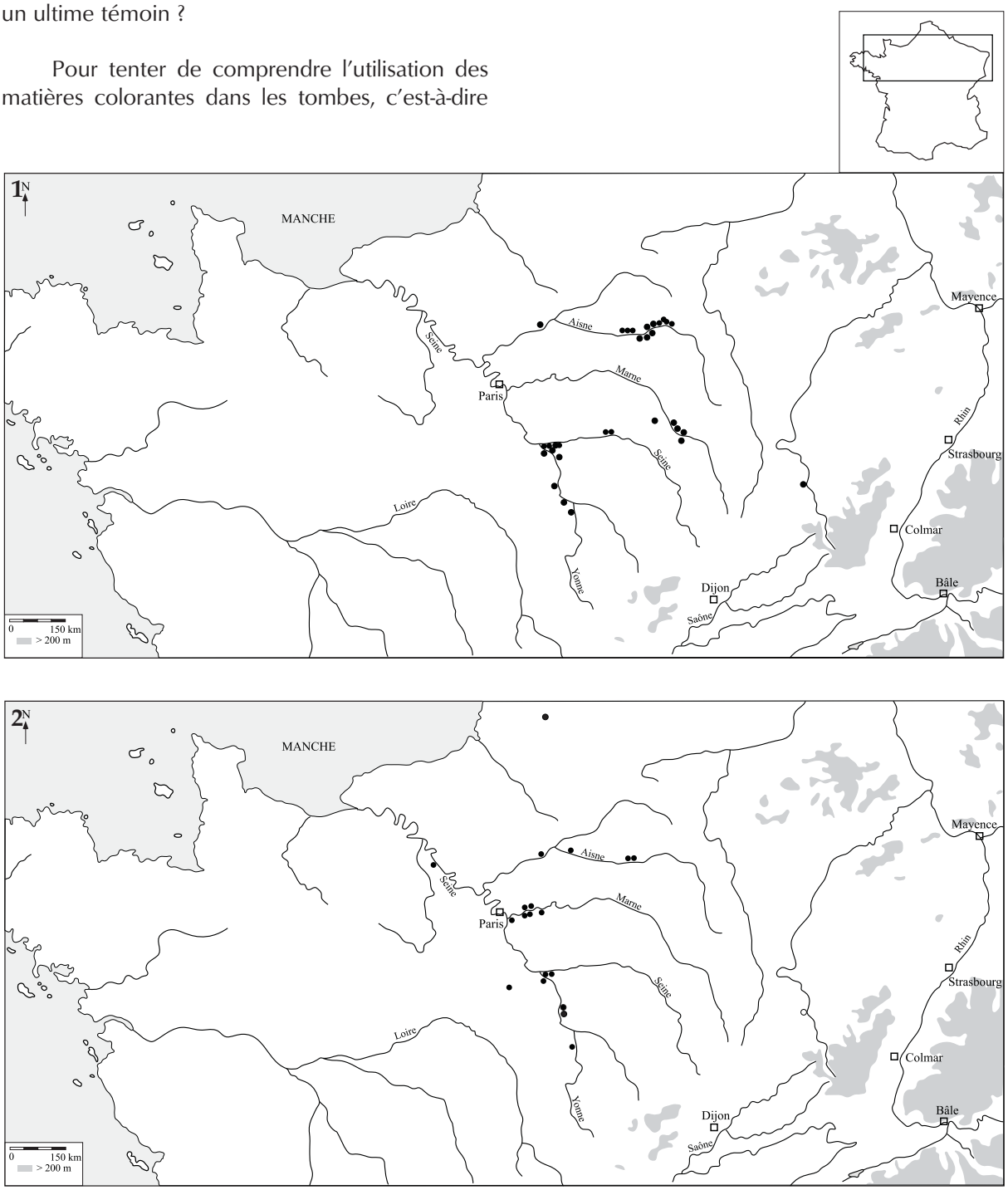


Fig. 1 – Localisation des sites du Néolithique ancien comptant des sépultures dans le Bassin parisien : 1. Sites rubanés, 108 sépultures réparties entre 31 habitats ; 2. Sites BQY/VSG, 45 sépultures réparties entre 19 habitats.

cadavre et de la sépulture, il est possible de proposer différentes hypothèses quant à leurs utilisations possibles. Apparaît ainsi une grande diversité d'utilisation qui permet de discuter de la place des colorants pendant les funérailles au Néolithique ancien. À terme, cette discussion permet également d'éclairer l'évolution des pratiques funéraires dans le Bassin parisien au Néolithique ancien, plus particulièrement des pratiques de dépôt du corps entre le Rubané et le Villeneuve-Saint-Gemain.

1. DES MATIÈRES ROUGES DANS LES TOMBES

Comparativement aux régions plus orientales du Rubané, dans lesquelles le corpus funéraire atteint plusieurs milliers de tombes (Jeunesse, 1997), le Bassin parisien peut faire figure de parent pauvre : près de 170 sépultures seulement sont en effet recensées actuellement. Malgré le développement de l'archéologie préventive, aucune nécropole n'a encore été mise au jour, mais uniquement des sépultures au sein des habitats. Nous avons retenu 108 sépultures rubanées, réparties entre 31 sites localisés dans les principales vallées alluviales du Bassin parisien, en fonction de la fiabilité des attributions chronologiques et de la qualité de la documentation (Fig. 1:1). La distribution géographique et chronologique de cet échantillon est inégale, mais représentative du corpus originel. La moitié de l'effectif est située dans la vallée de l'Aisne, tandis que l'essentiel des sépultures apparaît tardif au sein de la séquence du Bassin parisien. Implantation et localisation des sépultures sont similaires durant le Blicquy/Villeneuve-Saint-Germain (BQY/VSG), mais le corpus est nettement plus restreint : seulement 45 sépultures sont recensées, réparties entre 19 sites (Fig. 1:2).

La présence de restes de colorants rouges dans les sépultures du Néolithique ancien du Bassin parisien et la manière dont elle est décrite habituellement dans la littérature soulèvent plusieurs questions.

1.1. De quel matériau est-il question ?

Il est généralement fait mention « d'ocre » en raison d'une coloration du sédiment et/ou des ossements allant du brun-rouge au rose, plus ou moins intense, mais suffisamment pour être visible à l'œil nu (Fig. 2). Cette dénomination systématique est indépendante du matériau utilisé puisque, à notre connaissance, aucune analyse physico-chimique d'échantillons issus de ces sépultures n'a été réalisée. Son usage est en définitive consacré par plusieurs dizaines d'années d'emploi dans la recherche sur les pratiques funéraires rubanées. On peut toutefois se demander si ces différentes colorations correspondent toujours au même matériau. À titre de comparaison, il est fait mention d'ocre dans certaines sépultures mésolithiques (Verjux, 2007), alors même que la coloration rouge observée peut provenir d'autres matériaux. C'est le cas dans la sépulture mésolithique de Bonifacio (Corse, Duday, 1975). Cette tombe a livré le squelette d'une femme entièrement recouvert d'un colorant brun-rouge, à l'exception des pieds, dont l'analyse a révélé qu'il résultait de la dégradation d'une roche granitoïde, apportée par les populations mésolithiques.

1.2. La présence de matières colorantes est-elle réellement systématique dans ces tombes ?

En termes de présence/absence, les restes colorants s'observent dans près de 80 % des sépultures rubanées (85 sépultures sur 108 ; Thevenet, 2010). Leur présence apparaît donc comme un trait largement majoritaire au sein des pratiques funéraires rubanées, à tel point que son absence dans plusieurs sépultures a souvent été interprétée en termes conjoncturels : absence d'observation en raison des conditions de découverte chaotiques, conservation médiocre de la sépulture (terriers, labours...) ou remplissage sableux ayant favorisé un lessivage des substances colorantes sous l'action des eaux de ruissellement et d'infiltration. À ces trois explications avancées, on peut opposer autant, si ce n'est plus, de contre-exemples. La sépulture 234 de Menneville « Derrière le Village » (Aisne) a été détruite à la pelle mécanique, mais une partie des ossements récupérés dans les déblais avaient conservé des traces résiduelles rouges (Farruggia *et al.*, 1996 ; Thevenet, 2010). La sépulture 145 de Cuiry-lès-Chaudardes « les Fontinettes » (Aisne) a été remaniée par des terriers qui ont totalement dispersé dans la fosse les ossements et les éléments de parure (Thevenet, 2010). Malgré cela, le remplissage a conservé une nette coloration. On pourrait multiplier les exemples de sépultures érodées, perturbées, tout ou partie, et dans lesquelles la présence de colorations rouges a été observée. Enfin, si l'hypothèse d'un lessivage de matières colorantes est souvent proposée dans

les cas de remplissages sableux, il est intéressant de constater que les sépultures 45 et 48 de Maizy « les Grands Aisements » (Aisne) dont le remplissage était constitué de sables et graviers sont parmi les sépultures rubanées les plus intensément colorées (Le Bolloch *et al.*, 1986). On peut également constater des sépultures situées à proximité l'une de l'autre, pour lesquelles substrat et remplissage sont identiques, l'une présentant une forte coloration tandis que sa voisine en est totalement dépourvue (par exemple, les sépultures 28 et 20 de Balloy « les Réaudins », Seine-et-Marne ; Mordant, 1991, 1997). *A contrario*, les 20 % de sépultures rubanées qui ne contiennent pas de matière colorante ne présentent pas nécessairement une conservation médiocre.

Cette revue non exhaustive semble suffisante pour penser que si l'on n'a pas observé de restes rouges à la fouille de certaines sépultures, c'est tout simplement qu'elles n'en contenaient pas. En outre, la question d'une conservation différentielle n'est jamais invoquée pour expliquer l'absence de tels restes dans les sépultures du BQY/VSG qui succède au Rubané. Ce trait devient en effet minoritaire et s'observe dans moins de 30 % des tombes (Thevenet, 2010).

1.3. Sous quelle forme les matières colorantes ont-elles été utilisées ?

Dans la quasi-totalité de la littérature concernant les tombes néolithiques, mais aussi mésolithiques, il est fait mention « d'ocre en poudre » ou de « saupoudrage d'ocre » sur le défunt, après son dépôt dans la tombe (par exemple, Jeunesse, 1997 ; Constantin *et al.*, 2003). Pour autant, aucune poudre colorée n'a été découverte jusqu'à présent, seul le sédiment de la tombe ou les ossements étant teintés. Quant aux arguments suggérant l'action de saupoudrer, ils ne sont jamais précisés. De nouveau, c'est la force de l'habitude qui conduit à

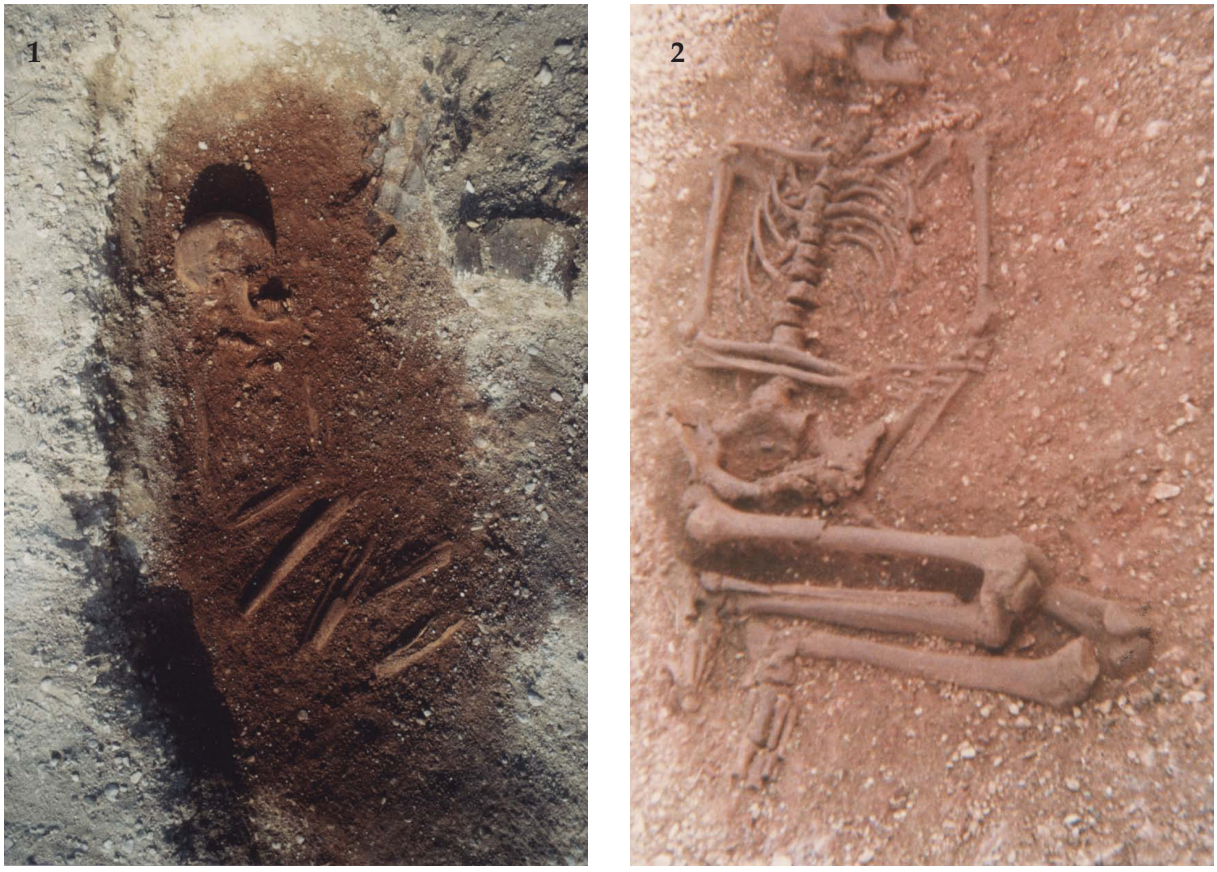


Fig. 2 – Deux exemples de coloration intense du squelette et de la fosse dans des sépultures rubanées du Bassin parisien : 1. Sépulture 4 de Larzicourt (Marne ; photo : B. Chertier) ; 2. Sépulture 32 de La Saulsotte (Aube ; photo : J. Piette).

utiliser ce vocable. Dans un cas, il a été suggéré que plutôt que saupoudré, le corps avait été enduit d'une boue colorée, tant la coloration du squelette et du sédiment l'entourant immédiatement était intense (Le Bolloch *et al.*, 1986).

Quelle que soit l'hypothèse, que la substance colorante soit utilisée sous forme de poudre ou de boue, reste que c'est toujours le cadavre en tant que tel qui est envisagé comme le support direct de la matière colorante.

1.4. Pourquoi des matières colorantes dans les tombes ?

Comme fréquemment, la raison avancée à la présence d'un objet dans une tombe ou à la réalisation d'un geste pendant les funérailles est qu'il s'agit d'une prescription du rite. Le cas des matières colorantes n'échappe pas à la règle et cette interprétation en terme quasiment exclusif de rituel a sans doute limité la prise en compte d'alternative au saupoudrage. Peu d'auteurs ont ainsi proposé d'autres explications. P.-A. de Labriffe a supposé une fonction antiseptique au minéral saupoudré sur le cadavre (Labriffe, 1985, 1992). E. Derwich a suggéré que le colorant constitue la dernière trace de peintures corporelles sur le défunt (Derwich, 1997).

2. DES SITUATIONS DIVERSES

La localisation et l'étendue de la coloration rendent compte de différents cas de figure, aussi bien dans les sépultures rubanées que BQY/VSG.

2.1. Au Rubané

Au moins trois situations différentes se dégagent de l'analyse de la localisation des restes rouges dans les sépultures rubanées (n = 108, Fig. 3:1).

Dans les cas les plus nombreux, les restes colorants sont associés au squelette, qu'il ait teinté seulement ce dernier ou le sédiment l'entourant, ou bien les deux. Les parois de la fosse sépulcrale sont parfois également colorées. Généralement, la

n° 1. Sépultures rubanées (n = 108)

n° 2. Sépultures BQY-VSG (n = 45)

Absence de restes de colorants
Coloration en relation avec le squelette
Coloration en relation avec des objets
Taches de matières colorantes
Matière colorante sous forme solide

Fig. 3 – Distribution des différents types de localisation des restes colorants observés dans les sépultures du Néolithique ancien du Bassin parisien : 1. Dans les sépultures rubanées, n = 108 ; 2. Dans les sépultures BQY/VSG, n = 45).

coloration du fond de la fosse correspond à l'emprise du corps, mais n'inclut pas toujours le crâne.

Des restes colorants ont également été observés en dehors de tout contact avec le squelette. Il est alors présent sur des objets, parures ou récipients en céramique. Des traces de matières colorantes sont ainsi présentes à l'intérieur de la perforation et sur la face interne de perles (en calcaire ou test de coquillage ; Augereau & Bonnardin, 1998). Elles s'observent également à l'intérieur de vases complets ou sur la face interne de tessons de vases fragmentés (par exemple, dans la sépulture 51 de Balloy, Seine-et-Marne).

Enfin, des taches colorées, circonscrites dans le sédiment de remplissage s'observent également. Ces taches peuvent être totalement dissociées du squelette ou au contact d'une région anatomique. L'emplacement de ces taches est variable : elles peuvent se situer sur le fond de la fosse ou dans le comblement de la sépulture, au-dessus du squelette. Ces sépultures se caractérisent par l'absence de matière colorante ailleurs dans le remplissage ou sur le squelette.

Dans un certain nombre de ces cas, la proximité entre tache d'ocre et fragments de vases permet de se demander si la substance colorante n'était pas, au moment du dépôt, à l'intérieur de contenants qui ont subi une fragmentation post-dépositionnelle (par exemple, dans une tombe d'Escolives-Sainte-Camille, Yonne). Dire que la présence de matière colorante est majoritaire dans les sépultures rubanées occulte la diversité des cas de figure. Les restes rouges sont en relation avec le squelette, et par extension avec le corps ou son emplacement dans 57 % des cas. Sa présence sur ou dans des objets s'observe dans 11 % des cas et il apparaît de manière très localisée dans le sédiment également dans 11 % des tombes.

2.2. Au Villeneuve-Saint-Germain/Blicquy

La diversité est également de mise dans les sépultures BQY/VSG, bien que le corpus soit bien inférieur (45 tombes) et que moins de 30 % de celles-ci contiennent des matières colorantes On retrouve les mêmes cas de figure que dans les tombes rubanées, mais dans des proportions radicalement différentes (Fig. 3:2).

La présence de restes colorants en relation avec le squelette est désormais la situation la moins fréquente. Une nappe continue colorant le fond de la fosse sépulcrale, autour du squelette, s'observe dans un tiers des tombes. En revanche, deux tiers des sépultures révèlent la présence de taches rouges localisées dans le sédiment ou sur le fond de la fosse. Dans un seul cas, des restes colorants ont été découverts à l'intérieur d'un vase.

Une nouvelle configuration apparaît dans les tombes BQY/VSG : les matières colorantes peuvent se présenter sous forme solide, le plus souvent sous l'aspect de nodules (par exemple, à Mareuil-lès-Meaux, Seine-et-Marne ; Cottiaux, 2010). À Buthiers-Boulancourt (Seine-et-Marne), une fosse dont le caractère sépulcral reste indécis a livré un fragment de matière colorante de taille importante (environ 10 cm sur 15 ; Samzun *et al.*, 2006).

3. QUELQUES INTERPRÉTATIONS ET HYPOTHÈSES

Quatre utilisations différentes de substance colorante peuvent être envisagées à partir de ces constatations, l'une évidente, les autres plus problématiques. La seule qui se prête facilement à l'interprétation, c'est la présence de résidus colorés à l'intérieur de la perforation de perles : c'est manifestement le lien sur lequel les perles étaient enfilées qui était teinté, même si son matériau reste inconnu. En revanche, les autres occurrences peuvent donner lieu à de multiples interprétations. Les restes colorants observés dans des contenants en céramiques peuvent correspondre à de la matière colorante à l'état brut ou bien à un objet organique teinté. De la même manière, les taches de matière colorante circonscrites sur le fond des sépultures peuvent être la conséquence d'événements divers : le dépôt de matière colorante, seule ou dans un contenant organique, ou le dépôt d'objets en matériaux périssables colorés. Lorsque de telles taches ont été constatées dans le remplissage de la fosse, au-dessus du squelette par exemple, la présence d'un objet teinté ou de matière colorante dans un contenant organique apparaît plus probable. Même dans l'hypothèse que ces taches traduisent à chaque fois des objets en matériaux périssables, ces derniers peuvent parfaitement être de nature et de fonction diverses. En d'autres termes, des gestes différents ou le dépôt d'objets différents ont tout aussi bien pu produire des faits matériels identiques, en l'occurrence des zones de sédiment coloré.

3.1 Des vêtements teintés ?

La dernière utilisation, de loin la plus fréquente, est en rapport avec le squelette ou le sédiment l'environnant immédiatement. C'est pour ce cas que l'on parle si souvent de saupoudrage, bien que rien ne certifie non plus que nous ayons affaire à un seul et même geste. L'analyse taphonomique du cadavre (Duday *et al.*, 1990, Duday, 2009) et de la sépulture permet de proposer une alternative à cette hypothèse de saupoudrage de matière colorante sur le défunt, particulièrement dans le cas de la sépulture 272 de Menneville (Aisne ; Guichard, 1991 ; Thevenet, à paraître).

Cette sépulture a fait l'objet d'une réouverture et le cadavre d'une manipulation (Fig. 4:1). Certaines parties anatomiques du cadavre ont été retirées de la sépulture, mais l'essentiel a été laissé dans la fosse qui a ensuite été comblée. La localisation des traces colorées est ici limitée en plan et distante par rapport au squelette : il a fortement coloré la moitié orientale seulement du fond de la fosse, ainsi que le sédiment de remplissage sur une dizaine de centimètres de hauteur (Fig. 4:2). Il n'y en a pas trace ailleurs dans la fosse, ni sur le squelette. La manipulation du cadavre est survenue alors que la décomposition du corps devait être à peine entamée : on note en effet des articulations labiles, pourtant parmi les premières à se décomposer, demeurées en connexion stricte (l'extrémité distale du pied gauche) et d'autres dont les ossements sont intégralement absents de la fosse (l'intégralité des deux mains). Il est probable que c'était un cadavre nu, débarrassé de tout ce qui pouvait le recouvrir, que l'on a ainsi

Fig. 4 – 1. La sépulture 272 de Menneville (Aisne) a été réouverte et plusieurs parties anatomiques du cadavre ont été prélevées ; 2. Une zone restreinte du sédiment de remplissage présente des traces rouges, éloignées du squelette (photos : UMR 8215-Trajectoires).

Fig. 5 – La coloration intense du squelette, à l'exception du crâne redressé, dessine les contours du corps sur le fond de la fosse (sépulture 586 de Berry-au-Bac, Aisne ; photo : UMR 8215-Trajectoires).

manipulé (Thevenet, à paraître). Dans cette perspective, la présence d'une imprégnation rouge du sédiment, localisée sur le fond de la fosse, peut constituer l'ultime trace d'un vêtement, d'une enveloppe ou de tout autre élément couvrant à l'origine le cadavre et couvert de rouge, que l'on aurait rejeté au fond de la tombe avant de manipuler le corps. L'hypothèse de saupoudrage peut ici être exclue : elle est impossible à faire coïncider avec la localisation de substance colorante ou avec celle du squelette.

La présence de vêtements est par ailleurs attestée par la présence de perles en position fonctionnelle sur le squelette, dont les traces d'usure impliquent qu'elles étaient originellement cousues (Bonnardin, 2009), comme dans la tombe 586 de Berry-au-Bac (Aisne ; Allard *et al.,* 1997 ; Thevenet, 2004). Ici, la coloration intense correspond à l'emprise du corps sur le fond de la fosse, à l'exception de la tête, et suggère que c'est le vêtement qui était teinté et non le cadavre lui-même (Fig. 5).

3.2. . Des enveloppes ou des nattes colorées ?

L'analyse taphonomique témoigne également de la présence d'éléments organiques liés au dépôt des corps, tels que des appuis-tête, des litières ou des enveloppes souples. Autant d'éléments aujourd'hui disparus, mais susceptibles d'avoir été des supports à la matière colorante. Dans la sépulture 91 de Bucy-le-Long (Aisne ; Hachem *et al.*, 1998), le défunt a été déposé les membres inférieurs fléchis et les genoux redressés. Malgré plusieurs dislocations importantes et

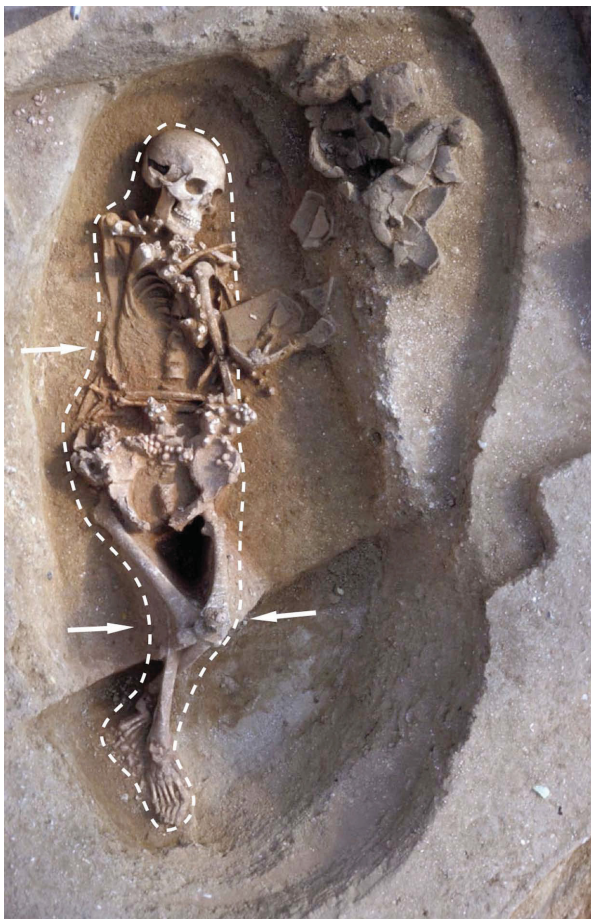


Fig. 6 – Les contraintes et les importantes dislocations du squelette de la sépulture 91 de Bucy-le-Long (Aisne) impliquent que le défunt a été inhumé dans une enveloppe souple. Celle-ci a pu être le support de la matière colorante (photo : UMR 8215-Trajectoires).

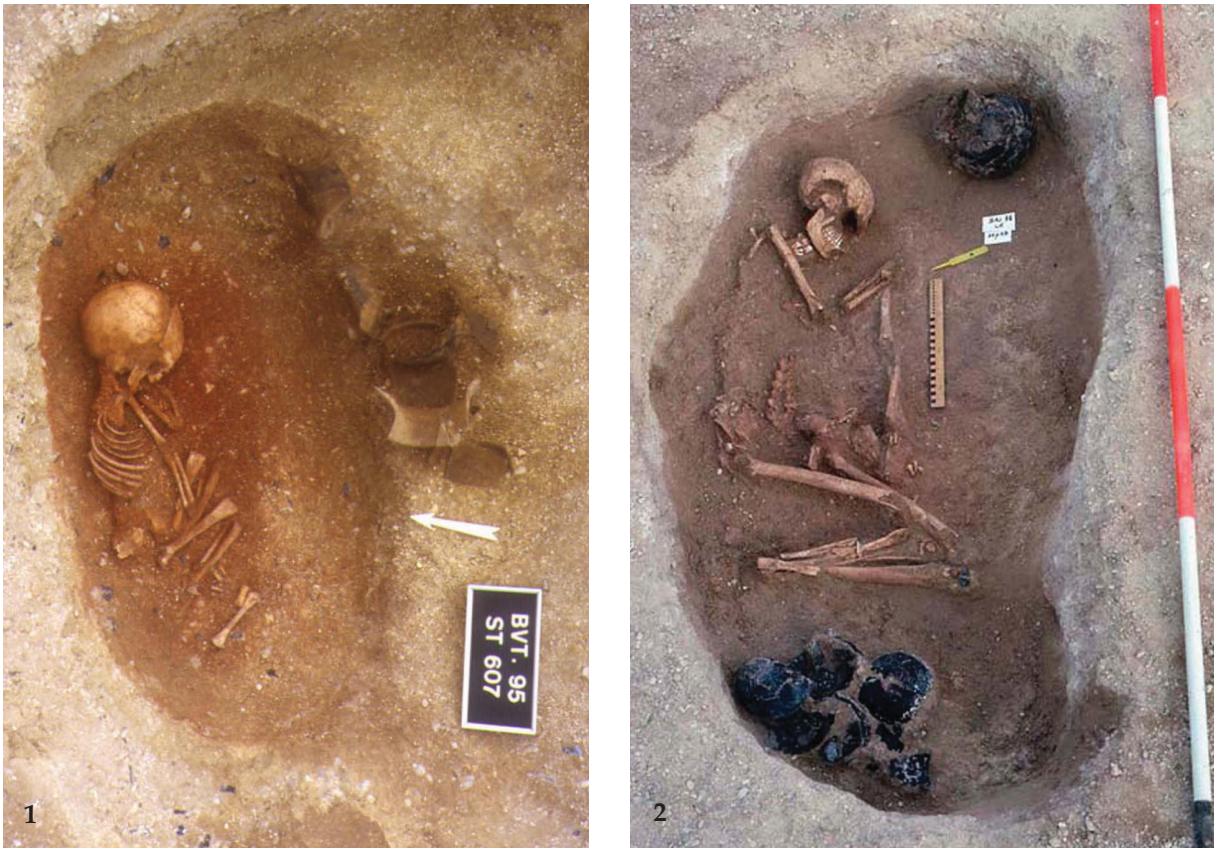


Fig. 7 – 1. La zone colorée dessine sur le fond de la fosse une limite rectiligne au sud du défunt, dans la sépulture 607 de Berry-au-Bac (Aisne ; photo : UMR 8215-Trajectoires) ; 2. Dans la sépulture 28 de Balloy (Seine-et-Marne ; photo : D. Mordant).

mobilisations, ils sont demeurés dans cette position instable. Le squelette, entièrement coloré, présente également plusieurs contraintes, qui se sont exercées sur différentes régions anatomiques (Fig. 6). L'ensemble de ces observations plaide en faveur d'une enveloppe souple enserrant totalement le corps au moment du dépôt, enveloppe qui pouvait être teintée à l'origine (Thevenet, 2010).

D'autres éléments, pour plausibles que soient leur présence dans les tombes, sont indémontrables par l'analyse taphonomique ; par exemple, une couverture déposée sur le corps ou une natte sur laquelle serait disposé le défunt. La répartition de la coloration dans quelques sépultures suggère néanmoins la présence de tels objets. Dans la sépulture 607 de Berry-au-Bac (Aisne), le squelette de l'enfant ainsi que le fond de la fosse sont entièrement colorés et cette coloration dessine une limite rectiligne nette au sud du corps et parallèlement à ce dernier (Fig. 7:1). Un même effet de paroi créé par la coloration s'observe sur le fond de la fosse de la tombe 28 de Balloy (Seine-et-Marne) : il se développe au sud du corps, apparaissant nettement entre les genoux et le coude gauche, de manière plus diffuse au niveau de l'épaule gauche (Fig. 7:2). La coloration occupe le fond de la fosse, à l'exception des extrémités est et ouest où se trouve le mobilier céramique. Enfin, dans la sépulture 48 de Maizy (Aisne), les coupes transversales permettent d'observer que la coloration, particulièrement intense ici, recouvre le squelette et le fond de la fosse (Fig. 8).

Il est bien évident que l'intensité ou la diffusion de la substance rouge peuvent dépendre de plusieurs facteurs liés à la sépulture elle-même (le moment et la vitesse de son comblement), mais aussi de ce qu'elle contient et notamment le stade de décomposition du corps au moment de ce comblement ou la vitesse de décomposition des différents éléments organiques que l'on peut supposer être colorés.

Fig. 8 – Détails de la coloration rouge entourant strictement les ossements du squelette de la tombe 48 de Maizy (photo : UMR 8215-Trajectoires).

3.3. Un matériau spécifique ?

La coloration dans les tombes du Néolithique ancien peut ainsi apparaître comme la dernière trace de divers objets organiques teintés : des liens d'enfilage pour les perles, des vêtements, des enveloppes souples ou des nattes, des récipients. Certains sont liés à la préparation et au dépôt du corps, d'autres relèvent des dépôts mobiliers. Toutefois, ces différents objets ont également été identifiés dans des sépultures ne présentant aucune trace de colorant ; c'est le cas des enveloppes souples ou des litières par exemple. Et nombre de perles ne présentent pas de coloration au niveau de la perforation.

La présence de matière colorante dans les sépultures du Néolithique ancien ne constituerait pas seulement la trace ultime d'objets aujourd'hui disparus, mais elle pourrait aussi traduire l'emploi d'un matériau spécifique. Si peu de traces de matières colorantes sont attestées en-dehors du domaine funéraire au Néolithique ancien, de récentes études d'outillage de mouture et de broyage ont fourni des indices quant à l'utilisation de la matière colorante (Hamon, 2006). Quelques pièces provenant du site de Cuiry-lès-Chaudardes (Aisne) présentent une coloration ocrée sur leur surface active, mais les plus pertinentes sont issues du site de Colombelles (Calvados ; Hamon, ce volume). L'analyse tracéologique de plusieurs pièces de mouture colorées issues de ce site a permis de mettre en évidence que ces dernières ont servi au travail des peaux. En outre, le travail de fibres textiles est attesté par les traces d'usure et de polis observées sur de nombreux burins : vannerie, sparterie ainsi que tissage (Cayol, *in* Hamon, 2007). La présence ou l'absence de restes colorants dans ces tombes pourrait ainsi témoigner de l'emploi de matériaux différents (peaux animales *vs* fibres végétales) pour des objets intervenant à différents moments des funérailles, durant les étapes pré-sépulcrales et sépulcrales.

4. UNE VALIDATION INDIRECTE

Un élément indirect tendrait à valider l'hypothèse que ce sont bien des objets organiques qui sont le support de la matière colorante, notamment des objets liés aux modalités de dépôt des corps. Rappelons que les matières colorantes sont nettement moins fréquentes dans les sépultures BQY/VSG que dans les tombes rubanées et que contrairement à celles-ci, il est alors rarement en relation avec le squelette (*cf supra*). On constate en outre que les indices d'enveloppes souples, de litières ou d'appui-tête sont exceptionnels dans les tombes BQY/VSG. En revanche, elles présentent un élément qui leur est spécifique et qui est absent des tombes rubanées. Plusieurs squelettes témoignent en effet d'une compression latérale sur la partie supérieure droite du corps, alors que les membres inférieurs sont fléchis vers la gauche : un effet de paroi se dessine ainsi de l'épaule jusqu'au bassin (Fig. 9:1-2). La répétition à l'identique de ces contraintes d'une sépulture à l'autre suggère que les corps étaient adossés contre un élément rigide aujourd'hui disparu (Thevenet, 2010). La quasi-absence de restes colorants en relation avec le corps dans les sépultures BQY/VSG pourrait se comprendre comme la conséquence d'une modification des modalités de dépôt des défunts et

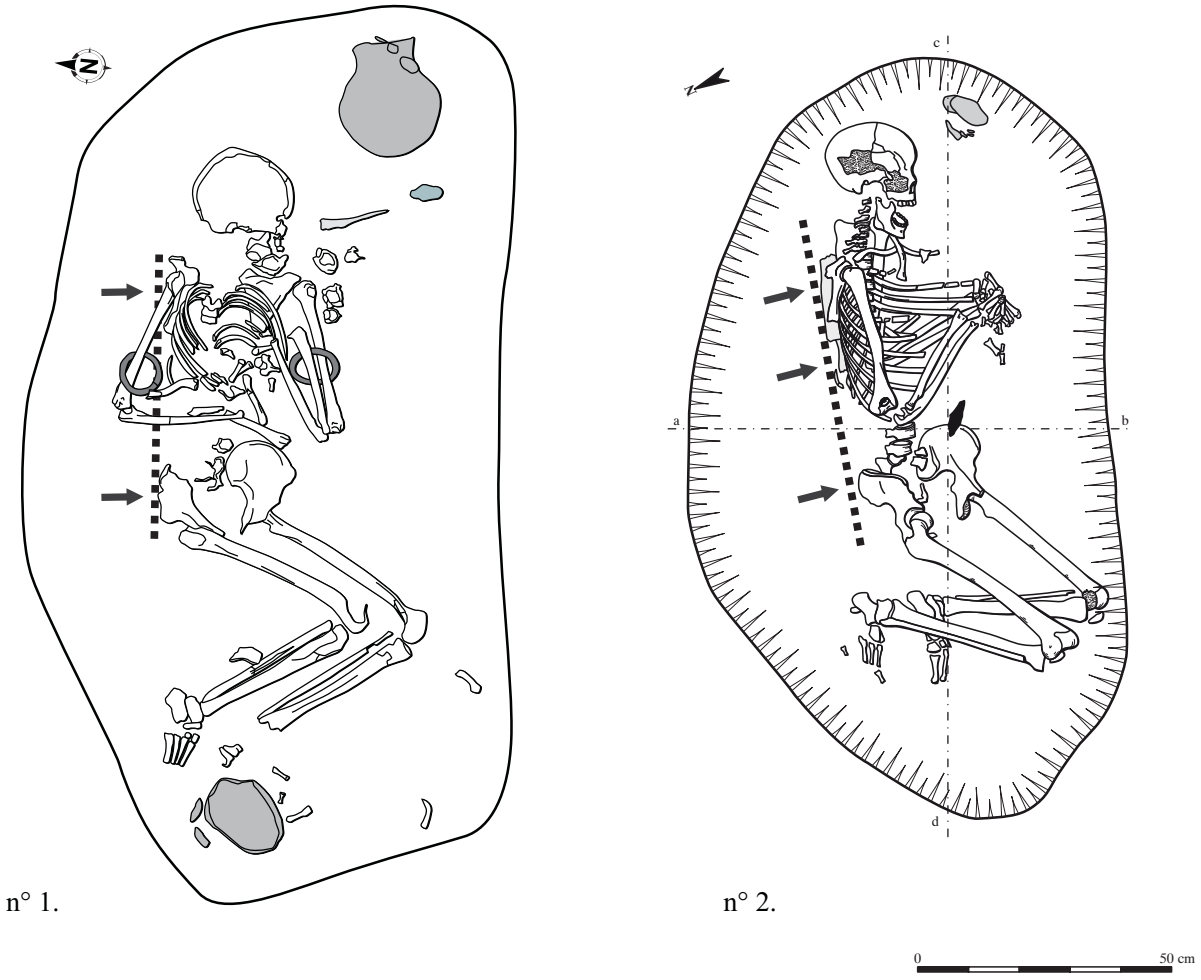


Fig. 9 – Dans plusieurs sépultures BQY/VSG, le squelette présente un effet de paroi dans le dos qui suggère la présence d'un dispositif rigide sur lequel le défunt a été appuyé : 1. Sépulture 327 de Bucy-le-Long, Aisne, DAO : C. Thevenet ; 2. Sépulture 374 de Monéteau, Yonne (d'après Augereau & Chambon, 2011 : Fig. 11).

de l'apparition d'un nouveau dispositif : une sorte de dossier rigide se substituerait dans les tombes BQY/VSG aux divers éléments (enveloppes, litières ou nattes) employés dans les sépultures rubanées.

L'emploi de matières colorantes est-il un trait spécifique des pratiques funéraires du Néolithique ancien ou seulement la caractéristique d'une pratique technique ? Les différentes localisations des sustances colorantes dans les sépultures, l'existence de vêtements, d'enveloppes et peut-être de nattes ainsi que les études tracéologiques reliant matière colorante et travail des peaux sont autant d'arguments qui suggèrent qu'il s'agit de la dernière trace d'un geste technique, en l'occurrence le travail des peaux. Ce qui ferait sens, ce serait davantage de protéger le cadavre du contact de la terre par divers moyens et que pour se faire, certains matériaux ou objets soient privilégiés au détriment des autres possibles ; ce qui ferait sens, ce serait également de déposer des récipients organiques ou d'autres objets dans des vases. Si cette hypothèse a notre préférence, il reste à la démontrer concrètement. La micromorphologie permettrait de mettre en évidence la présence d'éléments organiques dans les tombes et des analyses physico-chimiques restent à faire afin de déterminer la nature exacte des matériaux utilisés. On peut espérer que les modalités d'utilisation de la matière colorante dans les sépultures du Néolithique ancien soient ainsi précisées.

Bibliographie

ALLARD P., DUBOULOZ J. & HACHEM L., 1997. Premiers éléments sur cinq tombes rubanées à Berry-au-Bac (Aisne), principaux apports à l'étude du rituel funéraire danubien occidental. *In* : Chr. JEUNESSE (éd.), *Le Néolithique danubien et ses marges antre Rhin et Seine. 21e colloque interrégional sur le Néolithique, Strasbourg, 27-29 octobre 1995.* CAPRAA, supplément **3** : 31-43.

AUGEREAU A. & BONNARDIN S., 1998. Marolles-sur-Seine « le Chemin de Sens » (Seine-et-Marne) et la fabrication de la parure en calcaire au Néolithique ancien. *Bulletin de la Société préhistorique française*, **95** (1) : 23-40.

AUGEREAU A. & CHAMBON P. (dir.), 2011. *Les occupations néolithiques de Macherin à Monéteau (Yonne). Société préhistorique française*, Mémoire **LIII**.

BONNARDIN S., 2009. La parure funéraire du Néolithique ancien dans les Bassins parisien et rhénan. Rubané, Hinkelstein et Villeneuve-Saint-Germain. *Société préhistorique française*, Mémoire **XLIX**.

CONSTANTIN C., FARRUGGIA J.-P., BONNARDIN S., GUICHARD Y. & SIDERA I., 2003. Les tombes rubanées de la vallée de l'Aisne. Présentation. *In* : P. CHAMBON & J. LECLERC (dir.), *Les pratiques funéraires néolithiques avant 3500 av. J.-C. en France et dans les régions limitrophes*, Table ronde Société préhistorique française, Mémoire **XXXIII**, 55-63.

COTTIAUX R. (dir.), 2010. *Mareuil-lès-Meaux « les Vignoles »* . Rapport de fouilles préventives, INRAP, SRA Ile-de-France, Ministère de la Culture.

DERWICH E., 1997. Entre la mort et l'enterrement – le défunt dans la culture à céramique linéaire. *In* : Chr. JEUNESSE (éd.), *Le Néolithique danubien et ses marges antre Rhin et Seine. 21e colloque interrégional sur le Néolithique, Strasbourg, 27-29 octobre 1995.* CAPRAA, supplément **3** : 171-176.

DUDAY H., 1975. Le sujet féminin de la sépulture pré-néolithique de Bonifaccio (Corse). *Les Cahiers d'anthropologie*, **1**.

DUDAY H., COURTAUD P., CRUBEZY E., SELLIER P. & TILLIER A.-M., 1990. L'anthropologie de « terrain » : reconnaissance et interprétation des gestes funéraires. *Bulletins et mémoires de la Société d'Anthropologie de Paris*, n. s. : 29-50.

DUDAY H., 2009. *The archaeology of the dead : lectures in archaeothanatology* (translate by A. M. Cipriani & J. Pearce). Oxford, Oxbow Books.

FARRUGGIA J.-P., HACHEM L. & GUICHARD Y., 1996. Les ensembles funéraires rubanés de Menneville « Derrière le Village » (Aisne). *In* : P. DUHAMEL (dir.), *La Bourgogne entre les Bassins rhénan, rhodanien et parisien : carrefour ou frontière ? Actes du 18e colloque interrégional sur le Néolithique, Dijon 25-27 octobre 1991. Revue archéologique de l'Est,* Supplément **14** : 119-174.

GUICHARD Y., 1991. La fonction funéraire du fossé de Menneville (Aisne). *In* : *Méthodes d'étude des sépultures.* Compte-rendu de la table ronde de Saintes, 8-10 mai 1991. CNRS, Groupement de recherche 742. Talence : 107-110.

HACHEM L., ALLARD P., CONSTANTIN C., FARRUGGIA J.-P., GUICHARD Y & ILETT M., 1998. Le site néolithique Rubané de Bucy-le-Long « la Fosselle » (Aisne). *Internéo 2*, Journées d'information du 14 novembre 1998, Paris, *Association pour les Études interrégionales sur le Néolithique* : 17-27.

HAMON C., 2006. Broyage et abrasion au Néolithique ancien. Caractérisation technique et fonctionnelle des outillages en grès du Bassin parisien. *BAR International Series*, Oxford, **1551** : 342 p.

HAMON C. (dir.), 2007. *Économie et société des populations rubanées de la vallée de l'Aisne*. Projet Collectif de Recherche, rapport d'activités 2007. SRA, DRAC Nord-Picardie.

JEUNESSE Chr., 1997. *Pratiques funéraires au Néolithique ancien. Sépultures et nécropoles danubiennes (5500-4900 av. J.-C.).* Éditions Errance, Paris : 167 p., 44 fig.

LABRIFFE P. A., 1985. *Les sépultures danubiennes dans le Bassin parisien.* Mémoire de Maîtrise, Université de Paris 1, Panthéon Sorbonne, Paris, **2** vol.

LABRIFFE P. A., 1992. Les sépultures de tradition danubienne dans la vallée de l'Aisne, approche synthétique. *In* : *Actes du 11e colloque interrégional sur le Néolithique*, *Mulhouse 1984* : 63-78.

LE BOLLOCK M., DUBOULOZ J. & PLATEAUX M., 1986. Sauvetage archéologique à Maizy (Aisne) : les sépultures rubanées et l'enceinte de la fin du IVe millénaire. *Revue Archéologique de Picardie,* **1-2** : 3-12.

MORDANT D., 1991. Le site des Réaudins à Balloy : premiers résultats. *In* : *Actes du 15e colloque interrégional sur le Néolithique, Châlons-sur-Marne, 1988* : 33-43.

MORDANT D., 1997. Sépultures et nécropoles des VIe et Ve millénaires du Bassin parisien. *In* : Chr. JEUNESSE (dir.), *Le Néolithique danubien et ses marges antre Rhin et Seine. 21e colloque interrégional sur le Néolithique, Strasbourg, 27-29 octobre 1995*. CAPRAA, supplément **3** : 135-155.

SAMZUN A., DURAND J. & NICOLLE F., 2006. Le site néolithique de Buthiers et Boulancourt « le Chemin de Malesherbes » (Seine-et-Marne) : résultats préliminaires. *In* : *Internéo 6,* Journées d'information du 18 novembre 2006, Paris, *Association pour les Études interrégionales sur le Néolithique, Société préhistorique française* : 45-54.

THEVENET C., 2004. Une relecture des pratiques funéraires du Rubané récent et final du Bassin parisien : l'exemple des fosses sépulcrales dans la vallée de l'Aisne. *Bulletin de la Société préhistorique française,* **101** (4) : 815-826.

THEVENET C., 2010. *Des faits aux gestes, des gestes aux sens ? Pratiques funéraires et société au Néolithique ancien, en Bassin parisien.* Thèse de doctorat non publiée, Université Paris 1-Panthéon Sorbonne, Paris, 2 vol.

THEVENET C., à paraître. L'enceinte rubanée de Menneville « Derrière le Village » et les structures associées (Aisne, France) : de la diversité du traitement des défunts à la cohérence d'un système. *Gallia Préhistoire,* **56** (2014).

VERJUX C., 2007. Les pratiques funéraires mésolithiques en Europe. Diversité dans l'espace et dans le temps. *In* : L. BARAY, A. TESTART & P. BRUN (éd.), *Pratiques funéraires et sociétés : nouvelles approches en archéologie et anthropologie sociale.* Éditions Universitaires de Dijon, Collection Art, Archéologie & Patrimoine, Dijon : 15-35.

Adresse de l'auteur :

Corinne THEVENET
Post-doctorante
UMR 8215-Trajectoires
Maison de l'Archéologie et de l'Ethnologie-MAE
21, allée de l'Université
92023 Nanterre cedex (France)
corinne.thevenet@mae.u-paris10.fr

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 201-218

L'acquisition et l'exploitation des roches riches en oxydes de fer en Alsace du Néolithique à La Tène

Florent JODRY, Delphine MINNI & Marieke VAN ES

Abstract

In Alsace, since a few years, the research on the determination of lithics materials and their potential sources of acquisition allows to emphasize more and more clearly circuits of supply aimed to the sites of housing (Jodry & Carzon, 2012). At the same time as this mineral exploitation treated for the macrolithic equipment, the small equipment consisted of fragments of iron oxide-rich rocks shows itself gradually. These small parts extracted or collected to be transformed are present on the Alsatian sites since the average Neolithic until La Tène. With regard to the morphology of fragments and visible tracks on the surfaces of these objects we do not still master, at the moment, the range of their compositions and their functions.

Keywords*: Alsace, haematite, limonite, goethite, archaeological site, distribution, macrolithic tools, ceramics.*

Résumé

Depuis quelques années, la détermination des matières lithiques et leurs sources possibles d'acquisition marquent pour l'Alsace de plus en plus clairement des circuits d'approvisionnement visible sur les sites d'habitat (Jodry & Carzon, 2012). À côté de l'équipement macrolithique, le petit outillage, qui est composé de roches riches en oxydes de fer, se soulignent et est décrit dans cette exploitation minérale. L'extraction ou le rassemblement de ces petites pièces travaillées sont présentes sur les sites alsaciens depuis le Néolithique moyen jusqu'à La Tène. Nous ne maîtrisons pas toujours, pour le moment, l'éventail de leurs compositions et leurs fonctions alors que la morphologie des fragments et des stries sur les surfaces de ces objets sont évidentes.

Mots-clés : Alsace, hématite, limonite, goethite, gisements, répartition, outils macrolithiques, céramique.

1. INTRODUCTION

L'enquête régionale menée en Alsace sur le thème de l'acquisition et de l'utilisation des oxydes et hydroxydes de fer est à l'heure actuelle inédite. Cette enquête a été menée suite à la découverte ces dernières années de nombreux fragments d'oxydes et d'hydroxyde de fer sur des sites d'habitat. Cette situation nous a permis d'engager une enquête régionale sur le thème de l'acquisition et de l'exploitation de ces fragments. Le recensement proposé ici ne constitue pas un inventaire exhaustif mais un bilan provisoire, augmenté progressivement par le dépouillement des données archéologiques, qu'elles soient issues de diagnostics ou de fouilles.

L'inventaire concerne pour l'instant exclusivement des sites fouillés récemment. Seize échantillons proviennent donc du tracé de la LGV-EE, complétés par quatre pièces supplémentaires, issues d'Obernai et de Schnersheim. Cet article présente donc les récentes découvertes d'échantillons, de ce que l'on nomme ordinairement « hématite », extraits de structures archéologiques mises au jour sur 10 sites bas-rhinois diachroniques.

Ce premier recensement sera suivi par la question de l'éventuelle utilisation de certaines de ces pièces archéologiques pour la fabrication de pigments destinés aux revêtements rouges que l'on peut observer sur certaines céramiques.

Pour le moment, la réflexion se trouve donc biaisée par la répartition de la majorité des échantillons dans une aire géographique relativement restreinte. La fourchette chronologique des échantillons est comprise entre le Néolithique (8 exemplaires, extraits de 4 sites) et l'âge du Fer (10 exemplaires, extraits de 7 sites).

Il faut préciser aussi que l'intérêt pour ce type d'objet est très récent et l'acquisition de données est compliquée. En effet, les exemplaires peuvent échapper à la vigilance des archéologues : non seulement de nombreuses pièces peuvent être confondues avec de petits fragments de céramiques, mais aussi certains fragments peuvent être considérés comme des matériaux naturels sans intérêt.

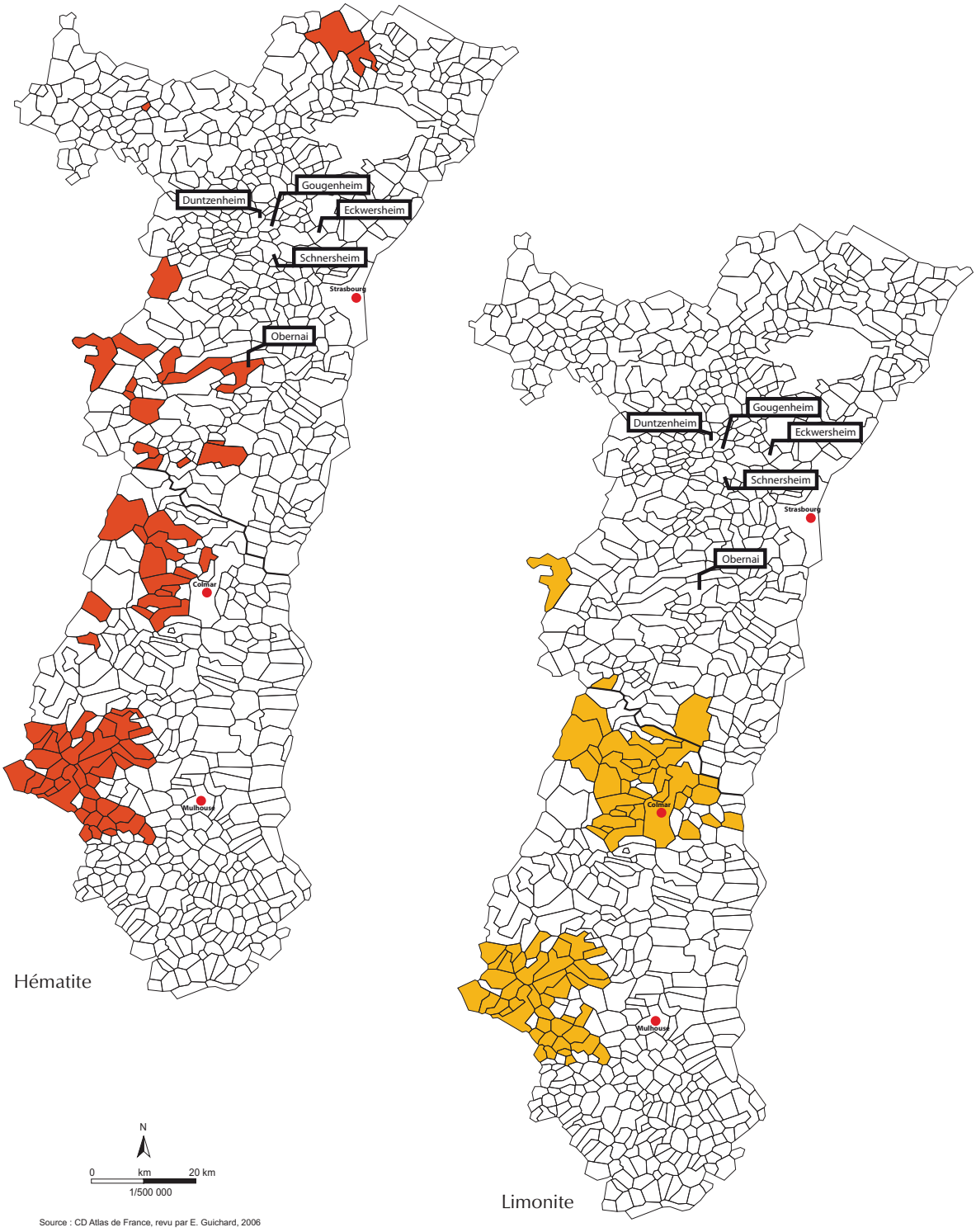


Fig. 1 – Carte de répartition des gisements d'hématite et de limonite en Alsace.
DAO : P. Girard et F. Jodry, Inrap GES.

2. MÉTHODE DE RECHERCHES DES SITES D'ACQUISITION

L'inventaire des gisements d'oxyde et d'hydroxydes de fer en Alsace que nous proposons dans cet article a été réalisé grâce à la consultation d'ouvrages spécialisés (de Dietrich, 1789 ; Hammer, 1826 ; Daubrée, 1852 ; Delbos, 1867) et à l'interrogation de banques de données dédiés aux recherches minéralogiques (http://www.mindat.org/ et http://infoterre.brgm.fr/). Les ouvrages, notamment Daubrée (1852), mentionnent fréquemment l'hématite, la goethite et la limonite. Ce sont ces trois roches riches en oxydes de fer que nous avons pris en compte dans cet article.

Dans l'état actuel de la recherche, nous ne pouvons relier les sites d'extraction inventoriés aux sites archéologiques mentionnés. Ces gisements sont par conséquent des gîtes potentiels dont la richesse et la qualité des matériaux extraits nous échappe. Certaines exploitations sont abandonnées, ou nouvellement découvertes, d'autres sont répertoriées malgré l'épuisement des filons ou la mauvaise exploitation des ces derniers. Certains gîtes sont considérés comme étant « puissants en minerai » mais aucune mention ne donne d'information chronologique quant à leur durée d'exploitation. Seuls les commentaires « ancien travail » ou « vieux travail » nous donne une appréciation. Par conséquent, en l'absence de datation précise nous retiendrons toutes les exploitations répertoriées comme des gîtes potentiels exploités en vue de fournir les sites archéologiques.

Les quatre ouvrages consultés sont des recueils modernes écrits et publiés par des professeurs, ingénieurs et scientifiques dont l'objectif principal était de dresser, comme le propose le Baron Philippe-Frédéric de Dietrich, un «état général » destiné -très probablement- à intégrer les ressources minérales disponibles au développement industriel de la France.

La « Description des gîtes de minerai de la Haute et Basse-Alsace » du Baron de Dietrich publiée en 1789 apporte de grandes précisions sur la situation géographique des gisements, le positionnement précis des filons, les associations de minerais et le rendement des gîtes minéralogiques. À cet inventaire détaillé s'ajoutent des remarques sur l'état des exploitations à la fin du XVIII^{e} siècle.

Bien que ces ouvrages fournissent des informations très détaillées sur le positionnement et l'orientation des filons (Delbos, 1867), nous ne retiendrons de ces indications, dans le cadre de cette présente étude, que la situation géographique des gisements au niveau communal et la sélection du type d'oxyde ou d'hydroxyde de fer présent dans les exploitations.

3. SITUATION GÉOGRAPHIQUE DES GISEMENTS

L'examen des sources écrites publiées et des sources numériques a permis de répertorier 145 gîtes d'hématite, de goethite et de limonite, inégalement répartis sur 90 communes de la région (Fig. 1).

Tandis que 22 gîtes sont recensées dans le Bas-Rhin (19 communes), 123 le sont dans le département du Haut-Rhin (71 communes). C'est aux deux extrémités du département du Haut-Rhin que l'on trouve le plus grand nombre de sites.

Les gîtes sont susceptibles de fournir une ou plusieurs types de roches riches en oxydes de fer. Cinq cas de figures sont disponibles dans les descriptions : hématite seule (62 gîtes), limonite seule (7 gîtes) ou trois types d'association : hématite+ goethite (29 gîtes), hématite+limonite (28 gîtes) et hématite+goethite+limonite (19 gîtes).

Les ressources minérales d'oxydes de fer sont nombreuses et concentrées dans des zones particulièrement complexes d'un point de vue lithologique. En effeAt, nous pouvons grâce aux cartes régionales (Fig. 1) visualiser 3 ensembles dont 2 dans le département du Haut-Rhin et 1 dans le département du Bas-Rhin. Le premier secteur, près de Thann, est situé sur la frange sud-ouest du département, à luest de Mulhouse et le second placé à environ 40 km au nord autour de Sainte-Marie aux Mines et Colmar. Le troisième secteur, en revanche, peu éloigné du deuxième, est plus étiolé et s'étend à proximité de la limite des deux départements, dans le Val de Villé.

Quatre communes bas-rhinoises, isolées, sont également concernées. Il s'agit, d'après Hammer (Hammer, 1826) des communes de Lembach et de Lampertsloch dans le nord du département qui possèdent un gîte chacune, Grandfontaine (au centre-ouest) où un gîte concentre

	nombre de gîtes	%	*nombre de communes*	%
Hématite	62	43	42	46
Limonite	7	5	7	8
Hématite, goethite	29	20	9	10
Hématite, limonite	28	19	24	27
Hématite, goethite, limonite	19	13	8	9

Tab. 1 – Tableau de répartition des oxydes selon le nombre de gîtes et le nombre de communes.

les 3 espèces et Frohmuhl (au nord-ouest) où un gîte d'hématite a été repéré.

C'est la première zone, au sud de la région, au contact des gisements de minerai de fer du Territoire de Belfort (Sévenans, Danjoutin, Châtenois-les-Forges,...), qui est la plus dense et la plus riche. Elle est constituée de 38 communes dont certaines ont été particulièrement exploitées. En effet, près de 58 % des gisements haut-rhinois se situent sur les bans communaux de Sewen, Bitschwiller-les-Thann, Urbès et Willer-sur-Thur. La zone centrale, composée de 33 communes, concentre sur les 3 communes de Sainte-Marie-aux-Mines, Soultzeren et Lautenbach plus de la moitié des gisements. C'est à Sainte-Marie-aux-Mines que nous observons la plus forte densité d'exploitations.

Dans le Bas-Rhin, la commune de Wisches est la seule qui fournit le plus grand nombre de gisements avec 4 filons enregistrés sur les 22 connus et exploités dans le département.

4. DESCRIPTION DES ÉCHANTILLONS ARCHÉOLOGIQUES DE MATIÈRES COLORANTES

Huit sites ont livrés des échantillons colorants. Il s'agit de 3 sites d'habitat sur la commune de Duntzenheim : *Schlitttweg, Weingartenberg* (La Tène ancienne) ; *Frauenabwand, Ebenheit, Duntzenheim nord* (Néolithique moyen) et *Weingarten* (Hallstatt C).

Le site d'Eckwersheim - *Burgweg Links, Spiessmatt,* à l'instar de ceux de Gougenheim et de celui d'Obernai est en revanche diachronique. Il a livré un échantillon extrait d'une structure liée à un habitat attribué à La Tène ancienne-moyenne et un échantillon découvert dans une aumônière liée à une sépulture mérovingienne (vers 600-650).

Les deux sites d'habitat de Gougenheim - *Gingsheimer Feld, Burgweg* et *Steinbrunnen*, diachroniques ont livré du matériel colorant extrait de structures du Néolithique récent et du Hallstatt C pour le premier et du Hallstatt D-La Tène ancienne pour le second.

Ces périodes sont également présentes sur le site diachronique d'Obernai-*PAEI* où une sépulture, datée du Néolithique moyen, a livré un échantillon colorant déposé sur le poignet droit et un échantillon sur la partie laténienne (La Tène finale) d'un habitat.

Enfin, la fouille du site de Schnersheim - *ZA Behlenheimerweg* (site d'habitat) a permis de découvrir un exemplaire dans une structure datée du Hallstatt C-D.

La constitution de ce corpus est donc l'occasion d'émettre quelques recommandations concernant le nettoyage et le conditionnement. Ces pièces, souvent fragiles, nécessitent en effet une attention particulière. Le passage à l'eau et le nettoyage systématique à l'aide de brosses, mêmes souples, est à proscrire. Les traces de brosses à dent visibles sur de nombreux échantillons en témoignent (Fig. 2). Une observation préalable de l'état de la surface et de la tenue de la pièce permettent d'adapter le nettoyage, et autorisent, pour les pièces les plus solides, un passage sous l'eau courante afin d'enlever le sédiment. Un conditionnement adapté est également indispensable : isoler ces pièces fragiles et de petite taille dans des sacs individuels et des boîtes les préservent des écrasements et d'éventuels

frottements avec d'autres objets. Un calage, avec du papier-bulles par exemple, contribue également à prévenir des altérations, notamment celles causées par des contacts avec d'autres objets.

Une fois nettoyé et conditionné de manière optimale l'échantillon intègre le même inventaire que celui utilisé pour tout autre mobilier archéologique. Les rubriques retenues pour inventorier chaque pièce sont d'ordre contextuel, morphologique et colorimétrique. Cet inventaire est proposé en fin d'article.

Un code colorimétrique affine l'ensemble. Ne souhaitant pas endommager les échantillons en vue d'obtenir un extrait poudreux significatif ou une trace de couleur de chaque objet nous avons déterminé cette dernière par son aspect extérieur. Pour cela nous avons utilisé le système d'identification colorimétrique Munsell® (*Munsell soil color charts*). Ce système permet d'obtenir facilement un comparatif chromatique en s'affranchissant des problèmes optiques liés aux écrans informatiques.

Les couleurs les plus fréquemment observées sont associées à la dixième nuance de la base rouge sombre (10R 3/4) : sept pièces portent cette teinte.

Les surfaces actives des 5 outils lithiques potentiellement associés à la transformation des oxydes de fer sont également caractérisées par une teinte Munsell®. Ces dernières sont également rougeâtres (10R 3/6).

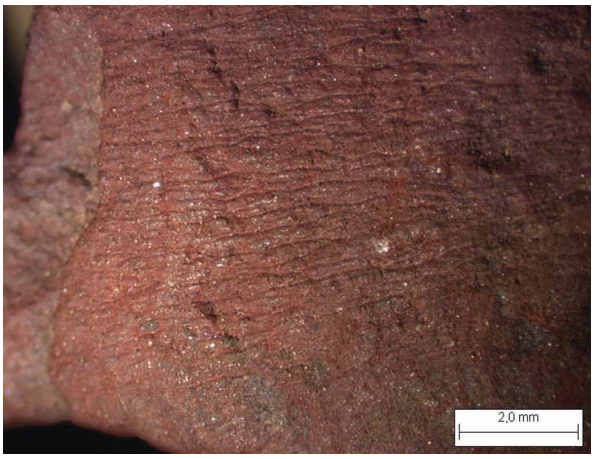


Fig. 2 – Traces de brosse à dent sur un échantillon archéologique. Photographie : F. Jodry, Inrap GES.

Sur les 20 pièces que comporte l'inventaire proposé, seules 7 pièces présentent des traces d'action anthropiques. Les 13 autres objets sont des fragments et éclats ne comportant aucune trace significative apparente et n'ayant aucune forme témoignant en faveur d'un geste ou d'une activité particulière. Ils proviennent des sites de Duntzenheim-*Schlittweg, Weingartenberg*; *Frauenabwand, Ebenheit* et *Weingarten*, Eckwersheim-*Burgweg Links, Spiessmatt*, Gougenheim-Gingsheimerfeld, Burgweg et Steinbrunnen, Obernai-*PAEI*. Ces échantillons sont des fragments bruts ou des éclats polyédriques dont la masse est comprise entre 0,6 et 6,4 g et dont les dimensions ne dépassent pas 3,5 cm de longueur et 2,5 cm de largeur.

L'éventail chromatique est associé aux rouges et est compris entre 10R 3/3 et 3/6 avec une légère nuance jaune pour les deux pièces 5301-RXX-2003-001 et 5236-RLT-2021-002 dont les teintes sont respectivement de 2,5YR 5/8 et de 7,5YR 4/6.

Les sept pièces remarquables retenues pour la forme globale significative de l'objet ou la présence de traces striées d'abrasion proviennent des sites de Duntzenheim-*Frauenabwand, Ebenheit*, Eckwersheim - *Burgweg Links, Spiessmatt*, Gougenheim-*Gingsheimerfeld, Burgweg*, Schnersheim - *ZA Behlenheimerweg* et Obernai-*PAEI*.

Il s'agit des pièces 5403-RLT-2038-23 (Fig. 3, Fig. 4), 5301-1061-7 (Fig. 5), 5236-RLT-1051-1 (Fig. 6, Fig. 7), 5236-RLT-2045-1-1 (Fig. 6, Fig. 8, Fig. 9), 5236-RLT-2045-1-2 (Fig. 6, Fig. 10), sd28-23-11 (Fig. 11, Fig. 12) et 6012-RXX-4699-1 (Fig. 13).

4.1. Description des pièces

Ces échantillons peuvent être classés en trois catégories morphologiques dont la première peut être globalement intégrée dans une forme pyramidale (5301-1061-7, 6012-RXX-4699-1 et sd28-23-11) et la deuxième dans une forme géométrique allongée en bâtonnet (5236-RLT-2045-1-1). La dernière catégorie ne présente pas de forme particulière puisqu'il s'agit d'un bloc polyédrique, aplati ou arrondi (5403-RLT-2038-23, 5236-RLT-1051-1 et 5236-RLT-2045-1-2). Leurs masses sont

comprises entre 2,4 g (5236-RLT-2045-1-2) et 46,5 g (5403-RLT-2038-23) sans qu'il existe une forme particulière associée. Les formes pyramidales sont soit légères (7 g pour l'échantillon sd28-23-11) ou plus lourdes (42 g pour la pièce 6012-RXX-4699-1). Il en est de même pour les blocs polyédriques dont la masse oscille entre 3,1 g (5236-RLT-1051-1) et 46,5 g (5403-RLT-2038-23).

Les dimensions en revanche restent dans une fourchette moins étendue puisqu'elles sont comprises entre 1,9 et 4 cm de longueur et entre 0,9 et 3,5 cm de largeur.

4.2. Colorimétrie des pièces

La teinte générale de ces pièces est 10R 3/3 (sd28-23-11), 10R 3/4 (5403-RLT-2038-23, 5236-RLT-1051-1 et 5236-RLT-2045-1-2 et 6012-RXX-4699-1) et 2,5YR 4/8 (5301-1061-7).

La teinte la plus fréquente (10R 3/4) est relevée sur des pièces provenant de deux sites très proches (Duntzenheim et Gougenheim) dont les phases chronologiques appartiennent au Néolithique moyen ou au Hallstatt C. En revanche les deux autres teintes 10R 3/3 et 2,5YR 4/8 ont été

Fig. 3 – Échantillon 5403-RLT-2038-23. Photographie : F. Jodry, Inrap GES.

Fig. 5 – Échantillon 5301-1061-7. Photographie : J. Kohl, Inrap GES.

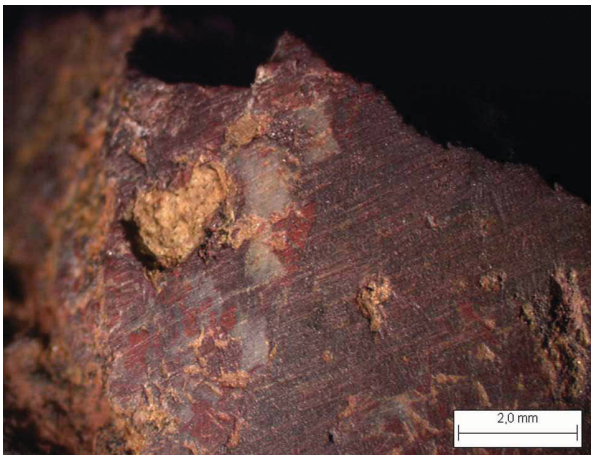


Fig. 4 – Échantillon 5403-RLT-2038-23, détail. Photographie : F. Jodry, Inrap GES.

Fig. 6 – Échantillons de Duntzenheim-*Frauenabwand*. Photographie : J. Kohl, Inrap GES.

enregistrées sur deux pièces pyramidales découvertes à Eckwersheim et Schnersheim, deux sites d'importation dont les phases chronologiques sont différentes. En effet, tandis que la teinte 10R 3/3 (teinte proche de 10R 3/4) est observée sur la pièce sd28-23-11 datée du Hallstatt C-D, la teinte 2,5YR 4/8 (unique dans notre ensemble) est enregistrée sur un échantillon découvert dans une sépulture attribuée à la période mérovingienne.

4.3. Description des traces observées

Les stries les plus fréquemment observées sont des traces unidirectionnelles au sein de facettes bien marquées. Celles-ci appartiennent indépendamment à un bloc polyédrique, une forme pyramidale ou un bâtonnet.

En revanche deux pièces (5403-RLT-2038-23 et 5236-RLT-2045-1-2) appartenant respectivement à une structure du Néolithique moyen et du Hallstatt C, comportent des traces multidirectionnelles. Il s'agit de deux blocs polyédriques dont les faces sont marquées par des amas croisés de stries parallèles.

En résumé, trois formes peuvent être distinguées : bloc polyédrique, bâtonnet et pyramide. Chacune de ces formes ne peut être associée ni à une masse, ni à une dimension ou à une cou-

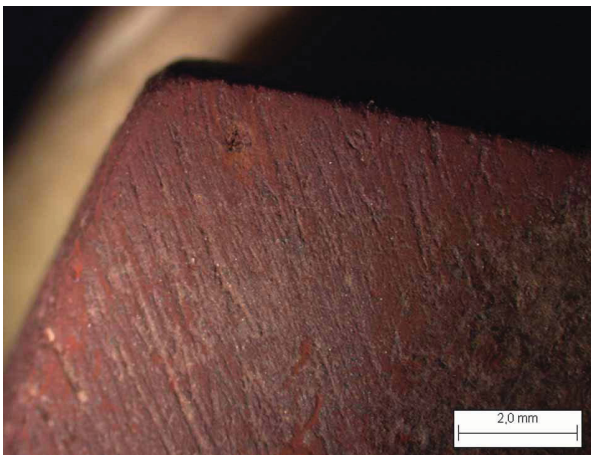


Fig. 7 – Échantillon 5236-RLT-1051-1, détail. Photographie : F. Jodry, Inrap GES.

Fig. 8 – Échantillon 5236-RLT-2045-1-1, détail. Photographie : F. Jodry, Inrap GES.

Fig. 9 – Échantillon 5236-RLT-2045-1-1. Photographie : F. Schneikert, Inrap GES.

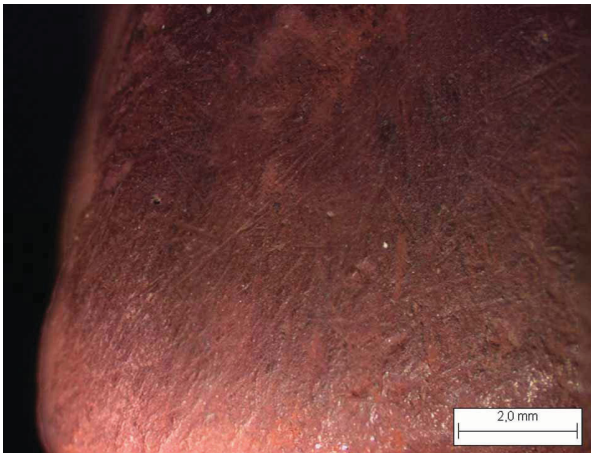


Fig. 10 – Échantillon 5236-RLT-2045-1-2, détail. Photographie : F. Jodry, Inrap GES.

Fig. 11 – Échantillon sd28-23-11. Photographie : J. Kohl, Inrap GES.

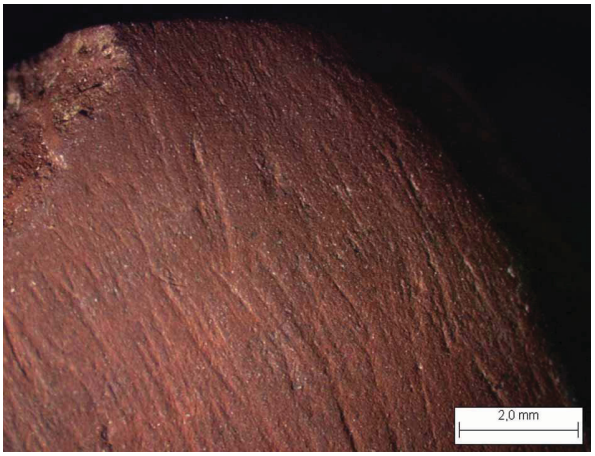


Fig. 12 – Échantillon sd28-23-11, détail. Photographie : F. Jodry, Inrap GES.

leur particulière. Il semblerait cependant qu'une couleur (10R 3/4) soit récurrente pour la période Hallstatt C, comme le montrent 5 échantillons sur 7. Cette observation correspond bien à la recherche d'un standard colorimétrique lié à la production d'une céramique fine et peinte de qualité pour laquelle un soin particulier est apporté.

Par ailleurs, les stries observées, que ce soit par leur orientation ou leur morphologie, ne peuvent pas être mises en relation ni avec la forme du bloc, ni avec une masse ou des dimensions particulières. De manière empirique on peut néanmoins énoncer l'hypothèse de l'utilisation des bâtonnets pour marquer directement un support, la précision du geste étant plus importante, plutôt que pour réduire la matière en poudre. L'utilisation de l'hématite sous cette forme correspondrait mieux à l'usage que l'on pourrait faire des blocs de forme plus grossière.

5. DESCRIPTION DES OUTILS POTENTIELLEMENT ASSOCIÉS À LA TRANSFORMATION DES OXYDES DE FER

Au Néolithique moyen, sur le site de Duntzenheim-*Frauenabwand*, le grès grossier et fin est la seule roche importée. Le matériel extrait dans

Fig. 13 – Échantillon 6012-RXX-4699-1. Photographie : J. Kohl, Inrap GES.

les structures de rejet suggère une activité liée à la mouture et/ou au polissage. La présence d'un fragment de molette en grès fin (5403-RLT-1068-2, Fig. 14), dont la surface active est teintée de rouge, nous conduit à envisager une activité liée à l'élaboration de produits colorants. Trois bords de cette pièce sont conservés. La surface active, plano-concave, est densément piquetée et colorée de rouge sur la zone centrale.

Fig. 14 – Échantillon 5403-RLT-1068-2. Photographie : F. Jodry, Inrap GES.

Fig. 15 – Échantillon 5403-RLT-1096-3. Photographie : J. Kohl, Inrap GES.

Sur ce même site, un petit galet de quartzite a été découvert (5403-RLT-1096-3, Fig. 15). Celui-ci est allongé et brisé à une extrémité. La zone intacte est marquée par une surface rougeâtre qui se développe également sur le flanc de ce petit percuteur.

Dans la même commune, un fragment de galet quartzique (5138-RLT-11-28,Fig. 16) retient également notre attention non seulement par la zone latérale facettée ayant probablement servie de boucharde mais aussi par la surface active plano-concave située à l'opposé. Ce méplat très lisse à l'aspect lustré et caractérisé par une auréole périphérique rougeâtre témoigne en faveur d'une activité de broyage de substance colorante.

Sur le site de Sarrewerden, un autre petit percuteur (5680-RLT-1007-1,Fig. 17) a été mis au jour. Il s'agit d'un galet de quartzite piriforme dont une petite partie de la base est brisée et martelée. Deux traces rougeâtres se distinguent en bordure de cette zone de frappe.

Après ces quatre pièces actives une dernière, dont la fonction passive est indéniable, permet d'apporter des précisions sur la méthode de transformation des matières tinctoriales. En effet, le diagnostic archéologique de Schnersheim-*Behlenheimerweg* a permis de découvrir dans une fosse un gros galet roulé de grès fin (sd28-16-2, Fig. 18 et Fig. 19) de plus de 49 kg. Toutes les faces semblent naturelles à l'exception de son plan de fracture qui constitue la surface active.

Fig. 16 – Échantillon 5138-RLT-11-28. Photographie : F. Jodry, Inrap GES.

Cette surface présente un pendage important d'environ 35°.

Cette face très lisse présente des traces colorées nous permettant d'identifier 8 secteurs de frottements. Ces zones rougeâtres que nous pouvons distinguer à l'œil nu nous indiquent que des échantillons d'oxydes de fer d'une largeur comprise entre 2 et 4 cm ont été frottés sur la pierre selon un axe convergent vers un point bas de la surface active.

6. L'UTILISATION DES COLORANTS : L'HYPOTHÈSE DE LA CÉRAMIQUE PEINTE À LA PROTOHISTOIRE

Lors de la découverte de restes d'oxyde de fer, l'idée la plus communément admise, est que leur présence, peut être mise en relation avec la production de vaisselle peinte en rouge. Il s'agit là d'une assertion, que la bibliographie ne fait pas apparaître et qui n'est pas confirmée par des analyses systématiques.

Mais dans les faits, s'agit-il d'une évidence ou bien d'une idée préconçue ? Il n'existe, en effet pas de sites fouillés susceptible de mettre en évidence l'association de présence d'oxydes de fer, d'outils de transformation de ces oxydes, de ratés de cuisson, de structures de combustion liées à une cuisson céramique et ce, pour une même période chronologique. De même, pour ce premier état des lieux sur le sujet, le croisement des données sur les gisements d'approvisionnement avec les sites fouillés, ayant livré du mobilier peint en rouge, n'apparaît pas comme concluant.

Sur le site de Schnersheim-*Behlenheimerweg*, la présence d'oxydes de fer et d'outils de transformation ne va pas de paire avec la mise en évidence d'une production sur place de céramique peinte. Cependant, les découvertes réalisées, l'ont été dans un contexte d'archéologie préventive, avec des contraintes de prescription et donc sur une zone restreinte. La mise en évidence d'aires de production de céramique à la protohistoire ancienne est quasiment nulle dans le Nord-Est de la France, exception faite du site de Florange (Moselle). Il n'existe par ailleurs pas de travail de synthèse sur cette thématique, pour cette période. D'après les études ethnologiques et les synthèses portant sur d'autres périodes, la compilation de plusieurs critères peut mener à suspecter la présence effective d'une production intra-situ (ratés de cuisson ; sur-représentation de certains types morphologiques ; vases entiers ou peu fragmentés, déformés ; éléments de four ; outils liés à la finition ou la réalisation de décors ; matières autres que l'argile, pouvant servir à agrémenter un décor).

L'horizon chronologique de ce site (Ha C2-D2), ne voit plus la présence de céramique polychrome mais de céramique de type Alb-Hegau. Cette production céramique nécessite un investissement de temps et un vrai savoir faire. Les occurrences attestées sont très peu nombreuses et traduisent plutôt un phénomène d'importation sur le site.

Fig. 17 – Échantillon 5680-RLT-1007-1.
Photographie : J. Kohl, Inrap GES.

Fig. 18 – Échantillon sd28-16-2.
Photographie : F. Schneikert, Inrap GES.

Sur la commune de Duntzenheim, plusieurs opérations ont été menées et quasiment tout l'horizon chronologique, compris entre le début du Hallstatt et la fin de celui-ci, est avéré et pourtant, la céramique peinte en rouge et ses variantes s'illustre par son absence (Fouille de Duntzenheim « Weingarten » et fouille de Duntzenheim « Frauenabwand-Ebenheit ».

Les traces de peinture rouge sur céramique remontent au Néolithique (Maitay, 2010). Dans notre région, c'est à la protohistoire, que les attestations de céramique peinte en rouge sont les plus importantes (nous ne parlons pas ici de la fin de La Tène). Cette observation peut être attribuée à un phénomène de mode et très probablement, à une meilleure conservation des récipients de cet horizon chronologique. Dans l'Est, c'est tout d'abord le recours à une peinture graphitée qui est privilégiée dès le Bronze final IIb. Au Bronze final IIIb, la peinture rouge y est finalement associée (céramique dite « polychrome »). Ce recours à la peinture rouge seule existe peut-être dès le Bronze final IIIa, comme a pu le mettre en évidence le travail de maîtrise de Muriel Mombert-Rohmer (Mombert-Rohmer, 1993), sur le site de Ensisheim. La céramique polychrome est abondante au début du Hallstatt mais il existe une grande différence dans l'application de ce « revêtement » entre la fin du Bronze final et durant le Hallstatt C (Michler & van Es, à paraître), dans le geste technique en lui-même. Si au Bronze final IIIb, les peintures rouge et graphitée sont appliquées par juxtaposition, ce n'est plus le cas au Hallstatt, durant lequel, la peinture graphitée est appliquée en superposition sur la peinture rouge. Le degré de technicité, induit par la mise en réserve des espaces à recouvrir, se perd au Hallstatt C et c'est alors le registre décoratif, qui se complexifie, dégagé de la contrainte technique, qui a été solutionnée, par le recours à un aplat couvrant et uniforme de peinture rouge. Cette modification dans le mode opératoire, ne permet plus d'être certain des proportions de céramique à peinture rouge et de céramique polychrome pour le Hallstatt C, même si cette dernière, apparaît comme majoritaire dans les corpus connus. À la fin du Hallstatt C, durant le Hallstatt D1-D2, la peinture rouge est associée à d'autres matières et d'autres techniques décoratives, il s'agit de la céramique de type Alb-Hegau. Quelques exemplaires, de récipients peints en rouge et datant de la fin du Hallstatt, nous sont parvenus mais restent très anecdotiques. Une disparition, dans le recours à la peinture rouge, s'observe dans les corpus de la toute fin du Hallstatt et du début de La Tène ancienne. Contrairement aux régions voisines, la peinture ne connaîtra plus le succès, qui fut le sien, avant longtemps. Dans le courant du Hallstatt C, le graphite semble reprendre une plus grande importance, avant de disparaitre à son tour au tournant du Hallstatt D1-D2. À La Tène, l'exubérance décorative n'est pas de mise et le choix se porte sur des productions plus sobres mais issues de l'acquisition d'une nouvelle technologie (le tour). Comment ne pas voir, derrière ces effets de mode, qui sont marqués par des frontières, le reflet de réseaux de circulation et d'échanges ?

6.1. Une histoire de mode et de rendu

Ces fluctuations, dans le répertoire décoratif peint en rouge, entre la fin de l'âge du Bronze et la fin du Hallstatt, s'accompagnent d'une grande variabilité, quant au rendu de la peinture. Des nuances de couleur, de texture, d'épaisseur ou encore dans l'orientation de l'application, sont observables. S'agit-il alors, de plusieurs matières premières ou bien est-il question, de différences dans la préparation de la matière colorante, dont l'appellation de peinture est très certainement le plus souvent incorrecte. Rien n'empêche que ces deux hypothèses se rejoignent dans certains cas. En l'état actuel de nos connaissances, nous ne sommes pas en mesure de dire, si les nuances dans le rendu de la couleur sont dues au choix de la matière première ou à sa provenance géographique.

6.2. Une question de caractérisation

En Alsace, la question d'analyses, sur les peintures rouges et/ou graphitées, est régulièrement soulevée mais pas ou très peu mise en œuvre. De même que, lorsqu'un travail de coloration des surfaces céramique est évoqué, il n'est alors question, que d'hématite, sans plus de vérification. Il en va de même pour la notion de peinture qui est le plus souvent utilisée pour traduire le recours au rouge. Aucune précision n'est apportée quant au mode d'induction pratiqué (peinture, engobe, barbotine) et le terme technique de peinture est systématiquement retenu. Pour le recours au graphite, qui peut-être associé à la couleur rouge, le mode opération n'est même pas sous-entendu

par le terme de peinture mais juste par le matériau utilisé (céramique graphitée, au graphite, graphitage). Il apparaît donc qu'aucune analyse ne vient confirmer qu'il s'agit bien de peinture et que le recours à l'hématite est en effet pratiqué.

Ces dernières années, de nouvelles fouilles ont permis la mise en évidence de corpus céramique supplémentaires pour le Hallstatt C, comprenant de la céramique peinte, en plus grande quantité et plus systématiquement. Pour le Bronze final IIIb, le site du Hexenberg, fouillé par Marina Lasserre reste le site de référence sur la céramique peinte en rouge et polychrome (Jodry & Duringer, à paraître). De même, le recours à un pigment rouge, pour la décoration de céramique dite « de qualité » n'est plus exclusif. Plusieurs attestations confirment la volonté de recouvrir certaines parties de pots de stockage, de jarres, en-

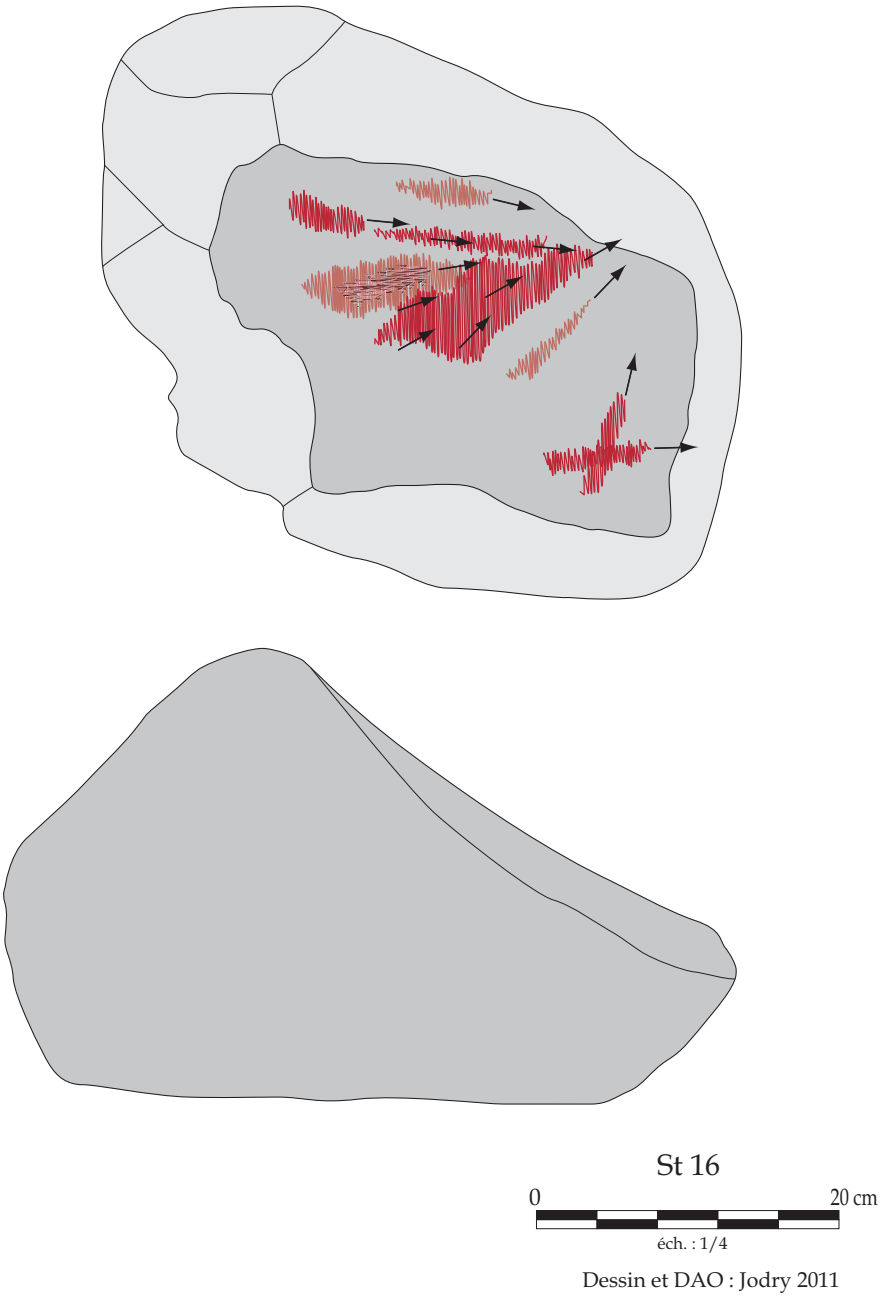


Fig. 19 – Bloc de frottement sd28-16-2. Dessin et DAO : F. Jodry, Inrap GES, 2011.

tre la fin du Hallstatt C et le Hallstatt D1. Ce mode opératoire s'observe aussi avec le graphite.

Le graphite est le plus souvent lié à cet ajout de rouge (chronologie, association, même formes, même pratiques particulières). Si un travail doit être initié sur la caractérisation de cette matière rouge, que l'on assimile à l'hématite, peut-être faudrait-il coupler en parallèle ces observations avec d'autres, portant sur le graphite. Cela serait même indispensable, étant donnés les « mélanges », qui sont faits, entre peinture noire, graphitée et micacée (Maitay, 2010 ; Roulière-Lambert, 1983).

La découverte de ces nouveaux corpus et les observations qui en découlent, survient dans un contexte plus propice, à définir un protocole d'échantillonnage sur la céramique peinte, en vu d'analyses de caractérisation. Les collections, sont en effet, plus accessibles, les inventaires plus complets et les conditions de conservation, depuis le lavage, jusqu'au stockage, permettent une meilleure conservation du derme des vases.

6.3. État de la question

Il existe peu d'analyses sur la céramique peinte et dans ce contexte, le travail de thèse de Christophe Maitay, publié en 2010 (Maitay, 2010 : 121-125), est peut-être le seul à dresser un bilan sur cette question au sein d'un corpus peint sur plus de 500 ans. L'aire géographique concernée (Centre-Ouest et Ouest de la France) peut apparaître déconnectée de la notre mais de nombreux points communs se dégagent, de ses observations et résultats. Après des analyses physico-chimiques et pétrologiques, il apparaît que la conservation de pigments naturels n'est pas attestée. Différentes hématites, rouge et brune, et une association avec de la goethite ont pu être mises en évidences. Les variations dans le rendu chromatique peut dépendre le la proportion des oxydes de fer engagés mais également du procédé de cuisson. L'effet peut même être modulé ou non, selon la charge en oxydes de fer, naturellement présente dans la pâte mais également par un finition particulière (lustrage, polissage, application avant ou après cuisson). Enfin, selon les conditions d'enfouissement des restes peints, dans le cas de l'utilisation de goethite, sa transformation en hématite est avérée. L'auteur revient sur la dénomination du mélange coloré, qui enduit les vases et parle d'engobe pour les aplats couvrants et uniforme alors que, dans le cas de décors par rehauts, il évoque le terme de peinture.

7. Conclusion

Les sites de consommation sont relativement éloignés des gisements potentiels. Nous ne pouvons préciser si le circuit d'importation est un circuit privilégié ou si ce dernier se compose d'autres matières premières ou d'autres produits finis.

Nous pouvons dans ce cas suggérer 3 types de modes d'approvisionnement :

1. Dans cette première hypothèse, les sites de consommation profitent d'un circuit existant pour importer un des 3 types d'oxydes de fer concernés sans perception de qualité. C'est le cas notamment d'un schéma d'importation d'échantillons colorants en complément de matières lithiques. Nous pouvons également proposer le circuit inverse dans lequel les échantillons colorants constituent la matière principale importée. Les autres matières premières ou autres produits de consommation demandés bénéficiant des trajectoires déjà implantées.
   L'emplacement de la plupart des gisements potentiels d'oxydes de fer peut être en effet lié à la variété et la complexité lithologique des Vosges cristallines. Néanmoins, quelques gîtes restent liés aux Vosges gréseuses, notamment dans le nord et l'ouest du département du Bas-Rhin (Fig. 20). Globalement les sites de consommation sont implantés à une distance qui oscille entre 20 km (sites d'acquisition bas-rhinois) et 110 km à vol d'oiseau (sites d'acquisition haut-rhinois).
   Tandis que le premier ensemble géographique se confond quasiment avec les affleurements de granite et rhyolite le second se développe sur des secteurs où le granite côtoie les gneiss.
   Toutefois, certaines communes ne sont pas assises sur des réseaux de roches magmatiques et métamorphiques mais sur des affleurements gréseux ou argileux. Il s'agit des secteurs bas-rhinois comme Wangenbourg-*Egenthal* à l'ouest du département ou du secteur nord avec les communes de Lembach et Lampertsloch.

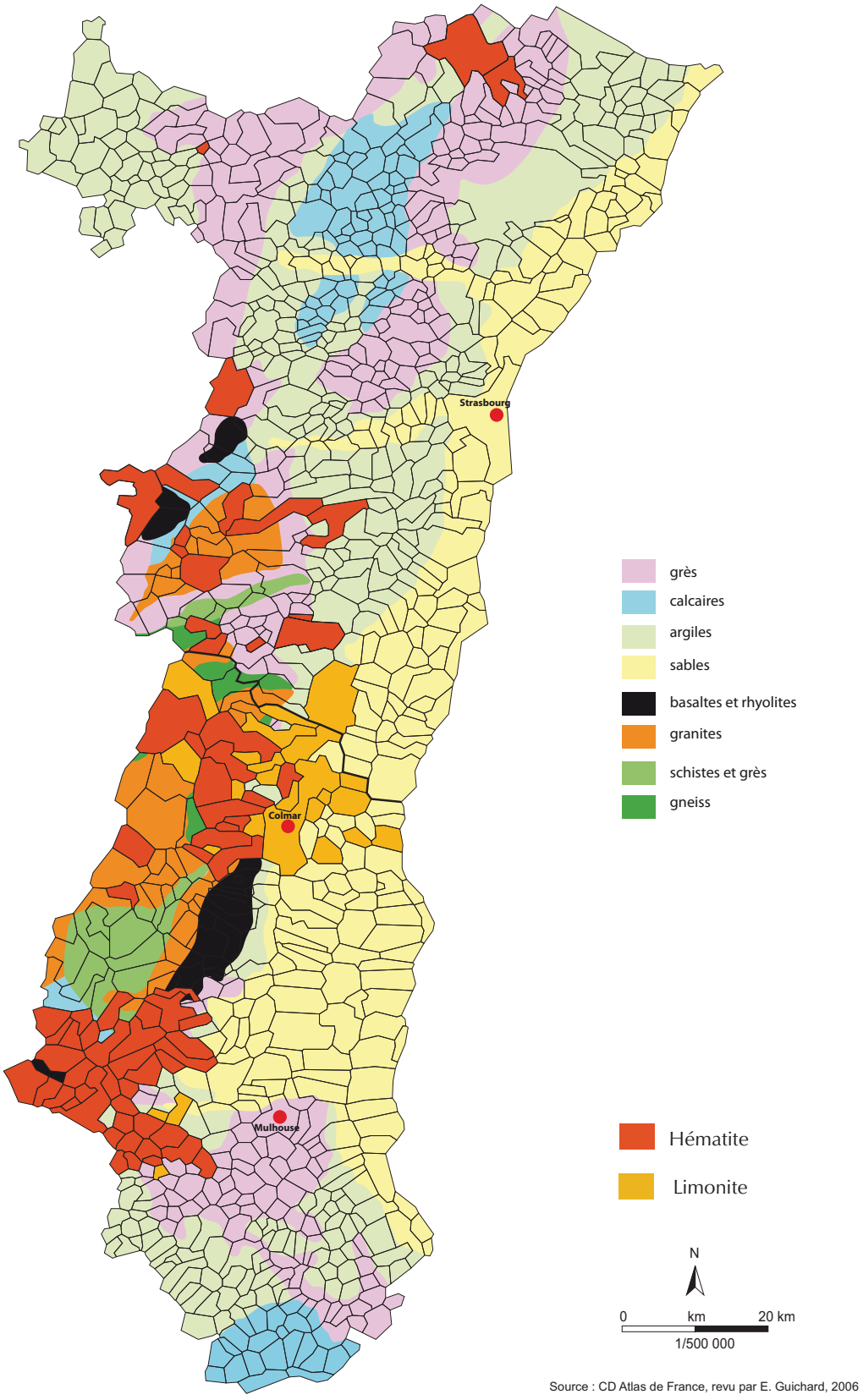


Fig. 20 – Carte de répartition des gisements d'oxydes de fer en Alsace sur fond de carte lithologique. DAO : P. Girard et F. Jodry, Inrap GES.

Les roches mentionnées, pouvant servir de support aux filons d'oxydes et hydroxydes de fer, ont été également exploitées aux périodes concernées par les matières colorantes. Il s'agit majoritairement du grès, du granite, de la rhyolite et du gneiss (Jodry & Carzon, 2012), exploités du Néolithique au second âge du Fer pour la fabrication d'outils de mouture et de broyage.

2. Dans cette deuxième hypothèse la ressource locale est essentiellement prise en compte. En somme les populations établies sur les sites cherchent les espèces minérales au plus près de leurs lieux d'implantation. Cette hypothèse peut envisager par exemple que les populations des sites de Duntzenheim, Gougenheim ou Schnersheim se déplacent en direction de l'ouest sur le gîte de la commune de Wangenbourg-*Egenthal* éloigné d'une vingtaine de kilomètres à vol d'oiseau.

3. La troisième hypothèse suggère que le déplacement des populations en direction des ressources minérales est guidé par la recherche d'une qualité particulière de matériau. Dans ce cas, l'utilisation l'une ou des trois matières minérales possède une forte valeur ajoutée qui nécessite un déplacement vers une ressource locale ou en direction d'un gisement plus éloigné.

En résumé nous pouvons mettre en valeur trois schémas dont le premier est une acquisition de matière colorante associée à un autre matériau minéral. Les circuits d'acquisition peuvent être dans ce cas proches ou éloignés, c'est-à-dire entre 20 et 110 km à vol d'oiseau. Une deuxième hypothèse tend à montrer que le choix du colorant peut se faire indépendamment de l'importation d'autres matériaux et ce au plus près des sites d'exploitation, c'est-à-dire à une vingtaine de kilomètres de distance.

La dernière hypothèse fait écho à la deuxième en proposant un schéma d'importation de matière colorante de qualité mais à une distance qui reste inconnue.

Au travers de ce rapide tour d'horizon, nous avons pu voir, que la réflexion sur l'utilisation ou non d'hématite pour la finition décorative n'est pas nouvelle mais qu'elle reste ponctuelle. Cette dernière a tout de même évolué, nous faisant peut-être sauter une étape trop vite, puisque aujourd'hui nous en sommes à tenter de lier les gisements d'hématite et une possible production de céramique peinte, sans toujours savoir la nature du pigment utilisé.

Les nouveaux corpus, leur étude quantifiée, leur répartition géographique, en parallèle de ce bilan sur l'hématite même, devrait nous permettre de pouvoir dépasser certaines incertitudes ou inconnues et en cela, un travail parallèle sur le graphite, nous permettrait de mieux comprendre si, la population privilégie un approvisionnement local ou bien s'il adapte son investissement en rapport, à la spécificité d'un matériau, qu'il s'agisse de sa qualité, de ses propriétés physiques (part de la tradition et du phénomène de mode à inclure dans la réflexion).

Grâce aux découvertes faites dans le cadre de l'archéologie préventive et l'avancement de synthèses typologiques (Adam, 2005 ; Adam *et al.*, 2011), nous sommes enfin en mesure de mieux choisir nos échantillons, sans plus devoir se cantonner, à quelques individus conservés en musée ou bien issu de contextes funéraires. L'étude de la caractérisation des minéraux utilisés dans la production de la céramique peinte n'apparaissant pas aujourd'hui prioritaire dans un contexte préventif. D'autres analyses sont privilégiées durant la phase de post-fouille et il faudrait trouver un autre cadre pluridisciplinaire.

Dans cette rapide présentation, nous avons évoqué la question de la céramique peinte. Nous n'avons naturellement pas évoqué toutes les autres utilisations possibles, attestées dès le Paléolithique, celles reconnues, découvertes en fouille, supposées par comparaison avec l'ethnologie, telles que les tatouages corporels, les besoins en cosmétique, les motifs vestimentaires, la peinture sur bois et autres restes organiques, non conservés ou sur les éléments sculptés mais également dans l'architecture des maisons.

Remerciements

Nous remercions les responsables d'opération des sites concernés par cette étude et Gilles Fronteau-GEGENAA pour nous avoir offert l'accès au laboratoire d'imagerie.

Bibliographie

ADAM A.-M. (dir.), 2005. Recherches de Protohistoire alsacienne : la céramique d'habitat du Bronze final III à La Tène ancienne. *Revue archéologique de l'Est*, supplément **23** : 290 p.

ADAM A.-M., DEFRESSIGNE S., KOENIG M.-P., LASSERRE M. et coll., 2011. La céramique d'habitat du Bronze final IIIb à La Tène A en Alsace et en Lorraine : essai de typo-chronologie. *Revue archéologique de l'Est*, supplément **29** : 344 p.

DAUBRÉE A., 1852. *Description géologique et minéralogique du département du Bas-Rhin.* Strasbourg, E. Simon : 501 p.

DE DIETRICH Ph.-F., 1789. *Description des gîtes de minerai de la Haute et Basse-Alsace.* Strasbourg, Treuttel : 417 p.

DELBOS J., 1867. *Description géologique et minéralogique du département du Haut-Rhin.* Mulhouse, Perrin, **1** : 547 p.

HAMMER F.-L., 1826. Minéralogie du département du Bas-Rhin. *Journal de la Société des Sciences, Agriculture et Arts, du département du Bas-Rhin* : 281-309.

JODRY F. & CARZON J.-L., 2012. De la roche à l'outil : les matières premières lithiques en Alsace du Néolithique à La Tène finale. Premiers résultats. *Cahiers Alsaciens d'Archéologie, d'Art et d'Histoire*, **55** : 11-26.

JODRY F. & DURINGER Ph., à paraître. Les matières premières lithiques, les circuits d'approvisionnement et l'emploi des outils lithiques sur le site du Hexenberg. *In* : M. LASSERRE (dir), *L'occupation du Hexenberg à Leutenheim*.

MAITAY Ch., 2010. *Les céramiques peintes préceltiques : la peinture sur vases aux âges des métaux dans l'ouest de la France.* Presses Universitaire de Renne, Archéologie et culture, Rennes : 245 p., 200 fig., XLVIII pl.

MICHLER M. & VAN ES M., à paraître. La céramique polychrome au Bronze final IIIb. In : M. LASSERRE (dir), *L'occupation du Hexenberg à Leutenheim*.

MOMBERT-ROHMER M., 1994. *Contribution à l'étude du faciès haut-rhinois du Bronze Final : les fosses 56 (Colmar) et 36 (Ensisheim).* Maîtrise dactylographiée d'Histoire de l'Art et d'Archéologie, juin 1993, Strasbourg, sous la direction de A.-M. Adam et X. Lafon : 108 p.

ROULIÈRE-LAMBERT M.-J., 1983. *La céramique dite graphitée dans son contexte : le premier Âge du Fer dans le Massif-Central. Besançon*. Université de Franche-Comté, Thèse de 3e cycle, 3 vol.

Adresses des auteurs :

Florent JODRY
Delphine MINNI
Marieke VAN ES
INRAP
Centre Archéologique de Strasbourg
10, rue d'Altkirch
67100 Strasbourg (France)
florent.jodry@inrap.fr
delphine.minni@inrap.fr
marieke.van-es@inrap.fr

Commune	*Lieu-dit*	*N° d'inventaire*	*Masse (gr)*	*Description*	*Couleur*	*L. (cm)*	*l. max. (cm)*	*ép. max. (cm)*
Duntzenheim	Schlitttweg, Weingartenberg (LGV site 8-2)	5291-RLA-0123-004-001	2,3	Éclat polyédrique brut, sans traces.	10R3/6	2,1	1,7	1
Duntzenheim	Schlitttweg, Weingartenberg (LGV site 8-2)	5291-RLA-0061-002	4,5	Éclat brut sans traces.	10R3/4	3,5	2,5	1
Duntzenheim	Frauenabwand, Ebenheit, Duntzenheim nord, stockage 2	5403-RLT-1041-2	0,6	Éclat polyédrique. Micro-stries parallèles non identifiées.	10R3/4	1,5	0,7	0,6
Duntzenheim	Frauenabwand, Ebenheit, Duntzenheim nord, stockage 2	5403-RLT-1068-2	924	Fragment de molette en grès fin conservée sur trois bords. La surface active est plano-concave et densément piquetée. Une partie de la surface active est colorée par une coloration rougeâtre.	10R3/6	13,8	13,1	5,4
Duntzenheim	Frauenabwand, Ebenheit, Duntzenheim nord, stockage 2	5403-RLT-1096-3	315	Galet de quartzite allongé brisé à une extrémité. L'autre extrémité est intacte. La partie brisée présente une arête circulaire dont une portion est émoussée. La zone intacte est marquée par une surface rougeâtre qui se développe également sur le flanc.	10R3/4	6,6	6	5,1
Duntzenheim	Frauenabwand, Ebenheit, Duntzenheim nord, stockage 2	5403-RLT-2038-14	6,4	Lot de trois blocs polyédriques bruts sans traces.	10R3/6			
Duntzenheim	Frauenabwand, Ebenheit, Duntzenheim nord, stockage 2	5403-RLT-2038-23	46,5	Bloc fracturé, aux arêtes vives et à la surface active convexe, marquée par un réseau de micro-stries multidirectionnelles, organisées en amas. Bloc composé de quartz à 80%, teinté d'oxydes de fer.	10R3/4	4	3,5	2,7
Duntzenheim	Weingarten	5491-RLT-2002-001	3,2	Bloc brut sans traces (sauf celles d'une brosse à dent).	10R3/3	2,3	1,4	0,9
Duntzenheim	LGV 2 Zones de stockage et de chantier	5138-RLT-11-28	228	Fragment de galet quartzique. Une zone latérale facettée ayant probablement servie de boucharde. Surface active plane située à l'opposé des surfaces facettées. Ce méplat est constitué par une zone lisse à l'aspect lustré et caractérisé par une auréole périphérique rougeâtre.	10R3/6	7	6	4,2
Eckwersheim	Burgweg Links, Spiessmatt (site LGV 11.2)	5301-RXX-2003-001	1,9	Bloc brut sans traces, sauf celles d'une brosse à dent.	2,5YR5/8	1,8	1,5	0,9
Eckwersheim	Burgweg Links, Spiessmatt (site LGV 11.2)	5301-1061-7	11,8	bloc pyramidal aux arêtes adoucies. Les faces sont lisses mais ne semblent pas être marquées par des stigmates d'abrasion. La base plane de la pièce est faiblement marquée par des microstries.	2,5YR4/8	2,9	2,6	2,9
Gougenheim	Gingsheimer Feld, Burgweg (site LGV 9-2)	5236-RLT-1051-001	3,1	Bloc polyédrique de forme aplatie. Toutes les faces sont marquées à l'exception d'une des deux grandes faces, légèrement concave. Les stries au sein de chaque face sont parallèles et unidirectionnelles, formant des amas, certains très lâches, d'autres très denses.	10R3/4	1,9	1,9	0,7
Gougenheim	Gingsheimer Feld, Burgweg (site LGV 9-2)	5236-RLT-2021-002	0,7	Éclat polyédrique à profil triangulaire. Présence de micro-stries parallèles non identifiées.	7,5YR4/6	1,4	1,2	0,4

Commune	*Lieu-dit*	*N° d'inventaire*	*Masse (gr)*	*Description*	*Couleur*	*L. (cm)*	*l. max. (cm)*	*ép. max. (cm)*
Gougenheim	Gingsheimer Feld, Burgweg (site LGV 9-2)	5236-RLT-2045-001-001	2,4	Objet allongé et facetté. Toutes les facettes portent de nombreuses stries d'abrasion, unidirectionnelles au sein de chaque face. Elles sont perpendiculaires à l'axe de la pièce ou légèrement obliques. Leur profondeur et leur largeur ne sont pas constantes sur une même face. Une des faces, ainsi que l'arête qui lui est contiguë présentent un aspect lustré.	10R3/4	2,7	0,9	0,9
Gougenheim	Gingsheimer Feld, Burgweg (site LGV 9-2)	5236-RLT-2045-001-002	10,2	Bloc aux contours arrondis et arêtes érodées. Deux plages planes. L'ensemble des plages, quelles soient convexes ou planes, porte de petites stries peu profondes. Celles-ci s'organisent par ensembles parallèles ou multidirectionnels.	10R3/4	2,5	1,7	1,6
Gougenheim	Steinbrunnen	5453-RLT-1011-001-001	1,4	Bloc brut sans traces.	10R3/6	1,6	1,1	0,8
Gougenheim	Steinbrunnen	5453-RLT-1021-027	2,2	Éclat brut sans traces, hormis celles d'une brosse à dent.	10R3/4	2,7	1,2	0,9
Obernai	PAEI	6012-RXX-4699-1	42	bloc polyédrique La surface supérieure est concave et la surface inférieure convexe. Cette dernière ne porte aucune trace. En revanche, la surface supérieure est facettée et chaque plage comporte des stries unidirectionnelles. Les stries ont une direction différente d'une face à l'autre.	10R3/4	3,7	3,1	2,5
Obernai	PAEI	6012-RXX-1001-1	3	Éclat brut sans trace	10R3/4	2,4	1,7	0,9
Sarrewerden	En bordure RD8	5680-RLT-1007-001	200	Galet de quartzite piriforme dont une petite partie de la base est brisée et martelée. Deux traces rougeâtres se distinguent en bordure de cette zone de frappe.	10R3/6	7	5,1	4,3
Schnersheim	ZA Behlenheimerweg	sd28-23-11	7	Bloc en forme de pyramide tronquée, aux surfaces adoucies. Les stries se concentrent sur un des flancs et sur la base facettée. Ceux présents sur une des facettes de la base sont bien marqués, unidirectionnels, denses au contraire de ceux de l'autre facette, lâches, unidirectionnels et obliques par rapport à l'ensemble précédent. Les stries du flanc sont moins marqués (effacés?) lâches et avec un tracé unidirectionnel.	10R3/3	2,4	1,8	1,8
Schnersheim	ZA Behlenheimerweg	sd28-16-02	49230	Gros galet roulé de grès fin aux parois adoucies et arrondies. Toutes les faces semblent naturelles. Le galet est fracturé et son pan de fracture constitue la surface active. Celle-ci présente un pendage important d'environ 35° et son profil en cuvette accentue la sensation de creusement qui résulte très certainement d'une usure fonctionnelle. Cette surface est très lisse et présente des traces colorées nous permettant d'identifier 8 secteurs de frottements.	entre 10R3/3 et 3/6	50	30	30

Annexe : Description des échantillons archéologiques de matières colorantes.

5

Pourquoi une table-ronde autour de l'hématite dans la Préhistoire ?

Why a round table on hematite in Prehistory?

Les éditeurs / The editors

Calcaire à entroques ferrugineux de L'Hettangien. Objet facetté. Châtelperronien.
Grotte du Renne à Arcy-sur-Cure (© H. Salomon)

5. BILLARD C., BOSQUET D., DREESEN R., GOEMAERE É, HAMON C., JADIN I., SALOMON H. & SAVARY X. (éd.), 2016. Conclusions : 221-226.

In : C. BILLARD *et al.* (éd.), *Autour de l'hématite / About haematite. Actes de / Acts of Jambes, 7-8/02/2013, Volume 2*, Liège, ERAUL, **143** – Anthropologica et Præhistorica, **126/2015**.

Anthropologica et Præhistorica, 126/2015 (2016) : 221-226

Pourquoi une table-ronde autour de l'hématite dans la Préhistoire ?

Why a round table on hematite in Prehistory?

CONCLUSIONS

La publication des actes de la table-ronde « Autour de l'hématite », qui s'est tenue à Jambes les 7 et 8 février 2013, témoigne des différents regards et des méthodes descriptives et analytiques mises en œuvre pour étudier ces vestiges à travers différents contextes chronologiques et géographiques. Elle aborde la place des matériaux ferrugineux dans les sociétés préhistoriques suivant différents angles d'approche, par le biais de méthodologies combinées. Pour parvenir à restituer l'économie des roches riches en oxydes et hydroxydes de fer (regroupés ci-dessous sous le seul terme de « hématite ») et comprendre leur place dans les systèmes techniques et culturels durant la Préhistoire ancienne et surtout récente, il a fallu décrire et mettre en évidence les ressources en roches ferrugineuses afin de définir les choix d'approvisionnement et les types de matières sélectionnés. C'est en effet le point de départ, car la « nature géologique des matières premières donne une origine géographique au début d'une chaîne opératoire [...] et permet de localiser des étapes de processus en différents points de l'espace lorsque les vestiges techniques caractéristiques y ont été abandonnés » (Geneste, 1992 : 11). L'identification des modalités d'acquisition de l'hématite permet d'établir les relations géographiques qui existaient entre les sources (exploitées ou non) et les sites de consommation, et permet de renseigner les aires fréquentées (territoires, espaces économiques). Elle donne accès aux techniques particulières mises en œuvre pour traiter ces matériaux. De plus, en renseignant les caractéristiques physico-chimiques des matières premières recherchées (propriétés mécaniques, visuelles, texturales, chimiques), elle permet de discuter

This publication of the proceedings of the round-table conference, which was held in Jambes on the 7th-8th February 2013, attests to the different descriptive and analytical methods used to study the role of hematite in prehistoric societies in different parts of the world. It tackles the role of ferruginous materials from different angles through the use of combined methodologies. In order to reconstruct the economic role of iron oxide- and iron-hydroxide-rich rocks (grouped together here under the term "hematites") and to gain an understanding of their role in the technical and cultural systems of early and, in particular, recent Prehistory, it was essential to first compile a descriptive inventory of the resources so as to define the supply strategy and the types of raw materials selected. In fact, this is the starting point, since the "geological nature of raw materials provides a geographical origin at the start of a *chaîne opératoire* [...] and allows us to localise the stages in a process at different points in space when the characteristic technical waste products are left behind" (Geneste, 1992: 11). Identification of the modes of acquisition allows us to define the geographical relationships between resources (exploited or not) and consumption sites, and also provides information on the occupied areas (territories, economic spaces). This provides an insight into the specific techniques used to extract and transform these raw materials. In addition, the identification of the mechanical, visual, textural and chemical characteristics of hematites helps to trigger discussions regarding the raw material economy, technology and ideas. *In fine*, integrated study of hematite exploitation contributes to a better knowledge of

des objectifs de leur exploitation par les groupes humains, mais aussi de l'économie des matières premières elles-mêmes au sein des réseaux de circulation des hommes, de leurs technologies et de leurs idées. C'est, en somme, à la connaissance des savoir-faire (*sensu* Pelegrin, 1991) et de l'organisation des sociétés que mène l'étude croisée des ressources ferrugineuses.

En premier lieu, cet ouvrage rend compte de la diversité des contextes archéologiques dans lesquels ont été extraits, transformés ou utilisés les matériaux ferrugineux de la Préhistoire à nos jours. L'usage des matières colorantes est ainsi documenté du Paléolithique moyen dans le sud du continent africain (Dayet) à la fin de la Tène dans l'est de la France (Jodry *et al.*), avec un focus tout particulier sur les contextes des débuts du Néolithique européen, qu'il soit d'origine danubienne (Billard *et al.* ; Bosquet *et al.* ; Hamon *et al.* ; Kitzig & Ramminger ; Thevenet), ou méditerranéenne (Pradeau *et al.*). Les exemples présentés ici illustrent très clairement le caractère quasi universel de l'usage des matières colorantes à composante ferrugineuse, quel que soit le contexte chrono-culturel ou le continent (Cavallo & Pandit pour l'Inde ; Chalmin *et al.* pour l'Australie). Ces travaux témoignent également de la nécessité de considérer de façon systémique les différents contextes archéologiques, depuis les contextes miniers et extractifs (Billard *et al.* ; Levato ; Levato & Larrocca), jusqu'aux zones de transformation principalement identifiées dans les habitats (Billard *et al.* ; Bosquet *et al.* ; Jodry *et al.* ; Kitzig & Ramminger). Sous forme de poudre dans le sédiment et sur les objets archéologiques, ou de blocs ou fragments, les matières colorantes sont ensuite utilisées aussi bien dans les habitats que dans les espaces à vocation sépulcrale (Kitzig & Ramminger ; Thevenet) ou décorative (Chalmin *et al.*). Leur présence est donc bien plus ubiquiste sur les sites archéologiques que ne le laisserait penser l'analyse des seuls contextes d'art pariétal, qui demeurent néanmoins les plus spectaculaires.

Cet ouvrage nous met également face à l'évidente diversité des lithofaciès riches en hématite utilisés durant la Préhistoire. Ces roches, associées à des contextes de formation et d'évolution des dépôts géologiques, présentent des caractéristiques remarquables à différentes échelles d'observation (nature des minéraux porteurs du fer, étage d'oxydation du fer, concentration en fer, couleur, the know-how (*sensu* Pelegrin, 1991) and the organization of societies.

This volume takes into account the diversity of the archaeological contexts in which ferruginous materials were extracted, transformed and used from Prehistory to the present day. The use of mineral pigments is thus documented from the Middle Paleolithic in southern Africa (Dayet) to the end of the La Tène period in eastern France (Jodry *et al.*), with a particular focus on the beginning of the Neolithic in Europe, whether of Danubian (Billard *et al.*; Bosquet *et al.*; Hamon *et al.*; Kitzig & Ramminger; Thevenet) or Mediterranean origin (Pradeau *et al.*). The examples presented here very clearly illustrate the universal nature of the use of ferruginous pigments, regardless of the chrono-cultural context or continent involved (Cavallo & Pandit for India; Chalmin *et al.* for Australia). These studies also highlight the importance of considering, in a systematic manner, the various archaeological contexts, from extraction and mining contexts (Billard *et al.*; Levato; Levato & Larrocca) to the transformation areas, which are mainly identified on settlements (Billard *et al.*; Bosquet *et al.*; Jodry *et al.*; Kitzig & Ramminger). Found as powder in sediments and on archaeological objects, or as blocks or fragments of raw material, pigments are found in a variety of contexts ranging from settlements to funerary (Kitzig & Ramminger; Thevenet) or decorative (Chalmin *et al.*) spaces. Their presence is, therefore, far more ubiquitous than studies focusing on parietal art might suggest, although rock paintings are among the most spectacular examples of their use.

This volume also confronts us with the diversity of hematite-rich lithofacies exploited in Prehistory. Depending on the geological context of their formation and evolution, these rocks exhibit characteristic features that are observable at different scales (nature of the ferruginous minerals, stage of iron oxidation, concentration in iron, colour, texture, freshness *versus* state of alteration, cement and matrix). This highlights the necessity for adopting different

texture, fabrique, éléments figurés, état de fraîcheur *versus* état d'altération, ciment et matrice), d'où la nécessité d'adopter différentes approches méthodologiques pour identifier et décrire les matières riches en hématite et leurs origines géologiques. Ces méthodes, qu'elles soient ou non destructives, se révèlent plus ou moins efficaces en fonction des contextes géologiques et archéologiques étudiés, mais aussi en relation directe avec la composition du matériau analysé, dont les constituants sont souvent présents en quantités et concentrations très variables au sein d'un même gisement géologique (filon, couche, altérite...), voire d'un même objet. Les différents exemples présentés illustrent la nécessité de recourir à des moyens d'investigation complémentaires dans le cadre d'observations et d'analyses multiscalaires. Les critères descriptifs, fondés sur les géosciences et les méthodes d'identification des empreintes des gîtes (par la pétrographie, la minéralogie et la géochimie) ont été adaptés en fonction des contextes archéologiques et géologiques, de la nature des vestiges (solides, poudreux, appliqués sur des supports) et des équipements disponibles.

La caractérisation précise de la nature, de la composition et de la structure de ces matériaux constitue en soi un aspect essentiel des travaux présentés ici. Plusieurs articles mettent ainsi en œuvre une combinaison de méthodes analytiques, plus ou moins informatives pour distinguer les différents matériaux. Le premier niveau d'analyse, pour le moins pertinent, repose sur la simple observation macroscopique non destructive (Billard *et al.* ; Cavallo & Pandit) et sur les analyses pétrographiques (Dreesen *et al.*), qui permettent d'emblée de distinguer des groupes de géomatières. Leur caractérisation fine passe ensuite par la combinaison de différentes méthodes élémentaires et structurales combinées (en particulier SEM-EDS, ou EDC, DRX, XRF, ICP-OES ou ICP-MS, PIXE, etc.), afin de proposer des critères de différentiation les plus fins possibles (Cavallo & Pandit ; Dayet ; Goemaere *et al.* ; Pradeau *et al. ; Salomon et al.*). L'usage de la cathodoluminescence se révèle également pertinente pour différencier des signatures propres à différents gisements (Baele *et al.*). Reste toutefois que dans certains contextes, l'analyse de la composition de matières colorantes spécifiques se révèle délicate du fait d'une forte altération qui affecte en particulier les pigments appliqués comme dans le cas de l'art pariétal de la Terre d'Arnhem (Chalmin *et al.*).

methodological approaches in order to identify and describe hematite-rich materials and their geological origin. Otherwise, these methods, destructive or not, prove to be more or less efficient depending on the geological and archaeological contexts studied, but also depending on the composition of the analyzed material and of its constituents which can vary in quantity and concentration from one deposit to another (ore vein, layer, alterites) or even within a single object. The various examples presented illustrate the importance of employing complementary means of investigation within the framework of multi-scale observations and analyses. The descriptive criteria, based on geosciences and on methods for identifying the different deposits (using optical petrography, mineralogy, geochemistry), have been adapted depending on the nature of the remains (solid, powder, as residues on objects) and on the available equipment.

The precise characterization of the nature, composition and structure of the raw materials in itself constitutes a major aspect of the studies presented in this publication. Several studies employ a combination of analytical methods, with varying degrees of information, in order to distinguish the different materials. The first level of analysis relies on a simple, non-destructive, macroscopic observation (Billard *et al.;* Cavallo & Pandit) and on petrographical analysis (Dreesen *et al.*) to identify the main raw material groups. Their detailed characterization is then based on a combination of different elementary and structural methods (especially SEM-EDS, or EDC, XRD, XRF, ICP-OES or ICP-MS, PIXE, etc.), so as to propose the finest possible differentiation criteria (Cavallo & Pandit; Dayet; Goemaere *et al.*; Pradeau *et al.; Salomon et al.*). The use of cathodoluminescence also appears to be relevant in differentiating between the characteristic signatures of different deposits (Baele *et al.*). However, in certain contexts, the analysis of the composition of some specific pigments is rendered more complicated by the high degree of weathering, such as the open-air rock paintings of the Arnhem region (Chalmin *et al.*).

One of the main objectives of the hematite-rich rocks characterization lies in the possibility of addressing questions of choice, supply networks and circulation of pigment raw materials. To this end it is essential to first establish

L'un des objectifs majeurs de cette caractérisation des roches riches en hématite réside dans la possibilité d'aborder les questions de choix et de réseaux d'approvisionnement et de circulation des matières premières colorantes. Aborder cette problématique nécessite tout d'abord l'établissement de référentiels géologiques, comme préalable indispensable à l'identification des sources d'approvisionnement. Plusieurs des travaux présentés proposent ainsi une cartographie des ressources en roches ferrugineuses à l'échelle régionale, établie sur la base de travaux géologiques antérieurs (Billard *et al.* ; Dayet ; Denayer ; Goemaere *et al.*) ou de prospections spécifiquement menées dans le but d'identifier les matériaux colorants disponibles régionalement (Pradeau *et al.*). La riche documentation des gîtes couvrant une vaste aire géographique (notamment la Belgique, l'ouest de l'Allemagne, le nord de la France) est tout à fait inédite et a permis de dresser une carte des ressources en roches ferrugineuses (Denayer ; Dreesen *et al.* ; Fizaine *et al.* ; Goemaere *et al.* ; Mottequin & Marion).

Dès lors que ces vestiges sont étudiés en visant à restituer leur exploitation, et en particulier lorsqu'un grand nombre d'objets sont pris en considération, les résultats révèlent des stratégies d'exploitation passées impliquant une sélection exigeante des matières premières pour des objectifs de production variés. L'exploitation se révèle alors centrée sur l'utilisation d'une ressource particulière comme l'hématite oolithique dans le Mésolithique et le Rubané d'Europe du nord-ouest, ou sur des systèmes d'exploitation multisources beaucoup plus diversifiés. Plusieurs modes d'approvisionnement se dessinent alors, certains concentrés sur les ressources locales (Goemaere *et al.* ; Mottequin & Marion ; Pradeau *et al.*), d'autres exploitants plus largement les ressources régionales (Pradeau *et al.*), voire s'inscrivant dans des réseaux d'échanges à plus longues distances (Dayet). Se pose alors la question de la connaissance des territoires et de la valeur d'échange de ces matériaux (Bosquet *et al.*), en lien avec la question de la mobilité des groupes dans les sociétés de chasseurs-cueilleurs ou d'agro-pasteurs sédentaires. L'analyse des réseaux de circulation des matériaux colorants trouve ainsi tout son sens dans le contexte plus large de l'exploitation de l'ensemble des matières minérales (comme par exemple les argiles, silex, obsidienne, grès, jadéites et éclogites) durant la Préhistoire. Au delà de reliable geological baselines which are necessary for the initial identification of supply sources. Several studies propose a mapping of the ferruginous resources at a regional scale, based on previous geological studies (Billard *et al.*; Dayet; Denayer; Goemaere *et al.*) or on specific surveys conducted in order to identify regionally available pigments (Pradeau *et al.*). The detailed documentation of deposits over a wide geographical area (in particular Belgium, western Germany and northern France) is a novel development and has permitted the drafting of a map of ferruginous rocks (Denayer; Dreesen *et al.*; Fizaine *et al.*; Goemaere *et al.*; Mottequin & Marion).

As soon as we start studying these materials with the aim of reconstructing their exploitation, and in particular when a large number of samples is analysed, the results rapidly reveal past exploitation strategies which involved stringent selection of particular raw materials for various purposes. The exploitation reveals itself to be organised around a specific resource, as in the case of oolitic hematite in the Mesolithic and early Neolithic of north-western Europe, or, alternatively, can focus on a variety of diverse sources. Therefore, several modes of procurement emerge, some of which are based on local resources (Goemaere *et al.*; Mottequin & Marion; Pradeau *et al.*), while others involve exchange networks at a regional (Pradeau *et al.*), or even extra-regional scale (Dayet). This gives rise to questions regarding territories and the exchange value of these materials (Bosquet *et al.),* issues which are linked to the question of the mobility of human groups in hunter-gatherer or sedentary agro-herder societies. Therefore, analysis of pigment distribution networks starts to make sense within the wider context of the broader exploitation of all mineral raw materials (such as clays, flint, sandstone, jadeite and eclogite) throughout Prehistory. Beyond the determination of the characteristics of the raw materials and the distances which separate the deposits from the archaeological sites, these studies also propose interpretative hypotheses regarding the long distance exchange of goods, the control of resources by certain populations and the diffusion of ways of life such as those adopted during the Neolithic in particular.

Hence we have to turn our attention to areas and modes of supply, from the mine to the surface collection areas, in order to address the

la détermination des caractéristiques des matières premières et de la distance qui sépare les gîtes des sites archéologiques, ces travaux proposent des pistes interprétatives en termes d'échanges de biens sur de longues distances, de contrôle des ressources par certaines populations et de diffusion de modes de vie tels qu'adoptés durant le Néolithique notamment.

C'est ensuite vers les zones et les modalités d'acquisition, de la mine au ramassage de surface avec sélection, qu'il faut se tourner pour aborder la question de l'organisation de l'exploitation de ces ressources et de leur rôle dans les sociétés préhistoriques. Ces thèmes sont abordés à travers une synthèse consacrée aux sites d'extraction de ces matières durant la Préhistoire (Levato) et par le biais de quatre études résultant de travaux collectifs interdisciplinaires (Dayet *et al.* ; Goemaere *et al.* ; Pradeau *et al.*).

L'analyse des contextes miniers et des produits obtenus permet de mettre en évidence l'existence d'un outillage dédié à leur extraction, tels que des pics en pierre ou matières animales (Levato, Levato & Larocca). Selon les contextes, l'étape de transformation proprement dite peut être réalisée dans l'espace minier ou sur le lieu d'utilisation, à l'aide d'une large panoplie d'outils tels que des meules, des outils de concassage, ou des polissoirs (Hamon *et al.*). L'utilisation de la chauffe comme méthode d'extraction ou de transformation des matières colorantes ferrugineuses semble également suggérée par des caractéristiques observables à l'échelle macroscopique de certains échantillons (Cavallo & Pandit).

Brossant un panorama assez vaste des usages généralement admis pour ces matières hématitiques durant la Préhistoire (pouvoir colorant, abrasif, antiseptique, etc), plusieurs travaux proposent de nouvelles hypothèses. Ils reposent sur l'analyse tracéologique des fragments d'hématite eux-mêmes (Hamon *et al.*) utilisés en application directe sur des matières organiques souples ou pour le façonnage d'objets par abrasion. L'analyse taphonomique fine en contexte sépulcral permet également de montrer que les colorants recouvraient les squelettes, le mobilier de la tombe (Trąbska *et al.*) ou les matières organiques enveloppant les défunts (Thevenet). L'usage comme peinture, attestée dans les contextes d'art pariétal (Chalmin *et al.*), semble également une hypothèse plausible

question of the organisation of the exploitation of these resources and their role in prehistoric societies. These topics are addressed in a synthetic study of extraction sites during Prehistory (Levato), and in four other papers arising from collective interdisciplinary research programs (Dayet *et al.;* Goemaere *et al.*; Pradeau *et al.*).

The analysis of mining sites and the products supplied has provided data on a specialized toolkit, including stone and hard animal material picks, which is related to pigment extraction (Levato, Levato & Larocca). Depending on the contexts, the transformation stage can be carried out directly within the mine, or in the area of use, using a wide range of tools such as querns, crushing tools or polishers (Hamon *et al.*). The use of heating, as an extractive or transforming method, is also suggested by observation of macroscopic features analysis on certain samples (Cavallo & Pandit).

In addition to providing a broad overview of the generally accepted uses for these pigments throughout Prehistory (colouring, abrasive, antiseptic properties, etc.), several studies also propose new hypotheses regarding their use. These hypotheses are based on the use-wear analysis of hematite fragments (Hamon *et al.*) which indicates that they were directly applied to supple organic materials or used for the shaping by abrasion of various objects. Detailed taphonomic analyses in funerary contexts also indicate that pigments were used to coat skeletons, funerary objects (Trąbska *et al.*) and organic materials used to wrap the dead (Thevenet). Their use as paints is widely attested to in rock art contexts (Chalmin *et al.*), but it also seems plausible that they were used to decorate ceramic vessels in more recent periods (Jodry *et al.*).

The "Around hematite" workshop is part of a research thematic which has been ongoing for 20 years. It aims to achieve a better understanding of the integration of ferruginous rocks within their technical and social contexts of production and use. This category of archaeological material, at the crossroads of the technical, economic and symbolic spheres, provides an insight into resource management, technical transfer and production organization. This industry reveals complex cultural practices and traditions, which are directly linked to occupied spaces,

pour la décoration des vases aux époques plus récentes (Jodry *et al.*).

La table-ronde « Autour de l'hématite » s'intègre dans une thématique de recherche renouvelée depuis une vingtaine d'années, visant à mieux comprendre l'insertion des roches ferrugineuses dans leur contexte technique et social. Cette catégorie de vestiges archéologiques au croisement des sphères technique, économique, sociale et symbolique est tout à la fois une porte ouverte sur la gestion des ressources minérales, les transferts techniques et l'organisation de la production. Cette industrie relève de pratiques culturelles et de traditions complexes, en lien direct avec les espaces fréquentés, les échanges entre populations, les pratiques funéraires et l'organisation de l'habitat et des sociétés.

Les éditeurs

population exchanges, funerary customs and the organization of prehistoric societies.

The editors

Bibliographie - *Bibliography*

GENESTE J.-M., 1992. L'approvisionnement en matière première dans les systèmes de production lithique : la dimension spatiale de la technologie. *In* : R. MORA, A. APAL & C. PLANS (éd.), *Tecnologia y cadenas operativas liticas, Reunion international 15-18 enero de 1991*, vol. **1**. Barcelona : Treballs d'Arqueologia : 1-36.

PELEGRIN J., 1991. Les savoir-faire : une très longue histoire. *Revue Terrain* : 106-113.

Instructions aux auteurs

---

1. Seuls seront publiés des articles originaux, soumis à la critique de minimum deux *referees*. Les articles peuvent être rédigés en français, en néerlandais, en anglais, en allemand, en espagnol ou en italien. Deux résumés (langue de l'article et une autre) doivent figurer en début d'article.
Logiciels du monde PC, texte **sans aucune** mise en page, au format .rtf de préférence.

2. L'original sur CD-rom doit être envoyé, avec sa série d'illustrations, au Secrétariat général de la Société : 29, rue Vautier, BE - 1000 Bruxelles (Belgique) ; une version électronique peut être envoyée au rédacteur en chef (ahauzeur@yahoo.fr [10 Mb] srbap@naturalsciences.be [5 Mb]).

3. Illustrations

- Les fichiers de figures ne seront jamais inclus dans le fichier texte. Renvois aux illustrations : (Fig. n), (Fig. n,m), (Tab. n) ou (pl. n,m). Elles seront fournies au format .tif ou *PostScript* encapsulé (.eps), éventuellement aux formats .ai ou .dsf pour les dessins vectorisés, au format .xls pour les calculs.

- Dans les autres cas, elles seront scannées (résolution de 600 dpi) et fournies au format TIFF non compressé (.tif). Évitez le format JPEG (.jpg).

- Format. En portrait : 16 cm x 23/24,5 cm en hauteur, selon l'importance de la légende ; en paysage : 26 cm x 14/15 cm en hauteur ; sur une colonne de texte, 7,75 cm de largeur maximale.

4. Les légendes se trouveront à la fin du fichier texte après un saut de page : **Fig. + numéro** - texte.

5. Tableaux de préférence en fichier(s) indépendant(s) en .rtf ou .xls.

6. Références bibliographiques

1) Dans le texte, système de référence Harvard, soit le nom de l'auteur (ou des auteurs), l'année et éventuellement la (les) page(s). Exemples : (Tillier, 1983) *ou* (Tillier, 1983 : 52) *ou* (Boné *et al.,* 1983).

2) Les références bibliographiques complètes seront reprises en fin de texte avec les noms d'auteurs **en bas de casse**. Elles comprennent :

- pour un article dans un périodique
Nom de l'auteur suivi des initiales du (ou des) prénom(s), année de publication + a, b, c... en cas de plusieurs articles la même année. Titre complet de l'article. Titre du périodique *in extenso* ou abrégé selon la *World List of Scientific Periodicals* ou les *Abkurzungen Zeitschrift* du DAI, numéro du volume en chiffres arabes (numéro du fascicule) : première-dernière page de l'article
Exemple : Canet H. & Roudil J.-L., 1978. Le village chalcolithique de Cambous à Viols-en-Laval (Hérault). I : Étude préliminaire. *Gallia Préhistoire. Fouilles et Monuments archéologiques en France métropolitaine,* **21** (1) : 143-181.

- pour un article paru dans un ouvrage collectif, dans les *Actes* d'un colloque ou dans un livre
comme pour un article de revue, faire suivre de *In :* éditeur(s), référence du livre.
Exemple : Bostyn F., Andrem F., Lanchon Y., Martial E. & Praud L., 1997. Un nouveau site d'habitat du Groupe de Villeneuve-Saint-Germain à Poses « Sur la Mare » (Eure). *In* : C. Jeunesse (éd.), *Le Néolithique danubien et ses marges entre Rhin et Seine. Actes du 22e colloque interrégional sur le Néolithique, Strasbourg, 1995*. Cahiers de l'Association pour la Promotion de la Recherche Archéologique en Alsace, supplément, 3. Strasbourg : 447-466.
Exemple : Knörzer K.-H., 1977. Pflanzliche Grossreste des bandkeramischen Siedlungsplatzes Langweiler 9. *In :* R. Kuper, H. Löhr, J. Lüning, P. Stehli & A. Zimmermann (éd.), *Der bandkeramische Siedlungsplatz Langweiler 9, Gemeinde Aldenhoven, Kreis Düren*. Beiträge zur neolithischen Besiedlung der Aldenhovener Flatte, II, Rheinische Ausgrabungen, 18. Bonn : 279-303 et 418-432.

- pour un livre
  Nom de l'auteur initiales de ses prénoms, date de publication. Titre. Collection, numéro. Lieu de publication, éditeur (éventuellement l'édition), nombre de volumes, nombre de pages.
  Exemple : Siegel S., 1956. *Nonparametric Statistics for Behavioral Sciences.* London, McGraw-Hill, 312 p.

7. Adresse de l'auteur

Adresse postale (éventuellement électronique) au bas de l'article, après la bibliographie.

8. Correction des épreuves

Les épreuves (fournies à l'auteur sous forme d'un fichier .pdf) seront corrigées à l'encre rouge sur une version papier ou sous forme de « notes » dans le fichier .pdf. En cas de non respect des délais indiqués, celles-ci seront assurées par le Comité de Rédaction seul.

9. Tirés à part

Le premier auteur reçoit un volume du Bulletin et une version .pdf de son article.

Note : Nous suivons en général le *Lexique des règles typographiques en usage à l'Imprimerie nationale*, Paris, Imprimerie nationale, 1990.

Richtlijnen voor auteurs

1. Enkel originele artikels worden aanvaard. Deze zullen aan ten minste twee referenten worden voorgelegd. De artikels mogen in het Frans, Nederlands, Engels, Duits, Spaans en Italiaans worden geschreven. Het artikel dient te worden voorafgegaan door een samenvatting in twee talen, waaronder die waarin het artikel zelf is geschreven. Teksten (PC) zonder enige opmaak en bij voorkeur in .rtf formaat.

2. Manuscripten, met inbegrip van de illustraties, dienen te worden aangeleverd **op CD-rom**. Deze kan worden gestuurd naar het algemeen secretariaat van de vereniging: 29, Vautierstraat, BE - 1000 Brussel (België); daarnaast kan ook een digitale versie via e-mail worden doorgestuurd (ahauzeur@yahoo.fr [10 Mb] srbap@naturalsciences.be [5 Mb]).

3. Illustraties

- Figuren mogen niet in de tekst gevoegd worden. Verwijzingen naar figuren in de tekst onder de vorm (Fig. n), (Fig. n,m), (Tab. n), (pl. n,m). De figuren dienen te worden aangeleverd in .tif of in PostScript formaat (bij voorkeur .eps), eventueel in .ai of .dsf formaten voor gevectoriseerde tekeningen, in .xls formaat voor berekeningen.
- In alle andere gevallen worden ze ingescand (resolutie 600 dpi) en aangeleverd als niet gecomprimeerde TIFF (.tif). Vermijd JPEG (.jpg) formaat.
- Afmetingen: 'Portret-layout': 16 cm x 23/24,5 cm hoogte, afhankelijk van de omvang van het bijschrift; 'landschap-layout': 26 cm x 14/15 cm hoogte; op de breedte van één tekstkolom: maximaal 7,75 cm breed.

4. Bijschriften bevinden zich op een aparte bladzijde, op het einde van het tekstdocument: **Fig. + nummer – bijschrift.**

5. Tabellen bij voorkeur in aparte documenten in .rtf of .xls formaat.

6. Bibliografische referenties

1) In de tekst volgens het referentie systeem Harvard: naam auteur(s), jaar en eventueel pagina('s). Voorbeeld: (Tillier, 1983) of (Tillier, 1983: 52) of (Boné *et al.*, 1983).
2) De volledige bibliografische referenties worden opgenomen in een lijst achteraan de tekst met de auteursnamen in **gewoon schrift (niet volledig in kapitalen)**.

- voor een artikel in een tijdschrift:
  Auteursnaam gevolgd door de initialen van de voorna(a)m(en), publicatiejaar + a, b, c... in het geval van meerdere publicaties in hetzelfde jaar. Volledige titel van de publicatie. Titel van het tijdschrift *in extenso* of afgekort volgens de *World List of Scientific Periodicals* of de *Abkurzungen Zeitschrift* van het DAI, nummer volume in arabische cijfers (nummer van de bundel): eerste - laatste pagina van het artikel.
  Voorbeeld: Canet H. & Roudil J.-L., *1978.* Le village chalcolithique de Cambous à Viols-en-Laval (Hérault). I : Étude préliminaire. *Gallia Préhistoire. Fouilles et Monuments archéologiques en France métropolitaine,* **21** (1): 143-181.
- voor een artikel verschenen in een collectief werk, in de acten van een congres of in een boek:
  Zoals voor een tijdschrift artikel, gevolgd door *In :* redacteur(s), referentie naar het boek.
  Voorbeeld: Bostyn F., Andrem F., Lanchon Y., Martial E. & Praud L., 1997. Un nouveau site d'habitat du Groupe de Villeneuve-Saint-Germain à Poses « Sur la Mare » (Eure). *In:* C. Jeunesse (ed.), *Le Néolithique danubien et ses marges entre Rhin et Seine. Actes du 22e colloque interrégional sur le Néolithique, Strasbourg, 1995.* Cahiers de l'Association pour la Promotion de la Recherche Archéologique en Alsace, supplément, 3. Strasbourg: 447-466.

Knörzer K.-H., 1977. Pflanzliche Grossreste des bandkeramischen Siedlungsplatzes Langweiler 9. *In: R.* Kuper, H. Löhr, J. Lüning, P. Stehli & A. Zimmermann (red.), *Der bandkeramische Siedlungsplatz Langweiler 9, Gemeinde Aldenhoven, Kreis Düren.* Beiträge zur neolithischen Besiedlung der Aldenhovener Flatte, II, Rheinische Ausgrabungen, 18. Bonn: 279-303 en 418-432.

- voor een boek

Auteursnaam gevolgd door de initialen van de voorna(a)m(en), publicatiejaar. Titel. collectie, nummer. Plaats publicatie, uitgever (eventueel editie), aantal volumes, aantal pagina's.
Voorbeeld: Siegel S., 1956. *Nonparametric Statistics for Behavioral Sciences.* London, McGraw-Hill, 312 p.

7. **Adresgegevens van de auteur(s)**

Postadres (eventueel ook elektronisch adres) onderaan het artikel, na de bibliografie.

8. Correctie proefdrukken

De proefdrukken (aan de auteur aangeleverd in .pdf formaat) dienen te worden gecorrigeerd met rode inkt op een papieren versie of met de 'notes' in het .pdf document. Indien de gevraagde deadlines niet worden gerespecteerd, zullen de proefdrukken enkel door de redactieraad worden nagekeken.

9. Overdrukken

De eerste auteur ontvangt een volume van het tijdschrift en een .pdf versie van zijn eigen artikel.

Opmerking: Gewoonlijk volgen we de algemene tips van *http://vrttaal.net/taaldatabanken_master/spellen_ schrijven/schrijftips.shtml*.

Guide for authors

1. Original papers only are accepted. These will be reviewed by at least two **referees**. The articles can be written in French, Dutch, English, German, Spanish and Italian. The article should be preceded by a summary in two languages, among which that in which the article itself was written. Texts (PC) should be submitted without lay-out and preferably in .rtf format.

2. Manuscripts, including the illustrations, should be submitted **on CD-rom**. This can be sent to the general secretary of the **association:** 29, Vautierstreet, BE - 1000 Brussels (Belgium); a digital version can be sent by e-mail (ahauzeur@yahoo.fr [10 Mb] srbap@naturalsciences.be [5 Mb]).

3. Illustrations

- Figures should not be placed in the submitted text. References to figures in the text are displayed as (Fig. n), (Fig. n,m), (Tab. n), (pl. n,m). The figures should be submitted in PostScript format (preferably .eps), in .ai or .dsf formats for vectorised drawings, in .xls format for tables and calculations.
- In al other cases, the drawings need to be scanned (resolution of 600 dpi) and submitted as non-compressed TIFF files (.tif). Avoid JPEG (.jpg) format.
- Dimensions: Portrait: 16 cm x 23/24,5 cm, height depending upon the size of the caption; Landscape: 26 cm x 14/15 cm; on the width of a single text column: not wider than 7,75 cm.

4. Captions on a seperate page, at the end of the text file: **Fig. + nummer** – caption

5. Tables preferably in seperate files in .rtf or .xls format

6. Literature references

1) In the text following the Harvard reference system: name author(s), year and if needed page(s). Example: (Tillier, 1983) or (Tillier, 1983: 52) or (Boné *et al.*, 1983).

2) The full literature list is placed at the end of the text with author names in normal script.

- Journal articles:
  Author surname followed by initials of first name(s), publication year + a, b, c... in the case of more than one referred publication from the same year. Full title of the publication. Title of the journal *in extenso* or abbreviated according to the *World List of Scientific Periodicals* or *Abkurzungen Zeitschrift* of the DAI, volume number in arabic numbers (number of fascicle): first - last page of the article.
  Example: Canet H. & Roudil J.-L., 1978. Le village chalcolithique de Cambous à Viols-en-Laval (Hérault). I : Étude préliminaire. *Gallia Préhistoire. Fouilles et Monuments archéologiques en France métropolitaine,* **21** (1) :143-181.
- Articles in collective works, in conference proceedings or in books:
  As for journal articles, followed by *In:* editor(s), book reference.
  Example: Bostyn F., Andrem F., Lanchon Y., Martial E. & Praud L., 1997. Un nouveau site d'habitat du Groupe de Villeneuve-Saint-Germain à Poses « Sur la Mare » (Eure). *In:* C. Jeunesse (ed.), *Le Néolithique danubien et ses marges entre Rhin et Seine. Actes du 22e colloque interrégional sur le Néolithique, Strasbourg, 1995.* Cahiers de l'Association pour la Promotion de la Recherche Archéologique en Alsace, supplément, 3. Strasbourg: 447-466.
  Knörzer K.-H., 1977. Pflanzliche Grossreste des bandkeramischen Siedlungsplatzes Langweiler 9. *In*: *R.* Kuper, H. Löhr, J. Lüning, P. Stehli & A. Zimmermann (ed.), *Der bandkeramische Siedlungsplatz Langweiler 9, Gemeinde Aldenhoven, Kreis Düren.* Beiträge zur neolithischen Besiedlung der Aldenhovener Flatte, II, Rheinische Ausgrabungen, 18. Bonn: 279-303 and 418-432.

- Books:
  Author name followed by initials of name(s), publication year. Title. collection, number. Publication location, editor (edition), number of volumes, number of pages.
  Example: Siegel S., 1956. *Nonparametric Statistics for Behavioral Sciences*. London, McGraw-Hill, 312 p.

7. **Author address**

Postal address (electronic address) at the end of the article, preceded by the literature list.

8. Correction of proofs

Proofs (sent to the author in .pdf format) need to be corrected with red ink on a paper version or using the 'notes' in the .pdf document. If the requested deadlines are not respected, they will only be corrected by the editorial board.

9. Reprints

The first author will receive one volume of the journal and a .pdf version of his/her article.

Note: We generally use the F. H. Collins, *Authors' and Printers' Dictionary. A guide for authors, editors, printers correctors of the press compositors and typists*, London, Oxford University Press, 1962.

Composition :
Micheline DE WIT

Association pour la Diffusion de
l'Information archéologique

Imprimé pour le compte de la
Société royale belge
d'Anthropologie et de Préhistoire

par abGroup.be

db Group.be
PRINT & GRAPHIC MANAGEMENT