

DES LAITIERS OBTENUS DANS UN BAS-FOURNEAU? ÉTUDES CHIMIQUE ET MINÉRALOGIQUE DES SCORIES DU SITE D'OULCHES (Indre)

Cécile MAHÉ-LE CARLIER*, Nadine DIEUDONNÉ-GLAD** et Anne PLOQUIN*

Résumé : Lors de la prospection et de la fouille (N. Dieudonné-Glad) de l'atelier paléoméallurgique du Latté à Oulches (Indre) daté du IV^{ème} siècle après J.C., quelques scories particulières ont attiré l'attention du fait de leur présence "anormale" parmi la masse de scories fayalitiques plus "normales" ici : des laitiers. Sans entrer dans l'étude des processus de réduction, l'étude pétrographique et chimique de spécimens de scories (scories fayalitiques et laitiers) montre que ces laitiers sont bien des résidus de réduction et non des produits de fusion des parois des fours. Les auteurs attirent l'attention sur le fait qu'un processus physico-chimique typique de la filière "haut fourneau", ou filière indirecte, peut être mis en oeuvre dans un atelier fonctionnant normalement selon la filière "bas fourneau", ou filière directe, certes marginalement, volontairement ou non, mais connu et utilisé.

Abstract : During prospecting, survey and excavation (N. Dieudonné-Glad) of the *Latté d'Oulches* archaeological workshop (Indre, France, IVth C. A.D.) some «abnormal» slags occurring among the heap of «normal» fayalitic slags, attracted attention : this type of slag is called "laitier" in french, with no specific word existing in english ("acidic slag", "blast furnace slag", ...). Petrographic and chemical studies of slags (but without details in this paper on physical-chemical mechanisms) lead the authors to conclude that the "laitiers" are definitively smelting slags and not produced by melting of the furnace lining. The authors propose that a physical-chemical mechanism typical of "blast furnaces" (indirect process), may occur, albeit rarely, in bloomery furnaces (direct process). We don't know whether or not this «reaction» was wilfully planned, it was clearly known and used.

Mots-clefs : Paléoméallurgie, scorie fayalitique, laitier, bas fourneau, pétrographie, chimie.

Key-words : Archaeometallurgy, fayalitic slag, "laitier", bloomery, petrography, chemistry.

INTRODUCTION

En France, la connaissance chimique des scories paléosidéurgiques s'est réellement développée depuis une douzaine d'années avec la réalisation d'analyses systématiques. Ainsi, près de 2000 analyses provenant de sites essentiellement français ont été réalisées, interprétées et forment un corpus de références (Ploquin, 1994). L'étude pétrographique n'a pas suivie le même développement. Elle a pris réellement de l'ampleur depuis la réalisation des thèses de C. Jarrier (1993) et V. Serneels (1993). D'autres travaux, plus orientés sur des observations métallographiques ont également été réalisés (entre autres : Leroy, 1993 ; Dunikovsky, 1996). Cependant, toutes ces études concernaient des scories denses issues de filières directes de réduction, un travail pétrographique de caractérisation de scories plus légères de type laitier restait à

faire. Ceci fait l'objet d'une thèse réalisée au C.R.P.G. à Nancy (Mahé, 1997).

L'observation de très nombreuses scories provenant de sites archéologiques de bas et haut-fourneaux nous a permis de proposer une typologie de ces scories de réduction sur la base de critères pétrographiques et chimiques (Ploquin *et al.*, 1996). Elle a également permis de se rendre compte de la très grande analogie entre des laitiers de haut-fourneaux et des scories légères provenant de sites à bas-fourneaux. C'est le cas notamment pour le site du Latté à Oulches.

Restait alors à savoir si, du point de vue des processus physico-chimiques, les bas-fourneaux de Oulches avaient pu fonctionner, incidemment, comme des haut-fourneaux, ou si ces scories légères provenaient simplement de la fusion de la paroi des fours avec contamination par des scories denses, résidus typiques des bas-fourneaux.

* C.R.P.G. 15 rue Notre Dame des Pauvres, BP 20, VANDOEUVRE-LES-NANCY (cmahe, ploquin@crpg.cnrs-nancy.fr).

** Faculté des sciences Humaines, UMR 6589 CNRS, 8 rue Descartes 86022 POITIERS Cedex (nadine.dieudonne-glad@cri.univ-poitiers.fr).

I - MÉTHODES D'ANALYSE

Les scories paléosidéurgiques ont été étudiées par une approche naturaliste, de manière analogue à celle employée par les pétrographes pour caractériser les roches naturelles.

Dans un premier temps, après sélection macroscopique, les scories sont sciées afin d'examiner leur homogénéité (composition et texture). Des analyses globales par ICP-MS/AES (C.R.P.G., Nancy) (Vernet, 1993) sont faites, en prenant en compte les hétérogénéités éventuelles, sur les différents faciès des scories, et autres matériaux associés (minerais, parois, ...). Ensuite, des diffractogrammes de rayons X (C.R.P.G., Nancy) sont réalisés sur les différents faciès. Des lames minces polies sont coupées sur les faciès banaux mais aussi sur les zones présentant une texture originale. Les observations se font avec un microscope optique, par lumière transmise (pour les minéraux silicatés tels que l'olivine) et par lumière réfléchie (pour les minéraux opaques tels que la wustite ou la magnétite). Les caractères optiques des phases cristallisées étant rarement bien définis, elles sont alors caractérisées chimiquement grâce à des analyses ponctuelles à la microsonde électronique SX-50 (Faculté des Sciences, Nancy).

II - LES CHAINES OPÉRATOIRES DE LA SIDÉURGIE ANCIENNE

Sans entrer, ici, dans la discussion des processus physico-chimiques et des procédés techniques liés à la réduction des minerais de fer, il est néanmoins nécessaire de faire quelques rappels.

La chaîne opératoire de la sidérurgie débute avec les travaux d'extraction du minerai et se termine à l'objet en fer prêt à l'emploi. Bien sûr, les techniques ont variées dans l'espace et dans le temps, mais les grandes étapes, pour chacune des deux filières types, sont restées semblables.

Le minerai est tout d'abord extrait, puis préparé. Vient ensuite la phase de réduction. Ici, il faut distinguer deux filières (fig. 1) : la filière directe où le métal étant directement du fer ou de l'acier, n'aura pas besoin d'être décarburé pour être forgé, et la filière indirecte, où le produit sortant du four est une fonte qui subira une phase de décarburation, dite affinage, afin d'obtenir soit de l'acier soit du fer doux. En règle générale, à la filière directe est associé le bas-fourneau, et à la filière indirecte, le haut-fourneau.

Dans la filière directe, par réduction du minerai de fer, on obtient une éponge ou loupe de fer, qui devra être martelée (cinglée) à chaud, opération dite épuration, afin d'éliminer

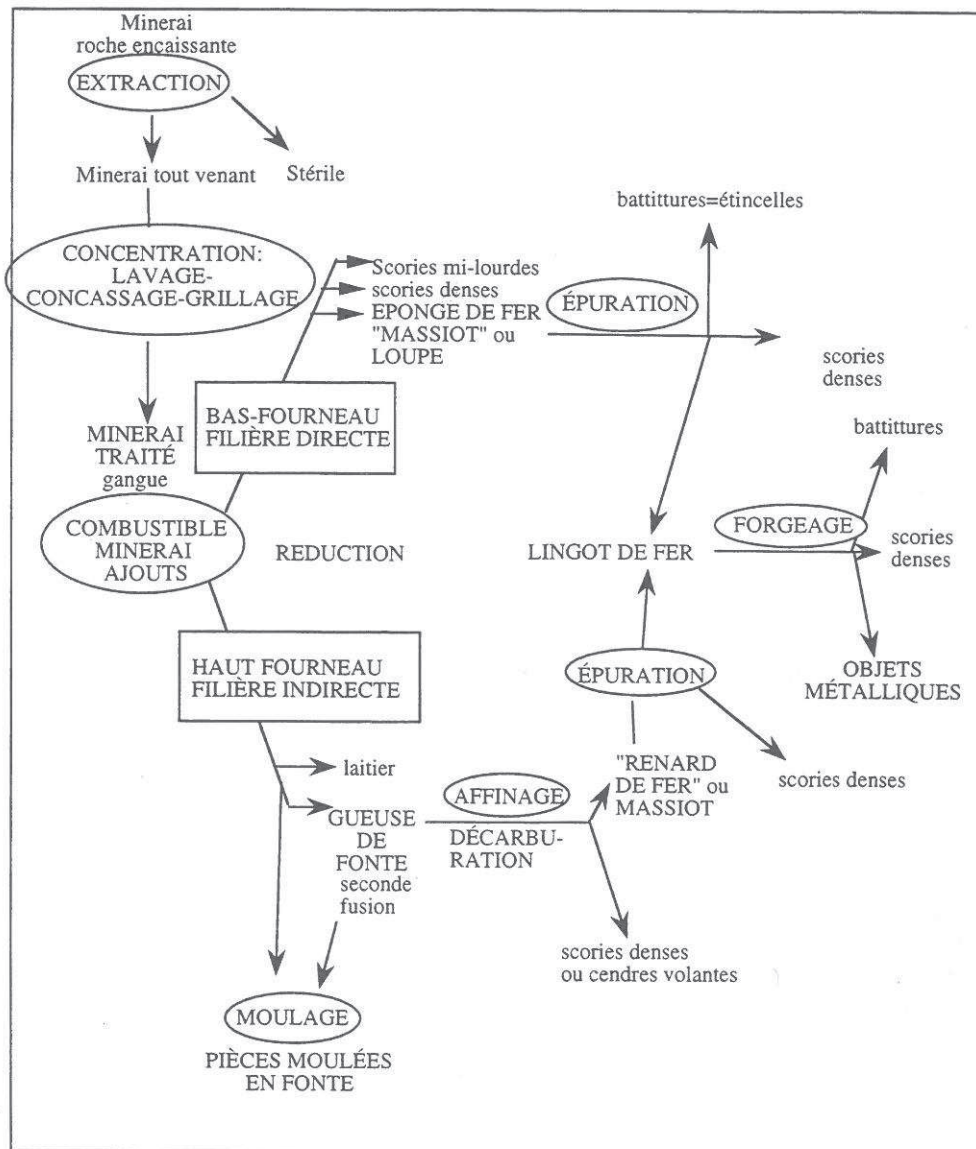


Fig. 1 : Les deux chaînes opératoires de la sidérurgie ancienne.

les inclusions de scories et/ou de charbon de bois et de créer un lingot compact qui sera le produit semi-fini forgeable. Les résidus de la réduction du minerai se présentent sous la forme de scories denses, généralement à fayalite et à wustite.

Dans la filière indirecte ancienne, la réduction du minerai conduit à la formation d'une gueuse de fonte, qui sera décarburée pendant la phase d'affinage en une, ou plusieurs, loupes de fer ou acier (affinage en four ouvert) qui devra être épurée puis cinglée comme précédemment. Il est cependant possible de mouler la fonte directement à la sortie du haut-fourneau, ou en seconde fusion. Lors de la réduction, il se forme, par ce procédé, des scories appelées «laitiers». Ce terme n'a pas d'équivalent en anglais ou en allemand et son usage a été fixé par Hassenfratz (Eluerd, 1993).

III - PRÉSENTATION SOMMAIRE DU SITE DE OULCHES

Le Latté à Oulches est un site archéologique situé dans l'Indre et daté du IV^{ème} siècle après J.C. Il a été fouillé par N. Dieudonné-Glad. L'atelier métallurgique du Latté est situé au bord du plateau dominant la rive gauche de la Creuse. Il se trouve à une quinzaine de kms à l'W d'Argentomagus (fig. 2) et à 1 km environ de la voie romaine Argentomagus-Limonum qui est située sur la rive opposée de la Creuse (Dieudonné-Glad, 1991).

Sur ce site quatre fours (dont deux de réduction) ont été découverts, ainsi qu'un bassin de bois, rectangulaire, de 2m sur 1,5m (fig. 3). Le fond était constitué de planches, dont on ne trouve plus que les empreintes en négatif dans l'argile sous-jacente et dans les produits scorifiés les recouvrant. Sur ce plancher s'est formé une concrétion très résistante d'éclats de scories vitreuses cimentés par des oxydes de fer ; elle mesure plusieurs dizaines de centimètres d'épaisseur (Dieudonné-Glad, 1993). Une canalisation alimentait en eau ce bassin. Il serait interprété comme une installation permettant de faire éclater le laitier, par choc

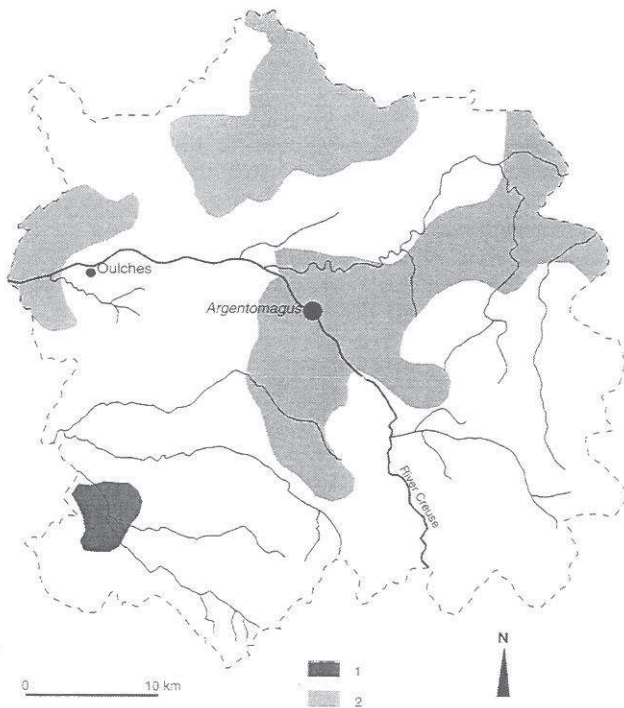


Fig. 2 : Carte des gisements de minerai de fer dans la région du site de Oulches. 1- Minerai du gisement barytique de Chaillac ; 2- Minerai des formations sidérolithiques.

thermique, afin d'en récupérer les billes de fer ou «grenaille». Une grande quantité de résidus métallurgiques a également été découverte : minerais, parois de four, et scories denses. Les scories légères, cristallisées ou vitreuses se localisent dans le ferrier. Ce dernier type de scories est très rare et ne correspond, au maximum, qu'au millième de la production de scories. Ce sont ces scories légères, recueillies au sein du ferrier ou dans le bassin, qui font l'objet principal de cette publication.

IV - DESCRIPTION MACROSCOPIQUE, MICROSCOPIQUE ET CHIMIQUE DES SCORIES DE OULCHES : COMPARAISON AVEC DES LAITIERS DE HAUTS FOURNEAUX

IV-1 - CARACTÉRISATION MACROSCOPIQUE

Deux grands types de scories ont été répertoriés sur ce site : des scories denses noires, et des scories légères grises cristallisées ou bleu-vert vitreuses.

Les scories denses, typiques des bas fourneaux, sont composées de plusieurs coulées les unes par dessus les autres (fig. 4g). Les coulées montrent une section en ellipse de largeur de 1,5 à 3 cm et de hauteur de 1 à 1,5 cm. La hauteur de la scorie varie de 1 à 4-5 cm. La surface supérieure est très légèrement cordée, lisse, noire et plutôt mate.

Les scories légères, bien que les blocs soient cassés, montrent des épaisseurs plus importantes, de l'ordre d'une dizaine de centimètres et ne sont formés que d'une seule coulée. Les scories cristallisées (fig. 4a) possèdent une surface supérieure vitreuse de coulée bleu turquoise à vert. Le passage entre la zone cristallisée et la zone vitreuse se fait progressivement. La partie vitreuse peut être très importante au point que certains fragments retrouvés n'étaient composés que de verre. Ces scories plus légères, ressemblent macroscopiquement à des laitiers issus de haut-fourneau. Aussi, pour une simplification de langage, nous les appellerons par la suite laitier. Les scories retrouvées dans la fosse sont entièrement vitreuses et leur aspect tend à les rapprocher des laitiers vitreux. Dans certains spécimens, des billes de métal, pouvant atteindre 1 cm de diamètre sont présentes.

Comparaison avec des laitiers de haut-fourneaux

Des fragments de laitiers, utilisés pour illustrer cette comparaison, ont été collectés sur le site de Savignac-Lédrier (Dordogne). C'est le dernier haut-fourneau à avoir fonctionné au charbon de bois en France. Dans le ferrier correspondant à l'époque de fonctionnement la plus récente (fin XIX^{ème}-début XX^{ème} siècle), ont été trouvés, entre autres, des laitiers gris cristallisés (fig. 4b) présentant un aspect analogue aux laitiers cristallisés gris de Oulches (fig. 4a) et des laitiers vitreux vert foncé (fig. 4d) analogues à des laitiers vitreux vert de Oulches (fig. 4c). De même, toujours sur le même site de Savignac-Lédrier, des morceaux de laitiers (fig. 4f) ont été trouvés en fouilles et sont datés du XVI^{ème} siècle (fouilles C. Dubois ; ces spécimens ressemblent beaucoup aux laitiers hétérogènes vitreux de Oulches (fig. 4e).

Macroscopiquement, les laitiers de Oulches ressemblent beaucoup plus à des déchets de haut-fourneaux que de bas-fourneaux. Les billes de métal évoquent les laitiers à grenaille des traités du XIX^{ème} siècle.

IV-2 - CARACTÉRISATION MICROSCOPIQUE

À l'échelle microscopique, il est possible de distinguer trois types principaux de scories de réduction (Ploquin *et al.*, 1996). Le type 1 dont font partie les laitiers cristallisés,

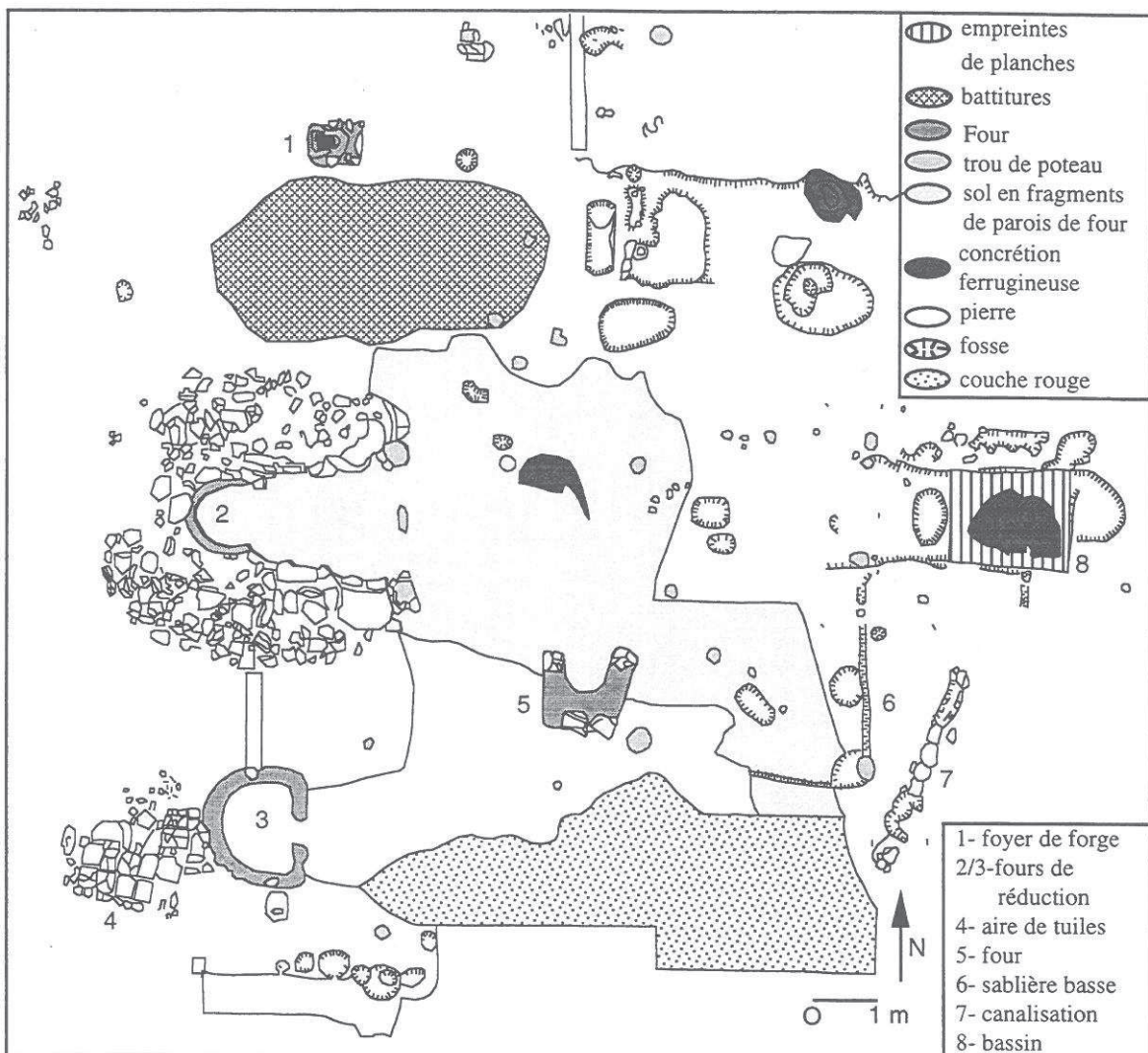


Fig. 3 : Plan général des structures artisanales du site métallurgique du Latté à Oulches (Indre), fouille Nadine Dieudonné-Glad.

les laitiers vitreux et les laitiers provenant de la fosse ; le type 2 représenté par une scorie d'aspect macroscopique analogue aux scories denses mais ne contenant pas de wustite (ce type de scories est appelé scories mi-lourdes) ; et le type 3 représenté par des scories denses fayalitiques à wustite, type très classique pour la filière directe (voir lexique des principaux minéraux cités en annexe). L'abondance relative des scories de type 2 et de type 3 n'a pas pu être déterminée.

Les scories de type 1 : les laitiers

Les laitiers cristallisés

Dans ce type de laitier, les phases cristallisées forment une « zonation » depuis la surface inférieure de la scorie jusqu'à la surface supérieure vitreuse.

Dans la partie la plus centrale de la coulée, ce sont des cristaux en forme de baguettes incolores qui se forment (fig. 5a). Elles ne montrent pas d'orientation particulière, ce qui indique qu'elles se sont formées lors d'un état statique.

Plus proche de la surface vitreuse supérieure, les cristaux sont moins bien formés et présentent des formes dendritiques. Ces cristaux s'organisent en réseaux, qui, sous le plus faible grossissement du microscope, ressemblent à des plumes. Ces plumes sont de couleur brun grisâtre, de taille assez grande et de contour quelconque.

Vers la partie vitreuse supérieure, les plumes sont plus petites, de couleur brun clair et de forme globalement losangique. Certaines de ces plumes, tordues ou non, ont été entraînées par la scorie liquide (maintenant représenté par le verre). Ceci indique qu'elles se sont formées pendant un écoulement. Ces phases cristallisées, en baguettes ou en plumes ont une composition chimique de type pyroxène alumineux (tab. 1). Le verre de bordure s'est figé très rapidement après la sortie du four. Les petites plumes sont les phases cristallisées qui se sont formées le plus rapidement. Les baguettes sont celles qui se sont formées le plus lentement. La variation chimique est importante entre les petites plumes et les baguettes. Ces dernières sont plus riches en Ca et Mg et plus pauvres en Al, Fe, Ti et K. Ce sont des minéraux formés quasiment à l'équilibre. Les plumes ont cristallisé hors-équilibre.

Les laitiers de Savignac-Lédrier récent possèdent également des pyroxènes alumineux comme phases cristallisées (fig. 5b).

Dans l'ensemble de la scorie, il y a des phases métalliques arrondies (fig. 5c) et même sphériques, des grains de quartz et des globules de cristobalite, restes de minéraux non entièrement fondus (fig. 5d).

Les laitiers vitreux

Bien que ces scories soient composées pour la majeure partie de verre, des cristaux se trouvent tout de même iso-

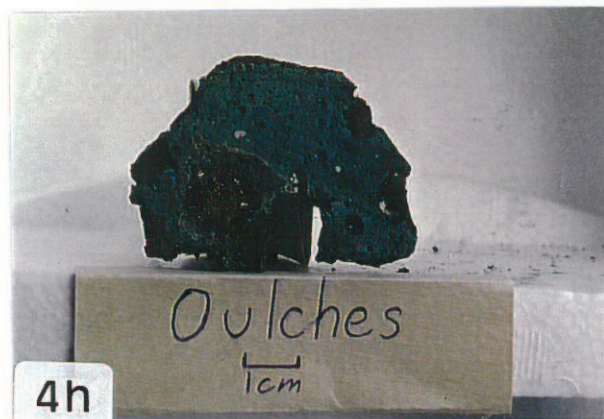
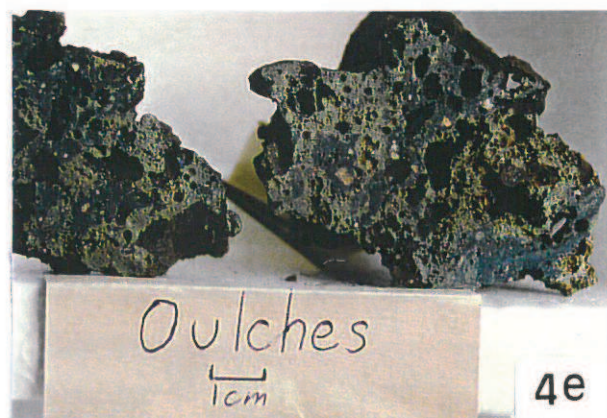
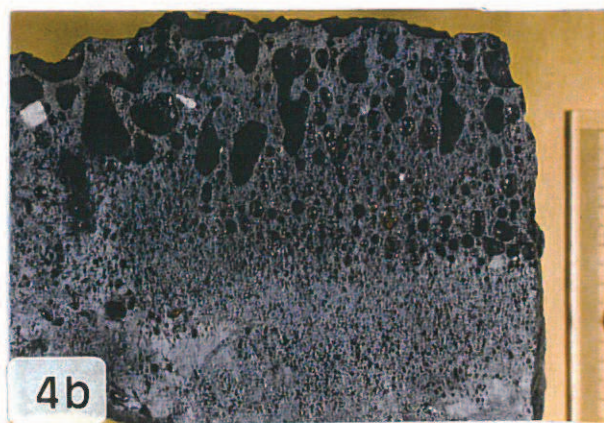
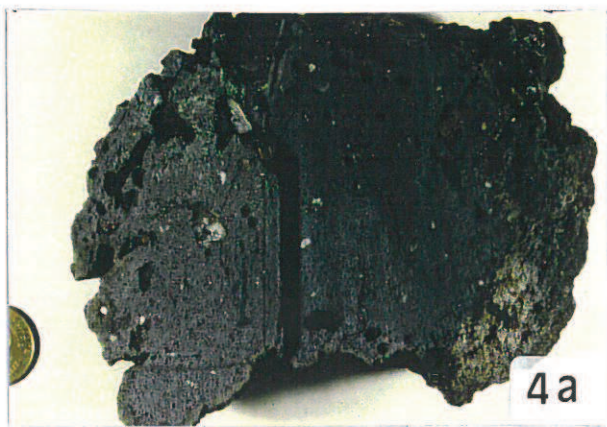


Figure 4 : a-Laitier cristallisé de type I de Oulches, b-Laitier cristallisé de type I de Savignac-Lédrier récent, c-Laitier vitreux vert de type I de Oulches, d-Laitier vitreux vert de type I de Savignac-Lédrier récent, e-Laitier hétérogène de type I de Oulches, f-Laitier hétérogène de type I de Savignac-Lédrier ancien, g-Scorie mi-lourde de type II de Oulches, très semblable aux scories denses de type III, h-Bille de fonte et acier dans un laitier vitreux de type I de Oulches.

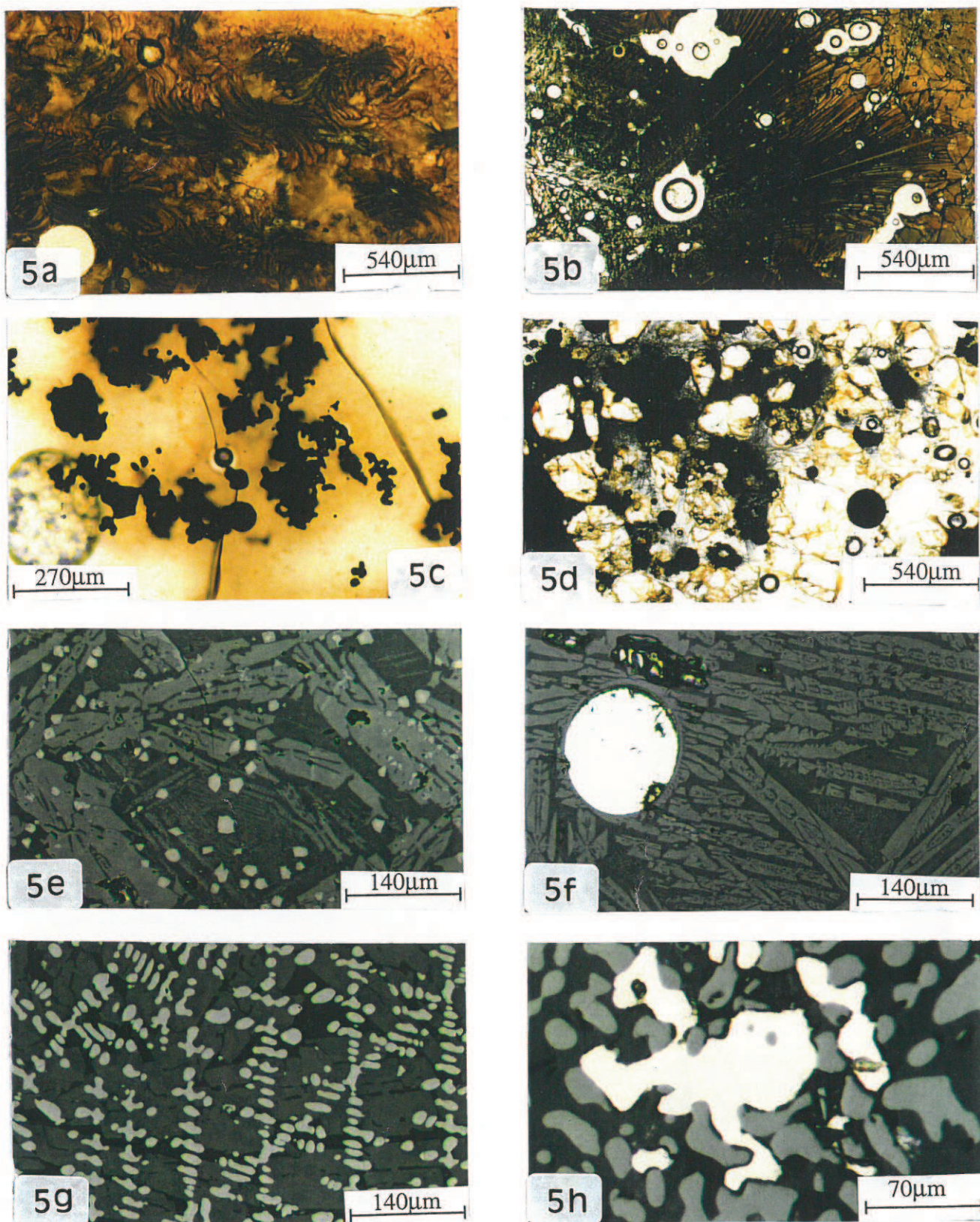


Figure 5 : a-Laitier cristallisé de type I de Oulches. Plumes formées par du pyroxène alumineux, de plus en plus petites vers la bordure de coulée vitreuse, Lumière Transmise (LT), Non Analysée (NA), b-Laitier cristallisé de type I de Savignac-Lédrier récent. Plumes formées par du pyroxène alumineux, de plus en plus petites vers la bordure de coulée formée par du verre, LT, NA, c-Billes de métal accolées dans un laitier vitreux de type I de Oulches, LT, NA, d-Restes de minerais: grains de quartz et cristobalite (transparent) et billes de métal (noir). Laitier vitreux de type I de Oulches, LT, NA, e-Petits cristaux automorphes de spinelle (blanc) et lattes squelettiques de fayalite (gris clair) dans une matrice vitreuse. Scorie mi-lourde de type II de Oulches, Lumière Réfléchie (LR), f-Bille de ferrite sur laquelle ont poussé des lattes de fayalite (gris clair), dans une matrice vitreuse. Scorie mi-lourde de type II de Oulches, LR, g-Dendrites de wustite (blanc gris) autour desquelles ont poussé des lattes de fayalite (gris clair) dans une matrice vitreuse. Scorie dense de type III de Oulches, LR, h-Fer amiboïde (blanc) moulant des dendrites de wustite (gris clair) dans une matrice vitreuse. Scorie dense de type III de Oulches, LR.

	verre bordure loin plumes	petite plume	grande plume	baguette		verre brun	verre incolore
SiO ₂	57.86	53.33	51.59	53.11		40,81	54,15
Al ₂ O ₃	6.49	5.43	2.05	1.61		11,41	16,21
CaO	18.23	20.61	23.88	24.04		10,38	16,00
MgO	4.57	7.88	11.90	12.54		0,47	0,44
MnO	0.86	0.71	0.76	0.86		0,19	0,50
FeO _t	8.17	8.85	8.07	7.54		33,47	9,17
Na ₂ O	0.09	0.07	0,00	0,00		0,04	0,13
K ₂ O	2.41	1.68	0.02	0.02		1,09	1,64
TiO ₂	0.62	0.50	0.48	0.39		0,72	1,06
Total	99.30	99.06	98.75	100.11		98,58	99,30

Tab. 1 : Exemple d'analyses chimiques ponctuelles (masses oxydes %) des phases d'un laitier cristallisé (colonne 1 à 4) et d'un laitier vitreux de type I d'Oulches.

lés dans la matrice. Ce sont des plumes qui se disposent en étoiles. Ces étoiles se rassemblent elles-mêmes pour former des chapelets. Le centre des étoiles est formé par des cristaux en baguette. La direction de ces chapelets est parallèle à la direction d'écoulement de la scorie, ce qui indique que ces plumes se sont formées avant ou pendant un écoulement, vraisemblablement à la sortie du four du laitier. Comme pour les laitiers cristallisés, les plumes et baguettes sont formées par des pyroxènes aluminés.

Il y a, comme dans les laitiers cristallisés, dans l'ensemble de la scorie, des phases métalliques arrondies et même sphérique (ferrite pour les petites billes, acier pour les plus grosses), et des grains de quartz et des globules de cristobalite. Ces parties, siliceuses, sont plus nombreuses que dans les laitiers cristallisés. Ces restes de quartz non ou peu fondu forment les tâches blanches que nous avons remarqué lors de la description macroscopique.

Les laitiers provenant de la fosse d'Oulches

Ces laitiers (des éclats très anguleux de quelques centimètres à quelques millimètres) présentent les mêmes caractères que les laitiers vitreux précédents. On y rencontre des phases métalliques et des restes de quartz et assez rarement des plumes de taille réduite noyées dans le verre.

Comme pour les deux autres types de laitier, il y a deux sortes de verre : un premier incolore en lame mince (lumière transmise) qui contient de très nombreux restes de quartz, et un second, brun, qui englobe plutôt les plumes (tab. 1). Une forte variation de composition chimique entre les deux verres a été notée, à Oulches le verre brun est beaucoup plus riche en Fe, alors que le verre incolore est enrichi en Si, Al, Ca, Na, K et Ti. Cette hétérogénéité, marquée dans

	fayalite	bordure spinellic	coeur spinellic	verre
SiO ₂	29,53	6,56	0,38	44,57
Al ₂ O ₃	0,19	26,87	43,20	15,15
CaO	0,22	0,32	0,08	6,95
MgO	1,83	0,11	0,21	0,05
MnO	7,57	1,90	1,79	2,64
FeO _t	59,17	59,31	50,98	23,57
Na ₂ O	0,00	0,02	0,00	0,08
K ₂ O	0,00	0,62	0,02	2,10
TiO ₂	0,00	2,89	1,19	0,22
total	98,62	98,62	97,85	95,84

Tab. 2 : Exemple d'analyses chimiques ponctuelles (masses oxydes %) des phases d'une scorie mi-lourde de type II d'Oulches.

la fluidalité, semble traduire une non-homogénéisation du bain fondu, c'est-à-dire une certaine relique de l'hétérogénéité des matériaux initiaux.

Les scories de type 2 : Les scories mi-lourdes

Ce type de scorie est composé uniquement de fayalite dendritiques ou squelettiques, de cristaux automorphes ou de dendrites de spinelle, et de verre matriciel (fig. 5e). Les fayalites sont riches en Mn (tab. 2). Les spinelles appartiennent à la solution solide hercynite-magnétite. Le coeur des spinelles est très riche en Al et donc très proche du pôle hercynite, alors que la bordure est beaucoup plus proche du pôle magnétite ; cette bordure incorpore également du Si (6-7%) et du Ti (2-3%), approchant alors une structure de titano-magnétite. Des billes de ferrite ont été observées dans l'échantillon (fig. 5f). Les billes de métal étaient déjà formées et solidifiées avant la cristallisation de la scorie : les cristaux de fayalite poussent à partir de ces billes sans déformations de ces dernières. Ce type de scorie a également été observé en inclusion dans un laitier vitreux. L'ensemble des cristaux baigne dans une matrice vitreuse.

Les scories de type 3 : Les scories denses

Ce type de scorie est ce que l'on peut appeler classiquement une scorie dense à fayalite et wustite (fig. 5g). Ces deux types de phases ont cristallisés sous forme de dendrites. Les lattes de fayalites se présentent en gerbe, et englobent les dendrites de wustite. La surface supérieure de chaque coulée est formée par un ruban de wustite ou de magnétite, montrant que les coulées se sont succédées très rapidement ne laissant presque pas le temps pour la formation d'hématite. Les rares phases métalliques et amiboïdes peuvent englober des globules de wustite (fig. 5h). Quelques phases métalliques montrent une tendance à être automorphe avec une forme propre cubique. L'ensemble de ces phases baigne dans une matrice vitreuse (tab. 3).

IV-3 - CARACTÉRISATION CHIMIQUE

La composition chimique des laitiers de Oulches (tab. 4) est très proche de la composition des laitiers de haut-fourneaux (tab. 5), notamment au niveau de la teneur en Si (51-59% SiO₂), que ce soit des hauts fourneaux pré-modernes comme à Savignac-Lédrier récent (45-53% SiO₂) ou archaïques comme à Savignac-Lédrier ancien (52-61% SiO₂).

Les laitiers de Oulches présentent une forte variation de

	fayalite	wustite	verre
SiO ₂	29,6	0,41	39,29
Al ₂ O ₃	0,23	0,93	17,95
CaO	1,11	0,00	12,12
MgO	0,69	0,00	0,00
MnO	2,60	0,74	0,65
FeOt	65,56	95,47	19,56
Na ₂ O	0,02	0,03	0,51
K ₂ O	0,00	0,00	6,98
TiO ₂	0,00	0,45	0,13
total	99,81	98,03	97,19

Tab. 3 : Exemple d'analyses chimiques ponctuelles (masses oxydes %) des phases d'une scorie dense de type III d'Oulches.

la teneur de Al (5-17% Al₂O₃), Fe (8-16% Fe₂O_{3t}) et Ca+Mg (6-27%). Il semblerait qu'une plus forte teneur en Si soit associée à une plus forte teneur en Fe, et qu'une plus forte teneur en Al soit associée à une plus faible teneur en Ca+Mg.

Les particularités chimiques de ce type de laitier issu de bas-fourneaux, par rapport aux laitiers de haut-fourneaux, sont la richesse en Fe et la variabilité Al/(Ca+Mg) ; particularités qui le rapproche des laitiers archaïques.

Les scories mi-lourdes de type II présentent une teneur en Si (30-33% SiO₂) et Ca (2-3% CaO) beaucoup plus faible et une teneur en Fe beaucoup plus forte (50-55% Fe₂O_{3t}), par rapport aux laitiers de type I. Il faut remarquer que la teneur en Mn de ce type de scorie, proche de 5% MnO ne se retrouve pas dans les deux autres types de scories.

Les scories denses présentent une teneur en Si encore moins importante (environ 20-25% SiO₂) et une teneur en Fe très élevée (70-75% Fe₂O_{3t}). Les teneurs en Al et Ca sont assez faibles de l'ordre, respectivement de 4-5% Al₂O₃ et 2-3% CaO.

IV-4 - CONCLUSIONS DE LA CARACTÉRISATION DES SCORIES DE OULCHES

La caractérisation macroscopique, microscopique et chimique des laitiers de type I de Oulches a permis de montrer que ce type de matériau présente tous les caractéristiques des laitiers de hauts fourneaux.

En outre, l'examen microscopique et chimique a décelé une catégorie particulière de scories, les scories mi-lourdes de type II, qui présentent, hormis les teneurs en MnO, des caractères intermédiaires entre les laitiers et les scories denses classiques (billes de métal comme les laitiers, fayalite et matrice vitreuse très riche en fer comme les scories denses).

V - ORIGINE DES LAITIERS DE BAS FOURNEAUX DE OULCHES

V-1 - FUSION DE LA PAROI DES FOURS

Une hypothèse de la formation des laitiers dans des bas fourneaux, est l'interaction de la paroi du four en fusion avec les scories denses. Afin de confirmer ou d'infirmer cette hypothèse, des analyses chimiques ont été réalisées sur des spécimens de parois de four saines, de parois de four qui semblent avoir été fondues et contaminées par les scories denses ; ces analyses sont confrontées à celles des laitiers et scories denses. L'analyse de paroi révèle une composition de type sableuse. Si l'hypothèse de la fusion et de la contamination est justifiée, les éléments chimiques devraient présenter des teneurs intermédiaires entre celle de la paroi saine et celles des scories denses.

Dans la grande majorité des cas, les teneurs des éléments ne se situent pas en position intermédiaire (fig. 6) entre celle de la paroi et celles des scories denses. Les teneurs de plusieurs éléments sont souvent beaucoup trop élevées dans les laitiers. C'est le cas pour les éléments majeurs Al₂O₃, CaO, K₂O, MgO, et TiO₂ et pour les élé-

	laitier bleu foncé vitreux	laitier vert foncé vitreux	laitier bleu vert opaque	laitier gris cristallisé	laitier gris cristallisé	scorie mi-lourde	scorie dense	paroi
Oulches	type I	type I	type I	type I	type I	type II	type III	
SiO ₂	58,95	58,50	57,15	50,91	55,41	31,93	23,61	87,99
Al ₂ O ₃	10,39	16,89	8,24	5,78	10,27	8,57	4,82	5,74
CaO	9,41	5,32	20,56	21,68	17,59	2,20	2,41	0,12
MgO	0,91	1,01	1,12	6,23	0,80	0,78	0,48	0,08
MnO	1,76	1,98	0,72	0,92	0,50	4,82	1,12	0,00
Fe ₂ O _{3t}	16,5	14,13	8,75	11,04	13,18	54,06	72,02	1,97
Na ₂ O	0,12	0,08	0,14	0,05	0,11	0,03	0,05	0,20
K ₂ O	2,67	2,08	2,68	1,55	1,93	1,21	0,69	1,58
TiO ₂	0,76	0,69	0,6	0,47	0,82	0,33	0,25	0,83
P ₂ O ₅	0,20	0,16	0,2	0,26	0,21	0,45	0,40	0,17
PF	-1,54	-0,99	-0,12	0,79	-1,60	-5,19	-5,87	1,27
Total	100,13	100,15	100,04	99,68	99,82	99,19	99,98	99,95
Be	76,90	107,90	41,79		57,80	141	50,40	1
Rb	93	100	83		115	62,60	48	68
Sc	26,70	23,29	23,60		24,70	10,30	9,60	5
Y	334	527	144		?	?	172	26
V	193	158	163		186	98,90	111	42
Cr	151	126	111		123	48,30	70	35

Tab. 4 : Exemple d'analyses chimiques globales des laitiers (masses oxydes, majeurs et Perte au Feu %, traces ppm) de type I, d'une scorie mi-lourde de type II et d'une scorie dense de type III d'Oulches.

	violet foncé	vert foncé	vert pâle	gris cristallisé	gris vert	vert bleu	vert foncé	vert foncé
Savignac	récent	récent	récent	récent	ancien	ancien	ancien	ancien
SiO ₂	55,32	50,09	46,46	52,90	52,38	61,11	63,27	53,73
Al ₂ O ₃	10,53	10,23	8,44	10,24	16,00	8,40	9,89	16,96
CaO	18,14	20,92	23,82	17,85	14,25	8,71	9,35	11,33
MgO	11,00	12,86	12,88	11,28	8,80	5,68	5,93	7,29
MnO	0,86	1,26	4,75	1,20	0,58	0,23	0,28	0,80
Fe ₂ O _{3t}	1,04	2,16	0,40	3,58	4,75	14,65	10,10	7,67
Na ₂ O	0,12	0,11	0,16	0,08	0,19	0,11	0,11	0,16
K ₂ O	1,82	1,63	1,76	1,82	1,47	0,70	0,79	1,42
TiO ₂	0,44	0,44	0,30	0,44	0,66	0,52	0,56	0,77
P ₂ O ₅	0,07	0,08	0,08	0,06	0,08	0,09	0,06	0,06
PF	0,43	0,04	0,27	0,32	0,61	0,37	0,54	0,42
Total	99,77	99,74	99,32	99,77	99,77	100,57	100,88	99,77
Be	27,60	28,60	7	30,10	32,80	24,8	30,80	40
Rb	36	52	19	44	59,70	218	191	156
Sc	51	50	42	61	62,40	30,40	34,80	64,40
Y	40,70	33,50	20,89	36,20	34,40	22,70	24,70	35,40
V	65	109	8	70	99,80	484	437	250
Cr	190	184	71	158	?	?	?	?

Tab. 5 : Exemple d'analyses chimiques ponctuelles (masses oxydes, majeurs et Perte au Feu %, traces ppm) de laitiers de type I de Savignac-Lédrier ancien et récent.

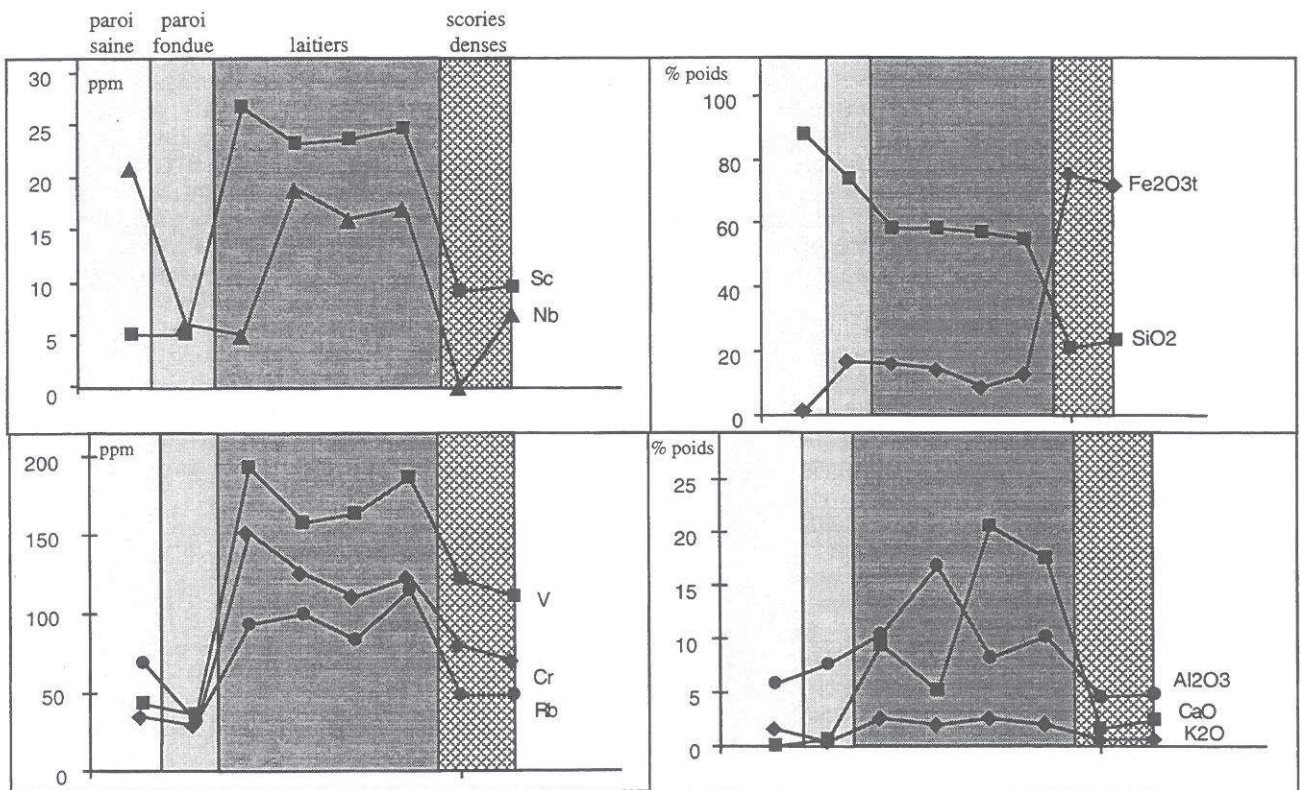


Fig. 6 : Analyses chimiques globales de la paroi saine d'un four, de la paroi contaminée par des scories denses, des scories denses et des laitiers d'Oulches ; représentation graphique des teneurs en quelques éléments chimiques pour tester l'origine des laitiers à partir de la fusion de paroi.

ments en traces V, Cr, Rb, Sc, Nb, Ba, Y et Be. Ces éléments sont fortement incompatibles avec le métal et se concentrent donc très fortement dans le laitier. En outre, certains de ceux-ci tels que V, Sc, Be, peuvent être présents dans les minerais à des teneurs très supérieures à celles qui sont habituelles dans les matériaux utilisés dans la cons-

truction des fours : ce seront de bons traceurs de ces minerais.

Il faut donc en conclure que les laitiers ne sont pas le résultat de la fusion de la paroi et de sa contamination par les scories denses.

Pour SiO₂ et Fe₂O_{3t}, les teneurs dans les laitiers sont en

positions intermédiaires entre la paroi et les scories denses. Ceci n'est absolument pas dû à une contamination et à une fusion. Il est bien évident que les parois de fours sont très riches en Si et très pauvres en Fe, et inversement pour les scories denses. Les laitiers de par leur propre composition chimique, se situe logiquement en position intermédiaire, car lors de la réduction, beaucoup de fer a été retiré du bain fondu alors que la silice s'est concentrée dans la scorie.

V-2 - MÉLANGE PARTICULIER DE MINÉRAIS ET/OU AJOUTS DE CHAUX ?

Une prospection systématique des différents gisements de minerai de fer a été réalisée dans un rayon d'une vingtaine de kilomètres autour du site de Oulches dont plusieurs faciès ont été analysés chimiquement. Des morceaux de minerai trouvés sur le site ont également été analysés. Après la description sommaire de ces divers minerais, nous verrons si une combinaison spécifique de ceux-ci permet d'obtenir des laitiers.

Description succinctes des différents minerais présents aux alentours du site de Oulches

Le Berry contient de nombreux gisements de minerai de fer facilement accessibles. Trois principaux types sont répertoriés en fonction des formations géologiques qui les contiennent (Dieudonné-Glad, 1991).

Le minerai des formations sidérolithiques (appelé également minerai pisolithique) est, de loin, le plus représenté par l'étendue géographique de ses gisements. Il se situe dans les argiles tertiaires et forme à la surface du plateau jurassique des gîtes irréguliers et discontinus, logés dans des cavités superficielles des calcaires, ou recouverts par des marnes et des calcaires lacustres (de Grossouvre, 1886, p. 330). Le minerai se présente en grains libres, en agglomérats formés de grains et de graviers réunis par un ciment ferrugineux, en concrétions adhérentes à la surface de silex roulés, ou en masses compactes dans lesquelles la structure globulaire et concrétionnée se révèle à peine sur quelques points (de Grossouvre, 1886).

Le minerai du gisement barytique de Chaillac est lié à la formation d'une faille à la période hercynienne, suivie d'une minéralisation barytique qui a localement modifié le gisement de minerai de fer préexistant. Le minerai peut se classer en trois catégories : minerai en forme d'amas dans les argiles, minerai des grès ferrugineux, minerai barytique. Ces minerais comportent de 5 à 13% de barytine (BaSO_4). Remarquons que certains spécimens pisolithiques ou en croûte atteignent des valeurs analogues en Ba.

Le minerai récent, en grains ou en croûtes (ou alios) est formé par des concrétions ferrugineuses. Ces concrétions peuvent prendre la forme de grains ou de conglomérats et ressembler au minerai sidérolithique. Il est formé par la dissolution dans les eaux des oxydes de fer qui précipitent dans une zone en fonction des conditions hydrologiques et d'oxydo-réduction. Ce phénomène se produit près de la surface du sol en quelques centaines ou milliers d'années, et n'est pas cartographié par les géologues.

Minerais utilisés dans les fours de Oulches

L'observation directe des analyses chimiques a permis de donner dans un premier temps quelques éléments de réponse (Dieudonné-Glad, 1994). Ainsi, la plupart des morceaux de minerais trouvés sur le site sont très riches en Ba et présentent un faciès typique du minerai de Chaillac. Ce gisement a donc été exploité et utilisé comme minerai de fer au IV^{ème} siècle après J.C. Mais, entre autres arguments,

il y a un quadruplement de la teneur en Be entre le minerai de Chaillac et les scories denses. Même avec la perte du fer lors de la réduction (et donc augmentation de la teneur de tous les autres éléments dans la scorie résiduelle), il est impossible d'obtenir une telle augmentation. On est forcé d'admettre alors qu'il y a eu aussi utilisation d'un autre minerai de fer, plus riche en Be. Ce pourrait être le minerai en croûte ou alios.

La détermination exacte des minerais utilisés et leurs quantités relatives, sont impossibles, car au sein d'un même type de gisement, les différents faciès présentent une assez forte variation chimique ; ceci est particulièrement net pour le Mn, ce qui implique que l'apparition des scories mi-lourdes n'est pas liée à l'usage de tel minerai... mais n'exclut pas une sélection de minerais manganésifères. Remarquons que, dans ces compositions riches en fer, une augmentation en MnO tend à relever la température du liquidus et à rapprocher les conditions d'apparition du fer sous forme liquide (Cf. les billes métalliques).

Ajout de calcaire ou «castine»

Lors de la réduction du minerai de fer, des éléments tels que Si, Al, Ca, K ou Be passent intégralement dans la scorie. Il est alors possible d'apprécier le lien de parenté entre les scories et les minerais. Ainsi, en recalculant les analyses chimiques sans le fer, les analyses des scories et des minerais devraient être très semblables. Les points représentatifs des analyses chimiques recalculées des laitiers, des scories mi-lourdes et des scories denses ont été placés dans le diagramme ternaire SiO_2 -CaO- Al_2O_3 (fig. 7). Il est nettement visible que les laitiers sont enrichis en CaO par rapport aux minerais. En aucun cas, un mélange particulier de minerais inventoriés ne provoquera un tel enrichissement. Il y a donc eu ajout de CaO ; ce peut être sous la forme d'un ajout de calcaire ou «castine». Malheureusement, aucune trace de calcaire cuit n'a été trouvée sur le site alors que le plateau calcaire affleure à quelques centaines de mètres de l'atelier métallurgique ; de plus les matériaux entrant dans la construction des fours sont du grès et des argiles mêlées à du sable. L'enrichissement en CaO des scories denses et scories mi-lourdes est moins important et l'apport par les cendres de charbon de bois pourrait être suffisant pour l'expliquer.

Il est possible de faire une estimation de la quantité de chaux ajoutée en prenant pour les minerais une valeur moyenne puisque l'ensemble des minerais analysés possèdent une teneur en CaO assez faible (moyenne de 0,85%)

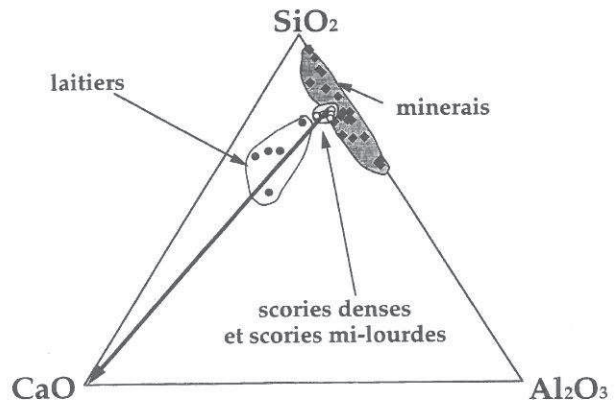


Fig. 7 : Représentation dans le système SiO_2 -CaO- Al_2O_3 des analyses chimiques globales recalculées sans le fer des laitiers, des scories mi-lourdes, des scories denses d'Oulches et des minerais trouvés sur le site et provenant des gisements autour du site.

par rapport aux teneurs dans les laitiers (4 à 24%). Un calcul simple indique que l'ajout de calcaire peut dépasser 10% en masse.

CONCLUSION

L'étude macroscopique, microscopique et chimique des laitiers, scories denses, parois de fours et minerais du site de Oulches a permis de connaître l'origine des laitiers trouvés sur le site.

Les laitiers du site de Oulches présentent tous les caractères d'un laitier typique fabriqué dans un haut fourneau. Ils ne sont pas le résultat de la fusion des parois de four et de la contamination de celles-ci par les scories denses. Ces laitiers sont le produit d'un mélange de minerais provenant du gisement de Chaillac et du minerai sidérolithique ou de l'aliage, et d'un ajout calcaire plus ou moins important. Les scories denses et les scories mi-lourdes sont issues d'un mélange analogue, mais avec un apport de chaux nettement moins important, éventuellement limité à celui du combustible.

La très faible quantité de laitiers trouvés sur le site, par rapport à la masse de scories denses, montre que cette activité restait tout de même très marginale.

Il est impossible de déterminer si le déclenchement du processus donnant naissance au laitier et au métal liquide (acier et fonte) était intentionnel ou accidentel ; mais l'aménagement du bassin tend à prouver qu'il était connu et utilisé... près de mille ans avant le développement des hauts fourneaux proprement dits.

ANNEXE

Lexique des principaux minéraux cités :

- * oxydes : wustite (FeO), Hématite (Fe₂O₃), Magnétite (Fe₃O₄) ou (FeO, Fe₂O₃)
- * spinelles : famille de type (M²⁺O, M³⁺2O₃), M mis pour un «métal» avec ici deux pôles importants : magnétite (FeO, Fe₂O₃) et Hercynite (FeO, Al₂O₃) et des intermédiaires par substitutions entre Fe³⁺ et Al₂O₃.
- * olivines : famille de silicates de type SiO₄ (Fe, Mn, Mg, Ca, ...)₂, les séries les plus représentées étant : Fayalite (Fe), Kirschsteinite (Fe, Ca) et Knébelite (Fe, Mn).
- * pyroxènes : famille de silicates de type (Si, Al)₂O₆ (Fe, Mg, Mn, Ca, Al, ...), ici la substitution Al peut être plus marquée que dans les pyroxènes naturels.
- * silice : Quartz (SiO₂) ; la Cristobalite est une forme «haute température».

BIBLIOGRAPHIE

- DIEUDONNE-GLAD, N., 1991 - *La métallurgie du fer chez les Bituriges à l'époque gallo-romaine*. Thèse Univ. Paris I.
- DIEUDONNE-GLAD, N., 1993 - Rapport de fouille programmée : *Le Laté à Oulches (Indre)*, 19 p.
- DIEUDONNE-GLAD, N., 1994 - Minerai de fer disponible et minerai de fer exploité : Exemple de choix à l'époque romaine chez les Bituriges Cubi. In : *La sidérurgie ancienne de l'Est de la France dans son contexte européen*. Archéologie et Archéométrie, Besançon, Annales littéraires de l'Université de Besançon, 5, 323-329.
- DUNIKOVSKY, C. et CABBOI, S., 1995 - *La sidérurgie chez les Sénons : les ateliers celtiques et gallo-romains des Clérimois (Yonne)*. Maison des Sciences de l'Homme : Paris. 186 p.
- ELUERD, R., 1993 - *Les mots du fer et des lumières*. H. Champion éd. 525 p.
- GROSSOUVRE, A. de, 1886 - Etude des gisements de minerai de fer du centre de la France. *Annales des Mines*, 10, 311-417.
- JARRIER, C., 1993 - *Minéralogie, pétrologie et géochimie des résidus sidérurgiques gallo-romains (Ariège et montagne Noire) ; comparaison avec les résultats des essais insitu de réduction directe du fer*, Thèse Univ. Toulouse, 222 p.
- LEROY, M., 1993 - *La sidérurgie ancienne en Lorraine avant le haut fourneau : Etude du développement historique et des conditions techniques de l'utilisation du minerai oolithique lorrain (la Minette) en métallurgie de réduction directe*. Thèse Univ. Besançon, 434 p. Paru dans les DAF 1997.
- MAHÉ-LE CARLIER, C., 1997 - *Caractérisation pétrographique et chimique d'analogues de déchets vitrifiés actuels : les scories de la métallurgie ancienne*. Etude de l'altération naturelle et expérimentale, INPL Nancy, 383 p.
- PLOQUIN, A., 1994 - L'analyse chimique en paléosidérurgie. In : *La sidérurgie ancienne de l'Est de la France dans son contexte européen*, Besançon, 10-13 Novembre 1993, 16-23.
- PLOQUIN, A., MAHE, C., LEROY, M., DIEUDONNÉ-GLAD, N. et JARRIER, C., 1996 - Reconstruction of Ironmaking Procedure : A Progress Report about Petrographical Studies of Slaggy Wastes from Archaeo-Ironmaking Sites. In : *The Importance of Ironmaking, Technical Innovation and Social Change*, Norberg (Suède), 1995, 2, ed. Gert Magnusson, 2, 105-119.
- SERNEELS, V., 1993 - *Archéométrie des scories de fer : recherches sur la sidérurgie ancienne en Suisse Occidentale*. Thèse Univ. Lausanne, Suisse, 327 p.
- VERNET, M. et GOVINDARAJU, K., 1993 - Mise en solution des matériaux avant analyse. *Techniques de l'Ingénieur*, 4, (222), 1-16.