



HAL
open science

Les métallurgies associées de la fin du XIII^e siècle au XV^e siècle : L'argent, les cuivres et le plomb à Castel-Minier (Ariège, France)

Julien Flament

► **To cite this version:**

Julien Flament. Les métallurgies associées de la fin du XIII^e siècle au XV^e siècle : L'argent, les cuivres et le plomb à Castel-Minier (Ariège, France). Histoire. Université d'Orléans, 2017. Français. NNT : . tel-01956682

HAL Id: tel-01956682

<https://theses.hal.science/tel-01956682>

Submitted on 16 Dec 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES DE L'HOMME ET DE LA SOCIÉTÉ

Institut de Recherche sur les Archéomatériaux, Centre Ernest-Babelon

UMR 5060, CNRS-Université d'Orléans

THÈSE présentée par :

Julien FLAMENT

Soutenue publiquement le 4 décembre 2017

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université d'Orléans**

Discipline/ Spécialité : Histoire

**Les métallurgies associées
de la fin du XIII^e siècle au XV^e siècle**

L'argent, les cuivres et le plomb à Castel-Minier
(Ariège, France)

Volume I : Texte

THÈSE dirigée par :

Bernard Gratuze

Directeur de recherches, CNRS, IRAMAT-CEB

Co-encadrée par :

Guillaume Sarah

Florian Téreygeol

Chargé de recherches, CNRS, IRAMAT-CEB

Chargé de recherches, CNRS, IRAMAT-LMC

RAPPORTEURS :

Giovanna Bianchi

Didier Boisseuil

Professeur, Università di Siena

Maître de conférences HDR, Université de Tours

JURY :

Giovanna Bianchi

Didier Boisseuil

Bernard Gratuze

Marcos Martín-Torres

Guillaume Sarah

Florian Téreygeol

Professeur, Università di Siena

Maître de conférences HDR, Université de Tours

Directeur de recherche, CNRS, IRAMAT-CEB

Professeur, University College London

Chargé de recherche, CNRS, IRAMAT-CEB

Chargé de recherche, CNRS, IRAMAT-LMC

**Les métallurgies associées
de la fin du XIII^e siècle au XV^e siècle**

L'argent, les cuivres et le plomb à Castel-Minier (Ariège, France)

Julien Flament

2017

Volume I : Texte

À la mémoire de mon grand-père

Remerciements

Parvenu au terme d'une recherche engagée en 2014, je souhaite exprimer mes remerciements aux nombreuses personnes qui ont accompagné son développement et permis son aboutissement.

J'adresse en premier lieu mes remerciements à Bernard Gratuze, directeur de l'IRAMAT-CEB qui a accepté de diriger mes travaux. L'accueil chaleureux qu'il m'a réservé au sein du laboratoire et la confiance qu'il m'a accordée m'ont permis de travailler dans un environnement privilégié propice la réflexion et à l'échange. Les compétences archéométriques qu'il m'a enseignées durant les trois années passées à l'IRAMAT-CEB, son aide dans la mise en œuvre de protocoles d'analyses ainsi que ses conseils pour l'interprétation et la visualisation des données m'ont été précieuses pour parvenir aux résultats exposés dans ce travail.

Je tiens à remercier chaleureusement Guillaume Sarah et Florian Téreygeol dont le statut de co-encadrant n'est pas à la hauteur de leur implication dans mes travaux. La pluralité et la complémentarité de leurs compétences m'ont permis de développer et d'enrichir continuellement mes réflexions. L'existence de cette thèse découle directement des recherches archéologiques menées à Castel-Minier par Florian Téreygeol depuis 2003. Ce site constitue pour moi un fil conducteur qui a façonné ma vocation archéologique et archéométrique. Je remercie Florian de m'y avoir accueilli depuis 2012, de m'avoir formé aux techniques de fouilles propres aux contextes miniers métallurgiques puis de m'avoir proposé un sujet centré sur ce site d'exception. C'est également à Castel-Minier que j'ai rencontré Guillaume qui, après avoir encadré mon stage de fin d'études d'ingénieur, m'a renouvelé sa confiance en acceptant de co-encadrer mes travaux. En m'épaulant et en me conseillant quotidiennement, il a contribué grandement à l'aboutissement de mes recherches.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance aux membres du jury qui ont accepté d'évaluer cette thèse. Je remercie vivement Giovanna Bianchi et Didier Boisseuil qui m'ont fait l'honneur d'en être les rapporteurs.

De nombreux résultats présentés dans cette thèse n'auraient pu exister sans le concours de nombreuses personnes et d'institutions. Ainsi, ma dette envers Jean-Charles Méaudre, assistant ingénieur à l'IRAMAT-LMC, est grande. Mes recherches ont pu bénéficier du travail qu'il accomplit depuis plusieurs années (dessin et étude du mobilier, réalisation des plans des structures...) sur Castel-Minier et dont j'ai pu exploiter les fruits. Ses conseils et sa grande disponibilité me furent précieux.

Je tiens à remercier chaleureusement Claude Dubois (alias Claude Dubatik, alias Pépé Malin), historien et archéologue, chargé de mission de l'association Pyrène et pionnier de l'archéologie minière dans les Pyrénées centrales, qui m'a initié à la prospection. Je mesure aujourd'hui le chemin parcouru et les nombreuses connaissances géologiques, minéralogiques et historiques (voire mycologiques ?) apprises à son contact. Les longues heures passées ensemble sur les montagnes ariégeoises ont forgé une belle amitié.

Je remercie également les membres de l'IRAMAT-CEB (permanents, associés, doctorants et stagiaires) grâce à qui j'ai pu évoluer dans un environnement chaleureux ces trois dernières années : Sophie Boucetta, Gwénaëlle Bréard, Henrique Da Mota, Thomas Faucher, Benjamin Gehres, Sylvia Nieto-Pelletier, Charles et Charlotte Parisot-Sillon, Patricia Roger-Puyo, Arnaud Suspène et Fai Tcha. J'exprime plus particulièrement ma gratitude à Maryse Blet-Lemarquand pour la réalisation des analyses par activation neutronique sur le mobilier cuivreux ainsi que pour nos fructueux échanges sur des problèmes métallurgiques. Enfin, je suis infiniment reconnaissant à Marc Bompaire de l'aide qu'il m'a généreusement proposée pour l'édition des sources écrites latines. Ce fut un honneur de travailler à ses côtés.

J'exprime également ma gratitude envers le personnel de l'IRAMAT-LMC et en particulier aux membres de son antenne du CEA-Saclay. Mes remerciements vont plus

particulièrement à Philippe Dillmann qui m'a accueilli au sein de cette structure et m'a donné accès au parc instrumental. Les mesures en microspectrométrie Raman n'auraient pas été possibles sans la collaboration fructueuse que j'ai pu nouer avec Florence Mercier qui m'a initié à cette technique. Je remercie également Eddy Foy pour les analyses en DRX des scories de plomb, ainsi que les autres membres du laboratoire pour leur accueil chaleureux : Sylvain Bauvais, Émilie Bérard, Stéphanie Leroy et Enrique Vega.

Je remercie également Ivan Guillot et Loïc Perrière de l'ICMPE de m'avoir offert la possibilité de réaliser des étalons plomb-argent dans leur laboratoire et de m'avoir consacré du temps pour la pesée des métaux et la réalisation des fontes.

Je ne saurais oublier les contributions d'Ida Di Carlo du laboratoire ISTO, qui a réalisé les analyses à la microsonde sur les minerais non-ferreux, et de Catherine Guerrot qui m'a accueilli au BRGM et a pris le temps de me faire découvrir la géochimie isotopique et a assuré l'analyse de plusieurs minerais. Qu'elles trouvent ici l'expression de ma gratitude.

J'exprime mon admiration devant le travail de traitement des relevés LIDAR accompli par Jürgen Heckes du Deutsches Bergbau-Museum de Bochum. Ces données m'ont été très utiles pour les prospections minières.

Les travaux d'archéologie expérimentale présentés dans ce mémoire ont été réalisés sur la plate-forme d'archéologie des arts du feu de Melle (Deux-Sèvres, France) associée au musée des Mines d'argent des rois francs. Je suis reconnaissant envers le personnel qui fait vivre ce patrimoine minier et en particulier Jean-Philippe Marnais et Jean-Paul Bailleul. Leur soutien sans faille lors des sessions d'expérimentations, leur aide logistique et technique, mais également leur bonne humeur ont contribué au succès des expérimentations. L'occasion m'est offerte ici de remercier tout particulièrement François Peyrat, céramiste. Sans ses conseils avisés pour la conception et la conduite des structures des chauffe, nombre d'entre elles n'auraient pas vu le jour. Les progrès obtenus dans la chaîne opératoire de réduction de la galène

doivent beaucoup aux échanges avec Georges Verly, archéométallurgiste du Musée du Cinquantième-Musées royaux d'Art et d'Histoire de Bruxelles à qui nous adressons nos remerciements. De la même manière, les expérimentations de coupellation au sol s'inscrivent dans la continuité des travaux de Joseph Gauthier qui m'a fait bénéficier de son expérience. Les nombreuses discussions tenues ensemble sur le terrain ont fait considérablement progresser mes réflexions.

L'échantillonnage de la mine de Castel-Minier n'aurait pas été possible sans les compétences spéléologiques de mon ami Alexandre Dissier qui a assuré notre sécurité et m'a assisté dans les prélèvements. Pour ce coup de main et pour tout le reste, je le remercie vivement.

Tout au long de cette recherche, j'ai pu bénéficier des conseils et des encouragements de plusieurs personnes au gré d'une correspondance, de colloques et d'opérations de terrain. Je remercie plus particulièrement Adrien Arles (Arkemine), Marie-Christine Bailly-Maître (CNRS), Justine Bayley (English Heritage), François Bordes (Archives municipales de Toulouse), Philippe Braunstein (EHESP), Peter Cloughton (Université d'Exeter), Maxime l'Héritier (Université de Paris 8), Véronique Lamazou-Duplan (Université de Pau et des Pays de l'Adour), Christine Rouaix (Archives départementales de l'Ariège) et Catherine Verna (Université de Paris 8).

Mes remerciements s'adressent également à Gérard Hurpin mon ami et mon ancien professeur d'histoire moderne à l'Université de Picardie pour sa relecture attentive et les corrections qu'il m'a suggérées. Je suis également reconnaissant envers Nicolas Minvielle Larousse pour sa relecture de la partie consacrée à la coupellation et les remarques constructives qu'il m'a communiquées.

Merci aux amis qui m'ont hébergé lors de mes déplacements à Toulouse, Paris ou Bruxelles : Odette et Claude, Laure-Hélène et Tanguy, Jean-Charles, Sarah et

Édouard, Alexandre, Georges.

En Ariège, je n'oublie pas l'aide des habitants d'Aulus, notamment Patrice Rieu et Bernadette Rogalle. La recherche archéologique est une affaire d'équipe : derrière cette thèse se dissimule celui des fouilleurs bénévoles qui se sont succédés à Castel-Minier ces dernières années avec une pensée particulière pour Jojo, Hemmamuthé, Yvon, Alex, Adrien, Tifenn, Polo, Oksana, Clara et Manon.

Merci à mes proches du Bray et de la vallée de l'Epte que j'espère revoir plus souvent à présent : Valentin, Pierre, Mathilde et Samuel. Merci à René : je sais ce que ma formation lui doit. Merci à mes amis orléanais Maëlys et Guillaume, Charles et Charlotte pour les soirées gastronomiques et les sorties zoologiques.

Merci infiniment à mes parents, Michèle et Denis, à ma sœur, Marie, et à mon frère Augustin pour leur affection et leur soutien de tous les instants.

Mes derniers mots sont pour Clémentine qui partage ma vie depuis de nombreuses années et qui m'a supporté durant l'achèvement de cette thèse. Toi à qui je dois tant et sans qui ce travail n'aurait pu aboutir.

Note liminaire

Sauf mention contraire, les teneurs élémentaires présentées dans notre mémoire sont systématiquement données en masse et exprimées en pour cent (%) ou en partie par million (ppm, avec 1 ppm=0,0001 %). Dans les tableaux de résultats et les figures, les éléments chimiques sont fréquemment désignés par leur symbole issu de la classification périodique de Mendeleïev.

Les cartes ont été réalisées avec le logiciel QGIS à partir des ressources mises à disposition par l'IGN (<http://professionnels.ign.fr/donnees>), l'Ancient World Mapping Center de l'Université de Caroline du Nord (<http://awmc.unc.edu/>), la base de données Geofabrik (<http://download.geofabrik.de/>) et le portail GeoRezo (<https://georezo.net>).

L'édition des sources latines a été établie suivant les recommandations de l'École des chartes¹.

Les plans des structures archéologiques de Castel-Minier ont été réalisés par Jean-Charles Méaudre. L'intégralité du mobilier étudié est présentée sur des planches qui figurent en annexe. Elles ont été réalisées par Jean-Charles Méaudre et nous-même. Les artefacts y sont classés selon la nature du matériau puis par structure archéologique.

Sigles et abréviations utilisés

ADA : Archives départementales de l'Ariège.

ADHG : Archives départementales de la Haute-Garonne.

AGN : Archives générales de Navarre.

AN : Archives nationales.

BRGM : Bureau de recherches géologiques et minières.

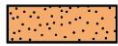
TB : Travers-banc.

¹ Vieillard F. et Guyotjeannin O. (dir.), *Conseils pour l'édition des textes médiévaux. Fascicule 1 : conseils généraux*, Éditions du CTHS, Paris, 2001.

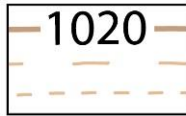
Normes graphiques des plans

Document établi par Jean-Charles Méaudre

	Substrat (coupes et élévations en extérieur)		TCA
	Substrat (relevés sous-terrains)		Canal ou caniveau
	Roche de nature diverse (coupes)		Structure en bois
	Granite (coupes)		Amas de bois
	Schiste (coupes)		Empreinte de sablière ou trou de poteau
	Granite pulvérulent (plans)		Empreinte de madrier vertical
	Bâtiment moderne		Bois carbonisé
	Mur non relevé en pierre à pierre (plans)		Couche charbonneuse
	Mur en pierres sèches (plans et élévations)		
	Mur en pierres sèches (coupes)		Couche de cendre
	Mur lié à l'argile jaune (plans et élévations)		Scories ou dépôt scoriacé (Fe)
	Mur lié à l'argile jaune (coupes)		
	Mur lié à la terre (plans et élévations)		Roches scoriacées (Fe)
	Mur lié à la terre (coupes)		Sol de forge
	Mur lié au mortier de chaux (plans et élév.)		Fonte
	Mur lié au mortier de chaux (coupes)		Concrétions ferrugineuses
	Mortier de chaux		
	Pavement ou seuil		Dépôt plombifère
	Couche de démolition (plans)		Couche argileuse
	Remblais (coupes)		Argile rubéfiée
	Enclume		Amas d'argile rubéfiée
	Meule		



Accumulation de minerai grillé



Courbes de niveau
10 m, 1 m, 0,50 m



Galène



Chalcopyrite



Tétraédrite



Minerai mixte galène-tétraédrite



Plomb



Litharge



Alliage Pb/Sn



Alliage Pb/Ag



Casse de coupellation



Cuivre non allié



Bronze



Caldarium



Pb-Sb-Cu



Creuset



Mobilier métrologique



Phase de construction ou d'occupation



Phase d'abandon



Phase de démolition



Bournonite



Galène de densité élevée



Galène de densité intermédiaire



Galène de densité faible

Sommaire du volume I

Remerciements	7
Note liminaire	13
Introduction	21
Partie 1 : Les cadres de l'étude	51
1.1 Le site multi-métaux de Castel-Minier.....	51
1.1.1. Présentation du site	51
1.1.2. Les recherches archéologiques : travaux antérieures et acquis récents... 56	
1.2 Données naturelles sur le Haut-Couserans	70
1.2.1. Situation géographique	70
1.2.2. Contexte géologique	75
1.2.3. Métallogénie-gîtologie	80
1.3 Le Couserans médiéval (début XIII ^e - milieu XVI ^e s.)	83
1.3.1. Éléments de chronologie	84
1.3.2. Vie politique et économique de la vicomté de Couserans	88
1.4 Castel-Minier dans les sources écrites médiévales et modernes	102
1.4.1. Le démarrage de l'exploitation et le procès de 1319-1349	102
1.4.2. Ralentissement et arrêt des activités (fin XV ^e -fin XV ^e siècles)	115
1.4.3. Les reprises récentes (seconde moitié du XVIII ^e -milieu du XX ^e s.) : espoirs et désillusions.....	118
Partie 2 : Présentation des corpus archéologiques et méthodologie d'étude	121
2.1 Le mobilier métallurgique.....	121
2.1.1. Les minerais non-ferreux	121
2.1.2. Scories, déchets scoriacés et soles de réacteur.....	122
2.1.3. Métaux et oxydes métalliques	124
2.1.4. Céramiques métallurgiques.....	125
2.2 Structures de chauffe	126
2.2.1. Les structures légères quadrangulaires et circulaires	126
2.2.2. Les fours en élévation	128
2.3 Démarche méthodologique.....	129
2.3.1. Les recherches de terrain : approche méthodologique	129
2.3.2. La caractérisation des matériaux archéologique en laboratoire : démarche analytique	148
Partie 3 : Les ressources minérales	199

3.1	À l'origine de l'atelier multi-métaux, des ressources minières variées.....	199
3.1.1.	Le district minier à travers les sources écrites.....	200
3.1.2.	Caractérisation minéralogique et géochimique du district : les campagnes de prospection minière.....	206
3.1.3.	Castel-Minier : un site d'extraction privilégié.....	234
3.2	La question de la préparation des minerais	262
3.2.1.	État de l'art	262
3.2.2.	La préparation des minerais à Castel-Minier	272
3.3	Approvisionnement des ateliers : le minerai archéologique	290
3.3.1.	Prérequis pour l'étude du minerai.....	291
3.3.2.	La galène : le minerai dominant.....	300
3.3.3.	La chalcoppyrite.....	336
3.3.4.	La bournonite.....	342
3.3.5.	La tétraédrite	348
Partie 4 : La production de plomb et d'argent à partir de la galène argentifère		359
4.1	Caractérisation du traitement de la galène : le mobilier métallurgique.....	359
4.1.1.	Vers une identification du plomb d'œuvre	359
4.1.2.	Les scories plumbeuses : marqueurs techniques de la transformation de la galène.....	376
4.1.3.	Les ateliers de transformation de la galène	391
4.1.4.	Le comportement des éléments chimiques au cours de la réduction....	427
4.2	L'extraction de l'argent.....	443
4.2.1.	La séparation des métaux par voie sèche : la coupellation	444
4.2.2.	Les casses de coupellation de Castel-Minier : étude du corpus	464
4.2.3.	Conduite du procédé	481
4.2.4.	Résultats de l'opération de coupellation.....	496
4.2.5.	La question des litharges : vers un autre procédé de coupellation ?.....	509
4.2.6.	Affinage de l'argent et devenir de la production	527
Partie 5 : Les productions métallurgiques à base de cuivre.....		541
5.1	Nature du mobilier métallique à base de cuivre	542
5.1.1.	Description macroscopique du corpus	542
5.1.2.	Caractérisation des alliages cuivreux : apports des analyses élémentaires.....	547

5.2	La production de cuivre non allié à Castel-Minier : éléments de la chaîne opératoire	566
5.2.1.	La répartition du cuivre non allié : organisation fonctionnelle des espaces de travail	566
5.2.2.	Une chaîne opératoire discrète	571
5.3	Le bronze au plomb antimonié, ou <i>caldarium</i> : une production opportuniste	587
5.3.1.	Le traitement de la bournonite	587
5.3.2.	La production du <i>caldarium</i>	610
	Conclusion	633
	Bibliographie.....	657
	Table des figures	693
	Table des tableaux.....	711

Introduction

« On ne saurait croire les grands travaux que les Anciens ont fait en ces montagnes, tirant les mines d'argent avec une telle et si grande dépense, qu'il n'y a langue qui le sçeut dire, ni plume qui peut l'exprimer. Car a vray dire, la veüe de ces choses si merueilleuses estonne d'esbahissement les plus capables et judicieux. C'est pourquoi nous les avons baptisés du nom de *Mines Royales*, ne leur en pouvant donner autre digne d'elles² ».

Les *Mines Royales* décrites dans ce passage du récit des prospections minières de Jean de Malus se réfèrent aux anciens travaux d'extraction de la vallée d'Aulus. En 1600, Malus visite ce territoire montagnard du Haut-Couserans sis au cœur des Pyrénées centrales. Alors maître de la Monnaie de Bordeaux, il est chargé d'évaluer pour le compte d'Henri IV le potentiel des gisements dans l'optique d'une exploitation. L'ampleur et la complexité des réseaux miniers subsistants l'ont frappé tant par le coût financier qu'ont représenté de tels aménagements que par les savoir-faire techniques mobilisés pour leur réalisation. Malus lie cette débauche de moyens à la quête des « mines d'argent » et à la production de métal blanc, métal monétaire activement recherché, notamment au Moyen Âge. Pour autant, l'argent n'est pas la seule ressource de la vallée d'Aulus comme l'indique plus loin la relation qui donne la liste des minerais rencontrés ; ils sont : « d'or, d'argent, de plomb, d'estain, de vert azur, de cuivre, de marcassites d'or, d'argent et de cuivre³ ». Si ce passage illustre l'emphase avec laquelle le prospecteur présente ses recherches, il n'en révèle pas moins la nature polymétallique des ressources minières de la vallée d'Aulus et l'absence du fer.

² Dupuy J., « La recherche et découverte des mines des montagnes Pyrénées, faite en l'an mil six cens par Jean de Malus Escuyer & Maistre de la monoye de Bourdeaus », In Gobet N., *Les anciens minéralogistes du royaume de France*, Ruault, Paris, 1779, p. 129.

³ *Ibidem*.

Les observations de Malus ont trouvé un début de confirmation grâce aux recherches d'archéologie minière menées dans la vallée d'Aulus par Claude Dubois dans les années 1980. L'étude d'envergure qu'il a conduite s'est d'abord intéressée à la caractérisation géologique et minéralogique des anciens gisements⁴. Dans un second temps, les campagnes de fouilles archéologiques qu'il a entamées en 1990 dans cette vallée sur le site de Castel-Minier ont donné corps au récit de Malus. Des sondages ont permis de révéler et de dater un établissement médiéval particulièrement bien conservé qui associe dans un même espace des activités minières, minéralurgiques et métallurgiques. Depuis 2003, les recherches ont été poursuivies par Florian Téreygeol et sont toujours en cours. Les fouilles ont livré des corpus considérables de mobiliers métallurgiques, mais également un ensemble de structures et de bâtiments consacrés à la production de fer et de métaux non-ferreux. Ces données mettent en lumière la nature polymétallique de Castel-Minier qui se caractérise par les productions conjointes d'argent, de plomb et d'alliages cuivreux divers auxquelles s'ajoute la pratique d'une métallurgie du fer. Ces activités diverses sont pérennes et couvrent une longue période qui s'étend de la fin du XIII^e siècle au milieu du XV^e siècle, avant que le site ne se tourne vers une production exclusive de fer qui perdure jusque dans la seconde moitié du XVI^e siècle. La place de la métallurgie du fer sur le site est originale : elle s'insère dans un contexte politique et technico-économique particulier que nous expliquerons. Il s'agit d'une activité qui a déjà fait l'objet de plusieurs travaux de synthèse⁵. Elle dépasse le cadre de notre étude consacrée avant tout à la métallurgie des métaux non-ferreux.

⁴ Dubatik C. (alias Dubois C.), *Recherches sur les travaux miniers du Haut Salat. 1^{re} partie : les mines d'Aulus-les-Bains*, Autoédité, Saliens, 1981.

⁵ Téreygeol F., Dillmann P. et Verna C., « Premières analyses métallographiques des produits sidérurgiques trouvés sur le site médiéval de Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09) », *Archéosciences Revue d'Archéométrie*, 30, 2006, p. 7-14 ; Téreygeol F. et Heckes J., « El vent de les manxes i el poder del mall : les eines hidràuliques de la « mouline » del jaciment arqueològic Castel-Minier (XVI^e s., França) », *Boscos de ferro. Actes de les Primeres Jornades de Recerca i Desenvolupament de la Vall Ferrera, Alins, 2010*, Gasquet D. (éd.), Garsineu Edicion, Tremp, 2012, p. 51-63 ; Téreygeol F., « L'apogée de la mouline : Castel-Minier au XVI^e siècle », *Les chemins du fer en Belledonne, Actes du colloque organisé à Alleverd-Arvillard, 22-25 mai 2013*, Borlet, Albertville, 2016, p. 105-112.

Les métaux non-ferreux et le fer

Il convient à ce stade de discuter le terme de non-ferreux dont nous usons pour désigner, par opposition au fer, les matériaux étudiés dans notre mémoire. Bien qu'elle soit entachée d'imprécision, cette notion n'en est pas moins commode pour suggérer la diversité des métaux produits à Castel-Minier. En outre, le cloisonnement que suggère cette expression n'est pas tout à fait infondé. Il émane des particularités des métaux non-ferreux qui se rencontrent à différents niveaux de la production.

La confection des objets finis à base de fer, leur circulation et leur consommation sont bien documentées pour la période médiévale⁶. L'intérêt économique et commercial ainsi que la valeur ajoutée attachée à ces productions peuvent expliquer la place qui leur est réservée dans les archives. En revanche, la situation est différente pour les activités de métallurgie extractive. Hormis l'exploitation de quelques gisements d'envergure tels que la « montagne de fer » du Rancié qu'exploitent les hommes de la communauté pyrénéenne de Vicdessos⁷, dans le Haut-Sabarthès, l'extraction des minerais de fer se limite à une constellation de travaux modestes qui sont connus grâce aux sources écrites et aux recherches d'archéologie minière⁸.

Contrairement au fer, les métaux non-ferreux, et en particulier l'or et l'argent, jouissent d'un statut privilégié lié à leur potentiel économique et symbolique ainsi qu'à leur destination monétaire. La recherche et l'extraction de ces ressources ont éveillé l'intérêt des puissants et entraîné des productions écrites abondantes. L'enthousiasme

⁶ Braunstein P., *Travail et entreprise au Moyen Âge*, De Boeck, Bruxelles, 2003, p. 123 et suivantes.

⁷ Verna C., *Le temps des moulins : fer, technique et société dans les Pyrénées centrales, XIII^e-XVI^e siècles*, Publications de la Sorbonne, Paris, 2001, p. 43 et suivantes.

⁸ Pour ne citer que les principaux travaux : Benoit P., « Les mines de Fontenay », *Moines et métallurgie dans la France médiévale*, Paris, 13-14 mars 1987, Benoit P. et Cailleaux D. (éd.), Picard, Paris, 1991, p. 289-298 ; Arnoux M., *Mineurs, férons et maîtres de forges. Étude sur la production du fer dans la Normandie du Moyen Âge, XI^e-XV^e siècles*, Éditions du CTHS, Paris, 1993 ; Verna C., *Les mines et les forges des Cisterciens en Champagne méridionale et la Bourgogne du Nord, XI^e-XV^e siècle*, AEDEH/Vulcain, Paris, 1995 ; Leroy M., Merluzzo P. et Mahé-Le Carlier C., *Archéologie du fer en Lorraine - Minette et production du fer en bas fourneaux dans l'Antiquité et au Moyen Âge*, Fensch Vallée éditions, Knutange, 2015.

suscité par la découverte de gisements de métaux précieux et les hypothétiques profits escomptés ont engendré des investissements humains et financiers considérables pour des déceptions nombreuses. L'exploitation des ressources du sous-sol requiert la conjonction d'un haut niveau d'expertise et l'apport de capitaux : les dépenses engagées entre 1338 et 1343 par les souverains Jeanne et Philippe de Navarre pour débiter l'extraction à la mine d'Urrobi sur la foi des essais de minerais de Paolo Girardi⁹ ou le percement du travers-banc du Vernay à la mine des Mont du Lyonnais de Pampailly, accompli entre 1455 et 1457 par des spécialistes allemands pour dénoyer le chantier d'abattage principal¹⁰, en sont des exemples éloquents.

La distinction entre le fer et les autres métaux s'apprécie également sur le terrain juridique avec l'élaboration progressive d'un droit minier principalement destiné à encadrer l'exploitation des métaux précieux. Aux XII^e et XIII^e siècles, la codification des activités minières se manifeste par la rédaction de règlements qui régissent les rapports entre les exploitants et les puissances seigneuriales, entérinent la liberté d'exploitation et précisent les droits et les privilèges dont jouissent les mineurs¹¹. L'entreprise de reconquête des prérogatives royales en matière d'exploitation minière qui s'engage à partir de la fin du XIII^e siècle aboutit à la promulgation d'une ordonnance de Charles VI en 1413 qui contient le premier règlement minier du droit français¹². Ce mouvement n'est toutefois pas uniforme selon les espaces géographiques et politiques, il s'adapte à chaque situation en usant conjointement d'opportunisme et

⁹ Mugueta Moreno Í., « Política monetaria en Navarra bajo el reinado de los primeros Evreux (1328-1349) », *En la España Medieval*, 27, 2004, p. 87 et suivantes.

¹⁰ Benoit P., *La mine de Pampailly, XV^e-XVIII^e siècles : Brussieu, Rhône*, DARA, n° 14, Alpara, Lyon, 1997, p. 37 et suivantes.

¹¹ Bailly-Maître M.-C., *L'argent. Du minerai au pouvoir dans la France médiévale*, Picard, Paris, p. 182 et suivantes. Voir également pour l'Europe médiévale des exemples de règlements miniers dans les actes du colloque d'Iglesias - Massa Marittima : *I codici minerari nell'europa preindustriale: archeologia e storia*, Iglesias - Massa Marittima, 4-8 décembre 2008, Farinelli R. et Santinucci G. (éd.), All'Insegna del Giglio, Sesto Fiorentino, 2014.

¹² Isambert F.-A. et Decrusy, *Recueil des anciennes lois françaises*, Belin-Leprieur, Paris, tome 7, 1825, p. 386 et suivantes. Voir également, Hesse P.-J., « La formation d'une administration minière royale dans la France médiévale et au début du XVI^e siècle », *Mines et métallurgie (XII^e-XVI^e siècle). Actes du 98^e congrès national des sociétés savantes, Saint-Etienne, 1973*, Bibliothèque nationale, Paris, 1975, p. 7-22.

de pragmatisme. Ainsi, la saisie avortée de minerais par le bayle royal à la mine de Ceilhes¹³ (Hérault) en 1300 ou encore la mise à profit par la justice royale du différend entre les exploitants de la mine d'Aulus et le vicomte de Couserans pour revendiquer des droits sur la mine sont autant d'étapes vers la fin des prétentions seigneuriales sur les ressources minières.

Sur le plan social, la différence de statut entre les ouvriers, selon qu'ils travaillent le fer ou les métaux non-ferreux, est marquée. Les dispositions prises par les puissants pour favoriser l'exploitation des minerais non-ferreux se traduisent fréquemment par l'octroi de privilèges aux mineurs de manière à les attirer de façon pérenne sur les sites d'extraction. Cette particularité se manifeste au cœur de notre zone d'étude en novembre 1483 lorsque Charles VIII renouvelle l'autorisation de prospection et d'extraction pour le Couserans accordée en avril de la même année à un groupe de cinq personnes. Les privilèges et franchises énoncés dans le document enregistré par la Chambre des comptes bénéficient aux hommes « qui ouvrieroient aux mines d'or, argent, plomb, étain en ce non compris ceux qui travailleroient à tirer le fer¹⁴ ». Comme cet extrait l'indique, les ouvriers du fer sont moins considérés et la dichotomie avec leurs homologues qui exploitent les gisements de métaux non-ferreux est marquée. Ces « prolétaires ruraux¹⁵ » exercent souvent des activités agro-pastorales complémentaires pour améliorer une condition précaire.

Pour toutes ces raisons, il nous paraît pertinent de conserver le terme générique de métaux non-ferreux pour marquer la place singulière qu'ils occupent à côté de leurs homologues ferreux. Pour autant, cette distinction signifie-t-elle un cloisonnement des activités métallurgiques et une relative imperméabilité du monde des métaux précieux à celui du fer ? Il est permis d'en douter puisque les exemples de sites polymétalliques

¹³ Bonami C., « Dans la haute vallée de l'Orb les mines de Ceilhes-et-Rocozels au Moyen Âge », *Mines et mineurs en Languedoc-Roussillon et régions voisines de l'Antiquité à nos jours. Actes du XLIX^e Congrès de la Fédération historique du Languedoc méditerranéen et du Roussillon, Alès, 22 et 23 mai 1976, Montpellier, 1977*, p. 97 et suivantes.

¹⁴ Pastoret E. de, *Ordonnances des rois de France de la troisième race*, vol. 19, Imprimerie royale, Paris, 1835, p.176.

¹⁵ Verna C., *Le temps de moulines...*, op. cit., p. 273.

associant des productions de fer et de métaux précieux existent. L'exploitation de Castel-Minier en constitue un des plus éloquentes. La métallurgie du fer s'y développe dès la seconde moitié du XIV^e et cohabite avec la fonderie de plomb-argent et les ateliers de travail du cuivre.

L'émergence de la métallurgie du fer à Castel-Minier se produit dans un contexte particulier puisque le minerai ne provient pas des mines de la vallée mais d'une importation depuis de la vallée voisine de Vicdessos dans le cadre d'un échange contre du charbon de bois conclu par un traité en 1347-1348. La production de fer est donc étroitement associée aux ressources sylvicoles du Couserans, en particulier à une économie du charbonnage qui a permis la diversification des pratiques métallurgiques grâce à une association avec une vallée aux ressources naturelles complémentaires. Elle s'inscrit également dans une démarche politique engagée par les puissances locales de Foix et de Couserans qui président à la ratification du traité d'échange de 1347-1348.

De la diversité des pratiques métallurgiques

Les activités métallurgiques qui ont permis de traiter les minerais non-ferreux à Castel-Minier sont très diversifiées. La métallurgie extractive regroupe les différents procédés qui permettent de séparer les métaux des autres éléments non-métalliques avec lesquels ils sont combinés dans le minerai. En effet, les métaux natifs sont très rares. S'ils furent sans aucun doute un chaînon majeur de l'histoire de la métallurgie et une passerelle technique qui a permis l'émergence de procédés d'extraction complexes à d'autres époques, leur contribution dans l'économie médiévale est faible. Les métaux se dissimulent donc dans des composés oxydés, carbonatés ou sulfurés dont il faut les séparer. Cette tâche requiert dans la plupart des cas l'usage du feu. La métallurgie secondaire désigne quant à elle le travail de la matière qui se trouve déjà sous une forme métallique. Elle regroupe les différentes étapes d'affinage des métaux et la confection des alliages.

On ne saurait, dans cette définition des termes de notre sujet, exclure les étapes de préparation mécanique des minerais qui relèvent du domaine de la minéralurgie. Ce travail sur la matière minérale est un prérequis aux opérations métallurgiques dont il conditionne la réussite et la rentabilité. Il intervient aussitôt le minerai abattu, parfois au cœur même des chantiers d'extraction souterrains. Les études archéologiques de sites miniers et minéralurgiques ont révélé la diversité des chaînes opératoires et l'ampleur des volumes de roche traités pour récupérer le moindre fragment de minerai, source de métal précieux. À nouveau, c'est l'attrait pour les métaux non-ferreux qui a permis durant la période médiévale le développement de procédés minéralurgiques nouveaux et complexes.

Les métaux non-ferreux et les ateliers multi-métaux

Parmi les métaux non-ferreux auxquels ces recherches sont consacrées, l'argent, métal convoité et voué au monnayage, occupe une place privilégiée tant par l'ampleur de la production que par la diversité du mobilier archéologique associé à son extraction et qui permet une reconstruction précise des procédés techniques. Le minerai d'argent n'existe pas en tant que tel parmi les ressources minières qui alimentent Castel-Minier ; il se dissimule dans le sulfure de plomb en quantités très faibles. Moins profuse que celle du métal blanc, la métallurgie du cuivre et de ses alliages occupe néanmoins une place significative et durable tout au long de l'histoire de Castel-Minier.



Figure 1 : Localisation des ateliers multi-métaux médiévaux évoqués.

L'association de plusieurs chaînes opératoires consacrées à la production de plomb, d'argent et de cuivre, leur juxtaposition voire leur imbrication au sein d'un espace de travail commun, celui de l'atelier, fonde le concept d'atelier multi-métaux qui structure notre réflexion. S'il n'est pas propre à l'époque médiévale¹⁶, l'atelier multi-métaux s'incarne pleinement au cours de cette période grâce à l'étude conjointe des sources écrites et des données archéologiques. Il s'agit également d'un jalon important dans l'histoire de l'innovation tant en ce qui concerne la mise au point de nouveaux procédés techniques qu'en ce qui regarde leur diffusion. Plusieurs exemples choisis dans des espaces géographiques variés permettent d'illustrer la notion d'atelier multi-métaux (figure 1).

En 1987, François Menant démontrait le caractère polymétallique des entreprises d'extraction minières engagées dans les vallées lombardes à partir de l'an

¹⁶ Claude Domergue a suggéré leur existence : Domergue C., *Les mines antiques : la production des métaux aux époques grecque et romaine*, Picard, Paris, 2008, p. 166. Néanmoins, les attestations archéologiques demeurent rares. Voir quelques exemples dans Maintenant J., *Montagnes métallifères de Gaule méditerranéenne. Approche archéologique et historique de la production des métaux en Languedoc occidental du début du second âge du Fer à la fin de la période romaine (IV^e s. av. n. è. - V^e s. de n. è.)*, thèse de 3^e cycle, Université de Toulouse 2 Le Mirail, 2014.

Mil¹⁷. L'exploitation des sables aurifères y complète les travaux d'extraction des minerais de plomb argentifères au sein d'une économie caractérisée par les activités polymétallurgiques auxquelles se substitue la métallurgie du fer à partir de la fin du XIII^e siècle.

Toujours dans Les Alpes, les sources textuelles mettent en lumière plusieurs installations métallurgiques s'apparentant à des ateliers multi-métaux. Il s'agit tout d'abord de la « fusine¹⁸ » d'Arvieux, implantée dans la haute vallée de la Durance, dans le Dauphiné, active tout au long du XIV^e siècle. Cette installation traite alternativement des minerais de fer et de plomb argentifère¹⁹. Toujours en Dauphiné, le polymétallisme est attesté au « martinet » de Vizille, sis au sud de Grenoble dans la vallée de la Romanche, dont les activités concernent, à la fin du XV^e siècle, les minerais de fer, de cuivre, d'argent et de plomb²⁰. En Savoie, les documents exceptionnels que constituent les comptes miniers d'Hurtières conservés pour les années 1338 à 1350 révèlent la production concomitante de cuivre et d'argent, et dans une moindre mesure de plomb²¹. Malgré la richesse de ces sources, les aspects techniques de l'entreprise demeurent à l'état de conjectures, en particulier la nature des procédés mis en œuvre pour traiter les minerais de cuivre argentifères.

En Toscane, dans la région des monts Métallifères, les recherches pluridisciplinaires engagées par l'équipe de Riccardo Francovich à partir des années 1980 ont permis d'étudier les dynamiques d'extraction et de transformation des minerais et le lien étroit qu'elles entretiennent avec le mouvement castral, qui manifeste l'émergence des seigneuries locales entre le X^e et le XII^e siècle, puis durant

¹⁷ Menant F., « Pour une histoire médiévale de l'entreprise minière en Lombardie », *Annales. Économies, Sociétés, Civilisations*, 1987, p. 779-796.

¹⁸ Appareil métallurgique dont les caractéristiques techniques sont discutées *infra*.

¹⁹ Braunstein P., *Travail et entreprise au Moyen Âge...*, *op. cit.*, p. 179.

²⁰ Bailly-Maître M.-C. et Bruno Dupraz J., *Brandes-en-Oisans. La mine d'argent des Dauphins (XII^e-XIV^e siècles)*, Isère, Alpara, Lyon, 1994, p. 126.

²¹ Benoit P. et Braunstein P., « Les comptes miniers d'Hurtières en Savoie (1338-1350) », *Mines, carrières et métallurgie dans la France médiévale*, Paris, 1980, Benoit P. et Braunstein P. (éd.), CNRS éditions, Paris, 1983, p. 183-206.

l'essor communal des XIII^e et XIV^e siècles²². Les recherches archéologiques ont révélé l'existence d'ateliers multi-métaux, en particulier sur le site de Rocca San Silvestro qui exploite un gisement de plomb argentifère et de cuivre entre le X^e et le XI^e siècle²³. Deux chaînes opératoires cohabitent : d'une part la production de plomb argentifère et de cuivre à partir d'un minerai complexe associant galène, sphalérite et chalcoppyrite et d'autre part, l'extraction du cuivre contenu dans la chalcoppyrite. Entre le XI^e et le XII^e siècle, les ateliers métallurgiques du site castral de Cugnano se distinguent également par leur nature polyvalente qui se traduit par l'extraction du plomb argentifère et du cuivre²⁴.

Malgré les quelques exemples qui viennent d'être évoqués, si l'on excepte les travaux pionniers de Francovich *et al.*, la réalité des ateliers multi-métaux entre le XIII^e et le XV^e siècle n'est observable qu'à travers l'examen des sources écrites. S'il ne fallait en retenir qu'une, la principale faiblesse de cette documentation concerne les techniques d'extraction et de transformation des minerais dont elles taisent les modalités. Or la restitution des procédés, la construction d'une véritable histoire des techniques sont des entreprises préliminaires à l'étude de l'économie médiévale des métaux et à la compréhension de leur insertion dans les stratégies politiques des puissants. Philippe Braunstein a mis en lumière, à partir de l'exemple des mines du Tyrol à la fin du XV^e siècle, les fondements techniques de l'essor de cette région minière et métallurgique. Le doublement en quelques années de la production d'argent des

Bianchi G., Bruttini J. et Dallai L., « Sfruttamento e ciclo produttivo dell'allume e dell'argento nel territorio delle Colline Metallifere grossetane », *Risorse naturali e attività produttive: Ferento a confronto con altre realtà, Viterbe, 27-28 avril 2010*, De Minicis E. et Pavolini C. (éd), Università degli studi della Tuscia, Viterbe, 2011, p. 249-281 ; Benvenuti M., Bianchi G., Bruttini J., Buoniconti M., Chiarantini L., Dallai L., Di Pasquale G., Donati A., Grassi F. et Pescini V., « Studying the Colline Metallifere mining area in Tuscany: an interdisciplinary approach », *IES Yearbook*, 2014, p. 261-287.

²³ Guideri S. et Francovich R., « La produzione del rame dai solfuri misti nella toscana medievale », *Paléoméallurgie des cuivres, Bourg-en-Bresse et Beaune, 17-18 octobre 1997*, Frère-Sautot M.-C. (éd.), Éditions Monique Mergoïl, Montagnac, 1998, p. 155-164.

²⁴ Bianchi G., Bruttini J., Quirós Castillo J. A., Ceres F. et Lorenzini S. M., « La lavorazione del metallo monetabile nel castello di cugnano (Monterotondo M.MO, GR): lo studio delle aree produttive dei secoli centrali (XI-XII secolo) », *VI^e Congresso nazionale di archeologia medievale, L'Aquila, 12-15 settembre, 2012*, Redi F. et Forgone A. (éd.), All'Insegna del Giglio, Sesto Fiorentino, 2012, p. 644-649.

mines de Schwaz n'est ni le fruit d'une augmentation de la main d'œuvre ni d'une variation géochimique des gisements, il est la conséquence d'un bouleversement technique considérable qui permet d'accroître d'un facteur deux le rendement d'extraction de l'argent contenu dans les minerais de cuivre argentifères²⁵.

Savoir-faire et expertise techniques des métallurgistes

L'existence des ateliers multi-métaux amène à s'interroger sur les savoir-faire techniques des métallurgistes et la notion d'expertise. La pratique d'activités métallurgiques multiples requiert en effet des compétences variées qui concernent d'une part la connaissance approfondie des ressources minérales et d'autre part une maîtrise des différentes techniques minéralurgiques et métallurgiques. La combinaison de ces compétences permet d'élaborer des procédures adaptées aux particularités des minerais traités. Ainsi, dans les Pyrénées centrales, la reprise des exploitations minières de métaux précieux dans le comté de Comminges à la fin du XV^e siècle ne peut se concevoir sans la venue de « gens experts²⁶ ». Les savoir-faire techniques miniers et métallurgiques sont donc maîtrisés par un groupe restreint d'individus qui jouissent d'un statut particulier et qui voyagent au gré des opportunités. Le déplacement de travailleurs spécialisés est une constante dans l'espace minier et métallurgique du Moyen Âge européen²⁷ et la réputation des provinces germaniques dans ce domaine n'est plus à faire. Ainsi, au cœur du Couserans, les Allemands sont à l'œuvre à la fin du XV^e siècle pour relancer l'extraction²⁸.

Le niveau de compétence des experts qui interviennent sur les nombreux sites miniers et métallurgiques de l'Europe médiévale est assurément élevé. Le succès des

²⁵ Braunstein P., « L'innovation dans les mines et la métallurgie européenne (XIV^e-XVI^e siècle) », *Bulletin de l'Association française des historiens économistes*, 15, 1982, p. 2 et suivantes.

²⁶ Higounet C., *Le comté de Comminges de ses origines à son annexion à la couronne*, L'Adret, Toulouse, 1984, p. 469.

²⁷ Bailly-Maître M.-C., *L'argent. Du minerai au pouvoir...*, *op. cit.*, p. 143.

²⁸ Pastoret E. de, *Ordonnances des rois de France de la troisième race...*, *op. cit.*, p.107.

entreprises repose dans de nombreux cas sur leurs connaissances techniques. Pour autant, la question de leur place au sein des exploitations mérite d'être posée, notamment la fréquence de leurs interventions. Ont-ils la charge d'organiser l'ensemble des activités d'extraction et de transformation des minerais, ou bien sont-ils consultés ponctuellement pour apporter des solutions techniques, par exemple pour faire face aux problèmes d'exhaure à Pampailly ou pour améliorer les procédés d'affinage au « Getto », l'office vénitien du cuivre²⁹ ? La seconde hypothèse implique un transfert de compétences vers les ouvriers d'une exploitation après le départ des spécialistes.

Dans le cadre des ateliers polymétalliques, les compétences techniques des ouvriers doivent être évaluées pour juger de leur adaptation aux problématiques rencontrées. La diversité et la complexité des chaînes opératoires à l'œuvre dans les ateliers multi-métaux se manifestent par la pratique de nombreuses activités métallurgiques qui requièrent des installations et un savoir-faire spécifiques. L'extraction de plusieurs métaux nécessite une bonne maîtrise des procédés de manière à assurer un rendement optimal et des productions de qualité élevée et constante tout en limitant les coûts. Cette contrainte met en jeu deux notions antagonistes, la polyvalence ou au contraire la spécialisation des ouvriers.

Transposée à Castel-Minier, cette problématique revient à déterminer si les activités de métallurgie extractive du plomb, de l'argent et du cuivre sont cloisonnées et réservées à des spécialistes ou au contraire pratiquées alternativement par l'ensemble des ouvriers œuvrant sur le site. En d'autres termes, un maître affineur rompu à la séparation de l'argent et du plomb est-il par ailleurs en mesure d'assurer la réduction d'un minerai de cuivre ou la confection d'un bronze au plomb antimonié ? Cet exemple invite à explorer le syncrétisme entre les chaînes opératoires, c'est-à-dire entre les pratiques métallurgiques propres à chaque métal. Néanmoins, la réflexion peut être étendue à l'échelle d'une même chaîne opératoire de manière à évaluer si chaque étape est une affaire de spécialiste. Ainsi, dans le cadre de

²⁹ Braunstein P., *Les Allemands à Venise (1380-1520)*, École française de Rome, Rome, 2016, p. 534.

l'extraction de l'argent, l'ouvrier préposé à la préparation de la galène est-il capable de conduire un four de réduction ou de coupellation ? Si les sources écrites et iconographiques livrent quelques hypothèses³⁰, l'étude de l'organisation fonctionnelle des ateliers métallurgiques – par l'analyse spatiale des structures archéologiques – et la restitution des gestes techniques grâce à l'archéologie expérimentale forment un faisceau d'indices complémentaires précieux.

Planification et organisation des ateliers multi-métaux

Les ateliers multi-métaux soulèvent plusieurs problématiques d'ordre spatial et technique. Tout d'abord, la coexistence de différentes chaînes opératoires sur un même site amène à s'interroger sur son organisation fonctionnelle et sur les interactions qu'entretiennent les différents procédés. L'atelier multi-métaux doit-il se penser comme une juxtaposition d'ateliers monométalliques ou comme un ensemble indivisible ? Le premier mode d'organisation découle d'un pragmatisme dicté par les opportunités offertes par l'extraction minière tandis que le second suppose une connaissance préliminaire des ressources minières et une planification des activités métallurgiques. Le potentiel des gisements de métaux non-ferreux est hautement aléatoire. Ainsi, au fil de l'approfondissement des travaux d'extraction ou de l'ouverture de nouveaux chantiers, la possibilité de diversifier les productions métalliques peut se présenter et justifier la mise en œuvre de nouvelles chaînes opératoires au sein d'un atelier métallurgique qui devient alors polymétallique.

Quant à la planification d'un atelier multi-métaux, elle procède d'une étude préliminaire des ressources minières disponibles. Elle peut être le fruit d'une politique

³⁰ S'il ne fallait retenir qu'un exemple contemporain et proche géographiquement de Castel-Minier, celui du mémoire de Paolo Girardi s'imposerait. Dans ce document, le maître des mines du roi de Navarre liste les ouvriers dont il a besoin pour assurer l'extraction et la transformation des minerais du gisement d'Urrobi. La qualité attachée à certains ouvriers permet d'apprécier les différences de compétences et la spécialisation des activités : c'est par exemple le cas du « fusteur » (chargé de l'étagage des chantiers souterrains) et des « mestres pour affiner l'argent » à la différence des « hommes » qui concassent le minerai et des « fames » qui l'enrichissent. Les différences s'apprécient également par le montant du salaire hebdomadaire : Mugueta Moreno Í., « Política monetaria en Navarra... », *op. cit.*, p. 103.

industrielle d'ensemble dans le cadre de la valorisation d'un district minier. Dans ce cas, l'atelier multi-métaux découle de la volonté de centraliser le traitement des minerais provenant de différents gisements. La centralisation présente plusieurs avantages sur les plans économiques et techniques. D'une part, elle permet de rationaliser les coûts d'extraction et d'exercer un meilleur contrôle de la qualité des productions métalliques. D'autre part, la prise de risque consentie par les investisseurs lors de la mise en exploitation d'un nouveau gisement est limitée puisque les installations de traitement et de transformation des minerais sont déjà en place. En outre, ce mode d'organisation central peut être une réponse efficace aux problèmes d'approvisionnement en minerais auxquels font face les ateliers métallurgiques et qui sont imputables à l'incertitude sur le potentiel des minéralisations.

La question de la centralisation des activités métallurgiques au sein d'un atelier multi-métaux tel que Castel-Minier constitue un axe fort de nos recherches dont la pertinence est justifiée par la diversité des minerais archéologiques et la présence d'un véritable district minier dans le Couserans médiéval.

Contexte économique et marché des métaux

L'existence des ateliers multi-métaux est intimement liée au contexte économique et à une demande en métaux sans cesse croissante dans les derniers siècles du Moyen Âge. La production des métaux non-ferreux à Castel-Minier prend place à la charnière de deux cycles métallurgiques. La fin du XIII^e siècle marque le déclin progressif de l'extraction minière en Europe occidentale³¹ tandis qu'à l'aube du XVI^e siècle la mise en exploitation d'importants districts miniers dans les pays germaniques entraîne un nouvel essor de la production métallique³². La reprise commencée au début de l'époque moderne profite de la conjugaison de plusieurs facteurs parmi

³¹ Bailly-Maître M.-C., *L'argent. Du minerai au pouvoir...*, op. cit., p. 197-198.

³² Benoit P., « Les techniques minières en France et dans l'empire aux XV^e et XVI^e siècles », *Journal des savants*, 1(1), 1988, p. 75.

lesquels les mutations techniques dans les domaines minier et métallurgique et la transformation des acteurs économiques – notamment l'introduction de capitaux privés dans les entreprises d'extraction et de production des métaux – sont les plus notables. Castel-Minier représente donc un jalon important qui se distingue par une production d'envergure au milieu d'une période de transition marquée par un ralentissement généralisé de l'extraction minière.

Parmi les productions métalliques de Castel-Minier, celle de l'argent occupe une place prépondérante en tant que métal monétaire par excellence. Le cuivre et ses alliages ne sont pas en reste avec une demande soutenue et des applications qui ne cessent de se diversifier. Le métal rouge sert de base à la confection d'alliages tels que les laitons et les bronzes qui investissent progressivement les différentes strates de la société. L'essor de la dinanderie fait entrer le métal rouge dans la sphère domestique tandis que les accessoires du costume brillent dans l'espace public. Le cuivre s'affirme également comme espèce divisionnaire des systèmes monétaires et comme élément d'alliage de l'argent dévalué. Enfin, on ne saurait négliger le plomb dans ce panorama des métaux non-ferreux, le plus courant et le plus abordable parmi les métaux disponibles sur le marché. Depuis le plaidoyer d'André Guillerme pour une histoire du plomb³³, de nombreux travaux ont permis de cerner la place de ce métal dans l'économie médiévale et d'apprécier ses différents usages qui se concentrent essentiellement dans le champ de la construction avant d'investir le domaine de l'imprimerie dans la seconde moitié du XV^e siècle. L'adéquation des productions métalliques et de la demande est donc un point essentiel qui permet de pérenniser les ateliers métallurgiques. Les investissements que requièrent les métallurgies extractives sont consentis en connaissance du marché, de son évolution et de ses besoins.

³³ Guillerme A., « Sur l'histoire du plomb au Moyen Âge », *Milieux*, n° 7-8, 1981, p. 58-62.

La place de l'innovation dans la production de métaux non-ferreux

Les travaux de Joseph Schumpeter constituent un point de départ incontournable pour étudier les fondements théoriques du concept d'innovation. Dans son ouvrage *Theorie der wirtschaftlichen Entwicklung* publié en 1912, l'économiste distingue cinq formes de l'innovation : la fabrication d'un bien nouveau, l'emploi d'une nouvelle méthode de production, l'ouverture d'un nouveau débouché, la conquête d'une nouvelle matière première et l'introduction de nouveaux modes de production³⁴. Si l'on restreint l'innovation au domaine de la technique alors – comme l'a suggéré Paul Benoit³⁵ – seules deux formes schumpétériennes sont concernées : la création d'un bien nouveau et l'introduction de nouvelles méthodes de production. Dans le cadre de nos travaux sur Castel-Minier, l'innovation est plus spécifiquement discutée dans le cadre des procédés de préparation des minerais et d'extraction des métaux.

La place de l'innovation technique dans les entreprises minières et métallurgiques de la fin du Moyen Âge est un critère majeur pour apprécier leur essor au temps de l'émergence de grands sites industriels et d'un véritable capitalisme minier³⁶. Les contributions des innovations techniques à l'amélioration des productions métalliques sont notables. Elles se manifestent par des niveaux de qualité des productions accrus, mais également par une augmentation des volumes mis sur le marché. Les innovations techniques constituent un des leviers de l'essor de l'industrie métallurgique médiévale au même titre que les investissements financiers ou le recours à une main d'œuvre plus importante³⁷. Philippe Braunstein a mis en lumière

³⁴ Schumpeter J., *Theorie der wirtschaftlichen Entwicklung*, Duncker et Humblot, Berlin, 1984 (1^{re} édition 1912), p. 100-101.

³⁵ Benoit P., « Au four et au moulin : innovation et conjoncture », *L'innovation technique au Moyen Âge. Actes du VI^e Congrès international d'Archéologie Médiévale, Dijon - Mont Beuvray - Chenôve - Le Creusot - Montbard, 1-5 Octobre 1996*, Beck P. (éd.), Errance, Paris, 1998, p. 293.

³⁶ Braunstein P., « L'innovation dans les mines... », *op. cit.*, p. 2.

³⁷ L'innovation technique au Moyen Âge fut au cœur des réflexions du VI^e congrès international d'archéologie médiévale. De nombreuses communications furent consacrées aux domaines miniers et métallurgiques : *L'innovation technique au Moyen Âge. Actes du VI^e Congrès international d'Archéologie*

les difficultés à identifier les innovations, en particulier le décalage entre le moment de leur introduction et celui où elles sont enregistrées par les sources écrites. Car ce sont tout d'abord les mots qui disent l'innovation telle que l'apparition de la *fusina* dans les sources lombardes³⁸, le *Seigerhüttenprozess* dans les sources nurembergeoises³⁹ ou encore la *fusina nova* des archives vénitiennes⁴⁰.

L'innovation s'installe lorsqu'elle rencontre un milieu réceptif, lorsqu'elle parvient à convaincre les investisseurs en apportant des solutions techniques satisfaisantes. Son cheminement n'est pas uniforme : l'innovation pénètre certains espaces géographiques tandis que d'autres y sont très peu perméables. Là où elle n'essaime pas, les particularités sociales et juridiques mais également l'environnement naturel peuvent être invoqués pour expliquer la persistance des traditions techniques. Ainsi dans les Pyrénées centrales, le maintien de la mouline pour la production du fer au début de l'époque moderne, loin d'exprimer un retard technique, démontre l'adéquation de cet outil avec les formes du marché et l'environnement montagnard⁴¹. En Vénétie, l'introduction dès 1506 d'un procédé d'extraction par voie sèche de l'argent (*extrahere argentum sine igne*) au moyen du mercure représente une innovation technique majeure qui tente de répondre à la pénurie de combustible à laquelle font face les entreprises métallurgiques⁴². L'innovation germe néanmoins dans un contexte défavorable, marqué par l'épuisement progressif des minéralisations, qui n'est pas propice à son adoption. Son véritable essor n'intervient qu'à la fin du XVI^e siècle avec

Médiévale, Dijon - Mont Beuvray - Chenôve - Le Creusot - Montbard, 1-5 Octobre 1996, Beck P. (éd.), Errance, Paris, 1998.

³⁸ Menant F., « Pour une histoire médiévale de l'entreprise minière en Lombardie », *Annales. Économies, Sociétés, Civilisations*, 1987, p. 779-796.

³⁹ Suhling L., « Die Technologie des Kupferseigerns in Zentraleuropa im 15. und 16. Jahrhundert. Technische, Ökonomische und Politische Aspekte », *Mines et métallurgie, Brussieu-Lyon, 1991*, Benoit P. (éd.), PPHS, Les chemins de la recherche n° 26, Lyon, 1994, p. 102.

⁴⁰ Braunstein P., *Les Allemands à Venise...*, *op. cit.*, p. 533.

⁴¹ Verna C., *Le temps des moulins...*, *op. cit.*, p. 319.

⁴² Vergani R., « La métallurgie des non-ferreux dans la République de Venise (XV^e-XVIII^e siècles) », *Mines et métallurgie, Brussieu-Lyon, 1991*, Benoit P. (éd.), PPHS, Les chemins de la recherche n° 26, Lyon, 1994, p. 208 et suivantes.

l'exploitation des riches gisements du Nouveau Monde⁴³. Ces deux exemples visent à illustrer le fait que l'histoire de l'innovation – et au-delà l'histoire des techniques – passe nécessairement par une étude approfondie des contextes économiques, socioécologiques et environnementaux dans lesquels elles s'ancrent, se développent puis s'imposent. L'innovation est durable parce qu'elle s'insère dans un ensemble cohérent de structures compatibles : *le système technique* théorisé par l'historien Bertrand Gille⁴⁴.

Essor de l'hydraulique

Notre sujet d'étude s'enracine profondément au cœur d'un mouvement de rationalisation et de perfectionnement des techniques minéralurgiques et métallurgiques qui se caractérise par l'introduction de l'énergie hydraulique. Dans le domaine de la préparation des minerais, l'innovation s'incarne dans le moulin à minerai qui se substitue aux meules actionnées par la force humaine ou animale. Cet outil permet d'accroître les volumes de minerai traités et d'améliorer la séparation de la roche stérile. Innovation proprement médiévale, l'adoption du moulin hydraulique pour mettre en rotation des meules à minerais procède d'un transfert technique depuis les secteurs économiques maîtrisant l'usage du moulin, tels que la meunerie, le sciage ou le foulage⁴⁵.

⁴³ Téreygeol F., « Production et usages métallurgiques du mercure à la fin du Moyen Âge », *Sciences et techniques au Moyen Âge, Saint-Denis, 2011*, Chandelier J., Verna C. et Weill-Parot N. (éd.), Presses universitaires de Vincennes, 2017, p. 387-399.

⁴⁴ Gille B., *Histoire des techniques : Technique et civilisations, technique et sciences*, Gallimard, Paris, 1978.

⁴⁵ Benoit P., « Au four et au moulin... », *op. cit.*, p. 294.



Figure 2 : Localisation de Castel-Minier et des ateliers métallurgiques où l'usage de la soufflerie hydraulique est attesté par les sources écrites ou archéologiques.

Au Moyen Âge, l'introduction de l'eau comme source d'énergie pour les opérations métallurgiques relatives aux métaux non-ferreux se traduit par l'adoption d'une soufflerie hydraulique. Le mouvement alternatif des soufflets, auparavant assuré par la force humaine, est dorénavant réalisé par un système d'entraînement doté d'une roue. L'origine de l'innovation considérable que représente la soufflerie hydraulique et les vecteurs de sa diffusion ont suscité un débat auquel contribuent significativement les résultats de nos travaux. L'apparition de la soufflerie hydraulique dans le domaine de la métallurgie des non-ferreux est intimement liée à l'histoire de la *fusina*, appareil métallurgique dont l'usage pour le traitement des minerais non-ferreux est attesté pour la première fois en 1179 à Ardesio, dans les Alpes lombardes⁴⁶. Parmi les droits achetés à la seigneurie épiscopale, la communauté d'Ardesio obtient celui d'établir des *fusinas argenti* et des *fornellos argenti*. Ces appareils fonctionnent grâce à l'énergie hydraulique comme l'indiquent les nombreuses

⁴⁶ Menant F., « Aspects de l'économie et de la société dans les vallées lombardes aux derniers siècles du Moyen Âge », In Braunstein P. (éd.), *La sidérurgie alpine en Italie (XII^e-XVII^e siècle)*, École française de Rome, Rome, 2001, p. 22.

mentions relatives à l'admission et au contrôle de la pression de l'eau⁴⁷. L'existence de deux appareils destinés à la production d'argent peut correspondre à deux étapes de la chaîne opératoire : la réduction du minerai de plomb argentifère dans les *fornellos* et la séparation du plomb et de l'argent, ou procédé de coupellation, dans la *fusina*. Les données relatives à la métallurgie du fer renforcent cette hypothèse puisque la *fusina* désigne une structure de chauffe destinée à la décarburation de la fonte⁴⁸. Cette opération d'affinage est conduite sous atmosphère oxydante et à haute température, conditions thermodynamiques similaires à celles du procédé de coupellation. La genèse de la soufflerie hydraulique dans les Alpes lombardes est donc étroitement liée à la métallurgie des métaux non-ferreux avant que cette innovation ne soit transposée à la métallurgie du fer. En Toscane, l'usage de la soufflerie hydraulique est attesté archéologiquement entre le XIII^e et le XIV^e siècle dans l'atelier de Marsiliana, exploité par la commune de Massa Marittima, grâce à la découverte d'une fosse de roue associée à des amas de scories de cuivre issues de la chalcopyrite⁴⁹.

Dans l'espace pyrénéen, l'appropriation de la soufflerie hydraulique se produit selon des modalités qui présentent des similitudes avec l'espace alpin même si le débat reste ouvert. La diffusion de l'innovation semble s'opérer depuis les métaux précieux vers le fer en suivant le chemin des spécialistes italiens. En 1362, lorsque Charles de Navarre entreprend de relancer l'exploitation du gisement de cuivre argentifère d'Urrobi – après une première phase d'exploitation dans les années 1340 – il fait appel au spécialiste Brace de Florence. Ce dernier demande à ce que le roi prenne en charge la réfection des installations et notamment du système de soufflerie hydraulique : « le Roy refera la roe qui tourne les soufflez et li livrera les diz soufflez et delivrera le cours

⁴⁷ Baraldi E., « Ordigni e parole dei maestri da forno bresciani et bergamaschi : lessico della siderurgia indiretta in Italia fra XII e XVII secolo », In Braunstein P. (éd.), *La sidérurgie alpine en Italie (XII^e-XVII^e siècle)*, École française de Rome, Rome, 2001, p. 184.

⁴⁸ *Ibidem*, p. 167.

⁴⁹ Guideri S. et Francovich R., « la produzione del rame... », *op. cit.*, p. 161 et suivantes.

de l'eau jusques a la roe qui la fera souffler⁵⁰ ». À partir de la fin du XIV^e siècle, l'usage de la soufflerie hydraulique se diffuse dans les installations sidérurgiques de Navarre et de Guipuscoa avec l'apparition des *barquines*, terme qui semble désigner des soufflets mécaniques⁵¹. Pour autant, la question d'un transfert de l'innovation depuis le site d'Urrobi n'est pas tranchée. En tout cas, pour les Pyrénées centrales, Catherine Verna ne retient pas cette hypothèse pour expliquer l'application à la métallurgie du fer de la soufflerie hydraulique à partir du XV^e siècle. Combinée au martelage hydraulique, cette innovation forme un nouvel outil : la mouline⁵². Enfin, pour brouiller un peu plus l'enquête, une *fusina* est attestée en 1425 à Montbolo, dans le Haut-Vallespir⁵³. Cette installation est destinée à l'extraction et à l'affinage des minerais de plomb et de cuivre tirés des gisements environnants.

L'exploitation de Castel-Minier offre un cadre d'observation unique pour étudier les mécanismes de l'innovation sur une longue période qui s'étend de la fin du XIII^e siècle au milieu du XV^e siècle. Outre l'évaluation de la place de l'hydraulique dans la chaîne opératoire de préparation des minerais, le site s'avère être un chaînon clé pour apprécier les circonstances de l'adoption de la soufflerie hydraulique et l'hypothétique passerelle technique que constitue cette innovation entre le domaine des métaux non-ferreux et ferreux. En effet, aux ateliers multi-métaux de Castel-Minier qui sont au cœur de notre étude se superpose une métallurgie du fer à partir du milieu du XIV^e siècle et dont les évolutions en matière de soufflerie et de martelage sont continues jusqu'au milieu du XVI^e siècle. Ainsi se trouvent unies dans un rapport dialectique les questions de la *fusina* et de la mouline et celle du rôle des activités métallurgiques non-ferreuses dans l'essor de la sidérurgie médiévale dans les

⁵⁰ Honoré-Duvergé S., « Notes sur la politique économique de Charles le Mauvais en Navarre », Tiré à part de *Actas del primer congreso internacional de pireneistas del instituto de estudios pirenaicos, Saint-Sébastien, septembre 1950*, Instituto de estudios pirenaicos, Saragosse, 1952, p. 13.

⁵¹ Mugueta Moreno Í., « La primera industrialización en Navarra las ferrerías en la Baja Edad Media », *Huarte de San Juan. Geografía e Historia*, 16, 2010, p. 22.

⁵² Verna C., *Le temps des moulins...*, op. cit., p. 82 et suivantes.

⁵³ Verna C., « Innovations et métallurgies en Méditerranée occidentale (XIII^e-XV^e siècles) », *Anuario de estudios medievales*, 41(11), 2011, p. 635.

Castel-Minier : un atelier multi-métaux d'exception

La présentation de l'état des connaissances sur les ateliers multi-métaux et les nombreux questionnements qu'ils nourrissent sur les plans techniques, économiques et sociaux était un prérequis indispensable pour exposer le cadre de recherche dans lequel s'inscrivent nos travaux. Notre contribution à la compréhension des ateliers multi-métaux se fonde sur l'étude du site minier et métallurgique de Castel-Minier. Notre recherche se propose de restituer l'organisation fonctionnelle des différents ateliers en définissant les multiples chaînes opératoires qui y sont à l'œuvre.

L'état de conservation des installations métallurgiques et la préservation de la stratigraphie médiévale sur la majeure partie du site de Castel-Minier sont des avantages considérables pour notre enquête ; ils permettent d'envisager une approche chrono-spatiale des activités métallurgiques. La complémentarité des sources archéologiques disponibles avec d'une part les artefacts métalliques et d'autre part les outils qui ont permis de les produire – tels que les structures de chauffe – offre la possibilité de dépasser les modalités abstraites de certaines chaînes opératoires en les incarnant dans leurs réalités techniques voire sociales. Pour ce faire, les procédés techniques sont d'abord étudiés à partir des vestiges matériels (outils, demi-produits et déchets) qui en constituent les témoins les plus discernables. De l'association entre l'outil et l'ouvrier naît le geste technique qui permet d'obtenir les demi-produits métalliques. La compréhension et la restitution de ce geste sont des étapes nécessaires à la reconstruction d'un procédé technique qui s'insère au sein d'une chaîne opératoire.

La cohabitation sur un même site du mineur et du métallurgiste est une particularité supplémentaire de Castel-Minier qui ouvre des champs de recherche importants pour étudier la filiation entre le métal et le minerai. Ce lien entre le métal

et le minerai, ou plutôt entre le métal et un espace géochimique, est abordé la plupart du temps selon une démarche régressive qui consiste à étudier l'objet fini du point de vue de ses caractéristiques chimiques puis de comparer les résultats à des référentiels afin d'estimer le degré de ressemblance ou de dissemblance. La variété des vestiges retrouvés à Castel-Minier permet d'envisager un nouveau paradigme qui repose d'abord sur l'étude de la ressource minérale et qui, dans un second temps, considère les différentes transformations physico-chimiques qu'elle a subies avant de donner un produit semi-fini. Les avantages d'une connaissance de la matière première et des procédés de transformation sont considérables pour comprendre d'une part les choix techniques opérés par les métallurgistes et d'autre part pour aborder la question de la « qualité » des productions. Les résultats obtenus contribuent également au débat sur l'identification de traceurs chimiques pertinents pouvant être mis en œuvre dans le cadre des études sur la provenance et la circulation des métaux dans l'Europe médiévale.

Le concept de chaîne opératoire en archéométaballurgie

La restitution des activités techniques consacrées aux métaux mobilise le concept de chaîne opératoire, introduit de longue date en archéologie et dont la genèse est étroitement liée à la pensée de Marcel Mauss et en particulier à ses travaux d'anthropologie des techniques. Pour Mauss, les techniques se conçoivent comme des « actes traditionnels efficaces⁵⁴ ». L'importance de la tradition est fondamentale puisqu'elle permet la transmission des savoirs et des techniques. La formalisation du concept de chaîne opératoire apparaît sous la plume d'un élève de Mauss, André Leroi-Gourhan. Dans *Le geste et la parole*, il définit ainsi la technique : « La technique est à la fois geste et outil, organisés en chaîne par une véritable syntaxe qui donne aux séries opératoires à la fois leur fixité et leur souplesse⁵⁵ ». Dans le cadre des opérations

⁵⁴ Mauss M., « Les techniques du corps », *Journal de Psychologie*, XXXII, 3-4, 1936, p. 278.

⁵⁵ Leroi-Gourhan A., *Le geste et la parole. Technique et langage*, Albin Michel, Paris, 1964, p. 164.

minéralurgiques et métallurgiques, la fonction de chaque transformation exercée volontairement par l'ouvrier sur la matière doit être identifiée et décrite ainsi que les outils (fours, foyers), les gestes (martelage, concassage) et les ressources (combustible, eau) qu'elle met en œuvre. Les différentes activités techniques ainsi définies se structurent selon une dynamique propre à la matière transformée et dont l'organisation forme la chaîne opératoire. Toutefois, cette synthèse ne peut s'envisager en dehors de l'environnement naturel, technique et social dans lequel évoluent les ouvriers et qui confère à la chaîne opératoire la souplesse énoncée par Leroi-Gourhan⁵⁶. Ainsi, les habitudes techniques propres à Castel-Minier, bien qu'elles s'inscrivent dans un cadre de tradition et de transmission, sont sujettes à des évolutions qui sont conditionnées par la nature des minerais, l'accessibilité aux ressources énergétiques, l'apport de capitaux ou encore une certaine réceptivité à l'innovation.

La reconstruction des chaînes opératoires métallurgiques à partir des vestiges archéologiques est plus ou moins aisée selon les différentes contraintes qui jalonnent ce processus. La chaîne opératoire est par définition une synthèse didactique des différentes transformations que subit la matière pour donner un objet fini ou semi-fini. La première contrainte qui s'oppose à ce processus de restitution concerne le volume et l'état de conservation des vestiges qui nous parviennent : ils sont inégaux selon leur nature et les conditions d'enfouissement auxquelles ils ont été soumis. La variabilité des artefacts archéologiques, particulièrement prononcée dans le cadre de productions préindustrielles⁵⁷, est une difficulté supplémentaire qu'il n'est pas aisé d'intégrer à un schéma d'ensemble. Les ratés et les objets inachevés sont encore plus problématiques. En plus des difficultés à les identifier, que disent-ils des activités techniques ? Il en va

⁵⁶ Schlanger N., « The chaîne opératoire », In Renfrew C. et Bahn P. (éd.), *Archaeology: The Key Concepts*, Routledge, Londres et New York, 2005, p. 25-31

⁵⁷ La notion d'industrie médiévale est envisagée dans le sens donné par Philippe Braunstein et Catherine Verna. L'industrie se distingue de l'artisanat par des productions plus importantes (qui dépassent les échanges locaux), plus régulières, de qualité constante et reconnue sur le marché : Braunstein P., « L'industrie à la fin du Moyen Âge : un objet historique nouveau ? », In Bergeron L. Bourdelais P. (éd.), *La France n'est-elle pas douée pour l'industrie ?*, Belin, Paris, 1998, p. 25-41 ; Verna C., « Innovations et métallurgies en Méditerranée... », *op. cit.*, p. 624.

de même pour les produits intermédiaires, destinés à être transformés pour en obtenir d'autres dont la valeur ajoutée est supérieure. Ainsi, dans le cadre de l'extraction de l'argent à partir de minerai de plomb argentifère, la découverte de plomb d'œuvre – c'est-à-dire un alliage métallique de plomb et d'argent issu de la réduction du minerai – est très rare puisqu'il a vocation à être traité pour en récupérer l'argent. La découverte de produits intermédiaires en contexte archéologique marque une interruption dans la chaîne opératoire. Elle peut dénoter une mise au rebut (ou une perte) fondée sur des critères techniques ou économiques. Dans le cadre des activités métallurgiques, l'étude des produits intermédiaires est riche d'enseignements sur les modalités de transformation des métaux et des minerais. Ces artefacts livrent en particulier des données précieuses pour quantifier le rendement des procédés d'extraction.

Méthodologie pour l'étude des ateliers multi-métaux

L'approche méthodologique développée pour répondre aux problématiques que nous avons présentées est résolument pluridisciplinaire. Elle embrasse autant l'histoire que l'archéologie, autant les sciences des matériaux que les sciences de la Terre. Les sources écrites, tout d'abord, ont été pleinement intégrées à nos recherches. Le corpus documentaire relatif à Castel-Minier, certes limité, a déjà été en partie étudié par Catherine Verna qui en a révélé la richesse et l'intérêt pour des entreprises minières pyrénéennes⁵⁸. Nous proposons dans ce travail l'édition de ces textes et une discussion de leurs différents apports à la compréhension de Castel-Minier. Cette démarche est complémentaire des travaux déjà réalisés et s'appuie sur les différents niveaux de lecture de ces sources. Notre attention s'est d'abord portée sur la toponymie des sites d'extraction dont l'identification permet d'esquisser une géographie des ressources

⁵⁸ Verna C., « Une nouvelle page de l'histoire des mines d'argent européennes : le cas des Pyrénées centrales (XIV^{ème}-XV^{ème} siècle) », *Bulletin de la Société Ariégeoise des Sciences Lettres et Arts*, 1996, p. 201-232.

minières du Couserans dans les derniers siècles du Moyen Âge. Le corpus documentaire fournit également quelques précisions sur l'organisation de l'entreprise de Castel-Minier et ses rapports avec les puissances vicomtale et royale. Enfin, quelques conjectures peuvent être proposées à partir des mentions relatives à la nature et aux volumes des productions.

Les sources iconographiques de la mine et de la métallurgie ont été prises en compte dans quelques cas avec la conscience de tous les risques que comporte leur utilisation. Elles ne concernent pas directement Castel-Minier et sont pour la plupart postérieures et issues des provinces germaniques. La figuration des activités minières et métallurgiques sur différents supports (retable, graduel, orfèvrerie), dénote un certain état d'avancement des techniques dont les procédés, routiniers et formalisés, se prêtent à la synthèse. Néanmoins, les parallèles avec l'espace pyrénéen sont parfois instructifs, en particulier pour les productions iconographiques bohémiennes de la fin du XV^e siècle.

Les sources archéologiques constituent les principaux matériaux de notre enquête. Les recherches entreprises à Castel-Minier voilà plus d'une décennie nourrissent chaque année un important corpus de mobilier métallurgique. La fouille est une entreprise au long cours, démarche indispensable pour apprécier la nature complexe du site et la multiplicité des pratiques métallurgiques. Le terrain archéologique révèle en effet la matérialité des ateliers multi-métaux mais également ce que les sources écrites taisent, en particulier l'existence de chaînes opératoires liées à la production du cuivre et de ses alliages. Notre participation active aux chantiers de fouilles a enrichi nos réflexions et contribué à définir les contours des problématiques de recherche abordées dans ce mémoire. Au moment où nous débutons nos travaux, l'expérience accumulée par l'équipe de fouille dirigée par Florian Téreygeol a été un précieux avantage tant pour l'identification et le traitement du mobilier que pour la définition de stratégies d'échantillonnage. Néanmoins, en décidant de travailler sur un site dont la fouille n'est pas achevée, nos résultats encourent le risque d'une obsolescence rapide. Nous assumons ce choix et envisageons notre contribution

comme un état de la recherche, une première synthèse dont les enseignements sont à notre sens particulièrement utiles à l'histoire des techniques et notamment à la compréhension des ateliers multi-métaux et de leurs chaînes opératoires.

La compréhension des procédés métallurgiques anciens serait fortement limitée sans l'apport de l'archéométrie et des différentes méthodes qui en relèvent. Ainsi, l'observation visuelle des minerais de plomb argentifères ne permet pas d'accéder à la teneur en métal blanc et aux questionnements techniques et économiques que suscite cette donnée. Sans le concours des analyses élémentaires, il n'est pas possible de distinguer le cuivre du laiton ou du bronze et l'identification ne dépasse pas l'appellation imprécise « d'alliage cuivreux ». Il est inutile de multiplier les exemples pour démontrer l'apport fondamental des études archéométriques à la compréhension des chaînes opératoires de transformation des minerais.

Les résultats obtenus grâce aux analyses rendent compte des choix techniques opérés par les métallurgistes et des particularités locales. Ils permettent également, à partir d'indices souvent ténus, d'identifier les processus de transformations de la matière et de discuter la « qualité » des productions et la notion de rendement. Enfin, l'innovation technique est parfois mise en lumière par l'archéométrie lorsqu'elle n'est pas discernable dans les textes ou lorsque le terrain n'en a pas conservé la mémoire. Exemple éloquent parmi d'autres, l'étude des scories de réduction de Massa Marittima, en Toscane, a mis en évidence un changement technique intervenu entre le XIII^e et le XIV^e siècle qui se caractérise par des températures de réduction plus élevées, indices de l'introduction de la soufflerie hydraulique⁵⁹.

Les études archéométriques conduites dans le cadre de nos travaux de thèse ont été réalisées au moyen de différentes techniques d'observation et d'analyse physico-chimiques. Pour autant, notre démarche méthodologique ne se résume pas à l'utilisation successive de différents instruments d'analyse. Elle procède d'une réflexion approfondie qui nous a conduit à élaborer une méthodologie diversifiée et

⁵⁹ Manasse A. et Mellini M., « Chemical and textural characterisation of medieval slags from Massa Marittima smelting sites (Tuscany, Italy) », *Journal of Cultural Heritage*, 3, 2002, p. 187-198.

multi-échelles dans le but de caractériser les artefacts dans toute leur complexité – depuis l'échelle macroscopique jusqu'à l'échelle microscopique – du point de vue qualitatif et quantitatif.

L'archéologie expérimentale fait partie intégrante de nos travaux. Nous l'avons voulue pleinement intégrée aux recherches archéologiques dans une démarche récursive plutôt que comme une mise à l'épreuve finale des conclusions tirées des données archéologiques et archéométriques. Outre une meilleure compréhension du mobilier archéologique, les expérimentations enrichissent les réflexions sur les procédés métallurgiques. La principale difficulté que nous avons dû surmonter dans l'entreprise expérimentale concerne les gestes techniques, l'appropriation du savoir tacite⁶⁰ que se transmettent les métallurgistes et que les textes ne consignent pas. Seule la multiplication des expérimentations permet de l'approcher.

Exposé des résultats

La genèse de toute entreprise de métallurgie extractive est invariable, elle procède de la découverte de ressources minérales dont l'exploitation est estimée rentable selon des critères économiques et techniques propres à la période considérée. Il est donc légitime que notre exposé débute, après une présentation du site de Castel-Minier et de l'état des recherches archéologiques, par l'évocation du cadre historique et naturel du Couserans médiéval dans lequel s'ancrent les activités minières et métallurgiques entre la fin du XIII^e et le milieu du XV^e siècle. L'enquête se concentre ensuite sur les sources écrites relatives à Castel-Minier dont les apports sont significatifs pour la compréhension des différentes formes de l'entreprise et ses liens avec les puissances vicomtale et royale. Ces sources permettent également de prendre

⁶⁰ Catherine Verna a discuté dans sa thèse d'habilitation à diriger des recherches la place des savoirs tacites dans la transmission des techniques métallurgiques : Verna C., *Entreprises des campagnes médiévales : innovation, travail et marché (XII^e siècle – vers 1550). L'industrie au village (Arles-sur-Tech, XIV^e et XV^e siècles). Essai de micro-histoire*, thèse d'habilitation à diriger des recherches, Université de Paris 1, 2008.

la mesure de l'ampleur des productions métalliques. Nous présentons ensuite, dans une deuxième partie, le corpus archéologique soumis à l'étude et la démarche méthodologique mise en place pour étudier les différents mobiliers. Le district minier du Couserans médiéval fait l'objet de la partie suivante qui s'organise en deux temps. Le premier chapitre est consacré à l'étude de la géographie des ressources minières de cette région à partir des sources écrites et des prospections. Les prélèvements effectués dans les anciens gisements permettent en outre d'étudier leurs caractéristiques minéralogiques et géochimiques. Nous nous intéressons plus particulièrement à la mine des Ouels dont l'importance est à l'origine de l'implantation des ateliers métallurgiques de Castel-Minier à son contact. La bonne conservation des structures souterraines permet d'envisager une étude diachronique des dynamiques d'exploitation et de la nature des ressources minières qui en furent extraites.

Le deuxième chapitre est consacré à la chaîne opératoire minéralurgique de Castel-Minier. Les minerais découverts en contexte archéologique à Castel-Minier font l'objet du troisième chapitre. L'abondance et l'hétérogénéité des minerais de plomb argentifères constituent un support de discussion de la notion de « potentiel » qui s'articule autour de deux paramètres : la teneur en métal précieux et la proportion de roche stérile. Cette démarche permet d'établir une classification relative des minerais afin d'étudier l'évolution de la « qualité » des ressources sur près de deux siècles d'activité. De plus, les résultats des analyses archéométriques sont mis à profit pour identifier la provenance du minerai et évaluer la participation des différentes mines du district à l'approvisionnement de Castel-Minier.

Les parties suivantes sont consacrées aux activités métallurgiques. Leur individualisation se fonde sur une distinction thématique et chronologique : chaque métal fait l'objet d'une partie au sein de laquelle sont exposées dans des chapitres les différentes étapes de la chaîne opératoire. Les volumes des parties, inégaux, dépendent inévitablement de l'abondance des matériaux archéologiques. Ainsi la connaissance de certaines étapes des chaînes opératoires demeure lacunaire faute de documentation. La quatrième partie est consacrée à la production de l'argent. Nous

Introduction

proposons dans un premier chapitre, une reconstruction des procédés techniques d'obtention du plomb d'œuvre à partir de la galène argentifère en nous appuyant sur les résultats archéologiques et archéométriques. L'argent fait l'objet du second chapitre dans lequel sont discutés les procédés d'extraction de ce métal contenu dans le plomb d'œuvre. Enfin, la cinquième partie est consacrée aux métallurgies du cuivre et de ses alliages. L'identification de ces activités complémentaires est l'occasion de discuter la place du métal rouge au sein d'un site originellement voué à l'extraction de l'argent et de cerner les raisons économiques et techniques qui ont motivé la production de cuivre non allié et de bronze au plomb antimonié.

Partie 1 : Les cadres de l'étude

1.1 Le site multi-métaux de Castel-Minier

1.1.1. Présentation du site

Castel-Minier (comm. d'Aulus-les-Bains) se situe dans la vallée du Garbet, à l'extrémité sud-ouest de la province historique du Couserans dont les limites correspondent à l'ancien diocèse éponyme (figure 3). Le site fait aujourd'hui partie de l'arrondissement de Saint-Girons, qui reprend en grande partie le territoire du Couserans, au sein du département de l'Ariège dans la région d'Occitanie. Castel-Minier se trouve à l'écart du village d'Aulus-les-Bains, à environ 3 km au sud-est, au bord d'un axe de communication menant à Vicdessos (figure 4). La route D8f remplace depuis les années 1970 l'ancien sentier qui reliait ces deux localités. Cet aménagement perturbe quelque peu la lecture du site archéologique et l'appréhension de l'environnement médiéval. En particulier, le déplacement de plusieurs tonnes de remblais a fortement modifié la topographie de plusieurs zones en même temps qu'il a oblitéré certains vestiges miniers.



Figure 3 : Situation de Castel-Minier au sein du Couserans et principales localités citées.

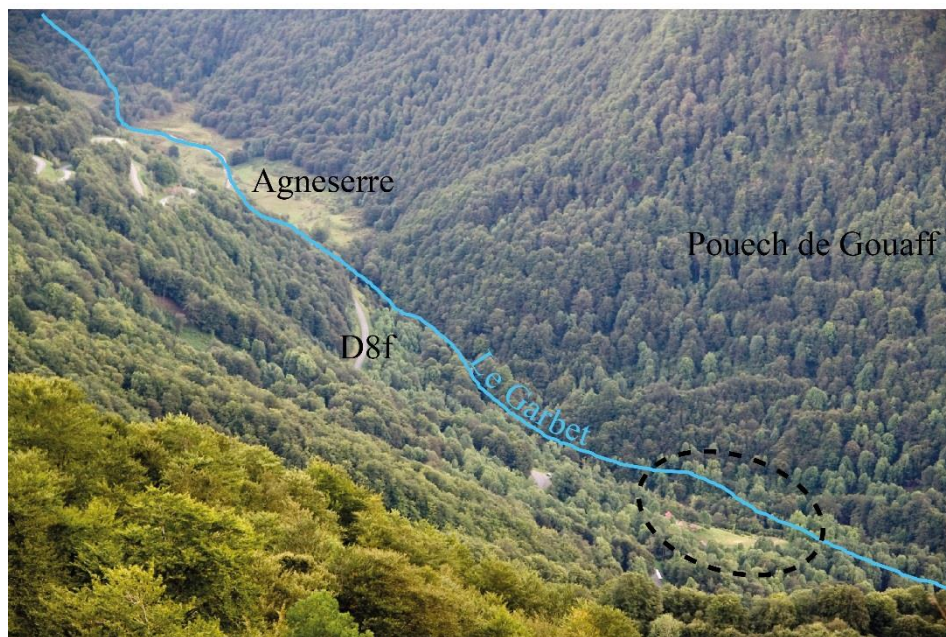


Figure 4 : La vallée du Garbet en amont d'Aulus-les-Bains vue depuis la nord.
L'ellipse en pointillés marque l'emplacement de Castel-Minier.

Castel-Minier est un établissement de moyenne montagne implanté à 1030 m d'altitude en rive droite du torrent du Garbet (figure 4), affluent du Salat et sous-affluent de la Garonne. Le profil en auge de la vallée est assez étroit ; il ne s'élargit qu'au niveau de la pâture d'Agneserre environ 1 km en amont du site (figure 4 et

figure 5). L'occupation ancienne comprend une prairie d'environ 2 hectares qui présente une légère déclivité en direction du Garbet (figure 5). Elle s'est également développée sur un bourrelet rocheux qui jouxte la prairie et sur lequel se sont accumulés des débris morainiques. Le site est dominé au midi par les pentes abruptes du Pouech de Gouaff, tandis qu'au septentrion l'altitude s'élève par gradins successifs jusqu'au port de Lhers. Le toponyme de Castel-Minier trahit la vocation minière et métallurgique du lieu dont la première mention est connue dès 1601 grâce au récit du voyage prospectif de Jean de Malus dans les Pyrénées centrales⁶¹. Il décrit un « chasteau vieil » ainsi qu'une fonderie qui se trouvent à une lieue au-dessus du village d'Aulus. L'espace castral se compose alors d'une tour carrée d'une largeur interne de « neuf grand pas » entourée d'un côté d'une fausse-braie dont un coin est formé par une tour demi-ronde. Malus rapporte une tradition orale selon laquelle le site aurait été détruit et abandonné à la suite d'un raid catalan qui se serait produit au XI^e ou au XII^e siècle. Pour ce qui est de la genèse du site, l'auteur ne manque pas de suggérer une exploitation romaine qui aurait concerné les montagnes d'Aulus. Cette tradition antique a été reprise sur les cartes modernes de l'Ariège à travers le toponyme « Tour des Romains⁶² ».

Si l'archéologie n'accrédite pas la thèse d'une origine antique de Castel-Minier, les activités métallurgiques de la vallée d'Aulus sont indéniablement anciennes. Elles sont illustrées par les travaux des « Argentières » qui bordent la limite orientale du Couserans et se développent au contact d'une intrusion granitique. Traditionnellement attribués aux Romains, l'ancienneté de ces travaux a d'abord été

⁶¹ Le récit de Malus, maître de la Monnaie de Bordeaux, est une source précieuse pour la connaissance de Castel-Minier. Nous y reviendrons plus longuement dans la suite.

⁶² Ce toponyme figure sur la carte de Gilles Robert de Vaugondy, « La partie méridionale du gouvernement de Guienne où se trouvent le Condomois, le pays de Soule, le Labour, l'Armagnac, les Landes, le Bigorre, le Conserans etc ; Gouvernement de Basse Navarre et de Béarn », 1753, document en ligne, consulté le 17 mai 2017, [<http://gallica.bnf.fr/ark:/12148/btv1b7710607t>] ; Roussel J., « Carte générale des Mont Pyrénées, et partie des Royaumes de France et d'Espagne par le Sr. Roussel ingénieur du roy », 1730, document en ligne, consulté le 17 mai 2017, [<http://gallica.bnf.fr/ark:/12148/btv1b7710039q/f6.ite>].

avancée par Claude Dubois à partir de découvertes de tessons d'amphores⁶³. Cette interprétation a été récemment confirmée par des datations de charbons dans les haldes qui attestent d'une exploitation dès le second Âge du Fer⁶⁴.



Figure 5 : À gauche, la prairie de Castel-Minier avec en arrière-plan la grange et la cabane de berger. À droite, la pâture d'Agnesserre. Clichés d'après Téreygeol F., « *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2003.

Le site de Castel-Minier ne se limite pas à des installations de surface. Un réseau minier souterrain s'étend en rive gauche du Garbet sur environ 400 m de distance. Les principales minéralisations étaient composées de sulfures, notamment de galène argentifère. La mine a fait l'objet de plusieurs reprises au XVIII^e siècle pour la galène puis au XIX^e et au début du XX^e siècle pour les minerais sulfurés de zinc. Les travaux miniers sont facilement identifiables grâce aux orifices subsistants, puits et galeries, qui trouent la montagne en de nombreux endroits. En outre, les haldes qui parsèment le site sont autant de vestiges d'un paysage minier aujourd'hui fossilisé. Sur la rive droite du Garbet (figure 6), les installations de surface ont été en partie dérangées par

⁶³ La découverte des tessons est le fait du prospecteur du BRGM Bernard Passaqui : Dubatik C., *Recherches sur les travaux miniers du Haut Salat. 1^{re} partie : les mines d'Aulus-les-Bains*, Autoédition, Saliens, 1981, p. 58.

⁶⁴ Un sondage pédoanthracologique pratiqué dans une halde des « Argentières » a livré des charbons associés à des déblais d'extraction minière et de la galène. Les datations établissent deux phases d'occupation : la première durant La Tène (366-192 cal BC) et la seconde au début de l'occupation romaine (151 cal BC-55 cal AD) : Py-Saragaglia V., Cunill Artigas R., Métailié J.-P., Ancel B., Baron S., Paradis-Grenouillet S., Lerigoleur É., Badache N., Barcet H. et Galop D., « Late Holocene history of woodland dynamics and wood use in an ancient mining area of the Pyrenees (Ariège, France) », *Quaternary International*, 2017, sous presse, p. 8.

les aménagements postérieurs aux activités métallurgiques. Les matériaux de la tour ruinée ont été réemployés au milieu du XIX^e siècle⁶⁵ pour la construction d'une grange qui en reprend partiellement l'emprise. Au sud de cette construction se développe la petite terrasse enherbée du « Plat-du-Roi ». L'enceinte castrale a également subi des remaniements. Au sud-ouest, elle forme le mur gouttereau d'une cabane de berger tandis qu'elle a fait l'objet au nord d'une réfection pour permettre le parcage des ovins. En limite occidentale de la prairie, deux bâtiments ruinés (grange et cabane) reprennent en partie les limites d'un édifice plus ancien présenté comme une chapelle sur les cadastres modernes. Hormis ces aménagements contemporains et la construction de murs terrasses, la reconversion agro-pastorale du site n'a pas entraîné de bouleversement important. Au contraire, elle a permis une bonne conservation des vestiges puisque les anciens espaces de travail ont été scellés par une prairie de fauche. Malgré le déclin des activités traditionnelles et la reprise de la forêt dans l'ensemble de la vallée, le site est aujourd'hui encore dépourvu de couvert forestier (figure 5). Cette particularité est un avantage supplémentaire qui facilite les interventions archéologiques.

Le torrent du Garbet est le principal élément structurant du site de Castel-Minier. En effet, l'eau qu'il fournit intervient de diverses manières dans les opérations minéralurgiques et métallurgiques voire minières. Elle est notamment utilisée en grandes quantités pour les opérations de préparation des minerais telles que l'enrichissement par hydrogravimétrie. De plus, c'est une source d'énergie permettant d'actionner, au moyen de roues hydrauliques, des appareils tels que des soufflets, des engins de levage ou encore des meules à minerais. Pour ce dernier usage, de telles pierres se rencontrent en divers endroits aux abords de Castel-Minier que ce soit dans le lit du torrent, sur ses berges ou en réemploi dans les bâtiments contemporains. En

⁶⁵ D'Assier A., *Souvenirs des Pyrénées. Aulus-les-Bains et ses environs*, Pomiès, Foix, 1884 (3^e édition), p. 95.

rive droite du Garbet et en amont du site de Castel-Minier, le toponyme de « Prairie-des-meules⁶⁶ » est à cet égard particulièrement éloquent.

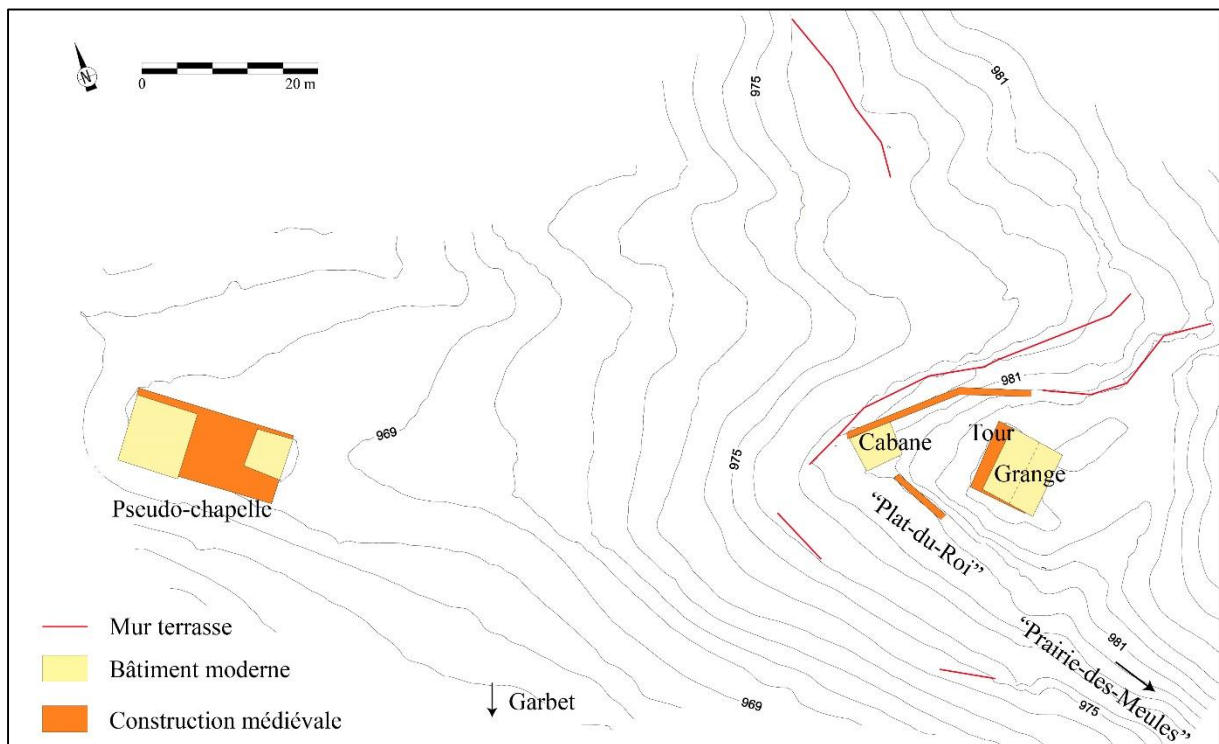


Figure 6 : Topographie de la rive droite du Garbet au début des recherches archéologiques. Modifié d'après Téregeol F., « *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2005, p. 58.

1.1.2. Les recherches archéologiques : travaux antérieures et acquis récents

1.1.2.1. Le PCR *Mines, métallurgie et forêts dans les Pyrénées ariégeoises de l'antiquité au Moyen-Âge* : les campagnes de 1990 et 1991

Les recherches archéologiques ont débuté à Castel-Minier par deux campagnes de fouilles conduites par Claude Dubois en 1990 puis en 1991 dans le cadre du projet collectif de recherche « Mines, métallurgie et forêts dans les Pyrénées ariégeoises de

⁶⁶ Ce toponyme apparaît en 1913 sur un plan établi le 16 novembre par l'ingénieur Brahy pour la Société de la Vieille Montagne (SVM) qui détient la concession du Pouech : Archives de la DREAL Occitanie, dossier Pouech a72, Plan SVM, 1913.

l'antiquité au Moyen-Âge⁶⁷ ». Les opérations de terrain se sont concentrées sur les installations de surface en rive droite du Garbet. En 1990, elles ont consisté en quatre sondages dont deux ont été pratiqués au niveau de la pseudo-chapelle (au pied des murs nord et ouest de l'édifice), un troisième à l'extrémité occidentale de la prairie de fauche et un quatrième derrière le mur sud de la grange (figure 7). La pseudo-chapelle a servi de fondation à deux constructions agropastorales réalisées vraisemblablement au XIX^e siècle. Il s'agit d'un bâtiment de 120 m² dont les parties conservées en élévation sont formées de moellons de granite liés au mortier de chaux. La façade ouest est percée d'une fenêtre, aujourd'hui obturée, réalisée en pierres taillées. Les sondages ont reconnu les fondations de l'édifice ainsi qu'un niveau de démolition contenant des lauzes d'ardoise.

Un troisième sondage en limite de prairie s'est révélé négatif et a rencontré le substrat naturel après une mince couche de terre végétale. Les recherches archéologiques ont également concerné le château. Cet espace se compose d'un mur d'enceinte en moellons de granite et de schiste dont une portion est conservée. Il est percé de deux archères au niveau de la cabane de berger. Le plan de la grange forme pratiquement un carré de 7 m de côté ; le sondage a été exécuté au sud de ce bâtiment. Il a d'abord permis de dégager la base de la tour du château et ses fondations sur lesquelles s'appuie un mur dirigé NE-SO et bâti avec des blocs de granite liés au mortier de chaux. À la base de ce mur débute un caniveau bâti en dalles de schiste qui se poursuit au sud-est. Le comblement se compose d'un niveau de démolition et d'un niveau charbonneux contenant des fragments d'ardoise et du mobilier métallique domestique.

⁶⁷ Campagne 1990 : Dubois C. et Bailly-Maître M.-C., *Rapport de sondages archéologique à Castel-Minier, commune d'Aulus-les-Bains (Ariège)*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 1990.

Campagne 1991 : Dubois C. *Mines, métallurgie et forêts dans les Pyrénées ariégeoises de l'antiquité au Moyen-Âge*. Dubois C. et Métailie J.-P. (dir.), SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 1991, p. 99-153.

Voir également Dubois C., « Les mines de plomb argentifère et zinc d'Aulus-les-Bains (Ariège) », *Archéologie du Midi médiéval*, tome 17, 1999, p. 187-211.

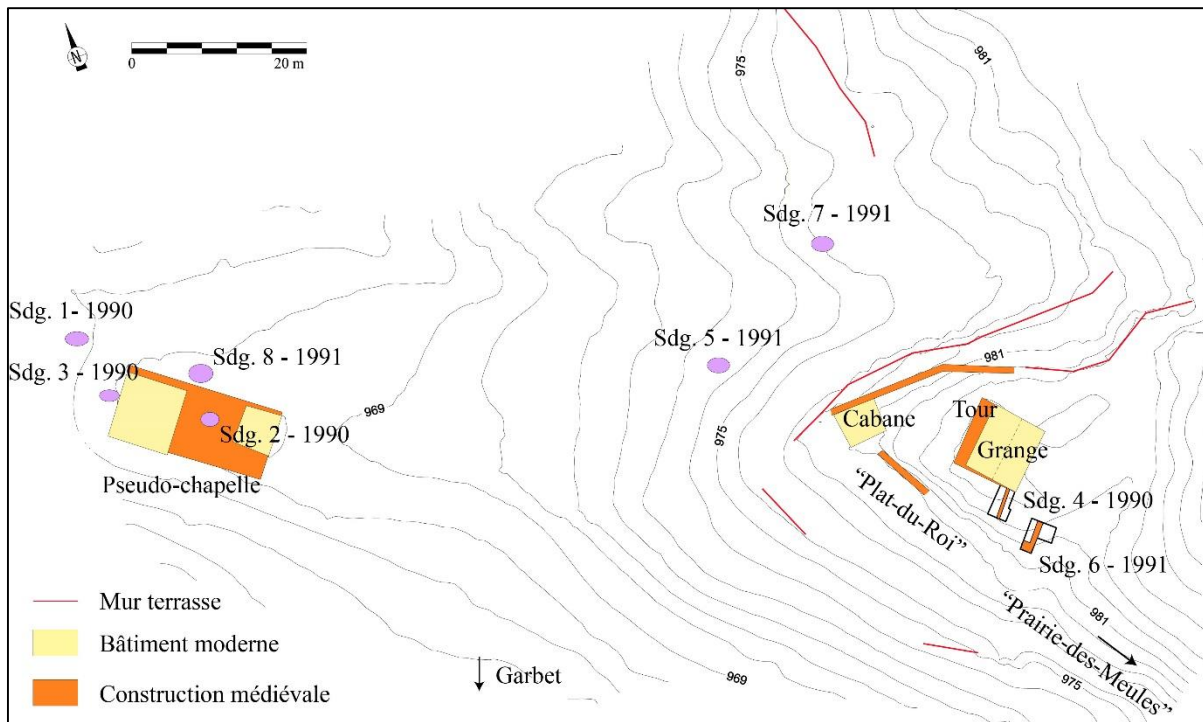


Figure 7 : Implantations des sondages des campagnes de fouilles de 1990 et 1991. Modifié d'après Téreygeol F., « Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2005, p. 58.

Les recherches archéologiques se sont poursuivies en 1991 par la réalisation de quatre sondages supplémentaires (figure 7). Le premier, pratiqué dans l'enceinte de la pseudo-chapelle, devait compléter les informations acquises précédemment et éventuellement permettre de découvrir des sépultures. Le socle rocheux a été atteint à la suite d'une couche de terre peu épaisse qui n'a pas livré de mobilier. Dans l'enceinte castrale, les fouilles se sont poursuivies au sud de la grange avec l'ouverture d'un nouveau sondage implanté dans l'axe du caniveau. Un mur en moellons, parallèle à celui qui fut exhumé en 1990 et lié au mortier de chaux, a été mis au jour. À son extrémité sud, il présente un retour perpendiculaire qui se dirige vers le nord-ouest. Les niveaux de sol reconnus contiennent du mortier désagrégé, quelques charbons ainsi que du mobilier domestique métallique. Les deux derniers sondages de la campagne de 1991 se sont concentrés dans la prairie à l'ouest de la zone castrale. Le premier a été ouvert dans la zone inférieure de la prairie et a livré une couche de scories associées à de la céramique et du mobilier en fer. Le second sondage s'est intéressé à

la partie supérieure de la prairie. Un mur en moellons lié à une terre argileuse recouvrait un amas de scories. À partir du mobilier céramique et des objets en alliages cuivreux, Claude Dubois a proposé une datation circonscrite aux deux derniers tiers du XIV^e siècle. Les résidus métallurgiques découverts se rattachent à des activités sidérurgiques ponctuelles destinées à produire de l'outillage pour les besoins du site. Plus précisément, il a pu être démontré qu'un minerai manganésifère, provenant de la mine du Rancié, dans la vallée voisine de Vicdessos, était réduit selon le procédé direct.

1.1.2.2. Les fouilles programmées pluriannuelles (2006-2016)

Après des campagnes de prospections et de sondages de 2003 à 2005, les fouilles archéologiques sur le site de Castel-Minier ont été poursuivies sous la direction de Florian Téreygeol à partir de 2006 et sont toujours en cours⁶⁸. Il s'agit d'un programme de recherche pluridisciplinaire portant à la fois sur les installations métallurgiques de surface et les réseaux miniers souterrains ainsi que sur les ressources minières de la vallée du Garbet. Cette démarche d'ensemble est fondamentale pour aborder les métallurgies anciennes. En embrassant toutes les étapes de la production métallique, depuis l'extraction minière jusqu'à l'obtention des demi-produits, elle permet de mener une réflexion technique globale qui vise à restituer l'ensemble des étapes des différentes chaînes opératoires à l'œuvre sur le site. Dans cette optique, les travaux de recherches ont été poursuivis en laboratoire grâce au concours d'autres disciplines telles que l'archéométrie ou la céramologie. Leurs contributions ont permis d'élargir les connaissances sur le site et les différentes activités industrielles qui s'y sont déroulées. Les trois premières années (2003-2005) ont été consacrées à la réalisation d'une microtopographie du site, de prospections géophysiques (magnétiques et électriques) puis à l'ouverture de plusieurs sondages. En outre, le réseau minier a fait l'objet d'un relevé complet et la fouille d'un secteur a pu être entamée. À partir de 2006

⁶⁸ La synthèse succincte proposée ici s'appuie sur les rapports d'opération rédigés par Florian Téreygeol dont on trouvera la liste exhaustive dans la bibliographie.

la fouille extensive en surface a débuté et les travaux de désobstruction en mine se sont poursuivis permettant, à partir des années 2010, l'étude archéologique de plusieurs chantiers miniers souterrains⁶⁹.

La fouille des installations de surface en rive droite du Garbet a mis au jour plusieurs bâtiment et structures dont les activités s'inscrivent dans une période qui s'étend de la fin du XIII^e siècle à la fin du XVI^e siècle. Pour plus de commodité, les espaces décrits sont qualifiés de « bâtiment » si les activités sont incluses dans une construction (couverte ou non) à l'emprise bien définie ou de « plate-forme » si elles se déroulent à ciel ouvert sur un terrain aménagé. Ces différents espaces sont identifiés sur le plan de masse reproduit ci-dessous (figure 8).

⁶⁹ Les travaux d'archéologie minière sont présentés dans la section consacrée aux ressources minérales : *infra* p. 234.

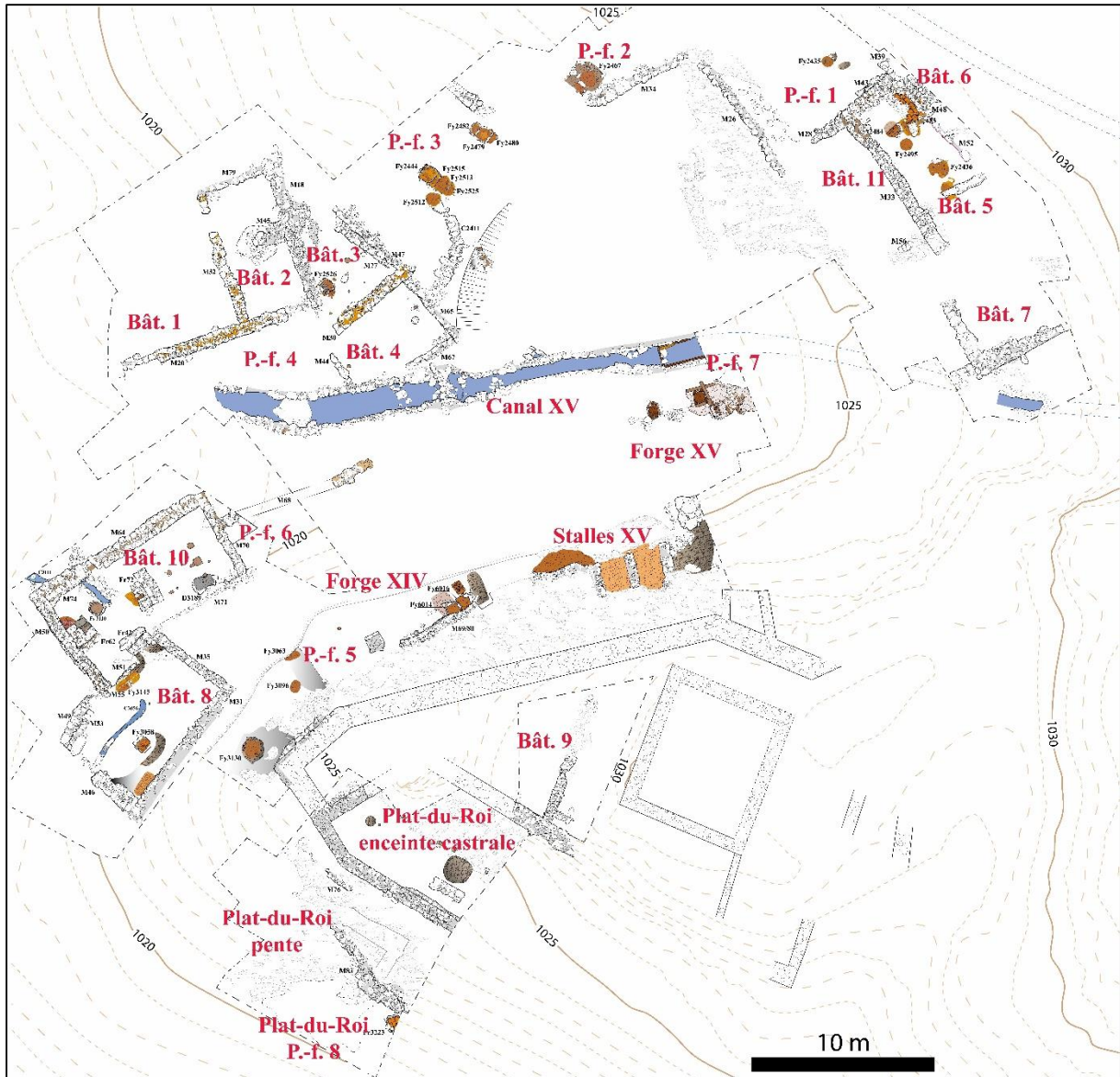


Figure 8 : Plan de masse des fouilles de Castel-Minier. Identification des espaces fouillés.

1.1.2.2.1. Le démarrage de l'exploitation (fin XIII^e-début XIV^e siècle)

Les espaces occupés précocement se situent au pied de la moraine (plate-forme 5, figure 9), dans la partie inférieure du Plat-du-Roi (plate-forme 8, figure 9) ainsi que sur les plates-formes 1 et 2 et dans les bâtiments 3 et 4 (figure 9). Sur la plate-forme 5, les aménagements se composent de trois structures de chauffe circulaires, matérialisées par une couronne d'argile rubéfiée, et d'une forge. Cette dernière comprend un amas de scories et deux foyers dont l'un contenait deux tôles et trois

barres en cours de façonnage qui témoignent d'un travail du fer à Castel-Minier s'apparentant plutôt à des activités de maréchalerie. Au niveau du Plat-du-Roi, l'espace de travail occupe un replat aménagé sur le socle rocheux qui accueille un foyer quadrangulaire dont la sole en carreaux de terre cuite est délimitée par des schistes posés à plat. Le mobilier recueilli se compose de céramiques domestiques et de minerais non-ferreux (galène et chalcopryrite). Les bâtiments 3 et 4 qui s'appuient au nord-est sur un mur de terrasse se caractérisent par des niveaux de travail fortement pollués au plomb qui ont livré des déchets métallurgiques liés à la chaîne opératoire de l'argent. Un foyer approximativement rectangulaire a été mis au jour. Il est délimité par des blocs de granite et sa sole se compose de plusieurs niveaux d'argile, de cendres et de charbons. Enfin, la fouille des plates-formes 1 et 2 a livré plusieurs structures de chauffe. Un foyer circulaire a été aménagé sur la plate-forme 1 tandis que la plate-forme 2 accueille un foyer à la morphologie particulière formé de deux âtres.

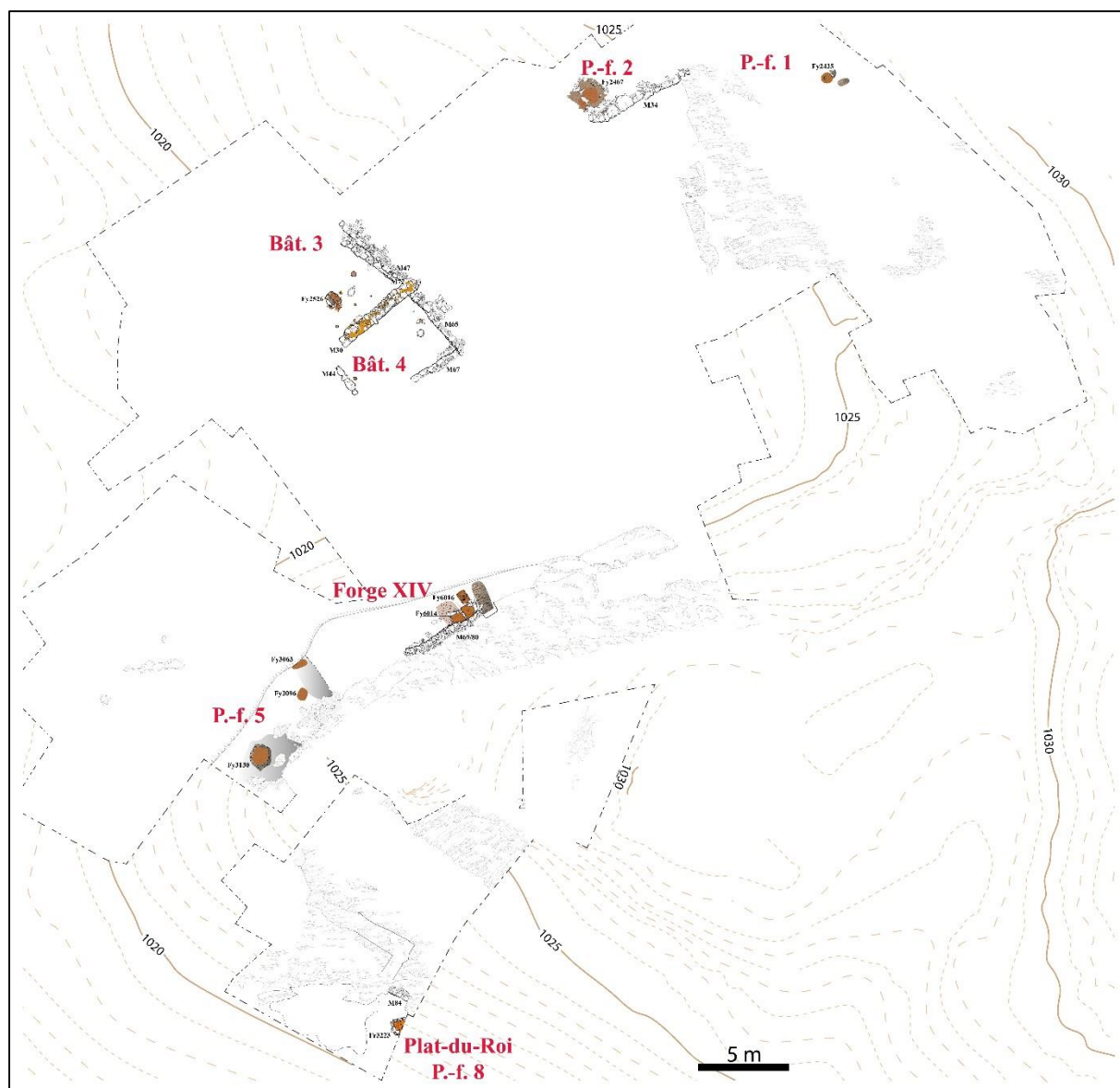


Figure 9 : Structures archéologiques de la fin du XIII^e et du début du XIV^e siècle.

1.1.2.2.2. Deuxième phase XIV^e siècle : essor de la métallurgie du plomb

La deuxième phase d'occupation couvre tout le XIV^e siècle et concerne les bâtiments 1, 2, 5, 8, 10 et 11, les plates-formes 3, 4 et 6 et certains espaces du Plat-du-Roi. Elle se caractérise par l'aménagement de l'espace castral au milieu du XIV^e siècle qui se compose d'un mur d'enceinte et d'une tour. Dans la partie haute du site les activités sont concentrées dans les bâtiments 5 et 11 qui ont été en partie oblitérés par des aménagements plus récents (figure 10). L'intérieur du bâtiment 5 se compose de

niveaux de travail contenant des oxydes de plomb et des charbons. Cinq structures de chauffe approximativement circulaires ont été mises au jour ainsi qu'un important dépôt de déchets d'affinage de l'argent. Quant au bâtiment 11, son occupation couvre tout le XIV^e siècle et se poursuit au début du XV^e siècle. Le mobilier découvert comprend de la galène, des fragments de plomb ainsi qu'une monnaie et un jeton.

Dans la partie basse du site, les plates-formes 3 et 4 sont en activité dans la première moitié du XIV^e siècle (figure 10). Elles se composent de quatre foyers, dont deux doubles quadrangulaires et un simple circulaire, et d'une structure en arc de cercle formée de dalles de schistes posées à plat dont la fonction pourrait être minéralurgique. Les structures de chauffe ont accueilli des activités métallurgiques intéressant le plomb et le cuivre comme le suggère la découverte de fragments métalliques et de minerais. Dans la deuxième moitié du XIV^e siècle, les bâtiments 1 et 2, délimités par des murs terrasses, forment des espaces de travail destinés à la métallurgie du plomb. Ils se caractérisent par des niveaux de sol pollués au plomb qui ont livré des fragments de plomb métallique, des oxydes de plomb ainsi que de la galène (figure 10).

Les bâtiments 8 et 10 s'étagent en contrebas de la plate-forme 5 à la base du bourrelet rocheux portant l'espace castral (figure 10). Ils ont été scellés par un ferrier plus récent (ferrier 2). Le bâtiment 8 se compose d'un foyer quadrangulaire à sole en briques d'argile. Le niveau d'occupation est mis hors d'eau par un drain qui court vers le sud-ouest. Un niveau charbonneux contenant des oxydes de plomb occupe l'angle sud-est du bâtiment. En contrebas de cet espace, le bâtiment 10 est clairement consacré aux opérations métallurgiques. Il accueille trois structures de chauffe en élévation sur environ 1 m caractérisées par l'emploi de blocs de granite pour leur construction. L'espace de travail comprend également une stalle de remisage du minerai ainsi que deux structures excavées identifiées à une canalisation et à une fosse accueillant le billot d'une enclume. À l'est, le bâtiment 10 est édifié sur la plate-forme 6 qui n'a été reconnue que sur un petit espace : elle se poursuit probablement vers l'est.

Les activités métallurgiques en lien avec l'extraction du fer sont attestées au XIV^e siècle par le ferrier 2 qui se compose de scories de réduction et d'épuration. Dans son extension maximale au cours de la première moitié du XV^e siècle, cet espace d'épandage recouvre les plates-formes 5 et 6 et les bâtiments 8 et 10.

Les activités métallurgiques concernent également le Plat-du-Roi dont la fonction de sa plate-forme 8 évolue vers la minéralurgie d'une part, notamment le concassage comme en témoigne la mise au jour d'une halde, et d'autre part vers la métallurgie du plomb argentifère représentée par un foyer d'affinage de l'argent et plusieurs soles usagées (figure 10).

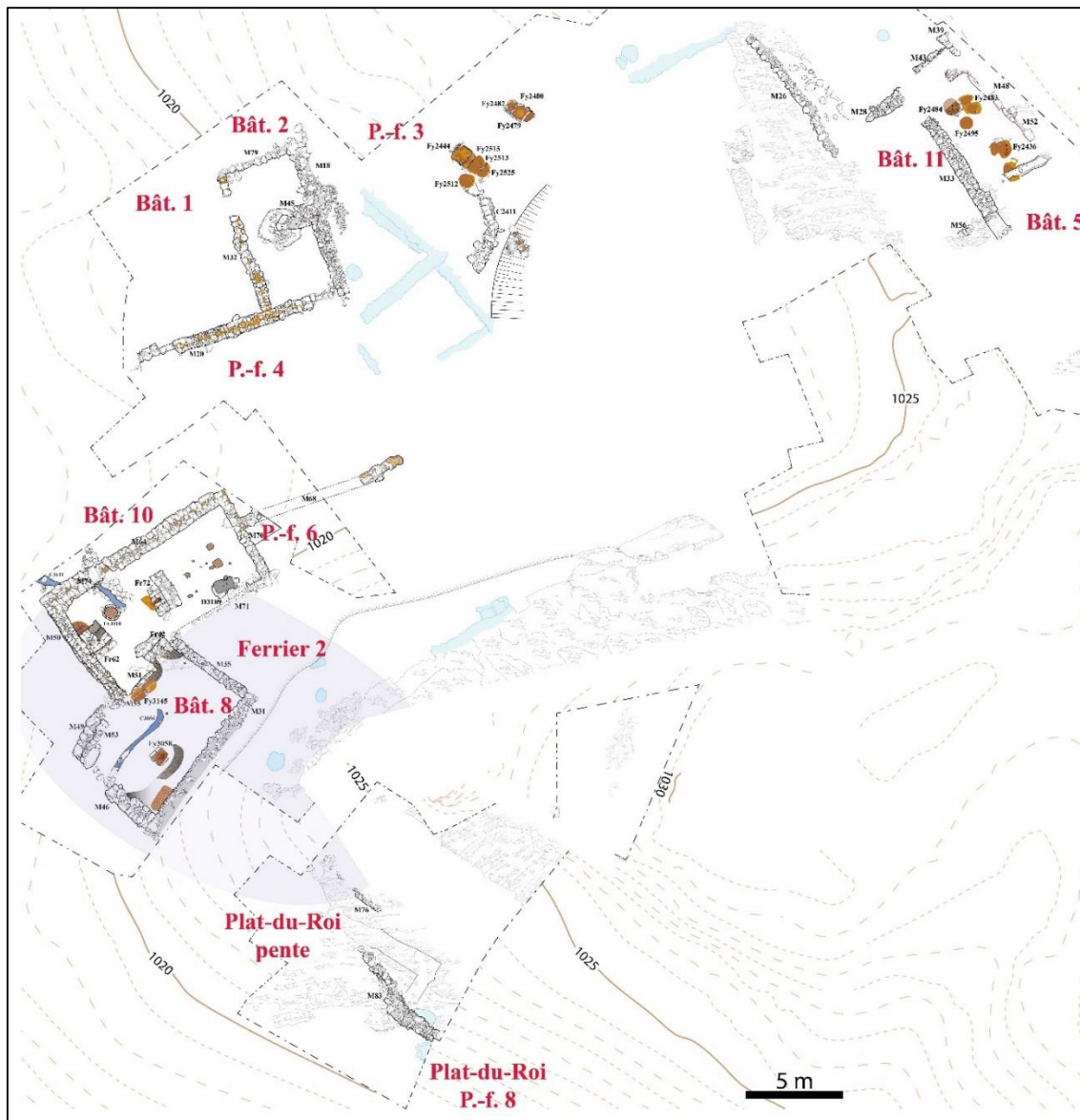


Figure 10 : Structures archéologiques du XIV^e siècle. Les structures de la phase antérieure et l'emprise du ferrier 2 figurent en transparence.

1.1.2.2.3. Troisième phase : le XV^e siècle, métallurgie du cuivre, de l'argent et sidérurgie

Au cours du XV^e siècle, les activités se concentrent dans le bâtiment 6, sur le Plat-du-Roi et autour d'un premier canal hydraulique (canal XV, forge XV et stalles XV, figure 11). Le bâtiment 6 est de facture soignée avec un sol formé d'un dallage en carreaux de terre cuite. Il a livré du mobilier métrologique et de la céramique métallurgique. Sur le Plat-du-Roi, la zone incluse dans l'espace castral semble liée à l'affinage de l'argent tandis que la pente concentre une métallurgie du cuivre illustrée

par la mise au jour de scories et de demi-produits (figure 11). Enfin, c'est dans la première moitié du XV^e que le site de Castel-Minier se dote d'aménagements d'envergure consacrés à la métallurgie du fer et utilisant l'énergie hydraulique. Il s'agit en premier lieu d'un canal dont le comblement recelait un abondant mobilier ferreux constitué de demi-produits plus ou moins élaborés, de minerais partiellement transformés, de loupes en cours de compactage et de nombreux fragments de bois. Dans le fond du canal, un cadre en bois suggère la présence d'une roue actionnant un appareil hydraulique mis au jour en rive gauche. Partiellement fouillée, cette structure s'apparente à un marteau hydraulique. Elle se compose d'un sol induré, dans lequel sont pris plusieurs demi-produits ferreux, et de deux poteaux dont l'un dispose d'un système de calage particulièrement bien conservé. Au sud de cet ensemble, des stalles contenant du minerai de fer oxydé témoignent d'une étape de « grillage⁷⁰ » préalable à la réduction.

⁷⁰ Dans le cas du traitement des minerais de fer oxydés (hématite ou autre), qui est la norme à Castel-Minier, l'utilisation du terme générique de grillage, si elle est commode, n'en demeure pas moins ambiguë. En effet, pour ce type de minerai, il ne s'agit pas d'un grillage au sens physico-chimique (élimination du soufre sous la forme de dioxyde et formation d'oxydes de fer), mais plutôt d'une décrépitation du minéral afin de réduire son module et faciliter la réduction.

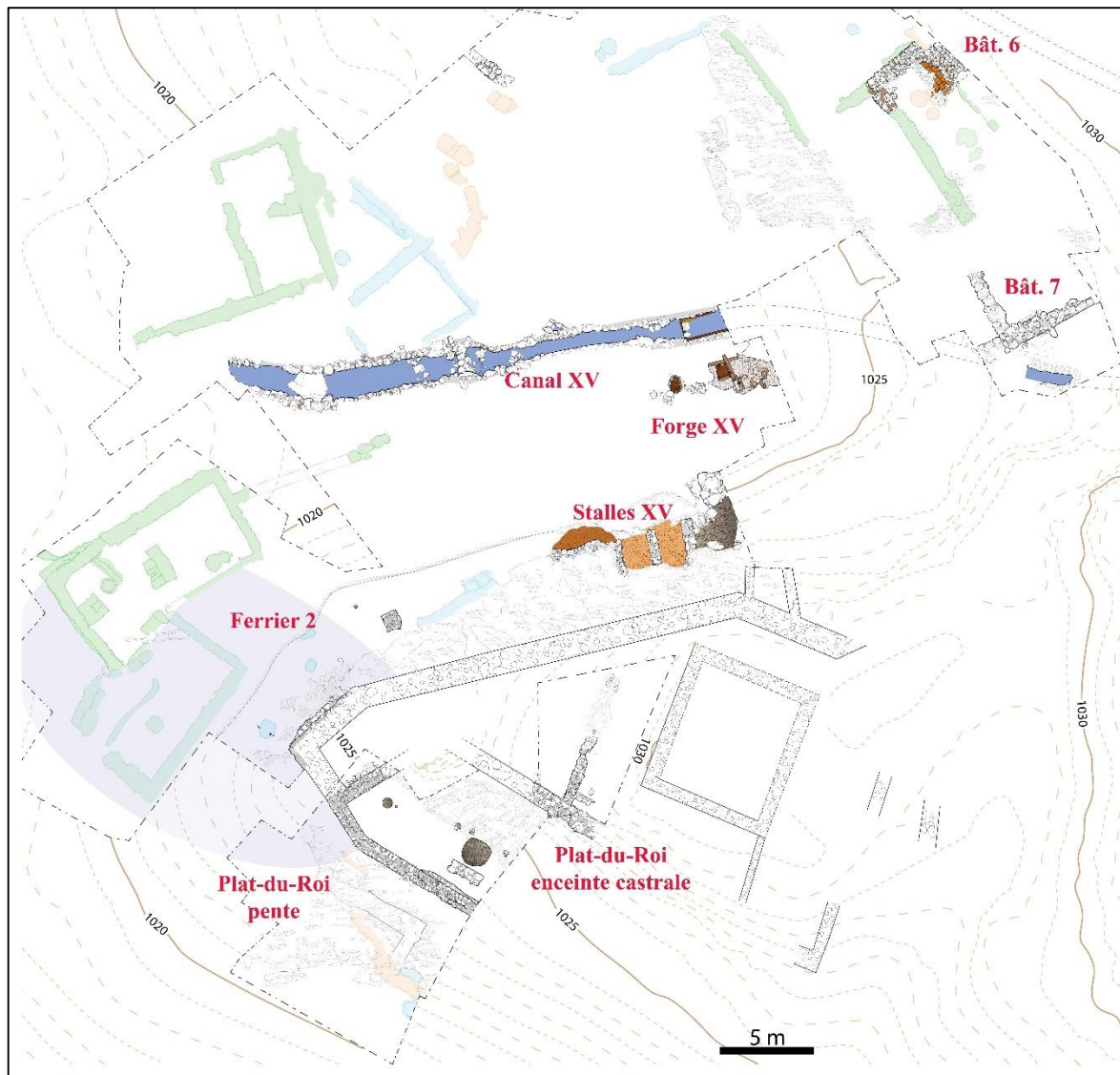


Figure 11 : Structures archéologiques du XV^e siècle. Les structures des phases antérieures et l'emprise du ferrier 2 figurent en transparence.

1.1.2.2.4. Quatrième phase : le temps de la mouline (seconde moitié du XV^e-XVI^e siècles)

Dans la seconde moitié du XV^e siècle, l'évolution des appareils sidérurgiques entraîne un remaniement profond du site (figure 12). Une nouvelle aire de « grillage » est établie sur les bâtiments 1 et 2 tandis qu'un réservoir, élevé à l'emplacement des bâtiments 5, 6, 7 et 11, permet de réguler le débit des eaux, issues d'un captage du Garbet, avant de les diriger vers un canal. Celui-ci accueille des roues qui mettent en rotation les deux appareils hydrauliques : une soufflerie et un marteau, dont

l'association forme une mouline. La soufflerie est la pièce maîtresse d'un bas-foyer dans lequel est produite une loupe de fer qui est ensuite épurée puis mise en forme par martelage. Les scories de réduction sont stockées dans un premier ferrier (situé sous l'aire de grillage, figure 12) qui recouvre les bâtiments 1 à 4 et la plate-forme 3 puis, dans la première moitié du XVI^e siècle, elles sont remisées dans un nouveau ferrier (ferrier 3, figure 12). Les datations dendrochronologiques réalisées sur les pièces de bois de la soucherie du marteau hydraulique attestent d'une réfection à l'automne/hiver 1548-1549. Il s'agit de la dernière phase de l'activité de l'atelier de Castel-Minier qui cesse définitivement dans les années 1580⁷¹.

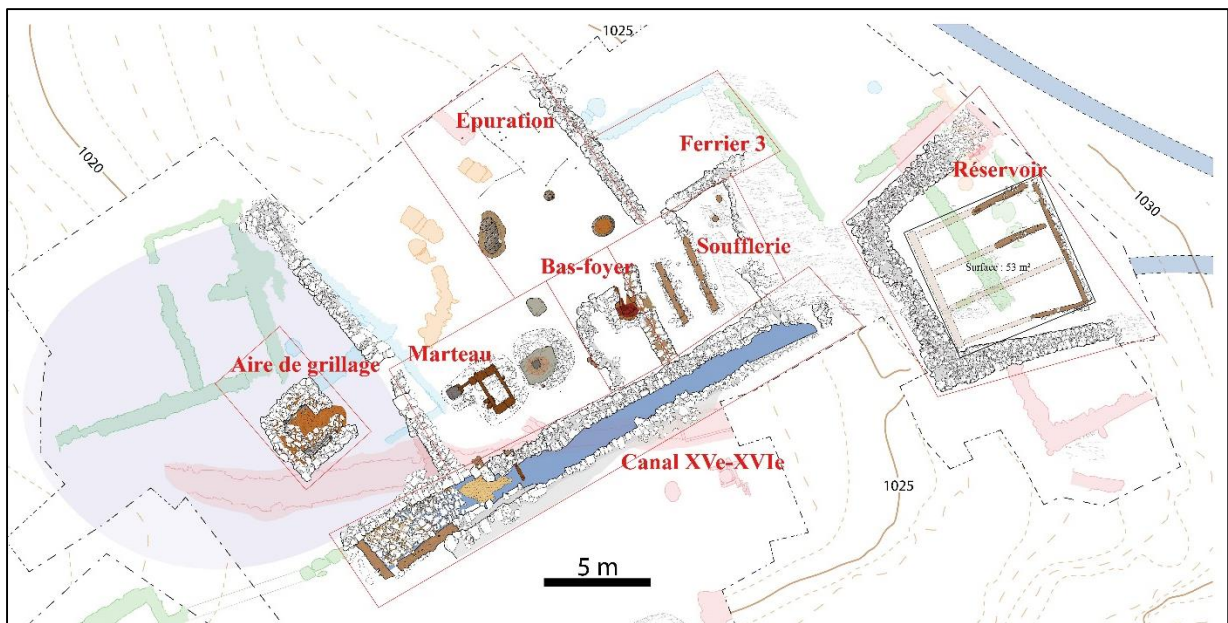


Figure 12 : Les installations de la mouline (seconde moitié XV^e-XVI^e siècles). Les structures des phases antérieures et l'emprise du ferrier 1 figurent en transparence.

⁷¹ *Infra* p. 102 pour l'étude des sources textuelles et l'établissement du *terminus*.

1.2 Données naturelles sur le Haut-Couserans

Pour comprendre le développement des activités minières et métallurgiques non-ferreuses à Castel-Minier entre la fin du XIII^e siècle et le milieu du XV^e siècle, il convient au préalable de dresser un tableau de l'environnement naturel dans lequel elles se sont installées. Les particularismes du petit terroir du Haut-Couserans, au centre de la chaîne des Pyrénées, participent de l'essor de ces activités durant les derniers siècles du Moyen Âge. Ainsi, les ressources en eau, dont l'abondance s'apprécie à la densité du maillage hydrographique, sont un avantage indispensable à la pérennité des installations métallurgiques. La disponibilité du combustible est un prérequis supplémentaire à l'extraction minière et à la transformation des minerais. Si l'observation de la végétation actuelle apporte quelques éléments de réponse, l'étude des ressources en bois passe nécessairement par une approche historique du couvert forestier. Enfin, la riche histoire géologique du Haut-Couserans, ponctuée d'évènements complexes, est propice à l'existence des nombreux gisements polymétalliques recherchés et exploités au Moyen Âge.

1.2.1. Situation géographique

1.2.1.1. Le Couserans

Le cadre de notre étude embrasse une partie du versant nord de la chaîne des Pyrénées, plus précisément son maillon central qui s'étend du Puymorens au pic d'Anie et dans lequel se concentrent les hauts sommets. Les limites occidentales et orientales de cette division régionale, bien qu'elles soient quelque peu arbitraires comme le reconnaît le géographe Michel Chevalier, n'en demeurent pas moins commodes pour partager le vaste ensemble montagneux des pays pyrénéens qui « se juxtaposent d'une mer à l'autre⁷² ». Conduisant sensiblement au même résultat, la

⁷² Chevalier M., *La vie humaine dans les Pyrénées ariégeoises*, Génin, Paris, 1953, p. 64.

définition des Pyrénées centrales de Jean Mussy repose sur un raisonnement de géologie structurale. L'ingénieur des Mines en poste à Vicdessos de 1860 à 1869 distingue deux chaînes montagneuses parallèles dirigées est-ouest (l'une partant de Perpignan, l'autre de Bayonne) reliées au centre par un chaînon transversal, séparant les eaux de la Garonne et de la Noguera Pallaresa, qui forme le cœur des Pyrénées⁷³.

Au sein de cet espace, les Pyrénées ariégeoises tiennent une place à part. L'élargissement du massif montagneux ainsi que l'organisation du relief selon trois dépressions longitudinales, traduction morphologique des accidents tectoniques, assurent « l'originalité physique des Pyrénées ariégeoises⁷⁴ ». Au sud-ouest de cet ensemble se dessine la province de Couserans qui s'étend du sud de Saint-Girons jusqu'à la ligne de crête (figure 13). Elle englobe presque entièrement la vallée du Salat et ses affluents ainsi que la haute vallée de l'Arize. Ses limites occidentale et orientale sont respectivement formées par les pays de Comminges et de Foix qui s'organisent autour des deux axes majeurs que sont les vallées de la Garonne et de l'Ariège. La limite orientale avec le pays de Foix est très marquée et multiforme : elle dessine une frontière géologique et climatique, mais également linguistique entre les zones d'influence gasconne et languedocienne.

⁷³ Mussy J., « Note sur les gîtes métalliques de l'arrondissement de Saint-Girons », *Bulletin de la Société d'Industrie Minérale*, 10, 1864-1865, p. 193.

⁷⁴ Chevalier M., *La vie humaine...*, op. cit., p. 66.



Figure 13 : La province de Couserans dans le département de l'Ariège.

Le Couserans correspond à l'ancienne cité des *Conсорani* au sein de la province romaine de Novempopulanie. Saint-Lizier, chef-lieu de la cité, se dresse au débouché de la cluse éponyme en rive droite du Salat et marque l'entrée dans le piémont pyrénéen⁷⁵ (figure 13). Cette région, avec la vallée de Baup, forme le Bas-Couserans, paysage de collines aux hauteurs modestes (quelques centaines de mètres) et plaines alluviales qui s'étend jusqu'à la cluse de Boussens et aux terrasses de la Garonne. Le Bas-Couserans s'oppose au Haut-Couserans, pays de moyenne et de haute montagne avec des sommets approchant les 3000 m d'altitude. La crête sommitale du massif montagneux délimite l'extrémité méridionale du Haut-Couserans ainsi que la frontière administrative avec l'Espagne et notamment les territoires du Pallars et du val d'Aran.

⁷⁵ Siège épiscopal du diocèse de Couserans, dont les contours ont épousé ceux de la cité romaine, la ville tire son nom de l'évêque Lizier dont l'existence est attestée au début du VI^e siècle. Lizier assiste en effet au concile d'Arles en 506 : Pailhès C., « Les cadres institutionnels du Couserans médiéval », *Archives ariégeoises*, 2009, p. 16.

1.2.1.2. Hydrographie

La crête de la chaîne pyrénéenne coïncide avec la ligne de partage des eaux entre le bassin versant de la Garonne et celui de l'Èbre. Les rivières sont nombreuses en Haut-Couserans ; elles se rejoignent progressivement vers le nord à la faveur de l'abaissement du relief et de l'arrondissement des massifs. Le Salat et son affluent le Lez sont les principaux cours d'eau et délimitent le Haut-Salat et le Castillonnais, terroirs séparés par une petite crête qui s'étend du Mont Valier au sud jusqu'au pic de Bouirex au nord⁷⁶ (figure 14). Le relief élevé du Haut-Couserans dessine un espace relativement cloisonné et isolé qui ne permet pas une mise en contact aisée entre les différents espaces qui se juxtaposent (figure 14).

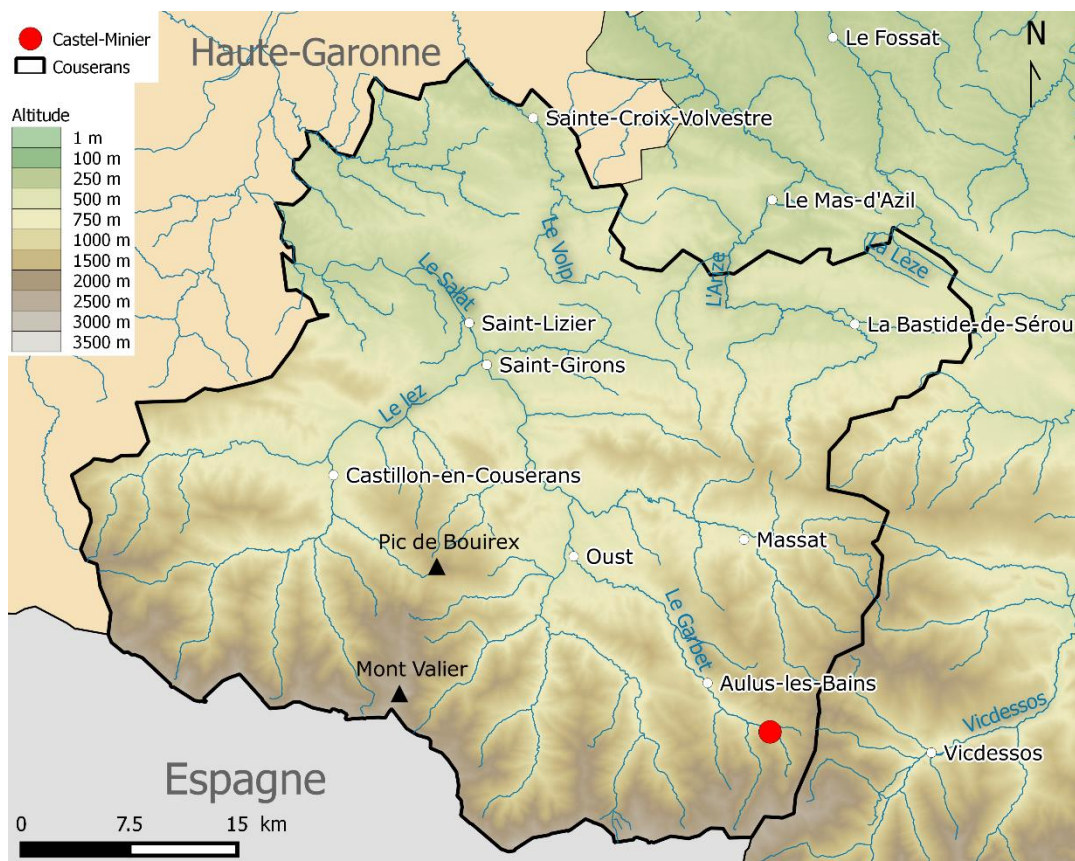


Figure 14 : Carte topographique et hydrographique du Haut-Couserans.

⁷⁶ Mussy J., « Note sur les gîtes métalliques... », *op. cit.*, p. 194.

L'observation de la structure particulière du réseau hydrographique renforce ce constat. Les vallées présentent deux profils suivant les caractéristiques topographiques qu'elles exploitent. Décrivant ce schéma, Mussy introduit⁷⁷ les termes de « vallée de fracture » et « vallée de plissement ». Les premières, dirigées sud-nord, correspondent à un drainage transversal des eaux. Elles sont étroites avec des pentes très escarpées. Les secondes, formées par les larges dépressions intra-pyrénéennes et méso-pyrénéenne, sont dirigées approximativement est-ouest. Elles assurent le drainage longitudinal des eaux. La plupart des affluents du Salat et du Lez empruntent successivement chacune de ces vallées (figure 14). Après un drainage transversal à proximité de la source, le cours de la rivière s'infléchit soit à l'ouest soit à l'est⁷⁸ pour emprunter une dépression avant de confluer. Ainsi, le Garbet rejoint la dépression intra-pyrénéenne à la sortie du village d'Aulus-les-Bains qu'il suit jusqu'à sa confluence avec le Salat à Oust (figure 14).

D'une manière générale, les montagnes du Haut-Couserans ont porté des glaciers de faible envergure ayant peu modifié le profil des vallées. Cette faible activité est la combinaison de la profondeur limitée des massifs et d'une altitude modeste. En outre, le caractère disséqué du relief offrait des zones d'alimentation glaciaire restreintes et circonscrites aux cirques des versants supérieurs⁷⁹. La glaciation a affecté essentiellement les cirques et les hautes vallées sur quelques kilomètres de long. C'est le cas notamment de la vallée du Garbet et de celle de l'Alet⁸⁰.

1.2.1.3. Végétation et occupation du sol

Le Haut-Couserans subit l'influence du climat océanique, renforcée par l'ouverture au nord-ouest des dépressions intra et méso-pyrénéenne. L'humidité du

⁷⁷ Mussy J., « Note sur les gîtes métalliques... », *op. cit.*, p. 195 et suivantes.

⁷⁸ À l'ouest pour les affluents du Salat ; à l'est pour ceux du Lez.

⁷⁹ Chevalier M., « Le relief glaciaire des Pyrénées du Couserans », *Revue géographique des Pyrénées et du Sud-Ouest*, tome 25, fascicule 2, 1954, p. 98.

⁸⁰ *Ibidem*, carte p. 99.

climat du Haut-Couserans contraste avec le haut pays de Foix soumis au climat méditerranéen. Cette particularité a favorisé le développement de la céréaliculture dans les fonds de vallée associée à la culture de plantes fourragères, en particulier pour les vallées glaciaires qui présentent un fond plat et large ainsi que des pentes douces propices à la culture en terrasses. La partie supérieure des vallées est occupée par la forêt puis par les pâturages d'altitude. Les forêts ont colonisé les versants, surtout au cours du XX^e siècle, jusqu'à une altitude d'environ 1500 m. Le chêne se rencontre jusqu'à environ 1000 m tandis qu'entre 1100 et 1500 m d'altitude le hêtre et le sapin sont les essences les plus communes.

L'habitat en Haut-Couserans se répartit essentiellement entre les fonds de vallée et les versants ensoleillés propices aux cultures (soulanes) avec une limite de peuplement, autour de 800 m, qui coïncide avec celle des cultures. La forme de l'habitat a été étudiée par Lucien Goron⁸¹. Ses travaux mettent en évidence un habitat qui tend à se disperser dans la partie occidentale de l'Ariège (vallée du Salat et du Lez) alors qu'il est plus aggloméré dans le pays de Foix. Ces différences semblent moins tenir aux contraintes agro-sylvo-pastorales qu'aux modes de colonisation, de partage et d'exploitation du sol.

1.2.2. Contexte géologique

1.2.2.1. Géologie des Pyrénées

Les Pyrénées géologiques se divisent en quatre zones longitudinales séparées par des accidents majeurs⁸². Ce sont du nord au sud : la zone aquitaine, la zone sous-pyrénéenne, la zone nord-pyrénéenne et la zone axiale. Le Haut-Couserans s'inscrit

⁸¹ Goron L., « La répartition de l'habitat en Ariège. Ses origines et son évolution », *Revue géographique des Pyrénées et du Sud-Ouest*, tome 9, fascicule 1, 1938, p. 101 et suivantes.

⁸² Le bref aperçu géologique qui suit s'appuie sur les travaux de synthèse suivants : Genna A., *Carte géologique harmonisée de l'Ariège. Notice technique. Rapport final*. BRGM/RP-56473-FR, 2008 ; Barnolas A., Chiron J.-C. et Guérangé B., *Synthèse géologique et géophysique des Pyrénées. Volume 1 : Introduction, géophysique, cycle hercynien*, BRGM, Orléans, 1996 ; Mirouse R., *Découverte géologique des Pyrénées occidentales*, BRGM, Orléans, 1988.

dans les deux dernières zones que partage la faille nord-pyrénéenne. Le massif des Pyrénées est le résultat d'une longue histoire géologique de plus de 500 millions d'années qui s'articule autour de deux épisodes majeurs : l'orogénèse hercynienne et l'orogénèse pyrénéenne. La chaîne actuelle résulte de la superposition des deux massifs formés pendant ces orogénèses. Il n'est pas dans notre propos de dresser une synthèse complète de la formation du massif pyrénéen mais uniquement d'apporter les éléments nécessaires à la compréhension du contexte géologique du Haut-Couserans. Cette démarche constitue un prérequis indispensable à l'étude des minéralisations et plus largement des exploitations minières médiévales.

L'histoire de la chaîne pyrénéenne débute par un processus de sédimentation en milieu marin qui prend place entre le Cambrien et le Carbonifère (de -500 et à -360 millions d'années). Les roches sédimentaires, essentiellement des calcaires et schistes, se déposent dans une mer peu profonde formée de récifs. Ces terrains du Paléozoïque sont affectés par l'orogénèse hercynienne, entre le Westphalien et le Permien (de -310 à -250 millions d'années) qui résulte de la collision de deux supercontinents : la Laurussia et le Protogondwana. Le plissement des terrains primaires entraîne la surrection de la chaîne hercynienne qui s'accompagne d'épisodes de plutonisme et de métamorphisme. Une fois le cycle achevé, cette chaîne subit de nombreuses séquences d'érosion à partir du Permien (-299 à -252 millions d'années) réduisant son relief à l'état de pénéplaine dans laquelle les eaux courantes creusent des fossés où s'accumulent les roches sédimentaires formées à partir de la dissolution des calcaires primaires.

Au cours du Jurassique, une partie de la chaîne hercynienne arasée est submergée par la mer Téthys, ouvrant ainsi une intense phase de sédimentation qui se poursuit jusqu'au Crétacé inférieur (-100 millions d'années). La mer Téthys, peu profonde et chaude, est un terrain privilégié pour la précipitation des boues calcaires en dolomies grâce à l'action du milieu fortement magnésien. Cette sédimentation s'accompagne également de dépôts de marnes. De plus, l'éloignement progressif, depuis le Jurassique jusqu'à la fin du Crétacé, des plaques ibérique et eurasienn

entraîne l'ouverture et le creusement d'un profond rift aux bords abrupts dans lequel s'écoulent les sédiments argilo-sableux, conduisant à la formation de turbidites. L'éloignement des deux plaques entraîne également l'amincissement et le morçèlement de la croûte continentale favorisant magmatisme et métamorphisme, mais également la mise à nu du manteau supérieur et l'ascension des roches le composant telles que la lherzolite⁸³.

Le second évènement majeur dans l'histoire de la formation des Pyrénées intervient au début de l'Éocène (vers -70 millions d'années) lorsque le déplacement de l'Ibérie s'inverse : c'est l'orogénèse pyrénéenne. Le microcontinent entame alors sa dérive vers la plaque eurasiennne sous l'action de la plaque africaine. La collision entraîne d'abord le comblement du rift puis la compression des roches sédimentaires qui s'y sont stratifiées. Enfin lors de la phase de subduction de la plaque ibérique sous la plaque eurasiennne, celle-ci s'écaille entraînant le chevauchement des unités qui la composent. Les terrains secondaires de l'ancien rift, fortement plissés, forment une structure en éventail entre la faille nord-pyrénéenne et l'accident frontal nord-pyrénéen tandis que les terrains primaires occupent la zone axiale. L'empilement de ces unités est exposé à l'érosion dès sa phase de formation et tout au long du Tertiaire. Les sédiments issus de cette activité sont charriés par les cours d'eau vers le bassin aquitain et le bassin de l'Èbre.

Le refroidissement général du climat pendant le Quaternaire, marqué par l'alternance des périodes de glaciation et de réchauffement, conduit à la formation de glaciers qui contribuent à modeler le relief. Dans les Pyrénées centrales, et particulièrement en Haut-Couserans, nous avons déjà évoqué la modeste envergure des glaciers qui se sont développés dans les zones de cirques (cirque d'Anglade, de

⁸³ Debroas E.-J., Azambre B., « Des brèches aux lherzolites : la mise en place des lherzolites dans les fossés du Flysch noir albo-cénomanienn de la Ballongue et d'Aulus (zone nord-pyrénéenne, Ariège) », *Géologie de la France*, 1, 2016, p. 3.

Cagateille...) et dans les hautes vallées qui les prolongent au nord. Les phases d'expansion et de recul des glaciers ont profondément sculpté ces vallées, leur donnant un profil caractéristique en auge. En outre, elles contiennent un matériel morainique formant des terrasses, bourrelets ou encore cordons sur les versants qui marquent les étapes du recul des glaciers. Les matériaux charriés consistent principalement en blocs de granite pris dans une matrice argilo-sableuse de faible granulométrie⁸⁴. Le matériel morainique a été en partie remanié par les alluvions des torrents et rivières avec lesquels il s'est mêlé.

1.2.2.2. La zone primaire axiale

La zone primaire axiale se déploie au sud de la faille nord-pyrénéenne jusqu'à la ligne de crête (figure 15). Les terrains qui la composent sont des roches sédimentaires déposées pendant le Paléozoïque (entre le Cambrien et la Carbonifère) qui ont subi des métamorphismes et des déformations au cours de l'orogénèse hercynienne. L'activité tectonique de ces terrains est marquée par de nombreuses failles et chevauchement. Les formations du Cambrien se composent principalement de schistes, grès et conglomérats avec intercalations calcaires (séries de la Pallaresa et des Trois-Seigneurs, série schisto-gréseuse de Gérard). Le métamorphisme a affecté certaines séries, en particulier les schistes transformés en phyllades. Le Silurien est représenté par les schistes noirs (schistes ampéliteux) et calcaires noirs.

Les formations du Dévonien sont plus diversifiées avec une distinction entre le Dévonien « nord » et le Dévonien « sud » séparés par la faille de Salau. Globalement, le Dévonien « sud » se compose de calcschistes, calcaires, schistes et dolomies. Les calcaires peuvent être métamorphisés. Le Dévonien « nord » se distingue de son homologue méridional par la hauteur plus importante de la colonne stratigraphique

⁸⁴ Ternet Y., Colchen M., Debroas E.J., Azambre B., Debon F., Bouchez J.L., Gleizes G., Leblanc D., Bakalowicz M., Jauzion G., Mangin A. et Soulé J.C., *Carte géologique de la France (1/50 000). Feuille Aulus-Bains (1086). Notice explicative*, BRGM, Orléans, 1997, p. 51-56.

et par des niveaux détritiques et fossilifères à dominante carbonatée⁸⁵. Les terrains du Carbonifère terminent la série sédimentaire paléozoïque. Ils se composent de calcaires, roches détritiques (pélites) et grès. L'ensemble des terrains sédimentaires a été affecté par le magmatisme. Les intrusions plutoniques ont conduit à la formation de plusieurs massifs granitiques (Bassiès et Ribérot) et provoqué un métamorphisme de contact notamment la transformation des carbonates en calcaires silicatés (skarns).

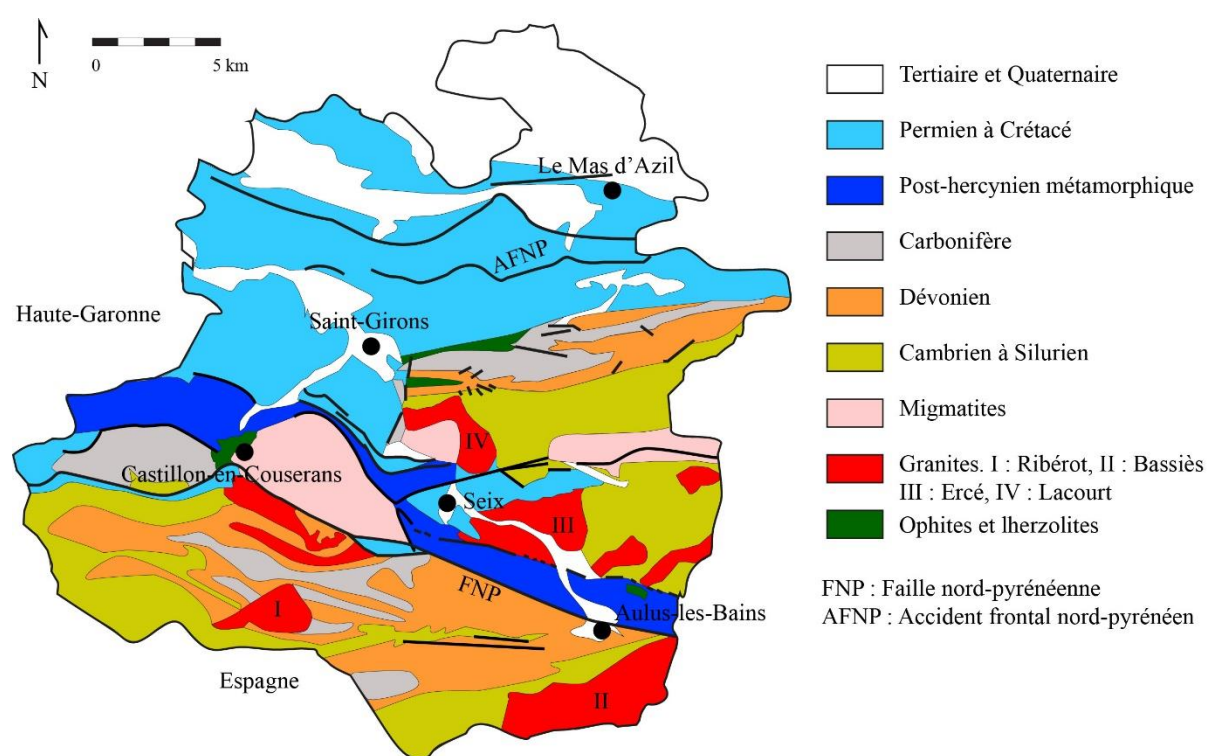


Figure 15 : Carte géologique simplifiée de l'Ariège occidentale redessinée d'après Laforêt C., Monchoux P., Oudin E., et Tollon, F., *Inventaire minéralogique de la France n°11. Tome 1 : bassin versant du Salat*, BRGM, Orléans, 1983, p. 8.

1.2.2.3. La zone nord-pyrénéenne

La zone nord-pyrénéenne est bordée au sud par la faille nord-pyrénéenne et au nord, par l'accident frontal nord-pyrénéen (figure 15). La morphologie de cette zone est complexe puisqu'elle se compose de terrains d'âges anté-hercyniens, tels que le

⁸⁵ Ternet Y., Colchen M., Debroas E.J., Azambre B., Debon F., Bouchez J.L., Gleizes G., Leblanc D., Bakalowicz M., Jauzion G., Mangin A. et Soulé J.C., *Carte géologique de la France...*, op. cit., p. 29 et 95.

massif de l'Arize et le massif des Trois-Seigneurs, formés de roches sédimentaires qui se sont déposées entre le Cambrien et le Carbonifère. Ces ensembles sont parsemés de nombreuses intrusions magmatiques hercyniennes dont les granites d'Ercé et de Lacourt. Un métamorphisme de contact a affecté les dépôts sédimentaires paléozoïques au contact de ces granites.

Les terrains mésozoïques de la zone nord-pyrénéenne se partagent en deux classes. Il s'agit tout d'abord du secteur méridional formé de terrains sédimentaires post-hercyniens (terrains post-hercyniens métamorphiques de la figure 15). Au sein de cet ensemble, le fossé d'Aulus prend l'aspect d'une étroite bande calcaire parallèle à la faille nord-pyrénéenne. C'est un bassin de type *pull-apart*, résultat de l'effondrement d'un bassin plus large lors de la phase d'extension crustale du rift nord-pyrénéen. Les calcaires sédimentaires qui composent le fossé d'Aulus ont été métamorphisés en profondeur selon un mécanisme de haute température et de basse-pression⁸⁶ conduisant à la formation de marbres typologiquement variés (marbres noirs, rubanés, dolomitiques).

Les formations du secteur septentrional représentent la seconde classe des terrains mésozoïques. Ils s'échelonnent de la fin du Permien au Crétacé. Ce sont les grès et pélites du Permien, argiles et dolomies triasiques, calcaires et dolomies jurassiques avec des marnes interstratifiées⁸⁷. Enfin, les flyschs du Crétacé terminent la pile sédimentaire.

1.2.3. Métallogénie-gîtologie

Au sein des Pyrénées centrales, les gîtes métalliques sont la quasi-exclusivité des deux zones géologiques qui viennent d'être présentées : la zone nord-pyrénéenne et la zone axiale. La province métallogénique étudiée est celle du Haut-Salat qui forme

⁸⁶ Ternet Y., Colchen M., Debroas E.J., Azambre B., Debon F., Bouchez J.L., Gleizes G., Leblanc D., Bakalowicz M., Jauzion G., Mangin A., et Soulé J.C., *Carte géologique de la France...*, op. cit., p. 80.

⁸⁷ Genna A., *Carte géologique harmonisée de l'Ariège...*, op. cit., p. 18.

un sous-ensemble d'une province plus vaste qui s'étend à l'ouest jusqu'à la vallée de l'Aure⁸⁸. Elle présente une certaine unité et sa nature polymétallique contraste avec la province métallogénique du bassin de l'Ariège, où dominant les minerais de fer, renforçant une fois encore la frontière avec cet espace. Parmi les terrains sédimentaires du Haut-Salat, ceux du système dévonien tiennent une place privilégiée, en particulier la série inférieure dont les formations carbonatées concentrent la majeure partie des gîtes. Ce sont les « calcaires métallifères » décrits⁸⁹ par l'ingénieur des Mines Mussy et dont la coloration rouge constitue un indice de minéralisation. Les gisements qui s'y sont développés sont de deux types : stratiforme et filonien.

1.2.3.1. Les gisements stratiformes

Les gisements stratiformes correspondent à une minéralisation de type sédimentaire exhalative, c'est-à-dire issue des fluides hydrothermaux expulsés du bassin sédimentaire du rift pyrénéen. Ces fluides ont été enrichis en métaux par lessivage des roches détritiques accumulées dans le rift avant de précipiter le long des failles du bassin sédimentaire. Les gisements obtenus contiennent principalement des minéraux sulfurés résultant d'une réaction avec le sulfure d'hydrogène présent dans la zone anoxique du bassin. La plupart des minéralisations se sont mises en place au cours du Paléozoïque avec parfois d'importantes remobilisations pendant l'orogénèse hercynienne⁹⁰. Dans le Haut-Couserans, les meilleurs exemples de ce type de minéralisation sont les gisements de Bentaillou et de Carboire, tous deux exploités pour le zinc et dans une moindre mesure le plomb. Bentaillou, dans la vallée de Biros,

⁸⁸ Gramont X. de, « Les mines d'Aulus (Ariège) », *Bulletin de la société d'histoire naturelle de Toulouse*, 97, 1962, p. 498.

⁸⁹ Mussy J., « Description de la constitution géologique et des ressources minérales du canton de Vicdessos et spécialement de la mine de Rancié », *Annales des Mines*, 6^e série, tome 14, 1868, p. 75.

⁹⁰ Munoz M., Baron S., Boucher A., Béziat D., et Salvi S., « Mesozoic vein-type Pb–Zn mineralization in the Pyrenees: Lead isotopic and fluid inclusion evidence from the Les Argentières and Lacore deposits », *Comptes Rendus Geoscience*, 348 (3-4), 2016, p. 322.

a été travaillé continuellement entre 1853 et 1953⁹¹ tandis que Carboire a fait l'objet d'une évaluation par le BRGM dans les années 1960⁹².

1.2.3.2. Les gisements filoniens

Les gisements filoniens hydrothermaux se sont également mis en place dans les terrains paléozoïques. Les veines ont comblé les vides associés aux nombreuses failles normales principalement dans les roches carbonatées ou à leur contact avec les schistes. En outre, les intrusions granitiques dans les terrains paléozoïques ont pu créer localement des conditions de température et de pression propices à la formation des gisements tandis que l'activité tectonique a facilité la circulation des fluides hydrothermaux. À ces facteurs structuraux s'ajoute la nature des roches sédimentaires calcaires et dolomitiques dont la porosité et la fragilité ont permis la circulation et la précipitation des minerais. En outre, une possible préconcentration de sulfures dans ces roches a également été envisagée pour expliquer la précipitation préférentielle des minerais⁹³. Les gîtes filoniens sont approximativement dirigés est-ouest exceptés ceux de la région de Seix à tendance nord-ouest. Ces derniers sont leptothermaux à paragenèse cuprifère composée essentiellement de chalcopyrite tandis que les autres sont mésothermaux à paragenèse de type sphalérite, pyrite, galène et chalcopyrite⁹⁴.

1.2.3.3. Âge des minéralisations

L'âge de certains gisements a pu être établi à partir des analyses isotopiques du plomb. Les dépôts de type sédimentaire exhalatif se sont principalement formés au

⁹¹ Dubois C., *Les mangeuses d'hommes. L'épopée des mines de Bentailou et de Bulard en Ariège*, Privat, Toulouse, 2015.

⁹² Réserves estimées à 3 500 000 t de tout-venant à 6 % de zinc et moins de 1 % de plomb : Laforêt C., Monchoux P., Oudin E., et Tollon, F., *Inventaire minéralogique...*, *op. cit.*, p. 10.

⁹³ Gramont X. de, « les mines d'Aulus... », *op. cit.*, p. 497.

⁹⁴ *Ibidem* p. 495.

cours du Paléozoïque entre -600 et -445 millions d'années⁹⁵. Dans notre zone d'étude, les gîtes filoniens sont moins bien documentés par les études géochronologiques. Néanmoins, les données récentes acquises par Munoz *et al.* sur les gisements de la vallée d'Aulus permettent de préciser le cadre de leur formation⁹⁶. Les minéralisations des Argentières et de Lacore se sont mises en place au Mésozoïque, respectivement de -321 à -242 millions d'années et de -164 à -155 millions d'années à partir de fluides hydrothermaux de basse température et de haute salinité. Les données isotopiques acquises dans le cadre de notre thèse sur d'autres mines de la vallée d'Aulus semblent confirmer ce modèle.

1.3 Le Couserans médiéval (début XIII^e- milieu XVI^e s.)

L'exploitation du gisement et le fonctionnement des ateliers métallurgiques de Castel-Minier se déroulent sur une longue période qui couvre près de deux siècles. L'organisation de l'entreprise, son mode de gestion mais également les mutations techniques des chaînes opératoires de productions des métaux s'expliquent en partie par l'évolution du contexte politique et économique du Couserans médiéval. Le cadre politique est celui de la vicomté, petite entité détachée du comté de Comminges à la fin du XII^e siècle et dont l'histoire est mal connue. Au sein d'une économie locale essentiellement tournée vers l'agro-sylvo-pastoralisme, les activités minières et métallurgiques, qu'elles concernent le fer ou les métaux précieux, forment un secteur non négligeable.

⁹⁵ Marcoux E., *Isotopes du plomb et paragenèses métalliques, traceurs de l'histoire des gîtes minéraux. Illustration des concepts de source, d'héritage et de régionalisme dans les gîtes français*, thèse de 3^e cycle, Université de Clermont-Ferrand II, 1986.

⁹⁶ Munoz M., Baron S., Boucher A., Béziat D., et Salvi S., « Mesozoic vein-type Pb-Zn... », *op. cit.*, p. 328.

1.3.1. Éléments de chronologie

1.3.1.1. Formation de la vicomté

Les recherches sur le Couserans médiéval se heurtent inévitablement à « une particularité malheureuse⁹⁷ » : la rareté des sources documentaires. Ce constat est la conséquence des particularismes structurels de cette petite vicomté pyrénéenne dont l'administration quasiment inexistante n'a jamais atteint le niveau d'élaboration des comtés voisins de Foix et de Comminges. C'est un assemblage de modestes seigneuries relativement indépendantes au sein desquelles l'implantation monastique est limitée⁹⁸. La formation territoriale de la vicomté est tardive. D'abord possession de la maison de Foix, le Couserans passe dans la famille de Comminges entre 1126 et 1130 pour des raisons encore floues⁹⁹. En 1176, lors de son entrée au temple de Montsaunès, le comte de Comminges Dodon de Samatan (Bernard III) partage le comté entre ses fils. Son cadet Roger reçoit le Couserans et porte le titre de vicomte¹⁰⁰. Une fois encore, les motivations de cet acte politique nous échappent en partie. La volonté d'asseoir le pouvoir de la maison de Comminges dans une région nouvellement acquise et de compenser la puissance épiscopale sont les plus évidentes¹⁰¹.

L'emprise territoriale de la vicomté est faible et ses limites territoriales ne coïncident pas avec celles du diocèse (figure 16). Le Couserans vicomtal est amputé du Castillonnais, dont la seigneurie reste dans la mouvance commingeoise, et du Bas-Salat. L'activité des premiers vicomtes de Couserans reste difficile à appréhender. Les

⁹⁷ Pailhès C., « Les cadres institutionnels... », *op. cit.*, p. 9.

⁹⁸ *Ibidem*, p. 9 et 15.

⁹⁹ Charles Higounet suggère que le Couserans fut cédé au comte Bernard I^{er} par Roger de Carcassonne au cours d'un différend entre ce dernier et le comte de Foix Roger III : Higounet C., *Le comté de Comminges de ses origines à son annexion à la couronne*, L'Adret, Toulouse, 1984, p. 43.

¹⁰⁰¹⁰⁰ La généalogie de la maison de Couserans fait l'objet de l'annexe 1.

¹⁰¹ L'installation de la famille commingeoise en Couserans dans la première moitié du XII^e siècle initia un long conflit avec l'évêque au sujet de la suzeraineté sur la cité épiscopale de Saint-Lizier. La question ne fut réglée qu'en novembre 1230 par une sentence de l'archevêque d'Auch qui prévoyait un partage des droits sur la cité entre l'évêque et le comte de Comminges : Pailhès C., « Les cadres institutionnels... », *op. cit.*, p. 33 et 34.

certitudes sont rares et les hypothèses sont tributaires des fonds ecclésiastiques et des Archives générales de la Couronne d'Aragon pour les affaires du Pallars. Les premiers vicomtes de Couserans semblent avoir engagé une politique d'ensemble pour développer et mettre en valeur leur territoire. Elle se décline sur les terrains militaire, religieux et matrimonial. Tout d'abord, la construction de nombreux ouvrages fortifiés dans le Haut-Salat, à partir de la fin du XII^e siècle et durant tout le XIII^e siècle, permet la création d'un maillage castral global et cohérent¹⁰².

Sur le plan religieux, la famille vicomtale entretient des liens privilégiés avec la commanderie hospitalière Notre-Dame de Salau qui bénéficie de plusieurs donations en Haut-Salat et autour de Saint-Girons au cours du XIII^e siècle¹⁰³. Installée sur un axe de circulation majeur reliant les hautes-vallées couserannaises à la Noguera Pallaresa et au Pallars, la commanderie de Salau contrôle le port éponyme. Les frères protègent marchands, pèlerins et voyageurs et les accueillent dans leur hôpital. Alors que les échanges avec le Pallars s'intensifient à la fin du XII^e siècle, l'importance stratégique de la commanderie de Salau ne cesse de croître. La fondation hospitalière bénéficie également des faveurs des parents du comte de Pallars qui possèdent des terres sur le versant nord des Pyrénées¹⁰⁴.

¹⁰² Pour les études castellologiques, nous renvoyons au PCR *Naissance, évolutions et fonctions des fortifications médiévales dans les comtés de Foix, Couserans, Comminges* dirigé depuis 2004 par Florence Guillot, document en ligne, consulté le 30 août 2017, [<http://www.chateaux09.fr/telechargements.htm>]. Voir également les actes du colloque de Foix des 3 et 4 décembre 2011 : *Fortifications médiévales dans les Pyrénées. Comtés de Foix, Comminges, Couserans*, Guillot F. (éd.), In Extenso, Canens, 2013. Sur les fortifications en Couserans, se reporter plus spécifiquement au mémoire de master 2 de Thibaud Lasnier, *Typochronologie du bâti des fortifications médiévales en haut Couserans : premières études de cas*, mémoire de master 2 d'archéologie, Université de Toulouse le Mirail, 2007.

¹⁰³ Sur la commanderie de Salau : Mondon S., « Les possessions des ordres de Saint-Jean de Jérusalem et du Temple dans le Couserans et le Comminges », *Revue de Comminges*, tome 31, 1916, p. 69-101.

¹⁰⁴ Mondon S., « Les possessions des ordres... », *op. cit.*, p. 91-92 : note 5 relative aux donations de Pey d'Ost (d'Oust), fils d'Arnaud de Pallars, à la commanderie de Salau (acte de 1203).



Figure 16 : Le Couserans médiéval au XIV^e siècle.

1.3.1.2. La question du Pallars

Les relations privilégiées entre les deux grandes familles féodales de Couserans et de Pallars ne s'expriment pas uniquement dans le domaine religieux. Leur rapprochement dans la première moitié du XIII^e siècle s'opère sur le plan matrimonial et nourrit l'ambition transpyrénéenne des vicomtes de Couserans. Celle-ci se concrétise en 1216 par le remariage de Roger II de Couserans avec Guillemma de Pallars, héritière du comté de Pallars Sobirà. L'union n'ayant pas donné de descendants, Guillemma vend le comté à Roger II le 6 mars 1229¹⁰⁵. Néanmoins, la réunion du Pallars

¹⁰⁵ Bourret C., « Les relations féodales Couserans Pallars au Moyen Âge. Les vicomtes de Couserans et le comté de Pallars Sobirà au XIII^e siècle et au début du XIV^e siècle », *Du Couserans au gave de Pau. Tradition et renouveau. Actes du XL^e congrès d'études régionales, 28-30 juin 1985, Saint-Girons*, Fédération des Sociétés Académiques et Savantes de Languedoc Pyrénées Gascogne (éd.), Y. Maury, 1985, p. 115 et 116.

et du Couserans est de courte durée. Malgré les dispositions prises par Roger II dans son testament, le comté et la vicomté sont séparés à sa mort vers 1257. Le fils bâtard de Roger II, pourtant déshérité, parvient à s'emparer du Couserans et prend le titre de Roger III de Couserans. Quant au comté de Pallars Sobirà, il revient à Arnaud-Roger, fils de Roger II et de sa troisième épouse Sibille de Saga.

La difficile succession de Roger II ouvre une nouvelle période des relations Pallars-Couserans marquée par les troubles ainsi qu'un rapprochement avec la maison de Foix. Pendant près d'un siècle, les descendants de Roger III tentent de récupérer sans succès le comté de Pallars Sobirà. Arnaud d'Espagne conduit un premier assaut sur le Pallars en 1289, quelques mois après la mort sans héritier d'Arnaud-Roger. Profitant des difficultés de succession¹⁰⁶ dans la maison de Pallars, le vicomte de Couserans renouvelle ses expéditions jusqu'à sa mort survenue après 1319¹⁰⁷. Après une nouvelle invasion en 1328 et en 1332, le vicomte de Couserans Roger IV abandonne définitivement ses prétentions sur le comté de Pallars-Sobirà. Désormais, l'histoire de la vicomté ne s'écrit plus que sur le versant nord des Pyrénées.

1.3.1.3. Fixation des limites territoriales et déclin de la vicomté

L'héritage par sa mère de la seigneurie d'Espagne-Montespan a momentanément permis à Arnaud d'Espagne d'étendre les limites de la vicomté vers la plaine garonnaise. L'accroissement est de courte durée puisque la seigneurie est séparée de la vicomté dès 1308 et dévolue à Arnaud, troisième fils d'Arnaud d'Espagne¹⁰⁸. Dans la deuxième moitié du XIV^e siècle, les mariages de Raimond-Roger I^{er} puis de Raimond-Roger II avec les héritières de la maison de Bruniquel leur

¹⁰⁶ Pour la succession au comté de Pallars-Sobirà et la chronologie des incursionsouserannaises voir Pailhès C., « Les cadres institutionnels... », *op. cit.*, p. 30.

¹⁰⁷ Arnaud d'Espagne bénéficie du soutien du comte de Foix Roger-Bernard III qui poursuit alors une politique d'expansion en Catalogne : Bourret C., « Les relations féodales... », *op. cit.*, p. 121. Arnaud d'Espagne est encore en vie lorsque le différend avec les exploitants de la mine de Castel-Minier apparaît dans la documentation : ADHG 2E3257 et *infra* p. 103.

¹⁰⁸ Higounet C., *Le comté de Comminges...*, *op. cit.*, p.287.

permettent d'entrer en possession de la vicomté éponyme située aux confins du Quercy, de l'Albigeois et du Rouergue. Possession éloignée, elle devient l'apanage d'un cadet¹⁰⁹. Ainsi, à la fin du XIV^e siècle, si l'on excepte le château de Quié¹¹⁰ en terre fuxéenne, les limites de la vicomté de Couserans coïncident avec celles du partage de 1176.

Le pouvoir de la maison de Couserans s'essouffle continuellement tout au long des XV^e et XVI^e siècles. Isolée entre les deux puissances émergentes rivales que sont les maisons de Foix et d'Armagnac, la vicomté voit son unité territoriale se morceler progressivement. Dès la mort de Raimond-Roger II en 1392, elle est partagée entre ses descendants. Un second partage intervient à la mort de Raimond-Roger III en 1427. La lignée s'éteint définitivement en 1446 avec la mort de Jean-Roger de Comminges-Couserans. Dans le dénombrement de la vicomté adressé au roi par Jean de Foix-Rabat lorsqu'il lui prête hommage en 1540, six héritiers se partagent les débris de l'ancienne principauté¹¹¹.

1.3.2. Vie politique et économique de la vicomté de Couserans

1.3.2.1. Administration de la vicomté

L'administration du Couserans vicomtal est difficile à appréhender faute de sources : elle n'a aucune réalité avant la fin du XII^e siècle. Le comté voisin de Comminges dispose dans la première moitié du XIII^e siècle d'une administration

¹⁰⁹ Samiac F.-J., « Les derniers Comminges de Couserans », *Bulletin de la Société Ariègeoise des Sciences Lettres et Arts*, 1914, p. 51.

¹¹⁰ Le 19 mars 1243 (n. st.), le vicomte de Couserans et comte de Pallars Roger II rend hommage au comte de Toulouse Raimond VII pour le château de Quié (à proximité de Tarascon-sur-Ariège) : Devic C. et Vaissète J., *Histoire générale de Languedoc*, Privat, Toulouse, 1879, col. 1982. Il semble que le contrôle de la forteresse ait échu à son fils bâtard Roger III puisque la veuve de celui-ci, Grise d'Espagne, est désignée comme *Domina Grisa de Quér* dans une donation à la commanderie de Salau datée du 12 septembre 1267 : Mondon S., « Les possessions des ordres de Saint-Jean de... », *op. cit.*, p. 77.

¹¹¹ Samiac F.-J., « Dénombrement de la vicomté de Couserans en 1540 », *Bulletin de la Société Ariègeoise des Sciences Lettres et Arts*, 1917-1922, p. 136-137.

rudimentaire et itinérante. Ce n'est que sous le règne de Bernard VI (1241-1295) que les rouages s'affermissent avec l'institution d'un sénéchal, d'un juge et d'un trésorier que complète un réseau de châtelainies¹¹². Si la transposition est tentante pour le Couserans, elle ne rend pas compte de certaines particularités relevées par Claudine Pailhès, notamment l'absence de siège de châtelainie dans le Couserans vicomtal¹¹³. Les seuls indices sont les mentions éparses de quelques officiers vicomtaux dans les sources juridiques¹¹⁴.

L'administration des communautés est un peu mieux connue grâce aux quelques chartes de coutumes qui nous sont parvenues. Elle repose sur le consulat dont la première mention en Couserans apparaît à Saint-Girons en 1243¹¹⁵. Désignés pour un an, les consuls administrent la communauté avec le bayle seigneurial. Leurs attributions concernent la justice et la police et sont définies par la coutume. L'institution municipale repose sur un accord entre le seigneur et la communauté qui permet, en échange de la concession de quelques libertés, de faciliter l'organisation de la vie locale et le développement économique. Dans la vicomté de Couserans, la mise par écrit des coutumes est engagée en 1261 et s'achève en 1446. Le contenu des chartes révèle les problèmes auxquels sont confrontées les communautés et les solutions qu'elles mettent en œuvre pour les surmonter. Si les caractères communs de ces documents peuvent être relevés¹¹⁶, il faut insister sur l'originalité et le particularisme des chartes des communautés montagnardes.

La charte des communautés de Massat, Oust, Ustou, Ercé et Aulus¹¹⁷ est particulièrement instructive. Elle fut octroyée en 1446 par le vicomte de Couserans

¹¹² Samiac F.-J., « Dénombrement de la vicomté de Couserans... », *op. cit.*, p. 205 et 206.

¹¹³ Pailhès C., « Les cadres institutionnels... », *op. cit.*, p. 28 et 29.

¹¹⁴ Sénéchal, juge et bayle sont mentionnés dans la charte de Saint-Girons (1345) : Samiac F.-J. et Pasquier F., *Coutumes de Saint-Girons. XIII^e, XIV^e, XVI^e, XVII^e siècles*, Gadrat Ainé, Foix, 1924, p. 80. Mention du juge du vicomte : ADHG, 2E3257.

¹¹⁵ Pailhès C., « Les cadres institutionnels... », *op. cit.*, p. 39.

¹¹⁶ Liberté des personnes, protection des biens et des personnes, droits d'usage, exemptions, organisation du consulat : voir Pailhès C., « Les cadres institutionnels... », *op. cit.*, p. 46 à 60.

¹¹⁷ ADA, 1J318 et 132EDTAA1.

Odet de Lomagne et confirme des privilèges plus anciens accordés par les précédents vicomtes et transcrits dans la charte¹¹⁸. Le groupement de cinq vallées permet au vicomte d'accélérer et de faciliter la réception des serments des consuls au cours d'une assemblée unique. En revanche, il n'indique pas l'existence d'une fédération de communautés. Claudine Pailhès a exposé les difficultés posées par cette charte¹¹⁹ notamment les dispositions assez libérales destinées à ménager les communautés montagnardes dans un contexte politique défavorable qui voit les héritiers du vicomte Jean-Roger de Comminges se disputer la vicomté. Les coutumes et privilèges de la communauté d'Aulus sont confirmés en 1587 par Bernard Cabalby, seigneur d'Aulus et syndic de Couserans¹²⁰.

1.3.2.2. La pénétration du pouvoir royal en Couserans

Dans ses travaux sur le comté de Comminges, Charles Higounet a insisté sur la situation originale de cette principauté pyrénéenne et son statut pratiquement allodial jusqu'au début du XIII^e siècle¹²¹. Le démembrement du comté de Comminges pour la création de la vicomté de Couserans n'entraîne pas de dépendance vassalique entre les deux entités politiques. Dans un premier temps, c'est une vicomté indépendante de son voisin commingeois qui se met en place dans la Haut-Salat.

Dès 1211, la toute jeune vicomté est entraînée dans les événements de la croisade des Albigeois. Devant l'avancée de l'armée des Croisés, le vicomte se soumet

¹¹⁸ Ces privilèges auraient été accordés par Arnaud d'Espagne en 1346 : Pasquier F. et Ruffié L.-P.-R.-B., « Massat. Chansons, danse, usages et charte communale », *Bulletin de la Société Ariègeoise des Sciences Lettres et Arts*, 1886-1888, p. 395.

¹¹⁹ Pailhès C., « Les cadres institutionnels... », *op. cit.*, p. 44 et 45.

¹²⁰ ADHG, 8B88 : À la suite de plusieurs raids huguenots conduits depuis le comté de Foix vers le village d'Aulus en août 1574 et octobre 1587, les titres, chartes et privilèges de la communauté disparaissent dans l'incendie de la demeure de Michel Goudail, notaire royal et juge d'Aulus. Après serment sur les évangiles, les privilèges et droits d'usages sont reconstitués à partir des souvenirs des habitants et de leur seigneur Cabalby. Ils sont confirmés le 21 décembre 1587. Sur les troubles protestants en Couserans, voir Lestrade J., *Les Huguenots en Couserans*, H. Champion, Paris, 1883.

¹²¹ Higounet C., *Le comté de Comminges...*, *op. cit.*, p. 47.

d'abord à Simon de Montfort en 1211 avant de se raviser et de rejoindre le camp toulousain. En représailles, le Bas-Couserans est ravagé par les troupes de Montfort tandis que les hautes vallées sont relativement épargnées. Roger II se trouve aux côtés des grands féodaux lors du siège de Toulouse de 1218¹²². Il semble s'être soumis à Louis VIII en 1226, parvenant ainsi à préserver sa vicomté et liant irrémédiablement son destin à celui du royaume.

Le pouvoir royal s'appuie sur plusieurs mécanismes pour s'implanter dans le Midi et en particulier dans le Couserans. S'il a pu être envisagé pendant la croisade des Albigeois, le recours à la force militaire est marginal et ce sont surtout les terrains économique et juridique qui sont progressivement investis par les Capétiens. Dès 1256, leur influence se fait sentir aux portes de la vicomté lorsque Alphonse de Poitiers reçoit l'hommage de l'évêque de Couserans. Ce dernier le renouèle en 1271 à la mort du comte de Toulouse, plaçant définitivement le diocèse sous la protection royale¹²³.

Parmi les instruments du progrès royal en Couserans, la construction de bastides et la conclusion de contrats de paréage furent privilégiées. La création en paréage, entre l'évêque le comte de Toulouse (puis le sénéchal), des bastides de Montjoie (1259) et de Villefranche (1300) sont les exemples couserannais de la grande vague de paréage qui s'étend jusqu'au milieu du XIV^e siècle¹²⁴. Si les rivalités entre l'évêque de Couserans et le comte de Comminges ont pu décider le prélat à solliciter la protection royale, la création de bastides permet également de mettre en valeur des terres délaissées ou vierges et d'accroître les revenus des coseigneurs. De surcroît, elles constituent autant d'enclaves dans lesquelles progresse la justice royale au détriment de celle des bayles comtaux.

La création de bastides est aussi le fait des vicomtes de Couserans qui, désireux de valoriser leurs possessions, n'hésitent pas à conclure des paréages avec les officiers

¹²² Bourret C., « Les relations féodales... », *op. cit.*, p. 115.

¹²³ Pailhès C., « Les cadres institutionnels... », *op. cit.*, p. 35.

¹²⁴ Higounet C., *Le comté de Comminges...*, *op. cit.*, p. 170.

royaux. Ainsi en 1272, Arnaud d'Espagne s'associe avec le sénéchal de Toulouse Eustache de Beaumarchais pour la fondation de la bastide Montréjeau sur la rive gauche de la Garonne¹²⁵. Les bénéfices potentiels de cette bastide, implantée à une confluence majeure entre la Garonne et la Neste, l'ont incité à ce rapprochement qui ne menace pas directement sa vicomté et lui permet de mettre en valeur ses friches. Les conséquences sont toutes autres pour le comte de Comminges qui voit la royauté s'installer aux portes de Saint-Bertrand-de-Comminges.

Dès la fin du XIII^e siècle, l'administration royale s'immisce au cœur du Couserans, à Seix, par un paréage conclu entre les quatre coseigneurs du lieu et le roi de France¹²⁶. Le bourg de Seix se situe sur la voie de communication reliant le Couserans au Pallars via les ports de Salau, d'Aula et de Marterat. L'intérêt du pouvoir royal pour cet emplacement stratégique et les revenus de ses péages entraîne, au début du XIV^e siècle, l'édification du château de garnison de Lagarde¹²⁷. La création des jugeries Rieux et de Rivière, démembrées de la jugerie de Gascogne¹²⁸ dans le dernier quart du XIII^e siècle, est la conséquence directe de l'extension du pouvoir royal dans les Pyrénées centrales. Le ressort de ces jugeries, d'abord limité aux bastides de fondation récente des plaines de la Garonne et du Salat, s'étend progressivement à certaines vallées pyrénéennes¹²⁹. La justice comtale est progressivement subordonnée à la justice royale, notamment après l'institution d'une procédure d'appel devant le juge mage de la sénéchaussée de Toulouse¹³⁰. Pour reprendre les mots de C. Higounet,

¹²⁵ Higounet C., *Le comté de Comminges...*, op. cit., p. 173.

¹²⁶ La date du paréage est inconnue. Elle est néanmoins antérieure à 1280, date de la confirmation des coutumes par Philippe la Hardi, désigné comme coseigneur du lieu. Sur la datation de la confirmation voir Pasquier F., « Coutumes municipales de Seix en Couserans », *Bulletin de la Société Ariègeoise des Sciences Lettres et Arts*, 1893, 1891-1894, p. 253-263.

¹²⁷ Lasnier T., *Les fortifications médiévales en Couserans. Rapport de prospection thématique*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2008, p. 143.

¹²⁸ Van Elsuwé M., « Géographie des jugeries royales de Gascogne aux XIV^e et XV^e siècles », *Annales du Midi : revue archéologique, historique et philologique de la France méridionale*, tome 81, n° 92, 1969, p. 142.

¹²⁹ Ainsi, la communauté de Saint-Bertrand-de-Comminges sollicite le juge de Rivière dans un conflit qui l'oppose au seigneur d'Antichan au sujet du péage du pont de Saint-Just : ADHG, 2E3257 et *infra* p. 103.

¹³⁰ Higounet C., *Le comté de Comminges...*, op. cit., p. 167.

on peut considérer qu'au XIV^e siècle le Couserans se trouve dans une situation similaire à celle du Comminges : « un territoire encerclé voire pénétré économiquement et juridiquement par le pouvoir royal¹³¹ ».

1.3.2.3. Répartition de l'habitat et axes de circulation des hommes et des biens

À l'exception de quelques bourgs, le caractère de l'habitat dans la vicomté de Couserans est essentiellement rural. Il se répartit dans les fonds de vallées et les soulanes. Son aspect extrêmement dispersé s'explique par un peuplement progressif depuis un semis de noyaux anciens entre lesquels s'intercalent de nombreux hameaux¹³². La limite de l'habitat est dictée par celle des cultures et ne dépasse guère les 800 m d'altitude. La vie urbaine est limitée aux bourgs de Seix, Saint-Lizier et Saint-Girons, lieux privilégiés des foires et marchés¹³³, ainsi que dans les bastides de fondation récente. Ces dernières, sises au sortir des vallées, constituent des débouchés pour les productions rurales et attirent une première immigration de montagnards. L'agriculture et le pastoralisme, complétés en montagne par des travaux sylvicoles, constituent les activités principales des communautés rurales. Le terroir se partage entre les prairies de fauche, les pacages forestiers et les herbages ainsi que les parcelles de céréales. Froment et méteil sont surtout cultivés dans le bas-pays tandis que les hautes vallées privilégient les céréales plus robustes¹³⁴.

Les échanges sont nombreux entre la plaine et les hautes-vallées et d'un versant à l'autre du massif. Ce sont les « nécessités économiques qui joignent haut et bas-pays¹³⁵ ». Cette union est favorisée par la complémentarité des productions, le décalage du calendrier agricole ou encore les cycles de la transhumance. Les hommes et les

¹³¹ *Ibidem*, p. 180.

¹³² Goron L., « La répartition de l'habitat en Ariège... », *op. cit.*, p. 101 et suivantes.

¹³³ Voir les articles de la coutume de Saint-Girons propres à l'activité marchande notamment la protection des biens et marchandises et la réglementation du commerce de la viande et du poisson : Samiac F.-J. et Pasquier F., *Coutumes de Saint-Girons...*, *op. cit.*, p. 142.

¹³⁴ C'est le cas de la communauté d'Aulus « où ne se recueille ny bled ny vin, seulement un peu de millet, orge et paumole », ADHG 13J86.

¹³⁵ Higounet C., *Le comté de Comminges...*, *op. cit.*, p. 8.

marchandises empruntent les anciennes voies romaines telles que celle du Salat et du Lez vers le Castillonnais. Les communications entre vallées se font par des cols est-ouest relativement faciles à franchir (figure 17) : col de Latrape vers la vallée d'Ustou, celui de La Core vers le Castillonnais ainsi que les ports de Saleix et Lhers vers le Vicdessos. Le versant espagnol est séparé du Couserans par des cols nord-sud plus élevés. Ces entailles dans la montagne, loin de constituer des obstacles insurmontables, sont des passages très empruntés qui témoignent de « l'indifférence du Moyen Âge pour la frontière naturelle¹³⁶ ». Ils mènent vers le Pallars (ports de Salau, de Marterat et de Guillou) et le Val d'Aran. Depuis Aulus, on atteignait Tavascan (en Pallars) en 5 heures (9 heures depuis Seix). Depuis Seix, on atteignait le val d'Aran en 9 heures (Isil) ou 11 heures (Tredós)¹³⁷.

Les relations transfrontalières privilégiées entre les communautés de montagne se caractérisent par l'échange et la vente de produits issus de l'artisanat tels que les objets métalliques. Ces échanges ont permis un certain désenclavement des hautes vallées et le développement d'une coopération avec leurs voisins dans le cadre des activités pastorales. Plusieurs traités transfrontaliers furent ainsi conclus entre communautés des versants français et espagnol : les « lies et passeries ». Ces accords assurent la liberté de mouvement des biens et des personnes, règlent les modalités d'usage des pâturages et contiennent des clauses spécifiques concernant la surséance de guerre. La mise par écrit des traités de « lies et passeries » atteint son apogée à la fin du XV^e siècle¹³⁸. Néanmoins, les premiers traités connus sont médiévaux¹³⁹. En

¹³⁶ *Ibidem*, p. 5.

¹³⁷ Bourret C., *Les Pyrénées centrales du IX^e au XIX^e : la formation progressive d'une frontière*, Pyrégaph, Aspet, 1995, p. 35 et 36.

¹³⁸ Brunet S., « Les mutations des lies et passeries des Pyrénées, du XIV^e au XVIII^e siècle », *Annales du Midi : revue archéologique, historique et philologique de la France méridionale*, tome 114, n° 24, 2002, p. 435.

¹³⁹ Tucoo-Chala P., « Un traité de lies et passeries du Moyen Âge à la Révolution : Ossau et Tena », *Annales du Midi : revue archéologique, historique et philologique de la France méridionale*, tome 77, n° 72, 1965, p. 158.

Couserans l'accord formalisé au XVI^e siècle entre le bourg de Seix et le Val d'Aran reprend des coutumes anciennes qui remonteraient au XIII^e siècle¹⁴⁰.

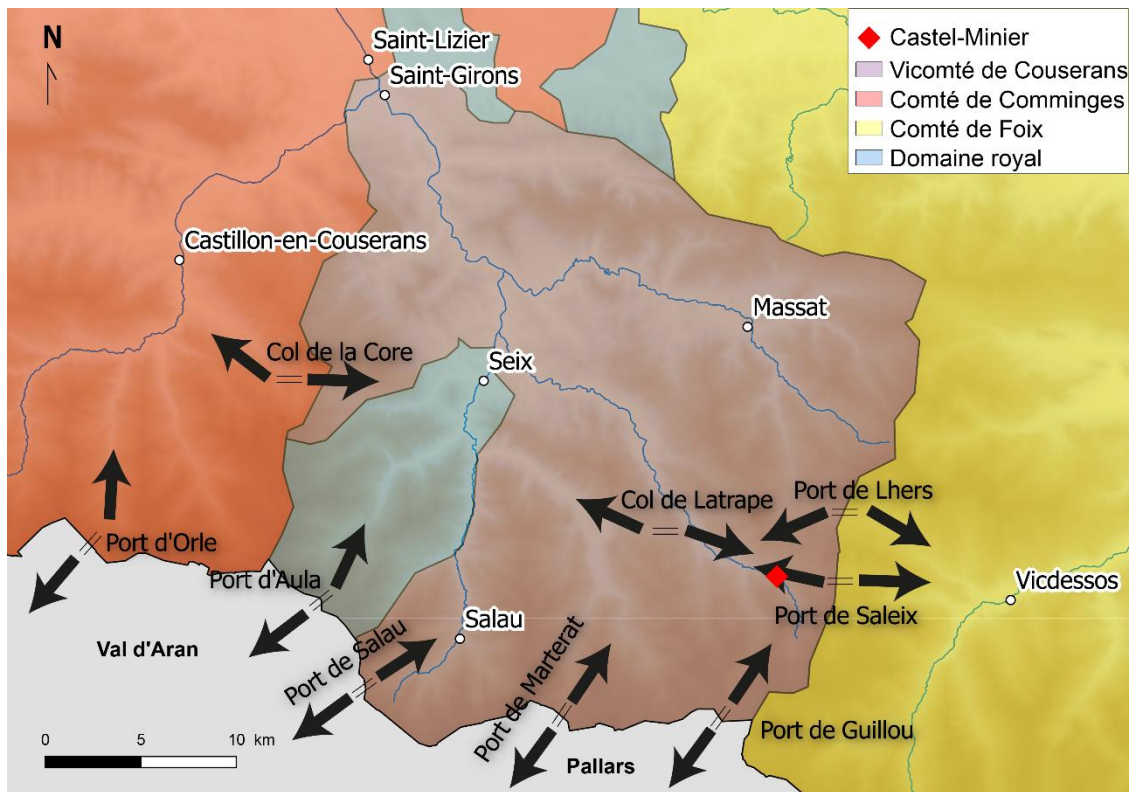


Figure 17 : principaux cols du Couserans.

1.3.2.4. Les activités sylvicoles, le charbonnage et la métallurgie du fer

La forêt, élément identitaire des terroirs montagnards, participe à la structuration économique et sociale des communautés et ses ressources assurent en partie leur subsistance. Les activités humaines se sont adaptées à un environnement spatial à la morphologie et aux dynamiques particulières, notamment aux difficultés d'accès et aux contraintes climatiques. Ces exigences s'imposent également aux

¹⁴⁰ Cours-Mach M., « Les relations frontalières entre la ville de Seix en Couserans et le Val d'Aran en Espagne du XVI^{ème} au XIX^{ème} siècles », *Couserans et montagne ariégeoise. Actes du XXX^e congrès d'études régionales, Saint-Girons, 30 mai au 1^{er} juin 1975*, Fédération des sociétés académiques et savantes Languedoc-Pyrénées-Gascogne (éd.), Y. Maury, Saint-Girons, 1976, p. 63-81.

activités minières et métallurgiques qui se sont développées en Couserans durant la période médiévale, en particulier dans la vallée d'Aulus.

L'exploitation de la forêt est une composante essentielle des activités humaines qui complète les activités agro-pastorales. Fournisseuses de bois de chauffage ou de construction, matière première à la production de charbon, les forêts sont également des lieux de dépaissance ainsi qu'une source de nourriture. Le bois dépasse également le cadre autarcique de la cellule familiale ou villageoise. Dès le Moyen Âge, par flottation sur le Salat, les fûts coupés en Couserans sont exportés vers le marché toulousain¹⁴¹. Une partie transite par Saint-Girons tandis que les grosses poutres, soumises à un droit de péage, sont déchargées en amont, au pont du Nert¹⁴².

Les communautés ont cherché très tôt à s'assurer la jouissance des bois et forêts en obtenant de leurs seigneurs des droits d'usage. De nombreux articles des chartes de coutumes entérinent le droit d'accéder aux forêts, de prélever le bois pour la construction ou le chauffage ainsi que la liberté de le transporter. La charte octroyée par Philippe le Hardi en 1280 à la communauté de Seix lui garantit, « per tout temps durable », la jouissance des bois, eaux et forêts sans restrictions¹⁴³. La charte accordée en 1446 aux habitants de Massat, Oust, Ustou, Ercé et Aulus leur permet de disposer des forêts sans réserve pour « talhar trencar ho autras causas que aux dits abitans fossan necessarias¹⁴⁴ ». Dès lors, la gestion des ressources sylvicoles par les communautés se heurte à des intérêts antagonistes. À la préservation de ressources fragiles et qui se régénèrent sur le long terme s'oppose l'impérieuse quête quotidienne de subsistance.

Si le couvert forestier a pu survivre et s'adapter à une exploitation limitée dans le cadre de l'*oustal*, l'essor des activités métallurgiques, dévoreuses de charbon, a profondément modifié sa physionomie. La dépendance au combustible de l'extraction

¹⁴¹ Higounet C., *Le comté de Comminges...*, op. cit., p. 463.

¹⁴² Samiac F.-J. et Pasquier F., *Coutumes de Saint-Girons...*, op. cit., p. 145 et 146.

¹⁴³ Pasquier F., « Coutumes municipales de Seix... », op. cit., p. 262.

¹⁴⁴ ADHG, 1J318.

des métaux et le risque de pénurie ont entraîné l'élaboration de mesures de protection. D'initiative seigneuriale, elles sont particulièrement perceptibles dans l'espace pyrénéen. En Roussillon, dans la première moitié du XIV^e siècle, les actes de concession des moulins précisent les forêts dans lesquelles le charbonnage est permis avec des restrictions pour certaines essences. L'indisponibilité locale du combustible peut entraîner un approvisionnement sur de grandes distances voire le déplacement de l'atelier¹⁴⁵. Catherine Verna a relevé le salaire particulièrement élevé prévu par Paolo Girardi pour les charbonniers chargés de livrer les ateliers de la mine navarraise d'Urrobi dans les années 1340¹⁴⁶. Cet exemple semble traduire les difficultés d'accès au combustible dans cette région des Pyrénées.

Dans les vallées fuxéennes, la prise de conscience, à partir de la fin du XIII^e siècle, de l'incidence des activités sidérurgiques sur les ressources forestières conduit à l'élaboration d'une législation particulière¹⁴⁷. En Aston, les seigneurs de Château-Verdun structurent l'espace industriel tout au long du XIV^e siècle. Pour réduire la concurrence avec les autres usagers, les moulins sont construites en altitude tandis que le nombre de foyers de réduction est limité¹⁴⁸. En Vicdessos, la législation forestière comtale est en place dès 1303. Elle instaure une surveillance des forêts par l'intermédiaire d'agents seigneuriaux et réglemente l'activité des charbonniers qui se voient contraints d'utiliser du bois mort ou sec ou des fûts préalablement marqués. La codification des usages va plus loin dans cette vallée qui dispose de ressources en minerai de fer considérables tirées de la mine du Rancié. Entre 1347 et 1348, un accord est établi entre la communauté de Vicdessos, le comte de Foix Gaston Fébus et le vicomte de Couserans Raimond-Roger I^{er}. Il permet aux hommes de Vicdessos de

¹⁴⁵ Izard V., « Minerais, charbons de bois et fers dans les Pyrénées de l'Est : trafic licite et contrebande aux XIV^e-XVI^e siècle », *Circulation des marchandises et réseaux commerciaux dans les Pyrénées, XIII^e-XIX^e siècle*, Andorre, 2003, Minovez J.-M. et Poujade P. (éd.), CNRS Université de Toulouse Le Mirail, Toulouse, 2005, p. 581-606.

¹⁴⁶ Verna C., « Une nouvelle page... », *op. cit.*, p. 215.

¹⁴⁷ *Ibidem*, p. 116 et suivantes.

¹⁴⁸ *Ibidem*, p. 132 et suivantes.

charbonner en Couserans en échange de la livraison de minerai de fer du Rancié aux moulins du vicomte.

Qu'il s'agisse d'une mesure conservatoire ou d'une réaction face à une situation de pénurie, la mise en place d'une réglementation forestière dans l'espace sidérurgique fuxéen participe d'une politique globale menée par les autorités seigneuriales et qui vise à promouvoir et protéger les activités industrielles dont ils tirent des revenus. Au contraire, les hautes vallées couserannaises ne semblent pas avoir élaboré de mécanismes de régulation pour préserver les forêts et empêcher les abus. Leurs terroirs, couverts de hêtres et de sapins jusque dans les zones les plus inaccessibles¹⁴⁹ constitue à leurs yeux « un bien commun inépuisable¹⁵⁰ ».

L'accès au minerai ferreux constitue une opportunité propice au développement des activités métallurgiques dans le Haut-Couserans. Il faut néanmoins nuancer la portée du traité d'échange avec le Vicdessos sur la sidérurgie couserannaise. L'accord n'a concerné que les hautes vallées frontalières comme le prévoit une de ses clauses qui interdit l'exportation du minerai au-delà des vallées de Massat et d'Ercé. En outre, la sidérurgie en Couserans préexiste au traité de 1347-1348. Le vicomte dispose d'une mine de fer à Rivèrenert, dans le Bas-Couserans, dont l'exploitation est attestée au début du XIV^e siècle¹⁵¹. Par ailleurs, les analyses archéométriques conduites sur les inclusions de scories dans les objets en fer ont clairement mis en évidence l'utilisation du minerai de Rivèrenert à cette période¹⁵². En revanche, dans les vallées de l'Arac et du Garbet, les moulins recensés dans la

¹⁴⁹ ADHG, 8B88. Inventaire remis aux officiers de la maîtrise des eaux et forêts de Comminges des pièces produites par les consuls d'Aulus pour justifier de leurs droits et privilèges sur les forêts (1669) : « lesdits bois sont inaccessibles estant situés aux plus hautes pyrénées ».

¹⁵⁰ Verna C., *Le temps des moulins...*, op. cit., p. 119.

¹⁵¹ ADA, 1J251.

¹⁵² La signature chimique des clous prélevés dans la citerne du château du Mirabat (comm. de Seix), construite entre la fin du XIII^e et le début du XIV^e siècle, présente une filiation avec le minerai de Rivèrenert : Leroy S., Cohen S. X., Verna C., Gratuze B., Téreygeol F., Fluzin P., Bertrand L. et Dillmann P., « The medieval iron market in Ariège (France). Multidisciplinary analytical approach and multivariate analyses », *Journal of Archaeological Science*, 39(4), 2012, p. 1080-1093.

première moitié du XIV^e siècle¹⁵³ témoignent des nouvelles possibilités industrielles offertes par l'échange.

La vallée d'Aulus, idéalement placée au débouché de la route du charbon, dispose de plusieurs autres avantages qui y ont facilité l'implantation de la sidérurgie. Tout d'abord, l'expérience de la métallurgie des métaux non-ferreux acquise sur le site de Castel-Minier constitue un terreau favorable à l'introduction de la métallurgie du fer à partir du milieu du XIV^e siècle. Ensuite, les ressources en combustible de la vallée permettent d'envisager cette extension des activités tandis que la proximité du torrent du Garbet fournit, dans la première moitié du XV^e siècle, l'énergie hydraulique nécessaire à l'actionnement des soufflets et marteaux. La réorganisation du site de Castel-Minier procède d'une diversification des ressources minérales disponibles permise par l'échange avec le Vicdessos. Cette opportunité permet d'élargir la gamme des productions métalliques de l'atelier et d'assurer la pérennité du site quand les gisements de la vallée d'Aulus se tarissent. Enfin, l'expertise technique des métallurgistes leur permet de s'adapter rapidement au nouvel outil qu'est la moulaine.

L'abandon du site dans les années 1580 ne signifie pas pour autant la fin des activités sidérurgiques dans la vallée. La moulaine est remplacée par un autre outil : la forge à la catalane. La mutation technique qui s'opère dans la vallée est perceptible dans les sources écrites : l'usage du terme « forge » se substitue à celui de moulaine à partir de la fin du XVI^e siècle¹⁵⁴. La forge d'Aulus est construite au bord du Garbet en amont du village. Elle est mentionnée pour la première fois en 1669 dans le procès-verbal d'arpentage des bois de la communauté d'Aulus.

L'incidence des activités anthropiques sur le couvert forestier du Couserans, en particulier dans les hautes vallées soumises au traité d'échange, est bien difficile à évaluer pour la période médiévale faute de documentation écrite. Seul Aymeric

¹⁵³ Verna C., *Le temps des moulaines...*, *op. cit.*, p. 91.

¹⁵⁴ ADHG, 8B88 : « moulaine à fer » dans l'extrait du compoix de 1554, « moulaine » dans les privilèges de 1587 puis « forge » en 1669 dans la procès d'arpentage des bois de la communauté d'Aulus.

Vivone, maître des Eaux et Forêts de la sénéchaussée de Toulouse, livre un constat alarmant des déprédations commises autour de Seix¹⁵⁵. Son témoignage de 1345 révèle que les habitants, usant et abusant de leur droit, ont prélevé de grandes quantités de bois et défriché d'importantes surfaces.

Les études paléoenvironnementales conduites dans la vallée d'Aulus depuis trois décennies apportent un éclairage supplémentaire et pallient partiellement les lacunes de la documentation écrite. Petit à petit, elles permettent de reconstituer des fragments de l'histoire de la forêt. Les résultats issus d'un sondage palynologique pratiqué à l'étang de Lhers mettent en évidence des grandes tendances. À partir du XIII^e siècle, le couvert forestier, de type hêtraie sapinière, subit d'importants défrichements qui entraînent le net recul du sapin. Cette tendance s'accroît au cours du XVI^e siècle et conduit à la quasi disparition du sapin tandis que les hêtraies, quand elles ne sont pas réduites en taillis, sont très clairsemées¹⁵⁶. Cette évolution est le résultat d'une combinaison des usages quotidiens des communautés et du charbonnage. Cette dernière activité, attestée par quelques toponymes¹⁵⁷, se lit encore clairement dans le paysage par la présence de nombreuses plates-formes de charbonnage. Leur étude anthracologique, couplée à des datations par le radiocarbone, a permis de préciser l'ampleur du charbonnage durant la période médiévale.

Les travaux de Bernard Davasse¹⁵⁸, portant sur quatre charbonnières situées à proximité de la mine des Argentières, ont montré l'association du hêtre et du sapin

¹⁵⁵ Chevalier M., *La vie humaine...*, *op. cit.*, p. 509.

¹⁵⁶ Métaillé J.-P., « Données sur l'histoire des forêts dans la haute vallée du Garbet (Aulus) », *PCR Mines, métallurgie et forêts dans les Pyrénées ariégeoises de l'Antiquité au Moyen-Âge*, 1991, p. 131-136.

¹⁵⁷ Par exemple les travaux miniers du « Single du bois des charbonniers » sur le Pouech de Gouaff, *Infra* p. 218. Il pourrait s'agir des travaux visités en 1600 par Jean de Malus et « découvert trois mois auparavant par un charbonnier » : Dupuy J., « La recherche et découverte des mines des montagnes Pyrénées, faite en l'an mil six cens par Jean de Malus Escuyer & Maistre de la monoye de Bourdeaus », *In* Gobet N. (éd.), *Les anciens minéralogistes du royaume de France*, Ruault, Paris, 1779, p. 131.

¹⁵⁸ Davasse B., « L'espace forestier de la haute vallée du Garbet (Couserans, Pyrénées ariégeoises). Analyses biogéographique et étude des charbonnières », *PCR Mines, métallurgie et forêts dans les Pyrénées ariégeoises de l'Antiquité au Moyen-Âge*, 1991, p. 137-145.

prélevés dans un taillis fureté d'environ 20 ans. Difficile pour autant de savoir si cette pratique témoigne d'une pression très forte sur le couvert forestier ou d'une obligation réglementaire, d'autant plus que les charbonnières sont qualifiées de « modernes » sans que leur datation ne soit précisée¹⁵⁹. L'étude reprise récemment par Py *et al.*¹⁶⁰ a porté sur 31 charbonnières réparties dans les secteurs miniers de Lacore et des Argentières (dans la vallée d'Aulus) et sur trois sondages pédoanthracologiques. La zone d'étude est située à proximité de la « route du charbon » liant le Couserans et le Vicdessos par le port de Saleix. Les datations des charbonnières s'échelonnent du XV^e au XX^e siècle. Parmi les essences identifiées, le hêtre domine tandis que la proportion du sapin décline tout au long de la période. Les plus anciennes charbonnières étudiées sont contemporaines d'une profonde réorganisation du site de Castel-Minier qui comprend l'installation d'un premier appareil hydraulique consacré à la métallurgie du fer.

L'évolution de l'activité vers la sidérurgie a nécessité l'apport de minerais de fer dans la cadre du traité d'échange avec le Vicdessos entraînant inévitablement l'intensification du charbonnage en Couserans. En réalité, le traité de 1347-1348 entérine des usages antérieurs et la ponction supplémentaire qui en résulte sur les forêts était déjà effective au moment de sa ratification. Les conséquences de cette pratique sur le couvert forestier du Couserans sont importantes puisque le charbon doit non seulement alimenter les moulins couserannaises, mais également celles du Vicdessos. En outre, ce prélèvement se surimpose aux usages traditionnels des ressources forestières, mais également aux besoins des activités minières et métallurgiques. Dans la vallée du Garbet, la progression du déboisement semble être un phénomène continu depuis la fin du XIII^e siècle. S'il ne trouve pas son origine au

¹⁵⁹ Davasse B., « L'espace forestier de la haute vallée du Garbet (Couserans, Pyrénées ariégeoises). Analyses biogéographique et étude des charbonnières », PCR Mines, métallurgie et forêts dans les Pyrénées ariégeoises de l'Antiquité au Moyen-Âge, 1991, p. 168.

¹⁶⁰ Py-Saragaglia V., Cunill Artigas R., Métaillé J.-P., Ancel B., Baron S., Paradis-Grenouillet S., Lerigoleur É., Badache N., Barcet H. et Galop D., « Late Holocene history of woodland dynamics and wood use in an ancient mining area of the Pyrenees (Ariège, France) », *Quaternary International*, 2017, sous presse.

« temps des moulins » et préexiste au traité d'échange du milieu du XIV^e siècle, l'essor de la sidérurgie en Couserans pourrait l'avoir amplifié. Il serait donc particulièrement intéressant d'étendre les recherches anthracologiques au secteur de Castel-Minier pour préciser la chronologie des nombreuses charbonnières qui s'y trouvent et apprécier l'incidence des activités métallurgiques ferreuses et non-ferreuses sur le couvert forestier.

1.4 Castel-Minier dans les sources écrites médiévales et modernes

Les données naturelles et historiques que nous venons de présenter et qui permettent de définir le cadre de notre étude sont indispensables pour appréhender certaines particularités techniques et économiques de l'entreprise minière et métallurgique de Castel-Minier et ses relations avec le pouvoir vicomtal et royal. Hormis les résultats des campagnes de fouilles, la documentation écrite fournit des éléments complémentaires à l'histoire de ce site dont la présentation et la discussion font l'objet de ce chapitre.

1.4.1. Le démarrage de l'exploitation et le procès de 1319-1349

1.4.1.1. Le différend entre les exploitants de la mine et le vicomte de Couserans

Bien que les données de terrain fassent état d'une activité à Castel-Minier dès la fin du XIII^e siècle, notamment à partir des datations radiométriques du mobilier archéologique, l'entreprise minière n'apparaît dans les sources écrites que dans la première moitié du XIV^e siècle. La première mention figure dans un acte consulaire de Saint-Bertrand-de-Comminges daté du 28 septembre 1319 et qui ne concerne pas

directement l'extraction minière couserannaise¹⁶¹. Les consuls de cette communauté ont entamé une procédure devant le juge de Rivière contre le seigneur d'Antichan qui exige des habitants le paiement d'un péage au passage du pont de Saint-Just qui enjambe la Garonne à Valcabrière. La procédure s'éternisant, deux consuls sont envoyés vers le juge de Rivière, Raymond Court, pour obtenir une sentence. Absent de son ressort, Raymond Court délègue au notaire Guillaume de Sérinhac et au juge de Cazaux, Pierre de Castillon, le soin de prononcer un jugement. L'acte, rédigé par le notaire de Cazaux, rappelle ces faits et consigne la réponse qu'adresse Pierre de Castillon aux consuls de Saint-Bertrand à la réception de ses lettres de commission. Ce passage est reproduit ci-dessous.

Acte notarié (Cazaux, 28 septembre 1319)

A. Original, parchemin, 360 × 424 mm, Saint-Bertrand-de-Comminges, Archives départementales de la Haute-Garonne, 2E3257.

...Et dictus dominus magister [24] Petrus de Castellione non assumendo in se dictam comissionem pro eo quia circa contenta in dicta littera comissionis predictae comode vaccare non [25] posset tam propter sua negotia in presenti emergencia, ratione collectionis vendemiarum suarum, quam propter ardua negotia nobilis et potentis [26] viri domini Arnaldi de Yspania vicecomitis cosseranem, cuius est iudex propterque, extra dictam villam de Casellis et ad metropolitanam civitatem tholosanam [27] ad diem lune proximam necessario et coram domino senescallo tholano habeat proficisci, et expedire una cum procuratore dicti nobilis vicecomitis coseranensis [28] pro causa que vertitur coram dicto domino senescallo inter procuratorem domini regis ex una parte et procuratorem dicti nobilis vicecomitis

¹⁶¹ L'acte est cité deux fois dans C. Higounet, *Le comté de Comminges...*, *op. cit.*, p. 179 et 246. Voir également Verna C., « Une nouvelle page de l'histoire des mines d'argent européennes le cas des Pyrénées centrales », *Bulletin de la société ariégeoise des sciences lettres et arts*, 1996, p. 217.

cosseranensis [29] ex altera super facto minerie argentie vallis Delus, terre dicti nobilis.

Pierre de Castillon¹⁶², qualifié dans l'acte de *jurisperito de Casellis*, ne peut rendre la justice du juge de Rivière car il est occupé par ses vendages mais également par les affaires de son maître le vicomte Arnaud d'Espagne dont il doit assister prochainement le procureur au cours d'un procès qui l'oppose au procureur du roi et qui se plaide devant la cour du sénéchal de Toulouse. Le différend concerne une mine d'argent de la vallée *delus*. Cette vallée n'est autre que celle d'Aulus, irriguée par le Garbet, et qui appartient au vicomte¹⁶³. La mine dont il est question est qualifiée de *minerie argentie*, ce qui n'indique pas forcément le monométallisme mais désigne plutôt la production principale, la plus rentable et la plus convoitée : celle de l'argent.

1.4.1.2. Le témoignage de Paolo Girardi

La suite de la procédure judiciaire bénéficie des éclairages du Florentin Paolo Girardi, maître des mines du roi de Navarre. Présent dans le royaume pyrénéen en février 1338, Girardi est chargé des prospections minières, de l'expertise des gisements et de leur mise en exploitation¹⁶⁴. Son action s'inscrit dans la politique de rénovation économique entreprise sous le règne des premiers Évreux de Navarre, Jeanne II et Philippe III. Les souverains sont préoccupés par la pénurie monétaire, la prolifération

¹⁶² Il est très probable que cet homme soit le même que le docteur en droit Pierre de Castillon, témoin de la charte du 2 juillet 1323 accordée par le vicomte de Couserans Roger IV à la ville de Saint-Girons : Samiac F.-J. et Pasquier F., *Coutumes de Saint-Girons...*, *op. cit.*, p. 78.

¹⁶³ À l'exception d'une mention dans les archives de la commanderie hospitalière de Salau, la vallée d'Aulus est absente de la documentation. Ainsi, le 1^{er} septembre 1267, Grise de Quér, veuve du vicomte Roger III, donne à la commanderie de Salau une rente annuelle de six sous morlaas, payable à la Saint Jean-Baptiste, qu'elle perçoit des habitants d'Aulus contre protection : Mondon S., « Les possessions des ordres de Saint-Jean de Jérusalem... », *op. cit.*, p. 77.

¹⁶⁴ Mugueta Moreno Í., « Política monetaria en Navarra bajo el reinado de los primeros Evreux (1328-1349) », *En la España Medieval*, 27, 2004, p. 87.

de monnaies étrangères ou fausses et par la chute des recettes fiscales¹⁶⁵. Ils s'entourent de plusieurs réformateurs parmi lesquels figurent Jean de Fresnoy, Guillaume de Fourqueux et Guillaume le Soterel. Ce dernier, trésorier général du royaume, adresse¹⁶⁶ en 1340 un mémoire à son souverain dans lequel il développe quelques éléments de théorie monétaire, notamment les raisons de battre monnaie, le choix du métal et de la monnaie étalon.

À cet exposé succède un rapport de Paolo Girardi rédigé le 30 avril 1340 qui comprend des éléments de droit minier ainsi qu'un inventaire et un plan d'exploitation des mines de Navarre qu'il se propose de mettre en œuvre. La mise en valeur des ressources minières du royaume poursuit deux objectifs : d'une part l'augmentation des ressources fiscales et d'autre part la fourniture de métal destiné à pallier le manque de numéraire. Selon Girardi, une mine « se peut ouvrir en ii manieres » : l'exploitation en propre et le bail à *gane*. Dans le second cas, si une clause de durée n'est pas introduite, il s'agit d'un bail emphytéotique cessible à tout moment (« si ne li meit certain temps le ganes est de celi qui le prent a tous temps » ; « celi qui prent le ganes le peut lessier vendre et donner a qui il veult les fois que li plait »). Ce type de contrat, susceptible de générer rapidement des revenus pour un investissement nul dans l'exploitation, peut s'avérer particulièrement risqué. Il suscite d'ailleurs les réserves de Girardi. Le Florentin conseille d'exploiter la mine en propre dans un premier temps de manière à évaluer son intérêt puis éventuellement de la bailler. Pour étayer son propos, Girardi donne l'exemple¹⁶⁷ d'une mine du vicomte de Couserans à l'origine d'une série de déboires judiciaires :

¹⁶⁵ Mugueta Moreno Í., « Minería cuproargentífera en el reino de Navarra (siglo XIV) », *Príncipe de Viana*, 66(235), 2005, p. 407.

¹⁶⁶ Béatrice Leroy a proposé la première édition de ce texte et l'attribue à deux auteurs : Guillaume le Soterel pour la partie monétaire et Paolo Girardi pour la partie consacrée aux mines : Leroy B., « Théorie monétaire et extraction minière en Navarre vers 1340 », *Revue numismatique*, 14, 1972, p. 105-123. Pour Íñigo Mugueta Moreno, Girardi est le seul auteur du mémoire : Mugueta Moreno Í., « Política monetaria en Navarra... », *op. cit.*

¹⁶⁷ AGN, documents des comptes, Caj. 24, n° 38, I. L'édition reprend avec quelques minimes corrections celles proposée par Mugueta Moreno Í., « Política monetaria en Navarra... », *op. cit.*, p. 101.

Saches que Monsire Rogier de Couminges, seigneur de Saint Geronz, vicompte de Cueran, avoit en sa terre, et n'a pas 25 ans, la plus franche et plus grande que nul baron qui feust, pres de li a 5 journees, qu'il ne la tenoit ne ne la reconnoissoit fors que de Dieux, et disoit en ses criees [...] Rogier de Comminges par la grace de Dieu viconte de Cuyran; et comme vous savez li si trouva en sa terre un minier, lequel minier [...] et li devoient donner quitement la seisime partie d'argent et de plon; et cesti minier si sacceta le meilleur qui se trovast en [...] que tant durast un seul seignal, quar bien dura 20 ans, que toute fois ouvroient bien mil persones continuellement. Et en eurent quitament [...] 30.000 livres en chascun des dis ans. Et quant il vit le grant gaaign que fesoient la gent qui labouroient ou dit minier, commença a tondre [...] le ganes par force. Donc furent aucuns voyant leur domaige et la force qui leur fesoit, et se alerent plaindre au seneschal du Roy de [France]. Toutefois que les lettres estoient faites au seel petit de Montpellier, et au seel de Chastellet. Pour la quele chose le Roy de France mist sa main sur le dit minier, et ala tant le pleit avant que le Roy de France ha mis la main sur la terre. Et ainsi a faire peu de paroles le Roy de France ha ainsi le resort de sa terre, et la disme partie des minieres qui sont yssues et yssuent des dictes minieres. Et ce vous ay compte pour quoi veez sur ce point.

Les évènements rapportés par Girardi se déroulent à partir de 1315. Les vicomtes de Couserans, Arnaud d'Espagne puis son fils Roger IV de Comminges, disposent d'une mine d'argent et de plomb sur leurs terres qu'ils ont baillé a *gane* à plusieurs exploitants avec une redevance fixée à 1/16 de l'argent et du plomb. Ils semblent se soucier dans un premier temps de la pérennité de l'entreprise en instaurant un prélèvement modéré destiné à encourager la continuation des travaux. À titre de comparaison, Girardi dresse un inventaire des taux qui se pratiquent dans d'autres espaces miniers et qui s'établissent à 1/9 ou 1/10 d'argent, de cuivre et de plomb. Entre 1339 et 1350, la ponction du comte de Savoie sur les mines d'Hurtières est fixée à 1/10 de l'argent produit tandis qu'elle fluctue entre 1/8 et 1/10 pour le

cuivre¹⁶⁸. En Navarre enfin, l'accord signé le 10 mai 1362 entre les représentants de Charles le Mauvais et Bracc de Florence fixe le prélèvement royal à 1/10 du cuivre produit à Urrobi¹⁶⁹. Si le prélèvement seigneurial des vicomtes de Couserans est donc raisonnable au regard de ce qui se pratique en d'autres lieux, le gisement n'en demeure pas moins exceptionnel tant par l'ampleur de la production, que Girardi estime à 30 000 livres par an pendant 20 ans, que par le nombre symbolique « mil personnes » qu'il occupe. Les profits de l'entreprise attisent la convoitise du vicomte qui commence « à tondre [...] le gane par la force ». Il cherche à casser le bail pour modifier à son avantage le taux de prélèvement voire reprendre l'exploitation à son compte. Il est vraisemblable que le vicomte n'ait pas pris soin d'introduire une clause spécifique concernant la durée du contrat et se retrouve ainsi dans l'incapacité de recouvrer la mine. En outre, il est permis de supposer que les mineurs ont eu un accès facile à un minerai abondant et/ou ont rencontré des minéralisations plus riches sources de profits importants. La fiscalité avantageuse du vicomte, si elle a permis un essor rapide de l'exploitation, ne prévoyait pas ces cas¹⁷⁰.

Paolo Girardi indique que le bail a été établi devant le petit scel de Montpellier et devant le scel du Châtelet (« Toutefois que les lettres estoient faites au seel petit de Montpellier, et au seel de Chastellet »). Néanmoins, c'est à la justice du sénéchal de Toulouse que les exploitants font appel. Revenons toutefois sur ces juridictions particulières de Montpellier et du Châtelet. Le petit scel de Montpellier fait partie des sceaux rigoureux du Midi. Cette juridiction, créée entre 1293 et 1296, est expéditive et d'attribution volontaire : les parties se soumettent par avance à la décision du

¹⁶⁸ Encore faut-il ajouter à ces prélèvements les taxes sur la vente, le marquage et le pesage du cuivre : Benoit P. et Braunstein P., « Les comptes miniers d'Hurtières (1338-1350) », *Mines, carrières et métallurgie dans la France médiévale, Actes du colloque de Paris, juin 1980*, Benoit P. et Braunstein Ph. (éd.), CNRS édition, Paris, 1983, p. 200.

¹⁶⁹ Honoré-Duvergé S., « Notes sur la politique économique de Charles le Mauvais en Navarre », Tiré à part de *Actas del primer congreso internacional de pireneistas del instituto de estudios pirenaicos, Saint-Sébastien, septembre 1950*, Instituto de estudios pirenaicos (éd.), Saragosse, 1952, p. 8.

¹⁷⁰ Le contrat entre Bracc de Florence et Charles le Mauvais contient une clause de nullité (Item 10) en cas de découverte d'un minerai plus profitable : Honoré-Duvergé S., « Notes sur la politique économique... », *op. cit.*, p. 13.

tribunal¹⁷¹. Elle juge toutes les contestations qui naissent des actes passés sous son sceau, quelle que soit la juridiction dont relèvent les parties. La création du petit scel de Montpellier intervient dans un contexte de développement économique et d'accroissement des échanges commerciaux. Elle vise à remédier à la lenteur et aux incertitudes des procédures devant les juridictions méridionales ordinaires (vigueries et sénéchaussées) qui entravent l'activité des marchands étrangers¹⁷². La procédure est très rigoureuse pour les débiteurs et garantit le recouvrement rapide des créances. De création plus ancienne, le petit scel du Châtelet est également attributif de juridiction.

Le sceau de chacune de ces cours rigoureuses permet d'authentifier un contrat que lui présentent les parties. La mention par Girardi du petit scel de Montpellier et du scel du Châtelet semble indiquer que les exploitants de la mine d'Aulus et le vicomte de Couserans se sont soumis à ces deux juridictions sévères. Ce cas de soumission multiple n'est pas rare¹⁷³, il permet aux exploitants, en s'en remettant aux tribunaux royaux, de se détacher de la justice seigneuriale.

Malgré les clauses de soumission aux deux juridictions royales du scel du Châtelet et de Montpellier et devant les menaces du vicomte, c'est à une autre juridiction royale que font appel les exploitants de la mine, celle de la cour du sénéchal de Toulouse. C'est précisément cette procédure qui est en cours dans l'acte de la communauté de Saint-Bertrand-de-Comminges du 28 septembre 1319. Le différend qui oppose les exploitants au vicomte permet à la justice royale, par l'intermédiaire du sénéchal, de s'intéresser à la question des droits miniers régaliens fréquemment accaparés par les grands féodaux. Cette action s'inscrit dans un mouvement plus vaste, commencé à la fin du XIII^e siècle, qui conduit progressivement à l'élaboration d'un règlement français du droit minier¹⁷⁴. La saisie des juridictions royales dans les conflits

¹⁷¹ Gouron A., « L'origine du tribunal du petit-scel de Montpellier », *Actes du XXIX^e congrès de la Fédération historique du Languedoc méditerranéen et du Roussillon, Mende, 1955, Montpellier, 1956*, p. 57.

¹⁷² *Ibidem*, p. 61.

¹⁷³ Boe E., « Notariat et Languedoc au Moyen Âge », *Le Gnomon, Revue internationale d'histoire du notariat*, n° 23, 1981, p. 52.

¹⁷⁴ Bonami C., « Dans la haute vallée de l'Orb ... », *op. cit.*, p. 97.

sur les mines donne l'occasion aux officiers royaux d'affirmer progressivement les prérogatives régaliennes sur les mines au-delà du domaine royal. Cette intervention n'est pas coordonnée et se fait au cas par cas avec parfois des hésitations¹⁷⁵. Selon les mots de Ph.-J. Hesse : « jusqu'à la fin du XIII^e siècle, le roi n'intervient qu'accidentellement dans les questions minières : soit comme seigneur local, soit comme justicier¹⁷⁶ ».

1.4.1.3. La procédure d'appel au Parlement de Paris

La suite de la procédure se déroule en appel au Parlement de Paris et en plusieurs temps. La première mention de l'affaire apparaît le 18 novembre 1322 dans le registre des greffes de la Saint-Martin d'hiver. Le procès entre le procureur du roi et le vicomte de Couserans Roger IV est ajourné en l'absence du sénéchal de Toulouse.

Greffe du Parlement de Paris (Paris, 18 novembre 1322)

A. Transcription officielle au registre des greffes du parlement civil, Archives nationales, X^{1a} 8844, fol. 132r^o.

Inter procuratorem regis ex una parte et Rogeri de Convenis vicecomitatem Coseranis ex altra, continuata est eodem dies per curiam [2] in statu usque ad die senescalo tholosano presencis parlamentis super facto eiusdam minerie super qua erat adiornatus. XVIII november.

Un second arrêt, daté du 20 avril 1330 (n. st.), édité ci-dessous, donne une description plus précise de la mine, qualifiée de *mineria argenti*, et sa localisation : *que est in montanea de Olus in vicecomitatu coseranensi*. La première partie de l'arrêt,

¹⁷⁵ Notamment sur la distinction entre propriétaire de la mine et propriétaire du sol et la redevance que chacun pouvait en tirer : Viala A., *Le Parlement de Toulouse et l'administration royale laïque : (1420-1525)*, Reliure des Orphelins, Albi, p. 37.

¹⁷⁶ Hesse P.-J., « La formation d'une administration minière royale... », *op. cit.*, p. 8.

consacrée au rappel de la procédure, corrobore le récit de Girardi et indique la saisie de la mine par le roi. Cette décision est probablement intervenue en 1322 par un arrêt qui ne nous est pas parvenu. Roger IV a fait appel de cette décision et, après avis du sénéchal de Toulouse sur ce point, les revenus sont restitués au vicomte, excepté le dixième que le roi conserve. Puis, après enquête et constatation de la propriété du vicomte sur la mine depuis plus d'un an et un jour avant la saisie royale, il est décidé de lui restituer le dixième. En outre, le sénéchal de Toulouse doit remettre au vicomte les revenus dont il a été privé pendant la saisie royale. Si le souverain n'a pas pu imposer définitivement le droit du dixième sur une mine qui se trouve en dehors du domaine royal, il a néanmoins réussi à capter une partie de ses revenus pendant quelques années. De surcroît, l'affaire n'est pas terminée puisque l'arrêt ne statue pas sur la question de la propriété de la mine qui reste en suspens et sur laquelle le procureur du roi devra se prononcer devant le parlement. La distinction qui s'établit entre le propriétaire de la mine et celui du sol illustre une fois de plus les progrès des prérogatives royales en matière de droit minier.

Arrêt du Parlement de Paris (Paris, 20 avril 1330 (n.st.))

A. Transcription officielle au registre du parlement civil, Archives nationales, X^{1a} 6, fol. 103v°, en marge : *C III*.

Cum dudum manus regia apposita fuisset in quidam mineria argenti que est in montanea de Oliis [2] in vicecomitatu coseranensis. Et ad supplicationem Rogeri de Convenis filii primogeniti Arnaldi de Yspania [3] tunc vicecomitis Coseranensis ac audito super hoc senescallo tholosano amota fuisset dicta manus regia a novem [4] partibus dicte minerie fuisset que mandatum per litteras regias dicto senescallo quatinus si vocato procuratore regio et aliis evocandis [5] sibi constaret, dictum vicecomitem esse et fuisse per annum et diem in possessione pacifica tocius dicte minerie ante [6] manus regie appositionem, dictam manum amoveret a dicta decima parte dicte minerie. Et recepta in de dicta manu [7] durante dicto vicecomiti restitueret indilate. Et dictus senescallus per certum commissarium ab eo

deputatum mandasset [8] super hoc veritatem. Inquiri vocato procurator regio ac aliis evocandis. Inquesta igitur vocatis et auditis [9] partibus super hiis facta et de mandato nostro ad curiam nostram parisiensem asportata auditisque partibus recepta visaque [10] ac diligenter examinata. Quia per dictam inquestam curie nostre constitit predictum vicecomitem tempore appositionis [11] manus regie in dicta mineria esse et fuisse in possessione pacifica per annum et diem et amplius tocius mine-[12]-rie argenti. Idcirco per curie nostre iudicium fuit dictum quod manus regia amovebitur a decima parte dicte mine-[13]-rie et quod quicquid levatum extitit de dicta decima parte predicta manu durante restituetur vicecomiti predicto [14] saluo nobis iure proprietatis super quo procurator noster faciet hic in curia nostra facta sua. Et dictus vicecomes respon-[15]-debit ibidem et super hiis procedetur somarie et de plano. Datum die XX aprilis. Magnavilla R.¹⁷⁷

Des détails supplémentaires sur le procès des mines d’Aulus (ouvert au moins depuis 1319) et les rebondissements à la suite de l’arrêt de 1330 sont connus grâce à une copie du XVIII^e siècle d’un mémoire issu du couvent des dominicains de Saint-Girons et dont nous proposons une édition ci-dessous. Ce document contient des analyses d’actes du XIV^e siècle (1322-1397) relatifs aux mines des vicomtes du Couserans. Elles souffrent de nombreuses lacunes qui ont été indiquées par le copiste. Le texte évoque tout d’abord la procédure d’appel engagée par Arnaud d’Espagne à la suite du jugement en première instance rendu par le sénéchal de Toulouse¹⁷⁸. Le début du texte fait mention de plusieurs mines « des vallées et montagnes appelées d’Aulus et Riverenert et Dustol¹⁷⁹ et autres qui sont en ladite viscomté de fer, de plom et d’argent » puis celle d’Aulus est la seule concernée. La localisation de celle-ci est d’ailleurs donnée plus précisément : elle est « sise au lieu d’Aulus au mont appelé de

¹⁷⁷ Il s’agit de maître Robert de Magneville, rapporteur des enquêtes qui figure dans la liste des membres du parlement du 10 octobre 1332.

¹⁷⁸ Aux côtés de cet officier royal figure le juge de Rieux, ce qui semble indiquer un jugement rendu par le sénéchal au cours d’une de ses visites dans la jagerie : Voir Boutaric E., « Organisation judiciaire du Languedoc au Moyen Âge [premier article] », *Bibliothèque de l’école des chartes*, 16(1), 1855, p. 201-230.

¹⁷⁹ Ustou (arrondissement de Saint-Girons).

Passio ». Ce toponyme, sur lequel nous reviendrons, pourrait désigner le Pouech de Gouaff, sommet s'élevant au sud-est du village d'Aulus-les-Bains¹⁸⁰. La mention des mines d'Aulus, de Rivèrenert et d'Ustou élargit le cadre de l'exploitation minière dans la vicomté de Couserans et permet d'esquisser un véritable district polymétallique ferreux et non-ferreux. Si la plainte reçue par le sénéchal concerne uniquement la mine d'Aulus, elle permet aussi à la justice royale de s'immiscer dans l'ensemble des affaires minières de la vicomté. Une nouvelle fois, l'instrument juridique s'avère être un vecteur efficace des revendications royales en matière de ressources naturelles.

Le document apporte des éléments nouveaux sur la procédure d'appel devant le Parlement de Paris. En plus des arrêts de 1322 et de 1330 étudiés précédemment, un autre arrêt d'avril 1324 est mentionné. Il correspond vraisemblablement à la restitution partielle des revenus au vicomte (les 9/10) et la conservation par le roi du revenu du dixième. L'arrêt du 20 avril 1330 est analysé, notamment les réserves sur la question de la propriété¹⁸¹. Le jugement a posé plusieurs difficultés et ne fut pas appliqué « pour plusieurs empêchements que le procureur du Roi y donna ». Le zèle de l'officier royal s'explique certainement par la volonté d'annuler ou de différer le remboursement des revenus dont fut privé le vicomte de Couserans depuis la saisie de la mine. Raimond-Roger I^{er}, fils de Roger IV et vicomte de Couserans et de Bruniquel, poursuit l'affaire devant le Parlement de Paris. L'application d'un nouvel arrêt, prononcé le 12 avril 1347¹⁸² et dont le contenu ne nous est pas parvenu, est à nouveau entravée par le procureur du roi. La situation étant bloquée, la mine est placée sous séquestre et arrentée le 13 juillet 1349 pour 26 livres tournois, somme dérisoire si on la compare aux revenus du début du XIV^e siècle rapportés par Girardi. Peut-être l'extraction du minerai a-t-elle cessé durant cette nouvelle phase du procès, l'activité ne se concentrant

¹⁸⁰ Information orale communiquée par Bernadette Rogalle. Les cadastres anciens consultés n'ont pas gardé trace de ce toponyme.

¹⁸¹ Néanmoins, on remarque une erreur d'analyse de la part du copiste puisque contrairement aux dispositions de l'arrêt du Parlement de Paris, il indique que le roi conserve le dixième.

¹⁸² Cette date, placée en interligne, en remplace une première barrée et partiellement lisible indiquant « juillet 1347 ».

plus que sur le traitement des stocks résiduels. La guerre pour le comté de Pallars, bien qu'elle se soit le plus souvent portée sur le versant catalan, a également pu occasionner des dommages en Couserans et une destruction partielle de l'exploitation d'Aulus est possible comme le suggère Claude Dubois¹⁸³. Cette hypothèse se trouve renforcée par une mention dans la charte d'Oust se référant aux troubles qui ont touché le Couserans dans les années 1330¹⁸⁴. Quoi qu'il en soit, l'issue de la procédure nous échappe et s'arrête en 1349. Nous ne savons si les dernières lignes du document se rapportent au procès d'Aulus¹⁸⁵.

Mémoire portant mention d'actes du XIV^e siècle.

B. Copie¹⁸⁶ informe du XVIII^e siècle, Archives départementales de l'Ariège, 1J251.

L'an *déchiré* Arnaud d'Espagne fut appellant [1] de ce que noble seigneur Guirardi [2] Guidonis, seigneur de Cabanes gendarme du [3] Roi de France et de Navarre, sénéchal de Toulouse [4] et albigeois et maitre Guilhem Jan de Franc[...] juge [5] de Rieux et autres parties de Guienne auront ordonné [6] que les mines des vallées et montagnes appelées [7] d'Aulus et Riverenert et d'Ustol et autres qui [8] sont en ladite vicomté, de fer de plomb et [9] d'argent desquelles il a joui avec toutes ses [10] autres appartenances. [11]

Ligne déchirée au bas de cette page

¹⁸³ Dubois C. « Les mines de plomb argentifère et zinc d'Aulus-les-Bains (Ariège) », *Archéologie du Midi médiéval*, tome 17, 1999, p. 193.

¹⁸⁴ Pailhès C., « Les cadres institutionnels... », *op. cit.*, p. 44.

¹⁸⁵ Un nouveau protagoniste y apparaît, Taparas, contre lequel le vicomte de Couserans nourrit une grande haine dont l'origine nous échappe. Ce dernier mène contre lui une expédition punitive qui conduit à la prise puis l'incendie d'un de ses châteaux et d'un moulin sis à proximité. S'agit-il des installations hydrauliques de la mine et des ateliers métallurgiques d'Aulus et du château qui les domine ? Les lacunes du texte ne nous permettent pas trancher. Nous pouvons seulement avancer quelques éléments se fondant sur une identification hypothétique de Taparas. Deux capitouls toulousains portent ce nom dans la seconde moitié du XIV^e siècle sans que l'on soit en mesure d'établir un lien de parenté. Le premier Guillaume Taparas, juriconsulte, est capitoul trois fois en 1337, 1350 et 1357. Le second, Fort Taparas, exerce cette charge en 1362 et 1369 : Bordes F., *Formes et enjeux d'une mémoire urbaine : le premier « livre des histoires de Toulouse » (1295-1532)*, Thèse de 3^e cycle, Université de Toulouse 2 le Mirail, 2006, tome 2, p. 470.

¹⁸⁶ Notes pour l'édition : Les passages ajoutés dans un second temps par le copiste sont reproduits en italique. Les passages rayés sont en corps inférieur et entre parenthèses.

Laquelle minière d'argent sise au lieu Dolus [12] au mont appelé de Passio fut ensequestrée [12] et arantée le 13 juillet 1349 pour 26 £ [13] et à la supplication de Roger de Comminges vicomte [14] de Couserans premier fils dudit Arnaud présenté [15] au Roi lui représenta qu'il en était possesseur [15] plus que d'an et jour et toutes parties ouïes [16]. Il fut donné trois arrêts le [...] mai [17] 1322, le [...] mai 1324, le [...] avril 1330 au Parlement de Paris [18] par lequel ledit vicomte était rétabli de ladite minière réserve la dixième partie [19] pour le Roi [20].

De ladite minière se réservant le droit de [21] propriété sur quoi le procureur général du Roi aura [...] [22]

Lequel arrêt ne fut mis en exécution [23] pour plusieurs empêchements que le procureur [24] du Roi y donna et autres et à la poursuite [25] de Raimon Rougé de Comminges vicomte de Bruniquel il s'ensuivit autre arrêt donné [26] à Paris le 12 avril 1347 (le [...] de juillet 1347) [27]

Mots ainsi raturés

Lequel susdit arrêt ledit procureur du Roi [28] empêcha l'exécution d'icelui [...] [29]

Cette dernière ligne se trouve déchirée

Pour raison de quoi ledit vicomte [30] conçut une grande haine contre ledit [31] Taparas, pour raison de quoi fit [32] un grand apprêt de gens de guerre [33] tant à pied qu'à cheval et alla contre [34] ledit Taparas et lui prit le château [35] le pilla et brula et pour ce faire fit [36] sonner le tocsin et fit lever toute [37] la populace de Saint-Girons quoi qu'il eut [38] en sauvegarde du Roi et mit la fleur de [39] lis en plusieurs endroits, néanmoins [40] prend sa mère et brula le moulin [41] qui était proche du château et par [42] ce moyen le rendit inhabitable [43].

Après cela, l'an 1397 et le jour proche [44] de la fête de la décollation de Saint Jean Baptiste [45], ledit vicomte accompagné étant en [46] nombre de 17 ou plus étant bien armés il s'en alla au lieu de [...].

Cette dernière ligne se trouve déchirée

1.4.2. Ralentissement et arrêt des activités (fin XV^e-fin XV^e siècles)

1.4.2.1. Les ordonnances royales de 1483

Dans la première moitié du XIV^e siècle, la fenêtre d'une trentaine d'années qui permet, grâce aux archives d'une procédure judiciaire longue et complexe, d'entrevoir les activités minières de la vallée d'Aulus ne donne qu'un aperçu de l'exploitation. Les sources juridiques, peu prolixes sur les aspects techniques de l'extraction et de la transformation des minerais, sont utilement complétées par le témoignage du florentin Paolo Girardi. Apparue dans la documentation en 1319 le temps d'un procès, la mine en sort rapidement et son destin nous échappe pendant plus d'un siècle. Elle réapparaît à la fin du XV^e siècle et de manière indirecte dans les ordonnances royales données par Louis XI en avril 1483 et par Charles VIII en novembre 1483¹⁸⁷. Le premier document concède un droit de prospection et d'extraction pour tout le Couserans à un groupe six hommes, dont deux sont officiers royaux, tandis que le deuxième document renouvelle la concession au groupe porté à sept membres¹⁸⁸. La concession procède d'une volonté de mise en valeur d'une région dont le passé minier est encore bien présent à l'esprit (« ...en plusieurs lieux de la vicomté de Couserans [...] a très-grande quantité de mines [...] y a esté par assez longtemps besoigné »). Elle s'inscrit dans un mouvement plus large de relance de l'activité minière dans l'ensemble du royaume qui donne lieu à de nombreuses concessions¹⁸⁹.

Les travaux d'extraction semblent à l'arrêt en Couserans au moment de la rédaction des ordonnances bien que les gisements ne soient pas épuisés. C'est avant tout le manque de capitaux qui est à l'origine de l'interruption des exploitations. Pour encourager la reprise, le roi octroie de nombreux privilèges et exemptions aux concessionnaires ainsi qu'aux mineurs allemands « qui sont à présent ou viendront cy-

¹⁸⁷ Pastoret E. de, *Ordonnances des rois de France de la troisième race*, Imprimerie royale, Paris, 1835, tome 19, p. 105-108 et p. 175-176.

¹⁸⁸ Verna C., « Une nouvelle page... », *op. cit.*, p. 223 à 224. Il faut ajouter Selabe des Polsans à la liste que donne l'auteur, ce qui porte bien le groupe d'avril 1483 à six membres.

¹⁸⁹ *Ibidem*, p. 223.

après besoigner esdictes mynes ». L'expertise technique des mineurs des pays germaniques est déjà largement reconnue dans l'Europe de la fin du XV^e siècle. Ils sont particulièrement sollicités pour l'exploitation de minéralisations complexes et la réalisation d'ouvrages d'exhaure d'envergure. Ainsi Claus Smermant, maître-niveleur originaire de Forêt-Noire, est appelé à Pampailly en 1455 par le procureur Jean Dauvet pour poursuivre le percement du travers-banc du Vernay¹⁹⁰. En Comminges, région voisine du Couserans, les ressources en métaux, à l'exception de l'orpaillage marginal dans la basse vallée du Salat, ne sont pas exploitées faute de compétences : il faudrait « faire venir des gens experts¹⁹¹ ».

L'expertise technique des ouvriers spécialisés et les capitaux des concessionnaires privés sont donc les ingrédients du succès d'une reprise de l'exploitation minière en Couserans. Si elle a pu effectivement affecter les mines d'Aulus¹⁹², la reprise est loin d'être pérenne et dès novembre 1483 Charles VIII renouvelle la concession. La chambre des comptes fait modifier l'ordonnance en y ajoutant des précisions sur le devenir des métaux affinés. L'argent et l'or doivent être livrés à la Monnaie de Toulouse. Le silence des registres de l'Hôtel des Monnaies de Toulouse sur les mines couserannaises semble indiquer que les espoirs ne se sont pas concrétisés¹⁹³. Une nouvelle concession est donnée par Louis XII à Jean Dupuis en février 1507 (n. st.)¹⁹⁴. Elle vise à relancer la recherche et l'exploitation des mines en Couserans. L'opération, comme celle de 1486, n'est pas fructueuse.

1.4.2.2. La visite de Jean de Malus

¹⁹⁰ Benoit P., *La mine de Pampailly...*, *op. cit.*, p. 38.

¹⁹¹ Higounet C., *Le comté de Comminges...* », *op. cit.*, p. 469 ; Verna C., « Une nouvelle page... », *op. cit.*, p. 230.

¹⁹² Dubois C., « Les mines de plomb argentifère... », *op. cit.*, p. 192. D'autre part l'ordonnance de renouvellement de la concession de novembre 1483 précise que des travaux ont déjà été effectués en Couserans : « ils ont ja encommencé de besoigner et fait plusieurs preparations à ce necessaires ».

¹⁹³ Verna C., « Une nouvelle page... », *op. cit.*, p. 225.

¹⁹⁴ *Ibidem*, p. 224.

Le récit de la visite de Jean de Malus que nous avons déjà évoqué livre un état des lieux particulièrement précis des ateliers métallurgiques de Castel-Minier ainsi qu'une description de plusieurs travaux miniers abandonnés¹⁹⁵. D'après Malus, l'arrêt des activités est récent et il estime l'abandon à une vingtaine d'années. Alors que les recherches archéologiques ont démontré que la dernière phase d'occupation de Castel-Minier se caractérise par la production unique de fer au moyen d'une mouline, par ailleurs bien conservé, Malus passe sous silence cette caractéristique. Il décrit en revanche l'espace castral et les structures dévolues à l'extraction des métaux non-ferreux ainsi que les découvertes de lingots de plomb et d'argent qu'on lui a rapportées. La précision de la description des ateliers permet de tirer des conclusions provisoires sur l'organisation fonctionnelle de Castel-Minier et la spatialisation des chaînes opératoires de production des métaux non-ferreux dans l'espace castral :

« En la viscomté de Couzeras à une lieüe par dessus le village d'*Aulus* y a un chasteau vieil, composé d'une tour carrée fort haute ayant neuf grand pas de carré au dedans. Ceste tour est enfermée d'un costé de fausse braye, au coin de laquelle y a une tour demy ronde servant d'un flanc à deux cotés ; du costé de la plus grande montagne y a une vieille porte, par laquelle on entroit dans la grande fonte, où l'on fondoit l'or et l'argent. Ce chasteau est appelé par ceux du pays le *Castel Minié*. Il n'y a pas encore plus de vingt ans qu'un vieil paysan du lieu d'*Aulus* nommé *Galin*, trouva dans ceste fonte un lingot d'argent pesant huict livres, qui valent seze marcs ; quelques autres y ont trouvé de grands saumons de plomb, pesans les uns un quintal, les autres plus ou moins¹⁹⁶ ».

La visite de Malus ne se réduit pas à l'inspection des installations de surface, elle comprend plusieurs excursions souterraines dans la mine de Castel-Minier et dans plusieurs autres de la vallée du Garbet. Les descriptions morphologiques de ces

¹⁹⁵ Dupuy J., « La recherche et découverte ... », *op. cit.*, p. 126 et suivantes.

¹⁹⁶ Dupuy J., « La recherche et découverte ... », *op. cit.*, p. 126 et suivantes.

ouvrages ainsi que la mention des toponymes sont des indices précieux pour les prospections d'archéologie minière¹⁹⁷. Certains détails rapportés par l'auteur peuvent d'ailleurs être mis directement à l'épreuve des données archéologiques.

1.4.3. Les reprises récentes (seconde moitié du XVIII^e-milieu du XX^e s.) : espoirs et désillusions

1.4.3.1. La multiplication des recherches dans la seconde moitié du XVIII^e siècle

Après presque trois siècles d'inactivité, les mines d'Aulus et de sa vallée suscitent à nouveau l'intérêt des entrepreneurs dans la deuxième moitié du XVIII^e siècle. Cette nouvelle phase de l'histoire du site sort néanmoins du cadre de nos recherches sur les activités minières et métallurgiques qui se sont déroulées à Castel-Minier dans les derniers siècles du Moyen Âge et dont Malus nous livre le *terminus*. Néanmoins, les productions écrites qu'ont suscitées les reprises, de même que les indices archéologiques qu'elles ont laissés, sont particulièrement précieux pour aborder certaines problématiques historiques propres à l'exploitation médiévale. Les travaux engagés à partir du XVIII^e siècle ont fréquemment rencontré des ouvrages anciens dont les archives des compagnies minières et les procès-verbaux des ingénieurs des Mines gardent parfois la trace. Dans ces sources écrites, la localisation des ouvrages est plus précise et il est parfois possible d'étudier la microtoponymie minière à l'échelle d'un versant de montagne comme par exemple la face ouest du Pouech de Gouaff dans la vallée d'Aulus. En outre, la systématisation de la topographie souterraine (au moins pour les travaux miniers les plus importants) permet d'étudier les stratégies d'extraction, la localisation des anciens chantiers d'abattage, mais également d'évaluer l'ampleur de mines aujourd'hui inaccessibles. Enfin, les essais de minerais pratiqués à partir de la fin du XVIII^e siècle par des

¹⁹⁷ *Infra* p. 200.

prospecteurs et des ingénieurs des Mines sont de précieuses sources d'information pour apprécier la nature de minéralisations aujourd'hui épuisées.

Les premiers travaux de reprise attestés sont le fruit d'une nouvelle concession pour le Couserans obtenue en 1773 par M. de Chamilly associé à MM. de Pernon et de Bourgogne. La compagnie projette d'engager des travaux à Aulus pour « y continuer l'ouverture d'un minier de plomb qui contient dit-on, une assez grande quantité d'argent pour mériter qu'on pousse les travaux¹⁹⁸ ». Elle a également repris d'anciens travaux à Ustou pour le plomb et le cuivre. La concession est vendue au marquis de Villepinte le 30 juillet 1774¹⁹⁹. Il exploite essentiellement les mines des Argentières et de Lacore dans la vallée d'Aulus jusqu'à son émigration en 1791.

1.4.3.2. Un dernier sursaut au XIX^e siècle

L'essor industriel que connaît le XIX^e siècle stimule la production de métaux, en particulier le zinc et le plomb. La mise au point de procédés permettant d'extraire le zinc des minerais sulfurés suscite un vif intérêt pour les anciens travaux miniers. Les minéralisations du Couserans ont une paragenèse associant fréquemment sulfures de plomb et de zinc. Ces derniers ont été écartés par les métallurgistes médiévaux et forment des amoncellements typiques des anciens paysages miniers : les haldes, dont certaines ont fait l'objet d'un retraitement au XIX^e siècle. La mise en place d'une administration et d'une nouvelle législation minière dans la première moitié du XIX^e siècle modifie la nature des concessions ultérieures dont les emprises sont plus limitées. Ainsi, les mines d'Aulus font l'objet d'une concession à M. Lecour en 1835 qui comprend uniquement la rive droite du Haut-Garbet²⁰⁰. En 1863, M. Laurent obtient la concession du Pouech qui jouxte la rive gauche du Garbet et qui s'étend à l'est

¹⁹⁸ ADHG, 13J86.

¹⁹⁹ Dubois C., « Les mines de plomb argentifère... », *op. cit.*, p. 194.

²⁰⁰ Dubois C., « Les mines de plomb argentifère... », *op. cit.*, p. 197.

jusqu'aux contreforts de la vallée d'Ustou²⁰¹. En 1870, les deux concessions d'Aulus et du Pouech sont réunies par l'Union métallurgique de France qui y ajoute celle de Seix. L'ensemble est rapidement vendu en 1875 puis démembré. À partir de cette date, la concession d'Aulus ne fait plus l'objet que de quelques recherches et seule la concession du Pouech, rachetée par M. Deyres en 1883, connaît une production significative. Ses mines produisent 8 t de sphalérite jusqu'en 1893 avant que leur propriétaire ne les amodie à la Société de la Vieille Montagne qui les exploite jusqu'en 1936. Les travaux postérieurs à la Seconde Guerre mondiale se limitent à quelques recherches sans lendemain.

²⁰¹ Pour une délimitation précise des deux concessions d'Aulus et du Pouech voir la carte donnée dans Dubois C., « Les mines de plomb argentifère... », *op. cit.*, p. 189.

Partie 2 : Présentation des corpus archéologiques et méthodologie d'étude

Lors de la présentation du site de Castel-Minier, nous avons évoqué succinctement les découvertes archéologiques se rapportant aux activités métallurgiques. Principaux matériaux de notre étude, il convient maintenant de présenter en détails les réalités qu'elles recouvrent. De natures diverses, elles se répartissent en deux catégories : d'une part les artefacts collectés sur le terrain et dont l'ensemble constitue le mobilier métallurgique ; d'autre part, les structures de chauffe aux typologies variées qui ont fait l'objet de relevés et dans certains cas de prélèvements. Au moment de son enregistrement, le mobilier reçoit un code laboratoire (CL) ainsi que le millésime de la fouille et l'unité stratigraphique dans laquelle il a été découvert. Dans ce travail, on se référera systématiquement au code laboratoire pour identifier le mobilier. Les individus soumis à des analyses archéométriques en laboratoire ont fait l'objet d'une couverture photographique préalable dont on trouvera les planches en annexe²⁰². Les structures de chauffe sont identifiées par un numéro précédé des mentions « Fy » ou « Fr » selon qu'il s'agisse d'un foyer ou d'un four.

2.1 Le mobilier métallurgique

2.1.1. Les minerais non-ferreux

Le mobilier métallurgique se compose en premier lieu d'un corpus de minerais non-ferreux. Il s'agit de l'ensemble le plus important qui représente une masse totale de 72,8 kg. Cette valeur élevée masque en réalité de fortes hétérogénéités entre des individus, souvent de taille réduite, qui contiennent en majorité du minerai et d'autres

²⁰² Annexes 6 à 20.

constitués de fractions réduites de minerai qu'accompagne une quantité importante de gangue et/ou de roche encaissante²⁰³. La notion de « qualité » du minerai qui découle de ces observations fait l'objet d'un développement spécifique²⁰⁴. Parmi les espèces minérales que l'on peut identifier macroscopiquement, le sulfure de plomb (ou galène), figure au premier rang. Viennent ensuite les sulfures de cuivre polymétalliques. Les minerais archéologiques sont fréquemment recouverts d'une couche d'altération formée d'oxydes et/ou de carbonates qui constitue un critère d'identification. À cette discrimination visuelle s'ajoute celle de la densité, grandeur physique qui permet de distinguer les roches stériles du minerai lorsque le métal y est concentré en quantité suffisante. Dans le cas contraire, l'observation de la cassure et de l'éclat du minéral est une alternative fiable.

2.1.2. Scories, déchets scoriacés et soles de réacteur

Les véritables scories produites au cours de la transformation des minerais non-ferreux sont relativement rares sur le site de Castel-Minier. Le corpus se compose en effet principalement de déchets scoriacés tels que des roches plus ou moins fondues, éléments des structures de chauffe, qui représentent une masse de 19,7 kg. L'identification d'une scorie issue du traitement d'un minerai non-ferreux est parfois malaisée de même que l'association à une chaîne opératoire particulière. Certains individus ont un aspect très proche des scories de réduction du fer présentes en grand nombre à Castel-Minier. L'observation attentive de leur surface permet néanmoins de trancher : les scories cuivreuses se distinguent par des reflets verdâtres indiquant la présence d'oxydes, de carbonates ou de chlorures de cuivre tandis que les scories

²⁰³ La gangue désigne les roches et les minéraux qui entourent le minerai et qui n'ont pas d'intérêt économique. Dans les gîtes filoniens, gangue et minerai ont souvent une origine commune. La roche encaissante désigne les terrains dans lesquels s'est développée la minéralisation et qui diffèrent de la gangue. Un minerai peut donc être associé à de la gangue, de la roche encaissante ou un mélange des deux. La notion de « roche stérile » est parfois employée pour désigner indistinctement la gangue et la roche encaissante.

²⁰⁴ *Infra* p. 290.

plombeuses sont fréquemment recouvertes d'encroûtements blancs de carbonates de plomb voire de billes d'oxydes de plomb (figure 18). Du point de vue morphologique, les scories sont principalement informes ; on distingue toutefois quelques individus dont une face moule une partie de la structure de chauffe dans laquelle ils se sont formés.

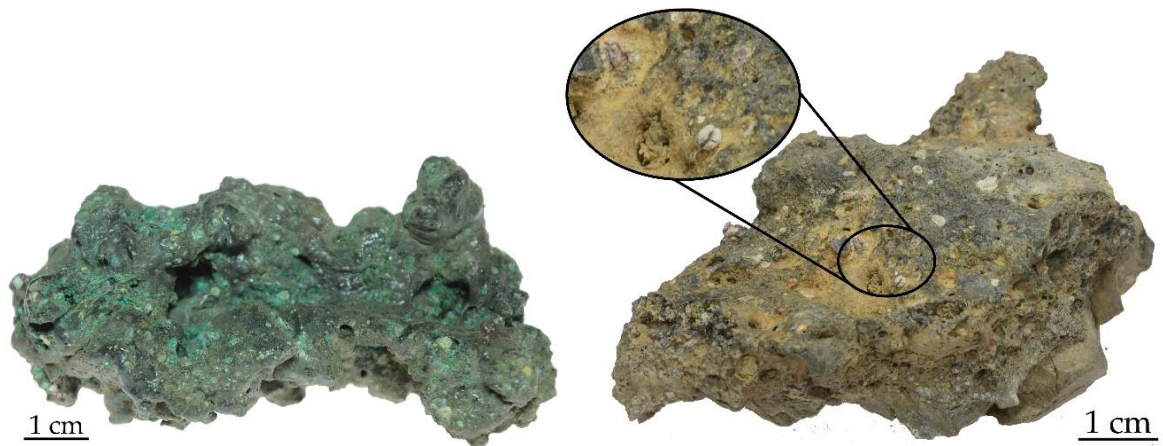


Figure 18 : Exemples de scorie cuivreuse (gauche, CL 12096) et plombeuse (droite, CL 12791) avec détail des billes d'oxyde de plomb.

Les soles de réacteurs (ou fonds de fours) sont des artéfacts composites formés par la réaction du matériau constituant le creuset de la structure de chauffe avec les produits scoriacés créés au cours de la transformation du minerai. La morphologie de ces déchets est particulière avec une partie inférieure concave composée de matériaux argileux plus ou moins fondus et une partie supérieure convexe très scoriacée emprisonnant parfois des fragments de charbon et des reliquats de minerai. Bien que rarement conservées en intégralité, les soles usagées fournissent dans certains cas des informations dimensionnelles sur les réacteurs utilisés. Au sein de ce corpus, la particularité des soles usagées issues des opérations d'affinage de l'argent (également qualifiées de « casse de coupellation ») doit être évoquée. Ces artéfacts se composent d'un matériau poreux et pulvérulent gorgé d'oxydes de plomb. L'incorporation de ce métal confère une masse élevée aux casses de coupellation : c'est le principal critère d'identification de ces déchets d'aspect terreux et relativement fragiles (figure 19).

Le corpus de casses de coupellation mis au jour à Castel-Minier est exceptionnel à deux titres. Tout d'abord, par son ampleur : à l'issue de la campagne de fouille de l'été 2016, le corpus totalise 124 individus représentant une masse de 5,6 kg. C'est le plus grand ensemble connu à ce jour pour l'Europe médiévale en termes d'individus et de masse. Ensuite, la présence de billes métalliques millimétriques réparties à la surface de certains de ces fragments accroît leur importance (figure 19). Leur couleur, du gris au blanc, traduit la présence d'argent en cours d'affinage. L'existence de billes métalliques sur les casses de coupellation médiévales a été rarement relevée dans les corpus publiés²⁰⁵. Ce constat renforce la particularité du mobilier de Castel-Minier et son intérêt pour la compréhension des procédés métallurgiques.

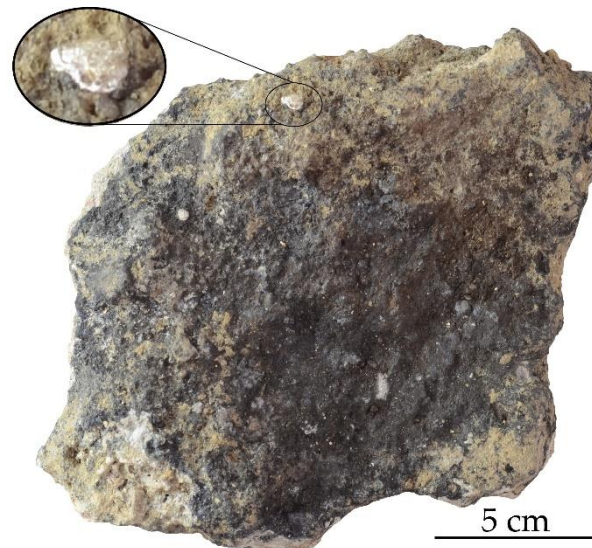


Figure 19 : Casse de coupellation (CL 13146). Détail d'une bille de plomb-argent subsistant à la surface.
Cliché : J.-C. Méaudre.

2.1.3. Métaux et oxydes métalliques

Les métaux non-ferreux mis au jour sur le site de Castel-Minier se regroupent en trois catégories d'importance inégale. Les métaux à base de plomb sont les plus

²⁰⁵ Seule exception, l'étude de Bayley J. et Eckstein K., « Roman and medieval litharge cakes structure and composition », *34th International Symposium on Archaeometry, Zaragoza, 3-7 mai 2004*, Pérez-Arantegui J. (éd.), Institución "Fernando el Catolico", Zaragoza, 2006, p. 145-153.

courants avec un corpus de 5,9 kg : ils se présentent sous la forme de plaques, lingots, masselottes et fragments informes. La majorité des individus présentent une couche d'altération blanche en surface constituée de carbonates de plomb. La seconde catégorie se compose des métaux à base de cuivre dont la plupart sont indifférenciés au moment de leur exhumation²⁰⁶. Les morphologies sont de trois types : les tôles, les lingots et les fragments informes.

Outre leur présence systématique sur les métaux archéologiques ayant séjourné dans le sol, les oxydes métalliques existent également sous une forme massive sur le site de Castel-Minier. Dans ce cas de figure, il ne s'agit pas de minéraux naturels liés à l'altération, mais de productions anthropiques résultant d'activités métallurgiques. Il s'agit principalement d'oxydes de plomb sous la forme de plaques et de masses informes issues de l'affinage de l'argent. Ces produits intermédiaires ont une densité élevée et une couleur rouge caractéristique de l'un des polymorphes du monoxyde de plomb : la litharge.

2.1.4. Céramiques métallurgiques

Le mobilier céramique découvert à Castel-Minier est abondant et a fait l'objet de travaux de recherche spécifiques²⁰⁷. La fonction de plusieurs individus de ce corpus est clairement liée aux activités métallurgiques comme en atteste la présence de billes métalliques piégées dans les tessons (figure 20). La forme de ces derniers permet dans certains cas de restituer partiellement la géométrie initiale du contenant. Les morphologies sont variées sans qu'un modèle général puisse être dégagé. Si certains tessons s'apparentent plutôt à des creusets, d'autres présentent des profils plus évasés

²⁰⁶ La couche d'altération formée d'oxydes de cuivre et qui recouvre les métaux ne permet pas de pousser plus avant leur identification notamment de préciser le type d'alliage cuivreux à partir duquel ils ont été élaborés.

²⁰⁷ L'étude céramologique fait l'objet du master de Manon Géraud : *La céramique du site de Castel-Minier : la fin de l'occupation du site (XV^e-XVI^e s)*, Mémoire de Master 1, Université de Toulouse Jean-Jaurès, 2016 ; Géraud M., *La Commingeaise de Castel-Minier (Aulus-les-Bains, Ariège) : étude typologique, technologique et archéométrique*, Mémoire de Master 2, Université de Toulouse Jean-Jaurès, 2017.

de type bol ou écuelle. L'analyse des billes métalliques peut permettre de préciser la nature des métaux travaillés dans ces contenants ainsi que l'étape de la chaîne opératoire à laquelle ils se rattachent.

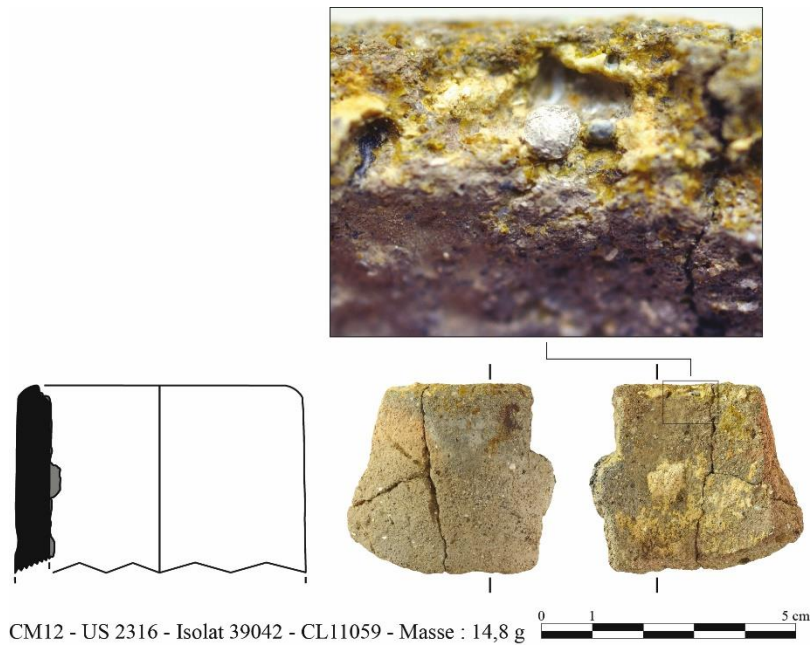


Figure 20 : Fragment de creuset en céramique (CL 11059) et détail de la bille métallique qu'il contient.
Clichés et dessin : J.-C. Méaudre.

2.2 Structures de chauffe

Nous avons déjà évoqué les structures de chauffe mises au jour dans les différents espaces de travail de Castel-Minier. Du point de vue structurel, elles se partagent en deux catégories définies d'une part par la nature des matériaux employés pour leur construction et par leur élévation d'autre part.

2.2.1. Les structures légères quadrangulaires et circulaires

Les structures de chauffe légères de plan circulaire ou quadrangulaire sont les plus représentées à Castel-Minier (figure 21). Les premières, au nombre de quatre, se composent pour deux d'entre elles d'une sole en argile jaune damée (qui se colore en

rouge à la cuisson) et d'une sole en carreaux d'argile pour les deux autres. Les soles, dont les dimensions varient de 60 à 80 cm, sont délimitées à leurs extrémités par des dalles en schiste et parfois en granite. Ces structures de chauffe ne semblent pas avoir été dotées d'une élévation, ce qui suggère que la zone chaude était ouverte sur l'extérieur : il s'agit donc de foyers. Leur morphologie est similaire à celle des foyers domestiques fréquemment découverts dans des contextes d'habitat médiéval²⁰⁸. Si cet usage ne peut être exclu à Castel-Minier, la multiplicité de telles structures et leur association avec des scories et du minerai suggèrent néanmoins une fonction différente en lien avec des opérations métallurgiques qu'il conviendra de préciser. Parmi ces foyers, une typologie se dégage nettement par la juxtaposition de deux âtres formant une seule et même structure de chauffe. Ces foyers, que l'on peut qualifier de doubles, sont bâtis sur un radier de scories non-ferreuses qui assurent le drainage. L'étude archéométrique devra expliquer l'aménagement de ces structures particulières au sein des ateliers métallurgiques de Castel-Minier et leur insertion dans les chaînes opératoires.

Les douze individus rangés dans la catégorie des structures circulaires ont des morphologies variées plus ou moins régulières. Leur sole est en réalité pseudo-circulaire voire ellipsoïde ; elle est matérialisée par une couronne d'argile rubéfiée parfois associée à un sol charbonneux. L'absence d'une délimitation claire complique la lecture de la structure originelle par ailleurs fortement dégradée par les lessivages successifs auxquels elle a été exposée après son abandon. La présence d'un radier de fondation en pierres sèches est attestée dans un seul cas. Il est difficile de conclure quant à une hypothétique élévation et par conséquent de trancher sur le type de structure : foyer ou four.

²⁰⁸ Voir en particulier les travaux de Gaëlle Bruley-Chabot : « Les fours et foyers culinaires du Haut Moyen Âge », *Medieval Europe Paris, 4^e Congrès International d'Archéologie Médiévale et Moderne, Paris, 3-8 septembre 2007*, document en ligne, consulté le 30 août 2017, [<http://medieval-europe-paris-2007.univ-paris1.fr/G.Bruley-Chabot%20poster.pdf>]. Autres exemples dans Chapelot J. et Fossier R., *Le village et la maison au Moyen Âge*, Hachette, Paris, 1980, p. 224 et suivantes.

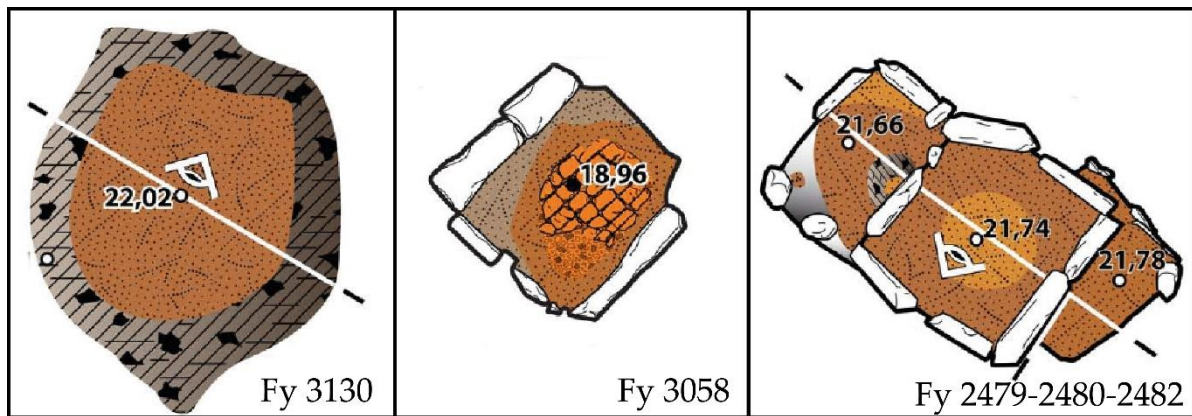


Figure 21 : Typologie des structures de chauffe légères : structure circulaire (gauche), foyer quadrangulaire simple à sole en carreaux d'argile (centre) et foyer quadrangulaire double (droite).

2.2.2. Les fours en élévation

Dans cette seconde catégorie se rangent trois structures en élévation localisées exclusivement dans le bâtiment 10. Elles sont bâties avec des blocs de granite liés à la terre et conservées sur environ 1 m d'élévation. Pour l'une de ces structures, l'emprise subsistante est très partielle de sorte qu'il est difficile de conclure sur la typologie. Pour les deux autres (figure 22), la volonté de contenir la zone chaude dans un espace confiné en limitant les ouvertures permet de les identifier à des fours. Ils suivent un plan en « U » avec une face arrière composée d'un massif dans lequel sont engagés les deux piédroits du four. Le creuset est formé de blocs de granite posés à plat délimitant une surface rectangulaire de 2160 et 792 cm² pour les fours Fr62 et Fr72 respectivement.



Figure 22 : fours Fr72 (gauche) et Fr62 (droite) découverts dans le bâtiment 10.

2.3 Démarche méthodologique

Les problématiques que nous avons définies et auxquelles nous nous proposons de répondre ne concernent pas uniquement l'espace minier et métallurgique de Castel-Minier. Bien que ce site majeur constitue le principal point de focalisation de nos travaux, son étude n'est pas exclusive. Nos recherches embrassent en effet l'ensemble du Couserans médiéval dans une réflexion globale sur la géographie des ressources minières, l'organisation de l'extraction et de l'approvisionnement et le fonctionnement des ateliers parmi lesquels Castel-Minier est l'exemple le plus éloquent. Les témoignages de ces activités passées sont donc nombreux et de natures variées qu'il s'agisse des anciens travaux miniers, des structures métallurgiques mises au jour ou des corpus de mobilier associés. Ces données forment des sous-ensembles qui s'interpénètrent et dont l'étude a fait l'objet d'une réflexion méthodologique de manière à intégrer leurs particularités. Cette démarche recouvre tant les questions d'identification des structures et du mobilier archéologiques que les stratégies d'échantillonnage ou encore les méthodes de caractérisation des matériaux. Elle se structure donc autour de deux axes : les recherches de terrain et les recherches en laboratoire. Certaines problématiques ont pu être abordées selon une méthodologie « classique », éprouvée par des travaux antérieurs. Parfois, il a fallu en développer des nouvelles tant du point de vue du raisonnement scientifique que de la mise en œuvre analytique.

2.3.1. Les recherches de terrain : approche méthodologique

2.3.1.1. Les recherches archéologiques

Les recherches archéologiques conduites de manière extensive sur le site de Castel-Minier depuis plus d'une décennie ont permis la mise au jour de plusieurs structures et bâtiments ainsi que d'importants corpus de mobiliers que nous avons déjà présentés. Dans cette section, notre ambition n'est pas de décrire les techniques

de fouilles et la méthodologie d'enregistrement en usage à Castel-Minier. Ces aspects relèvent d'une démarche scientifique établie par le responsable d'opération Florian Téreygeol et fondée sur la nature du terrain et des vestiges découverts, mais également sur des critères pratiques de gestion des espaces fouillés et des déblais. Nous nous proposons uniquement de discuter certaines stratégies élaborées au cours des fouilles annuelles qui visent à intégrer au mieux les données de terrain à nos réflexions sur les chaînes opératoires.

Les mobiliers issus des opérations métallurgiques qui furent pratiquées à Castel-Minier, tels que les déchets, produits intermédiaires et demi-produits, sont très diversifiés tant du point de vue de leur morphologie que de leur état de conservation. L'identification de certains artefacts est malaisée et requiert une expérience ainsi qu'une connaissance de certains principes métallurgiques. Afin de minimiser les pertes de données, plusieurs formations ont été dispensées aux fouilleurs bénévoles qui ont participé aux recherches archéologiques à Castel-Minier. Ils ont été sensibilisés aux différentes étapes des chaînes opératoires de production de l'argent et des alliages cuivreux ainsi qu'à l'identification des déchets et demi-produits associés. Une attention particulière a été portée aux minerais sulfurés dont l'altération peut rendre la reconnaissance délicate. Les techniques de caractérisation basiques telles que l'observation de l'éclat du minéral et la morphologie de la cassure ont été enseignées et ont pu être mises en œuvre sur la fouille. Un traitement spécial a été réservé aux déchets de l'affinage de l'argent notamment aux casses de coupellation. La prise en compte de ces indications par les fouilleurs bénévoles, en particulier celle de la densité élevée des déchets, vise à diminuer les pertes d'information.

La possibilité d'appliquer sur le terrain plusieurs techniques de caractérisation des matériaux, en particulier la spectrométrie de fluorescence X, est un avantage majeur pour l'identification du mobilier métallurgique. Ainsi, grâce aux résultats des analyses archéométriques, certains minerais ou encore certains alliages cuivreux ont

pu être identifiés au cours de la fouille sans attendre des études plus poussées en laboratoire. Cette démarche permet d'une part d'accroître l'expérience de l'équipe de fouille dans l'identification du mobilier métallurgique et d'autre part de dégager des premières hypothèses sur l'organisation et la fonction des espaces de travail qui peuvent influencer sur le choix des zones à fouiller. Les analyses archéométriques *in situ* sont donc pleinement intégrées à la méthodologie d'identification du mobilier archéologique.

La réflexion méthodologique a également concerné les stratégies d'échantillonnage du mobilier métallurgique, en particulier pour les minerais et les scories. Les premiers ont fait l'objet d'un prélèvement systématique et d'une première caractérisation minéralogique. Une fois les individus enregistrés, leur masse a été mesurée de même que leur densité de manière à établir une première classification de la ressource minérale et préciser la fonction de certains espaces fouillés. Qu'elles soient associées à des espaces de travail, des structures de chauffe ou remisées dans des dépôts spécifiques, les scories ont également fait l'objet d'un prélèvement systématique. Malgré ces précautions, la masse totale de scories non-ferreuses demeure limitée. Si ce constat peut suggérer des particularités techniques que nous discuterons dans la suite, telles qu'une valorisation et une exportation des scories ou encore leur réemploi la transformation du minerai, il nous a contraint à faire évoluer la stratégie d'échantillonnage des structures de chauffe, notamment les niveaux d'argile rubéfiée, dans l'espoir d'augmenter le corpus de scories soumis à l'étude archéométrique. Ainsi, une fois relevées et enregistrées, les soles en argile des réacteurs ont fait l'objet d'un tamisage sous eau puis d'un traitement hydrogravimétrique de manière à isoler la fraction lourde qui contient des petits fragments de scories et parfois des billes métalliques (figure 23).

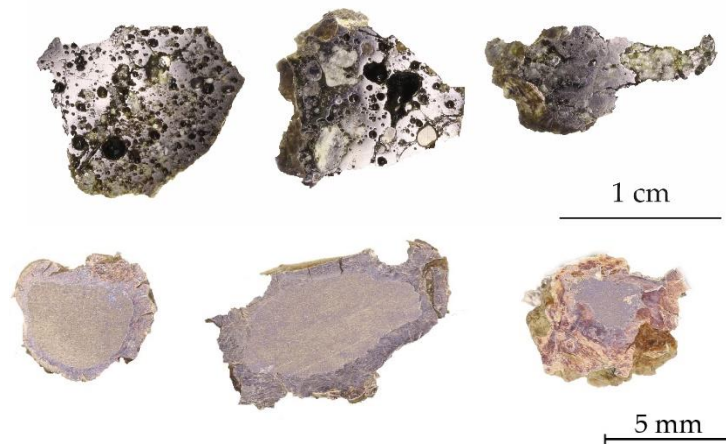


Figure 23 : Sections polies des scories (haut) et des billes de plomb (bas) découvertes dans l'argile du four Fr72 après tamisage et séparation hydrogravimétrique.

2.3.1.2. La pollution des sols : un indicateur technique

2.3.1.2.1. Travaux antérieurs et méthodologie

Parmi les nombreux niveaux de sol mis au jour lors des campagnes de fouilles, plusieurs recèlent les indices visuels de pollutions métalliques importantes, héritages des activités métallurgiques dont ils furent les témoins. La contamination au plomb est la plus fréquente et se caractérise par la présence de carbonates en plaques plus ou moins étendues et pulvérulentes. Ces minéraux sont parfois mêlés à des charbons au sein d'espaces de travail présentant des traces de rubéfaction. La pollution induite par la métallurgie du fer est également décelable dans plusieurs niveaux d'occupation, notamment la présence d'oxydes qui colorent en brun certaines zones du site.

La quantification des pollutions métalliques dans les sols est primordiale pour envisager une approche technique des bâtiments et des structures mis au jour. Cette démarche s'inscrit dans la continuité des études géochimiques réalisées durant les premières campagnes de fouilles (2006 et 2007). Ainsi, les pollutions métalliques dans les sols de Castel-Minier et d'Agneserre ont été étudiées par spectrométrie de fluorescence X portable. Ces investigations visaient à accroître la compréhension

spatiale de ces deux sites et guider les choix d'extension des zones de fouille²⁰⁹. Dans un premier temps, les résultats ont permis de définir la fraction naturelle de la zone d'étude, c'est-à-dire les seuils de concentration en métaux au-delà desquels il est possible de caractériser un apport anthropique. Ainsi, la fraction naturelle s'élève à 500 ppm pour le plomb, 300 ppm pour le zinc tandis que celle du cuivre est inférieure au seuil de détection de l'instrument (moins de 30 ppm)²¹⁰. Dans un second temps, des prospections extensives ont été réalisées sur les deux sites. Elles se sont concentrées sur une surface de 2 hectares à Castel-Minier (à raison d'une analyse tous les 10 m) et 5 hectares dans la pâture d'Agneserre (40 analyses correspondant à des anomalies magnétiques préalablement identifiées).

Le dosage des métaux dans les sols, notamment le plomb, a permis de détecter plusieurs espaces minéralurgiques et métallurgiques. La prospection géochimique s'est donc révélée complémentaire des méthodes plus classiques de prospection pour caractériser les sites à fort potentiel archéométallurgique. Depuis ces premiers travaux, de nouvelles données géochimiques sur les ateliers de Castel-Minier ont été acquises. La progression des recherches archéologiques a permis d'étudier systématiquement les teneurs en métaux contenus dans les sols de travail et les structures de chauffe selon une méthodologie qui combine les mesures de terrain et les mesures en laboratoire. Le premier volet s'inscrit largement dans la démarche définie en 2006 pour les prospections géochimiques. Les dosages sont d'ailleurs réalisés avec le même spectromètre de fluorescence X portable²¹¹. Dans un second temps, les résultats sont complétés au laboratoire par la mesure des éléments mineurs et traces au moyen d'un spectromètre de masse à plasma dont la méthodologie est exposée dans la suite.

Sur le terrain, les mesures par fluorescence X répondent à un schéma d'échantillonnage précis selon que l'étude concerne les structures de chauffe ou les

²⁰⁹ Téreygeol F., Arles A., Foy E., Florsch N. et M. Llubes, « Dosages par fluorescence X portable d'ateliers médiévaux de production des métaux non-ferreux », *ArcheoSciences*, 34, 2010, p. 243-252.

²¹⁰ *Ibidem*, p. 247.

²¹¹ Pour une présentation de la spectrométrie de fluorescence X, *infra* p. 154.

sols de travail. Dans le premier cas, un carroyage fin (unités de 10×10 cm) a été défini afin d'améliorer la lecture de l'espace de chauffe et des différentes zones qui l'environnent²¹² (figure 24). Dans le cas des sols de travail exempts de structures, les teneurs métalliques moyennes ont été calculées pour chaque unité stratigraphique à partir de trois dosages par fluorescence X.

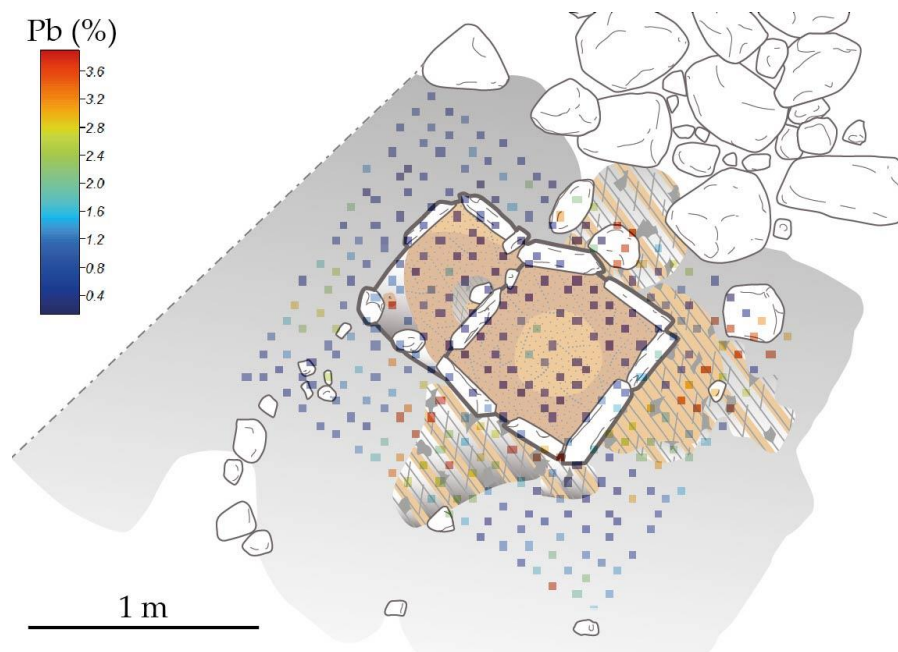


Figure 24 : Localisation des mesures XRF pour les foyers Fy2479 et Fy2482 (teneurs en plomb).

2.3.1.2.2. Interprétation des données : méthodes d'interpolation spatiale

Dans l'optique d'affiner les premières tendances qui se dégagent de l'étude ponctuelle des teneurs en métaux dans les sols et structures de chauffe, le recours à une interpolation spatiale a été envisagé. Cette méthode géostatistique vise à prédire les valeurs des variables régionales²¹³ (ici les teneurs en métaux tels que le plomb, le cuivre et le zinc) en tout point d'un espace donné au moyen d'une interpolation qui se

²¹² Pour les structures de chauffe, ces mesures ont été réalisées par Estelle Camizuli, voir Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains). Document Final de Synthèse 2014*, SRA Midi Pyrénées, Toulouse, 2014, p. 141-144.

²¹³ Une variable est dite régionalisée lorsqu'elle représente un phénomène qui se déploie dans l'espace. La variable régionalisée $F(s)$ est une fonction de l'espace où s est un point de coordonnées (x,y) (cas d'un espace à deux dimensions).

fonde sur les variables déjà connues. Le choix de la méthode d'interpolation la plus adaptée dépend du type des variables étudiées et de leur éventuelle corrélation avec d'autres variables environnementales. Dans sa synthèse sur les géostatistiques, Tomislav Hengl propose un arbre de décision permettant de sélectionner le modèle de prédiction adapté aux variables étudiées (figure 25). La première étape consiste à vérifier si le modèle déterministe suivi par les variables existe. En général, comme dans le cas particulier de notre étude, celui-ci n'est pas connu. Au cours de l'étape suivante, il faut déterminer si la variable régionale considérée est corrélée à d'autres facteurs environnementaux (altitude, nature du sol...). Dans la présente étude, de tels facteurs n'ont pas été pris en compte. La nature et la composition du sol auraient pu présenter un intérêt puisqu'elles influencent le comportement des éléments métalliques qu'il contient. Néanmoins, le caractère homogène de l'argile rubéfiée constituant les foyers nous a conduits à écarter ce paramètre, considérant qu'il affectait uniformément les mesures.

Les corrélations avec des paramètres environnementaux étant écartées, il faut ensuite déterminer si la variable étudiée présente une autocorrélation spatiale, c'est-à-dire une dépendance entre les variables régionalisées : « il s'agit d'essayer de mettre en évidence une relation entre voisins qui serait plus marquée que la relation avec le reste du groupe²¹⁴ ». Par exemple, des variables régionalisées représentant l'altitude d'une butte de terre sont auto-corrélées : elles sont groupées dans l'espace : les altitudes les plus élevées sont proches les unes des autres. A priori, dans le cas de Castel-Minier, on s'attend à une autocorrélation des teneurs en métaux. En effet, les valeurs élevées ne se répartissent pas aléatoirement dans l'espace. Elles ont tendance à se concentrer de manière à définir des zones de travail ou d'épandage.

La mesure de l'autocorrélation fait appel à des tests dont les plus communs sont l'indice de Geary et l'indice de Moran. La statistique de Moran a été mise en œuvre dans notre étude pour investiguer l'auto-corrélation des teneurs en métaux. Elle est

²¹⁴ Oliveau S., « Autocorrélation spatiale : leçons du changement d'échelle », *L'Espace géographique*, 39(1), 2010, p. 51-64.

définie comme le rapport entre la covariance pondérée entre unités voisines et la variance totale observée. Le coefficient obtenu varie entre -1 (auto-corrélation négative parfaite) et 1 (auto-corrélation positive parfaite). Pour les espaces étudiés à Castel-Minier, l'autocorrélation spatiale des teneurs métalliques a pu être vérifiée. Le choix de la méthode d'interpolation s'est donc porté sur le krigeage.

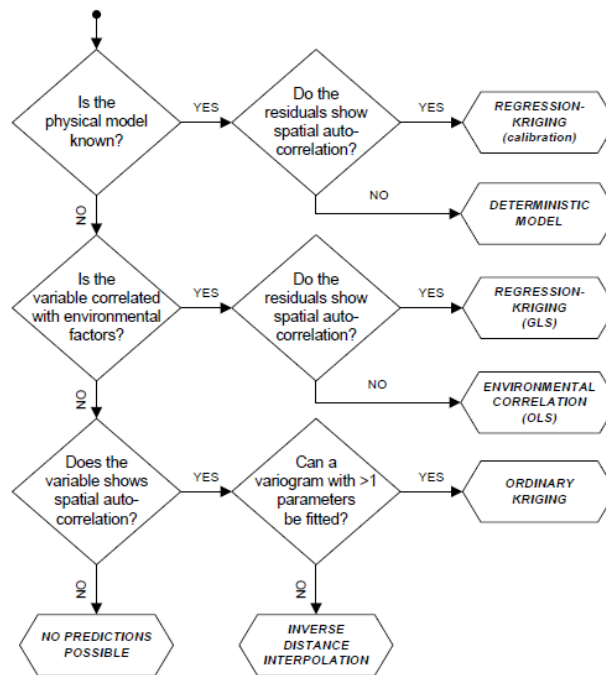


Figure 25 : Arbre de décision pour la sélection d'un modèle de prédiction (d'après Hengl T., *A Practical Guide to Geostatistical Mapping of Environmental Variables*, European Commission Joint Research Centre, Ispra, 2007, p. 31).

2.3.1.2.3. Principe du krigeage

Le krigeage est une méthode d'interpolation spatiale dont le principe consiste à estimer une variable régionalisée F en un point de l'espace s_0 de coordonnées (x, y) à partir des valeurs connues des points environnants (figure 26) :

$$(1) \quad F(s_0) = \sum_{i=1}^n W_i \cdot F(s_i)$$

où les W_i sont les poids des n points voisins connus (s_i) .

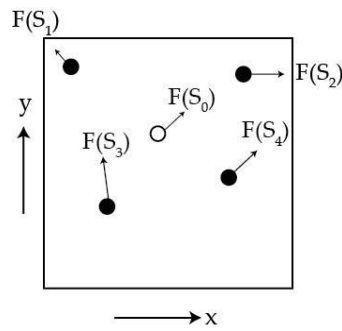


Figure 26 : Schématisation de la procédure d'estimation spatiale. Modifié d'après d'après Hengel T., *A Practical Guide...*, op. cit., p. 9).

L'originalité du krigeage réside dans l'estimation du poids des points environnants. Celle-ci repose sur le calcul de la semi-variance $\gamma(h)$. Cette grandeur représente la variabilité moyenne entre tous les points situés à la distance h les uns des autres :

$$\gamma(h) = \frac{1}{2n} \sum_i^n (F(s_i) - F(s_i + h))^2$$

Avec n : nombre de couples à la distance h .

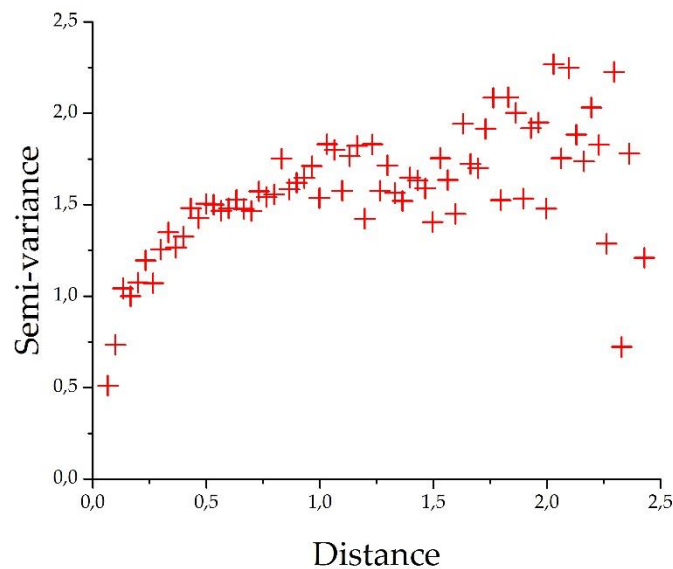


Figure 27 : Semi-variogramme expérimental de la variable régionalisée « plomb » pour le foyer Fy2479.

La représentation des semi-variances en fonction de la distance forme le semi-variogramme. Afin de simplifier leur interprétation, les semi-variances sont moyennées pour des distances standards fixées (figure 27). Le semi-variogramme expérimental est discontinu et il est nécessaire d'ajuster une fonction analytique (linéaire, logarithmique, exponentielle...) de manière à modéliser totalement la semi-variance. Cette étape comporte une part non négligeable de subjectivité puisque l'opérateur peut jouer sur les paramètres du modèle de variogramme choisi de manière à obtenir un ajustement optimal. Ainsi, d'un modèle à l'autre, les poids estimés peuvent différer significativement. La dernière étape consiste à calculer les poids W_i des points connus (s_i) environnants le point d'intérêt (s_0). Il faut alors s'assurer que les semi-variances expérimentales coïncident avec les semi-variances théoriques issues du modèle ajusté. Le problème revient à résoudre l'équation matricielle suivante :

$$A.W = B$$

Où A est la matrice des semi-variances calculées pour les n points connus et B la matrice colonne des semi-variances théoriques. Finalement :

$$W = B.A^{-1}$$

Il est ensuite possible de calculer la valeur de la variable régionalisée F au point (s_0) à partir de l'équation (1).

2.3.1.2.4. Le krigeage en archéologie

Fruit d'une collaboration au milieu du XX^e siècle entre l'ingénieur minier D. G. Krige et le statisticien H. S. Sichel, le krigeage fut développé originellement pour traiter les données issues des prospections minières et notamment modéliser la

distribution des minerais au sein d'un district à partir d'un échantillonnage. La méthode a été étendue aux problématiques géoclimatiques, météorologiques, environnementales ou encore économétriques. Dans le domaine archéologique, l'introduction des géostatistiques a été engagée par Hodder et Orton dans leur étude de l'autocorrélation du rapport longueur/largeur des fers de lance de l'âge du bronze²¹⁵. Depuis, le champ des applications des outils géostatistiques a été étendu pour permettre le traitement des données issues d'autres disciplines archéologiques telles que la palynologie ou encore la céramologie²¹⁶. Néanmoins, et parmi les différents modèles d'interpolation spatiale envisagés, le krigeage n'est pas le plus répandu et le nombre de publications s'y référant est limité. Parmi ces travaux, citons ceux de Zubrow et Harbaugh qui utilisent le krigeage pour prédire la localisation des sites archéologiques dans un espace donné à partir des sites déjà identifiés²¹⁷. Dans leur synthèse, Lloyd et Atkinson²¹⁸ ont recours au krigeage afin d'estimer les teneurs en phosphates des sites archéologiques romains de Laconie à partir d'échantillonnages issus de la *Laconia survey in Greece* conduite par les universités d'Amsterdam et de Nottingham et la British School d'Athènes.

Appliqué à l'archéométaballurgie, le krigeage est un outil adapté au traitement des données géochimiques collectées sur les aires présumées de travail des métaux. Les structures de chauffe sont fréquemment incomplètes sur les sites métallurgiques ce qui rend leur interprétation fonctionnelle délicate. De même, le volume du mobilier métallurgique mis au jour peut être limité et sa représentativité biaisée par l'absence des produits ou demi-produits au profit des déchets. Le recours à l'analyse géochimique des aires de travail peut donc permettre d'appréhender le type de

²¹⁵ Hodder I. et Orton C., *Spatial Analysis in Archaeology*, New Studies in Archaeology 1, Cambridge University Press, Cambridge, 1976.

²¹⁶ Voir la synthèse des applications géostatistiques en archéologie dressée par Lloyd C. D. et Atkinson P. M., « Archaeology and geostatistics », *Journal of Archaeological Science*, 31, 2004, p. 151-165.

²¹⁷ Zubrow E. B. W. et Harbaugh J. W., « Archaeological prospecting: kriging and simulation », In Hodder I. (éd.), *Simulation Studies in Archaeology*, Cambridge University Press, Cambridge, 1978, pp. 109-122.

²¹⁸ Lloyd C. D. et Atkinson P. M., « Archaeology and geostatistics... », *op. cit.*, p. 157 et suivantes.

métallurgie pratiqué au sein des ateliers. En outre, le traitement géostatistique des mesures ouvre un nouveau champ de réflexion sur l'organisation spatiale des espaces de travail. Cette approche a été mise en œuvre par Carey *et al.* dans un article portant sur l'analyse géochimique d'un atelier expérimental de métallurgie secondaire des métaux non-ferreux²¹⁹. Le modèle de prédiction met en évidence des zones de pollution métallique directement corrélées au type de métal/alliage travaillé et à l'étape de la chaîne opératoire correspondante. Néanmoins le krigeage n'est présenté que de manière très succincte dans cette étude et les tests statistiques ayant conduit au choix de cette méthode ne sont pas développés.

Les données issues des dosages réalisés à Castel-Minier ont été interpolées par la méthode du krigeage grâce au module du logiciel libre de géostatistique SAGA (System for Automated Geoscientific Analyses) conçu par l'université de Göttingen. Parmi les nombreux logiciels libres disponibles (Passage, Geoda...) SAGA présente l'avantage d'une interface intuitive et conviviale et permet de gérer à la fois les données matricielles et cartographiques. En outre, il propose différents types de krigeage (simple, ordinaire, universel) ainsi qu'un module permettant au préalable d'effectuer les tests d'auto-corrélation.

Les pollutions métalliques étudiées à Castel-Minier concernent le plomb, le cuivre et le zinc. Ces éléments présentent l'avantage d'avoir été détectés en quantités suffisamment élevées dans les zones de fouilles étudiées pour qu'un apport anthropique puisse être caractérisé. En outre, la corrélation entre ces trois éléments a déjà été observée dans le cas de structures métallurgiques archéologiques²²⁰. Un exemple d'application du krigeage aux foyers de Castel-Minier est présenté ci-dessous

²¹⁹ Carey C. J., Wickstead H. J., Juleff G., Anderson J. C. et Barber M. J., « Geochemical survey and metalworking: analysis of chemical residues derived from experimental nonferrous metallurgical processes in a reconstructed roundhouse », *Journal of Archaeological Science*, 2014, document en ligne, consulté le 17 mai 2017, [<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0305440314001952>].

²²⁰ Cook S. R., Banerjee R. Y., Marshall L.-J., Fulford M., Clarke A. et Van Zwieten C., « Concentrations of copper, zinc and lead as indicators of hearth usage at the Roman town of Calleva Atrebatum (Silchester, Hampshire, UK) », *Journal of Archaeological Science*, 37(4), 2010, p. 871-879 ; Wilson C. A., Davidson D. A. et Cresser M. S., « An evaluation of multielement analysis of historic soil contamination to differentiate space use and former function in and around abandoned farms », *The Holocene*, 15(7), 2005, p. 1094-1099.

(figure 28). Dans ce cas, il est possible d'interpoler la teneur en plomb en chaque point à partir des dosages ponctuels obtenus par spectrométrie de fluorescence X. Les résultats sont précieux pour préciser la fonction de cette structure et sa place parmi les chaînes opératoires identifiées sur le site.

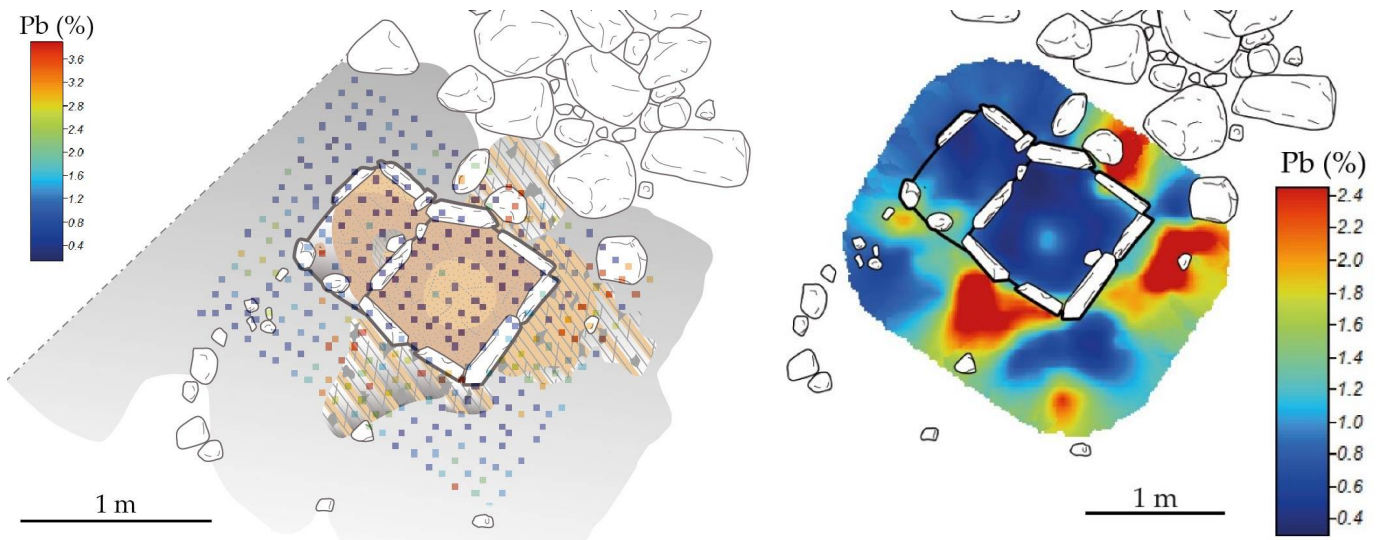


Figure 28 : Interpolation spatiale par krigeage des teneurs en plomb pour le foyer double Fy2479 et Fy2482 (droite) à partir de mesures XRF ponctuelles (gauche).

2.3.1.3. Prospections minières

La recherche sur le terrain des gisements miniers de la vallée du Garbet susceptibles d'avoir été exploités pendant la période médiévale requiert le concours des sources écrites dont l'étude préalable permet d'identifier plusieurs secteurs miniers, restreignant ainsi la superficie des zones à prospecter²²¹. Ce travail préliminaire n'est pas suffisant, particulièrement pour le Couserans médiéval pour lequel l'historien se heurte à la combinaison de la rareté et de la concision des textes traitant du fait minier. Des sources de natures différentes doivent donc être confrontées pour identifier les anciens secteurs miniers au premier rang desquelles figurent les données géologiques. Dans le Couserans, leur étude amène à un constat de complexité et de diversité des terrains et des événements géologiques propices à la

²²¹ Une partie de ce travail est consacrée à cet aspect : *infra*, p. 200.

mise en place de minéralisations. Ce sont en particulier les zones de contact entre des formations d'âge différent – telles que l'interface entre les terrains sédimentaires mésozoïques du fossé d'Aulus et les massifs paléozoïques au sud – et les accidents tectoniques qui ont pu favoriser la mise en place de minéralisations.

Dans le secteur d'Aulus, l'étude géologique a été complétée par un relevé au moyen de la technologie LIDAR²²² (Light Detection And Ranging). Le principe de cette méthode de télédétection repose sur l'interaction entre un faisceau lumineux émis depuis un aéronef et la surface à étudier. L'analyse de l'écho permet de décrire le sol dont un modèle numérique est produit. Cet outil s'est avéré particulièrement adapté à notre zone d'étude dont la topographie et le couvert forestier représentent des obstacles majeurs aux prospections extensives. Le traitement informatisé des données, qui permet de s'affranchir de la canopée, révèle précisément la morphologie du terrain²²³. Les données collectées ont permis l'identification rapide des métallotectes et des aménagements anthropiques liés aux activités minières (haldes, tranchées). En outre, l'accès aux vestiges a été facilité grâce à un repérage préalable des anciens axes de circulation délaissés (chemins des mineurs, voies muletières).

Les vestiges miniers identifiés ont fait l'objet d'une vérification sur le terrain puis d'une étude détaillée qui s'est attachée à décrire à la fois les installations de surface et les travaux souterrains lorsqu'un accès était possible. Les lieux visités ont été précisément géoréférencés grâce à un relevé des coordonnées GPS de manière à les intégrer dans un système d'information géographique. Ce support constitue un outil précieux permettant de construire une cartographie des ressources minières du Couserans médiéval. Parmi les vestiges de surface des activités minières passées, les haldes sont les témoins les plus visibles ; elles sont facilement repérables par l'anomalie topographique qu'elles laissent dans le paysage et, quand elles n'en sont pas

²²² Pour une présentation détaillée de la méthode et ses applications en archéologie voir Georges-Leroy M., Nuninger L. et Opitz R., « Lidar : technique de détection au service de l'archéologie », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : in215, 2014.

²²³ Cette étape informatique longue et complexe a été réalisée par Jürgen Heckes du Deutsches Bergbau-Museum de Bochum.

dépourvues, par la végétation particulière qu'elles accueillent²²⁴. En outre, elles sont fréquemment établies à proximité des accès aux ouvrages souterrains dont elles facilitent la découverte. Le volume des haldes ainsi que les roches qu'elles contiennent renseignent sur l'ampleur de l'extraction et sur la nature des minerais recherchés par les mineurs médiévaux. Elles constituent donc un terrain propice à la collecte d'échantillons géochimiques. Sur le plan archéologique, l'apport des haldes est plus limité pour évaluer l'intérêt économique d'un gisement et les modalités de l'exploitation médiévale.

La halde est par définition une accumulation de roches stériles (gangue ou roche encaissante) et de minerais volontairement écartés pour des raisons techniques (chaînes opératoires inadaptées, métal inconnu) ou économiques (traitement minéralogique trop coûteux, faible teneur en métal). Il peut s'agir de minerais intimement mêlés à la gangue issus d'une minéralisation de type *stockwerk* ou de l'association de minerais non-ferreux dont la séparation ne peut pas être assurée facilement : dans le district minier du Couserans l'exemple le plus frappant est celui des minerais mixtes sphalérite-galène. Le biais méthodologique introduit par la halde, s'il est problématique pour la caractérisation d'un gisement, peut néanmoins être mis à profit pour identifier un seuil de rentabilité. Ainsi, en prélevant de grandes séries de roches issues des haldes et en quantifiant la proportion de minerai et de gangue/roche encaissante, il est possible d'identifier la limite en-dessous de laquelle la roche abattue contenant trop peu de minerai n'entrait plus dans le cycle de métallurgie extractive et était rejetée sur les haldes.

L'étude des haldes est complétée par celle des réseaux miniers souterrains qui constituent une source d'information complémentaire. La morphologie des chantiers, les traces d'outils et les aménagements destinés à l'assistance, l'exhaure ou l'aérage sont des indices permettant de saisir l'ampleur des travaux ainsi que les stratégies d'extraction. Les différents réseaux visités ont fait l'objet d'une description détaillée présentant les propriétés géologiques et gîtologiques des gisements ainsi que

²²⁴ Bailly-Maître M.-C., *L'argent. Du minerai au pouvoir dans la France médiévale...*, op. cit., p. 42.

l'architecture des travaux d'extraction. Ces caractéristiques sont intimement liées entre elles puisque la nature des formations rocheuses rencontrées a pu peser dans le choix des techniques d'abattage tandis que l'étendue et la puissance des minéralisations ont contraint la géométrie du réseau. Les topographies souterraines déjà publiées ont été utilisées et comparées à nos propres relevés.

L'échantillonnage des différentes minéralisations a été possible dans de nombreux cas. Il a été conduit de manière à assurer une couverture exhaustive des réseaux. En théorie, il s'agissait de collecter des minerais dans toutes les portions des faisceaux filoniens rencontrés, c'est-à-dire dans les branches principales et leurs ramifications. Dans la pratique, l'état de certains réseaux n'a pas permis de se conformer à ce plan d'échantillonnage : l'éboulement, l'obstruction, l'inondation ou la fragilité de certaines portions les ont exclus de l'étude. Les minerais prélevés en mine, à l'instar de leurs homologues ramassés dans les haldes, participent de la caractérisation géochimique du gisement. Leur valeur ajoutée tient au fait qu'ils ont été collectés en place dans les minéralisations ce qui permet de mener une réflexion sur le potentiel économique que représentaient les gisements médiévaux. Ainsi, la localisation des prélèvements a été précisément reportée sur les plans topographiques de manière à étudier la variation des minéraux, notamment de leurs teneurs en métaux, selon les chantiers d'abattage. Il est alors possible de proposer, lorsque les prélèvements sont assez nombreux, un modèle chronologique de l'évolution des ressources exploitées.

Il convient enfin de s'interroger sur la représentativité des minerais prélevés à l'échelle d'un gisement. Dans la plupart des cas, ce qui subsiste ne constitue qu'une fraction réduite de la minéralisation originelle qui a pu échapper aux mineurs ou dont la collecte n'était pas jugée rentable. De surcroît, les minéraux résiduels observés aux épontes des filons sont fréquemment altérés : ils se sont transformés en surface en une fine couche d'oxydes, d'hydroxydes ou de carbonates. Bien que ces minéraux secondaires soient des indices fiables orientant le prospecteur vers des reliquats de minéralisation, ils ne représentent pas les minerais recherchés à l'époque médiévale et

ce sont précisément les activités anthropiques, par la modification du milieu souterrain, qui ont conduit à leur formation. Si la multiplication des prélèvements permet de limiter les problèmes de représentativité, elle met fréquemment en évidence l'hétérogénéité des espèces minérales au sein des gisements. Il nous paraît particulièrement important d'insister sur ces problèmes de représentativité et de variabilité dont l'incidence peut être grande sur l'appréciation géochimique et économique d'un gisement. Ainsi, il est permis de s'interroger sur la validité des référentiels géochimiques utilisés dans le cadre des études de provenance fondées sur l'analyse des rapports isotopiques du plomb, en particulier lorsqu'ils sont établis à partir d'un nombre restreint d'échantillons de minerai. Dès lors, quelle peut être la valeur des conjectures sur la provenance de mobiliers archéologiques tirées d'analyses statistiques complexes, si la fiabilité et la représentativité du référentiel ne sont pas assurées²²⁵ ? Les limites des bases de données isotopiques couvrant de larges territoires ont déjà été pointées : faibles connaissances géologiques et minéralogiques des gisements choisis, caractérisation de districts pour lesquels les activités extractives et métallurgiques ne sont pas attestées archéologiquement et enfin faible nombre d'analyses isotopiques pour un gisement/district donné²²⁶.

Depuis quelques années, plusieurs projets de recherches pluridisciplinaires combinant les approches archéologique, minéralogique et géochimique se sont intéressés aux anciennes exploitations minières. Les résultats ont permis de caractériser finement les gisements (autorisant leur intégration dans les études de

²²⁵ Voir à ce sujet la controverse dans la revue *Archaeometry* (vol. 34 issue 2 et vol 35 issue 2) suscitée par les publications de Yener *et al.* (1991) et Sayre *et al.* (1992). Ces auteurs ont produit des synthèses compilant des données isotopiques du plomb pour des districts miniers variés. Surtout, ils développent un outil statistique permettant d'exclure des valeurs « déviantes ». Dans son commentaire de l'article, E. Pernicka pointe le manque de rigueur de certains échantillonnages et l'insuffisance des données géologiques, minéralogiques et géochimiques qui selon lui doivent être améliorées avant d'envisager de quelconques études de provenance : Pernicka E., « Comments on Budd P., Gale D., Pollard A. M., Thomas R. G. and Williams P. A., 'Evaluating Lead Isotope Data: Further Observations' », *Archaeometry*, 35(2), 1993, p. 259-261 et réponse, p. 259-263.

²²⁶ Baron S., Tâmaş C. G. et Mahé-Le Carlier C., « How Mineralogy and Geochemistry Can Improve the Significance of Pb Isotopes in Metal Provenance Studies », *Archaeometry*, 56(4), 2014, p. 665-680.

provenance) et de définir des séquences chronologiques d'exploitation de manière à préciser la place des exploitations dans le contexte économique et technique local voire régional²²⁷.

Les prospections réalisées dans le cadre de nos travaux de thèse s'inscrivent pleinement dans cette démarche notamment à travers l'exemple de la mine de Castel-Minier qui a fait l'objet de l'échantillonnage le plus abouti. Les résultats nous ont conduit à discuter l'intérêt d'une définition globale du potentiel économique d'un gisement, en particulier à partir de la teneur en métal précieux des minerais. Le calcul d'une valeur moyenne pour l'ensemble de la minéralisation ne s'avère pas pertinent et il est préférable de changer de point de vue en se plaçant à l'échelle des chantiers d'abattage qui, pour la plupart, coïncident avec un événement métallogénique tel qu'une ramification ou une variation (pendage, puissance) du faisceau filonien. De cette manière, grâce à des prélèvements géoréférencés et dans certains cas associés à du mobilier datable, il est possible de restituer les différentes séquences d'exploitation et de connaître le potentiel économique des minerais sortis de terre.

2.3.1.4. L'archéologie expérimentale

Parmi les approches de terrain développées dans ce travail, les expérimentations tiennent une place particulière puisqu'elles sont envisagées conjointement avec les fouilles archéologiques et les travaux de laboratoire. La définition la plus satisfaisante, car la plus large et consensuelle, de l'archéologie expérimentale est proposée par J. Heeb et B. S. Ottaway : « meticulously recorded experiments on and with materials and objects which were available at the time for a

²²⁷ Tămaş C. G., Baron S. et Cauuet B., « Minéralogie et signature isotopique du plomb des minerais auro-argentifères exploités durant l'époque romaine à Alburnus Maior (Rosia Montană, Roumanie) », *ArchéoSciences*, 33, 2009, p. 83-89 ; Munteanu G., Kammenthaler E., Rico C., Fabre J.-M. et Beyrie A., « Géo-archéologie du complexe minier gaulois des Barrencs (Aude, France) », *ArchéoSciences*, 40, 2016, document en ligne, consulté le 20 mai 2017, [<https://archeosciences.revues.org/4839>].

better understanding of methods of production and use²²⁸ ». Les expérimentations recouvrent un large spectre de catégories qui ont été formalisées à la fin du XX^e siècle par P. J. Reynolds et catégorisées selon leur nature²²⁹ : la construction, le procédé et la fonction, la simulation, la probabilité et l'innovation technique. Chaque démarche d'archéologie expérimentale se nourrit de données initiales fournies par l'archéologie de terrain qui peuvent être complétées par des analyses de laboratoire. Ces données forment un faisceau d'indices qui permet de formuler des hypothèses concernant les procédés techniques. L'élaboration d'expérimentations spécifiques, qui visent à tester leur validité, s'effectue selon un protocole précis dont les paramètres sont définis à partir des données initiales. La partialité doit être écartée autant que possible et les expérimentations doivent être reproductibles et reproduites de manière à satisfaire les analyses statistiques.

La répétition des expérimentations est en effet fondamentale pour acquérir une certaine maîtrise des gestes techniques. Cette quête de l'immatériel, du « tour de main » et du savoir-faire, est de loin la plus délicate à accomplir puisqu'elle relève pour une large part de la perception sensorielle à laquelle l'instrumentation scientifique ne peut se substituer²³⁰. À titre d'exemples, l'identification olfactive reste le meilleur moyen d'identifier le grillage d'un minerai sulfuré tandis que l'appréciation colorimétrique de la température reste la norme pour le forgeage.

Quelle valeur donner aux résultats des expérimentations ? Un test positif des hypothèses ne les convertit pas en certitudes : il permet uniquement d'isoler une solution possible aux problèmes techniques posés par les données archéologiques. Il est néanmoins réducteur de reléguer l'archéologie expérimentale au rôle d'outil de validation. En effet, les résultats des expérimentations suscitent fréquemment de

²²⁸ Heeb J. et Ottaway B. S., « Experimental Archaeometallurgy », In Roberts B. W. et Thornton C. P. (éd.), *Archaeometallurgy in Global Perspective*, Springer, New York, 2014, p. 161-192.

²²⁹ Reynolds P., « The Nature of Experiment in Archaeology », In Harding A. F. (éd.), *Experiment and Design: Archaeological Studies in Honour of John Coles*, Oxbow, Oxford, 1999, p. 156-162.

²³⁰ Sur les aspects sensoriels des savoir-faire métallurgiques : Kuijpers M. H. G., « The sound of fire, taste of copper, feel of bronze, and colours of the cast. Sensory aspects of metalworking », In Sørensen M. L. S. et Rebay-Salisbury K. (éd.), *Embodied Knowledge. Perspectives on belief and technology*, Oxbow, Oxford, 2013, p. 137-150.

nouvelles idées et fournissent des données sur des étapes techniques qui ne sont pas documentées par l'archéologie.

Dans la cadre de cette thèse, nous n'avons pas envisagé l'archéologie expérimentale comme un *terminus* clôturant plusieurs années de recherche en laboratoire et plusieurs campagnes de fouille, mais comme un élément structurant de nos problématiques. Les sessions d'expérimentations conduites régulièrement et dès le début de la thèse se sont avérées décisives pour la compréhension des ateliers métallurgiques de Castel-Minier. Ainsi l'expérimentation de certaines métallurgies à partir de vestiges archéologiques partiels a permis de produire des artefacts qui n'étaient pas encore documentés archéologiquement et qui par conséquent ont pu être facilement identifiés lors de la poursuite des fouilles.

Les travaux d'archéologie expérimentale se sont déroulés sur la plate-forme d'archéologie des arts du feu installée à Melle (Deux-Sèvres, France) sur un ancien site d'extraction et de transformation de minerai de plomb argentifère actif du VI^e au X^e siècle de notre ère et converti en espace muséal. Ce lieu bénéficie d'une longue expérience en archéologie expérimentale avec de nombreuses réalisations à son actif touchant des espaces géographiques et des périodes variées²³¹. Il offre un cadre privilégié pour la restitution des structures de chauffe et la conduite des opérations métallurgiques.

2.3.2. La caractérisation des matériaux archéologique en laboratoire : démarche analytique

Les recherches en laboratoire conduites sur le mobilier archéologique issu de Castel-Minier ainsi que sur des minerais provenant des prospections constituent un apport majeur à la compréhension fonctionnelle des ateliers de production et à la restitution des chaînes opératoires. Les corpus de mobiliers mis au jour durant les

²³¹ Une partie des travaux a fait l'objet d'un ouvrage de synthèse : Téregeol F. (dir.), *Comprendre les savoir-faire métallurgiques antiques et médiévaux*, Errance, Paris, 2013.

recherches archéologiques sont nombreux et pour certains, notamment les minerais et les scories, représentent des volumes considérables. Les typologies sont variées tandis que l'état de conservation est inégal selon le matériau. L'examen visuel permet de reconnaître préalablement le caractère polyvalent du site de Castel-Minier dont les activités se partagent entre la métallurgie du plomb argentifère et celle du cuivre et de ses alliages. L'étude archéométrique du mobilier est motivée par des problématiques archéologiques, historiques et techniques. Elle a nécessité le développement d'une méthodologie spécifique adaptée à la diversité des corpus étudiés. Les contraintes analytiques engendrées ont justifié le recours à plusieurs techniques de caractérisation afin d'enregistrer toute l'information des matériaux à des échelles et des degrés de précision différents. C'est donc selon une démarche multi-méthodes et multi-échelles que sont envisagées les analyses archéométriques.

Les techniques de caractérisation se regroupent en deux classes : microscopiques et spectrométriques, au sein desquelles une distinction supplémentaire s'établit selon la portabilité de l'instrument de mesure et la non-destructivité des analyses. Certaines des méthodes évoquées ont fait l'objet de développement spécifiques pour les besoins de la thèse tandis que d'autres ont été adaptées à partir de travaux antérieurs. Les analyses ont été réalisées au sein de l'IRAMAT-CEB ou dans d'autres laboratoires dans le cadre de collaborations, notamment avec le Laboratoire Archéométrie et Prévision de l'Altération (LAPA) du Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) de Saclay et à l'Institut des Sciences de la Terre d'Orléans (ISTO).

2.3.2.1. Caractérisation microscopique

2.3.2.2. La microscopie optique

Deux techniques microscopiques ont été mises en œuvre sur le mobilier archéologique : la microscopie optique et la microscopie électronique à balayage. La microscopie optique n'est pas intrinsèquement une méthode destructive : c'est le type de préparation de l'échantillon analysé qui porte cette responsabilité. Il s'agit d'une

technique de caractérisation essentiellement qualitative avec toutefois la possibilité, via un système de traitement d'image, d'analyser la surface (discrimination et proportion des phases). Le dispositif installé à l'IRAMAT-CEB comprend un microscope Nikon Labophot 2 équipé de cinq objectifs X10, X20, X60, X100 et X200 et d'un système d'acquisition d'image associant une caméra numérique et les logiciels de traitement Archimed et Areas de la société Microvision. En outre, il est possible d'effectuer les observations sur fond clair ou noir avec ou sans polarisation.

Dans le cas du mobilier archéologique, la microscopie optique est essentiellement utilisée pour l'observation de surfaces polies sous grossissements moyens à forts. Il s'agit tout d'abord des études minéralogiques des minerais non-ferreux d'une part et des scories associées à leur réduction d'autre part. L'analyse qualitative des minerais permet dans un premier temps d'apprécier leur homogénéité et d'identifier les inclusions qu'ils contiennent. La nature de ces inclusions peut permettre de discriminer les minerais puis d'élaborer une première classification.

Les scories issues de la réduction des minerais non-ferreux présentent, sous certaines conditions de refroidissement, une structure cristallisée dont les constituants peuvent être identifiés en microscopie optique. La nature des minéraux cristallisés ainsi que leur morphologie renseignent sur les paramètres thermodynamiques qui régnaient dans les structures de chauffe, en particulier la température et le caractère oxydant ou réducteur de l'atmosphère. L'identification de ces minéraux, dont certains ne se rencontrent que rarement dans la nature, n'est pas toujours aisée. Néanmoins, quelques précieuses synthèses consacrées exclusivement aux structures cristallines des scories sont disponibles²³².

Enfin, la microscopie optique permet de réaliser l'étude métallographique des métaux et alliages métalliques préalablement préparés. Les échantillons doivent être

²³² Parmi celles-ci figurent le travail précurseur de Hans-Gert Bachmann : *The identification of Slags from Archaeological Sites*, Institute of Archaeology, University of London, Occasional publications n° 6, Londres, 1982, ainsi que l'atlas publié par la Verein Deutscher Eisenhüttenleute, consacré néanmoins aux scories industrielles modernes : *Slag atlas*, Verlag Stahleisen GmbH, Düsseldorf, 1995 (2^e édition).

polis puis attaqués avec une solution adaptée à la nature de l'alliage²³³. Les études métallographiques que nous avons conduites se sont principalement intéressées aux alliages cuivreux pour lesquels une attaque de quelques secondes avec une solution de perchlorure de fer en solution alcoolique sur une surface polie à 1 µm s'est révélée suffisante. L'observation de la surface après attaque permet de déterminer la structure des métaux notamment la taille et la forme des grains, la proportion des phases métalliques, ou encore l'action de la corrosion. Elle permet également d'identifier les déformations plastiques subies par le matériau et les éventuels traitements thermiques. Ces données sont importantes pour identifier l'alliage métallique à partir duquel un objet a été réalisé ainsi que les différentes étapes de sa confection. L'étude métallographique participe donc pleinement à la restitution des chaînes opératoires.

2.3.2.3. La microscopie électronique à balayage

La microscopie électronique à balayage est la seconde technique microscopique employée pour la caractérisation du mobilier métallurgique issu des fouilles de Castel-Minier. Le principe de la méthode repose sur les interactions entre un faisceau d'électrons et la matière étudiée²³⁴. Les électrons, générés par un filament en tungstène dans lequel circule un courant élevé, sont soumis à une tension d'accélération puis focalisés et dirigés vers le matériau disposé dans la chambre d'analyse dans laquelle un vide poussé doit être maintenu pour éviter des collisions avec des particules de gaz

²³³ L'étude métallographique des alliages archéologiques présente quelques particularités inhérentes à leur état de conservation. En particulier, les temps d'attaque doivent être très courts. L'ouvrage de David A. Scott, exclusivement consacré à l'étude métallographique des alliages anciens, présente des protocoles détaillés selon le type de matrice métallique ainsi que de nombreuses études de cas : Scott D. A., *Metallography and Microstructure in Ancient and Historic Metals*, Oxford University Press, Oxford, 1992. En complément, voir la thèse de Frédéric Adamski dont une partie conséquente est consacrée à l'étude métallographique des bronzes antiques : Adamski F., *Ateliers, techniques et artisans du "bronze" en Aquitaine antique de la fin de l'âge du fer à la période gallo-romaine*, thèse de 3^e cycle, Université de Bordeaux 3, 2008, particulièrement p. 91-95 et partie 3.

²³⁴ Pour une présentation détaillée du principe de la microscopie électronique à balayage voir Ruste J., « Microscopie électronique à balayage - Images, applications et développements », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : P866 V2, 2013.

résiduelles. Les interactions élastiques et inélastiques qui se produisent avec les atomes du matériau entraînent respectivement la rétrodiffusion d'électrons du faisceau incident et l'éjection d'électrons (qualifiés de secondaires) du nuage électronique. La détection des électrons rétrodiffusés (BSE) et des électrons secondaires (SE) permet de reconstruire des images.

L'intérêt premier d'un microscope électronique à balayage (MEB) réside dans ses capacités d'imagerie et notamment l'observation de la surface des échantillons sous de forts grossissements. En outre, les images réalisées après interprétation des flux d'électrons, bien qu'elles soient dépourvues de couleur et non réalistes, apportent des informations supplémentaires quant à la structure et la composition chimique du matériau. Les images obtenues à partir d'un détecteur SE rendent compte de la topographie du matériau en exploitant trois contrastes : l'inclinaison (dépendance entre l'angle d'incidence du faisceau et la densité d'électrons secondaires émis), l'ombrage (zones non atteintes par le faisceau et/ou émission qui n'atteignent pas le détecteur) et l'effet d'arête (émission accrue au niveau des arêtes).

Le mode BSE permet quant à lui d'obtenir des images en contraste du numéro atomique. En effet, le flux d'électrons rétrodiffusés dépend de la densité du matériau rencontré : plus celle-ci est élevée, plus la quantité d'électrons rétrodiffusés est importante et plus l'image est brillante. Le couplage du MEB avec un système de microanalyse élémentaire EDX (Energy Dispersive X-ray) permet d'améliorer la caractérisation du mobilier archéologique en déterminant sa composition élémentaire. Le principe de la microanalyse repose sur la mesure des photons X émis lors des transitions électroniques qui marquent le retour à l'état fondamental des atomes ionisés. L'énergie des photons X est caractéristique de l'élément chimique dont ils sont issus. Il est donc possible de connaître la composition élémentaire du matériau étudié en comptant les photons et en mesurant leur énergie.

L'instrumentation de l'IRAMAT-CEB se compose d'un microscope Philips ESEM XL40 doté du système de microanalyse Inca développé par la société Oxford. L'une des particularités de cet appareillage tient aux grandes dimensions de la

chambre d'analyse qui permet d'étudier des objets archéologiques volumineux. De plus, le microscope dispose d'un mode environnemental qui permet d'analyser les échantillons peu conducteurs comme les céramiques ou les scories. En effet, dans le mode classique, ces artefacts sont soumis à un phénomène de charge qui entraîne l'accumulation d'électrons sur la surface de la zone étudiée et dégrade fortement l'image. Un recours possible consiste à enrober les échantillons peu conducteurs dans une résine conductrice puis à les métalliser. Cette solution ne peut pas toujours être envisagée notamment si l'intégrité de l'objet analysé doit être préservée. Dans ce cas, le mode environnemental offre une solution avantageuse au problème de charge. Un vide partiel est appliqué dans la chambre d'analyse dans laquelle est introduit un gaz (de la vapeur d'eau). Les molécules gazeuses interagissent avec le faisceau d'électrons incident en formant des ions positifs qui compensent l'accumulation d'électrons à la surface de l'échantillon. L'obtention d'images est donc permise avec le mode de détection BSE et la microanalyse EDX reste possible.

Dans le cadre de cette thèse, l'imagerie MEB est particulièrement utile pour identifier les structures cristallines des scories de réduction ainsi que pour l'étude des phases métalliques des alliages archéologiques qui complète l'approche métallographique. En outre, la possibilité de réaliser des cartographies X sur une zone de l'échantillon est commode pour étudier la répartition des inclusions disséminées dans les minéraux ou les matrices métalliques. Préalablement aux analyses, les détecteurs sont étalonnés au moyen d'une pastille de cobalt. Les paramètres de travail sont résumés dans le tableau 1.

Vide dans la chambre d'analyse (mode standard)	7,5 à 15 mTorr
Vide dans la chambre d'analyse (mode environnemental)	0,1 à 0,3 Torr
Intensité du faisceau	50 μ A
Tension d'accélération	20 kV
Distance de travail	10 mm
Temps d'analyse	2 à 3 min

Tableau 1 : Paramètres des analyses (E)MEB-EDX conduites à l'IRAMAT-CEB.

La caractérisation par MEB-EDX comprend plusieurs limitations méthodologiques. Tout d'abord, la profondeur analysée est faible car la matière est seulement ionisée sur quelques microns par le faisceau électronique : les mesures élémentaires concernent donc avant tout la surface. Si cette caractéristique n'est pas contraignante pour les sections polies, elle le devient pour les objets archéologiques dont la surface s'altère pendant l'enfouissement. S'il n'est pas possible de les décaper pour atteindre le matériau sain, l'étude de tels artefacts par cette méthode n'est donc pas pertinente. La seconde restriction concerne les limites de détection du système qui ne permettent pas d'une part de mesurer certains éléments légers²³⁵, pour lesquels l'énergie des photons X est trop faible, et d'autre part de quantifier les éléments trop faiblement concentrés. Les compositions élémentaires déterminées par MEB-EDX doivent donc être considérées comme semi-quantitatives.

²³⁵ Les quatre premiers du tableau périodique pour le système instrumental de l'IRAMAT-CEB.

2.3.2.4. Caractérisation spectrométrique qualitative et semi-quantitative

2.3.2.4.1. La spectrométrie de fluorescence X

La spectrométrie de fluorescence X (XRF) est une méthode d'analyse polyvalente, facile à mettre en œuvre, rapide et qui peut être utilisée non seulement en laboratoire, mais également sur le terrain grâce à un dispositif portable. La spectrométrie de fluorescence X est une méthode ponctuelle qui permet de caractériser la surface des matériaux. Les résultats obtenus sont principalement qualitatifs bien que, dans certains cas, grâce à un étalonnage préalable, la composition élémentaire semi-quantitative du matériau puisse être calculée. La technique exploite la capacité des matériaux à fluorescer, c'est-à-dire à émettre des rayons X secondaires après exposition à une source primaire. Le faisceau incident de rayons X est produit grâce à une anode soumise à un bombardement électronique. L'énergie des rayons X primaires dépend du matériau qui compose l'anode : tungstène, molybdène ou argent pour les appareillages utilisés dans nos travaux. Les atomes qui forment le matériau analysé sont ionisés par le faisceau incident : des électrons des orbitales atomiques proches du noyau sont éjectés. Les transitions électroniques qui s'ensuivent libèrent des photons X dont l'énergie est caractéristique de l'atome et de l'orbitale atomique à partir de laquelle s'est opérée la transition (couches K, L, M...). Le comptage des photons et la mesure de leur énergie permettent finalement d'obtenir un spectre d'énergie sur lequel sont distribuées différentes raies qui correspondent aux éléments qui constituent le matériau étudié. Les analyses par spectrométrie de fluorescence X présentées dans ce travail sont issues des appareillages disponibles à l'IMARAT-CEB et au LAPA, leurs caractéristiques sont présentées dans le tableau 2.

	IRAMAT-CEB	LAPA
Fabricant	Brücker	Thermo-Scientific
Modèle	Artax	Niton XLt 700
Portabilité		Oui

Source de rayons X	Tube à rayons X	
Anode	Molybdène ou tungstène	Argent
Résolution du détecteur	160 eV	200 eV
Tension maximale	50 kV	35 kV
Surface excitée	0,03 mm ² à 7 mm ²	200 mm ²

Tableau 2 : Caractéristiques des spectromètres de fluorescence X utilisés.

La principale limitation de cette méthode analytique découle de la profondeur de pénétration limitée du faisceau incident et de la faible distance que peuvent parcourir les photons X réémis. Par conséquent, il est uniquement possible de caractériser la proche surface du matériau (quelques μm). Cette contrainte peut s'avérer rédhibitoire pour les objets archéologiques présentant une couche d'altération qui s'est développée au cours de l'enfouissement. Si un nettoyage permettant de mettre à nu le métal sain n'est pas possible, cette technique doit être écartée au risque de caractériser les produits de corrosion. En outre, la détection des photons X de faible énergie, c'est-à-dire provenant des atomes légers, est un objectif difficilement réalisable. En effet, ces particules risquent d'être absorbées par la matrice ou par l'air qui sépare le matériau du détecteur. Pour diminuer la seconde source d'absorption, l'atmosphère peut être balayée par un flux d'hélium²³⁶. Enfin, les limites de détection de la méthode sont particulièrement élevées, elles tiennent d'une part aux problèmes d'absorption déjà évoqués et d'autre part au bruit de fond du spectre d'énergie qui correspond au rayonnement continu de freinage. Elles dépendent également du numéro atomique de l'élément mesuré et de la source de rayons X utilisée.

Dans le cadre de nos travaux, la spectrométrie de fluorescence X a été envisagée comme une méthode permettant d'établir un premier diagnostic des objets et des structures archéologiques en vue d'une caractérisation ultérieure plus précise. Dans le

²³⁶ Ce dispositif rend possible la détection des éléments légers allant du sodium au soufre.

cas des alliages cuivreux, cette étape préalable a permis de discriminer facilement les bronzes, laitons ou laitons rouges découverts sur le site de Castel-Minier et de choisir en conséquence les techniques d'analyses quantitatives pertinentes et les étalons adaptés. De la même façon, l'identification des minéraux inconnus a été possible au cours de la fouille et une première catégorisation des ressources minières traitées dans les ateliers métallurgiques a pu être envisagée. La détermination des compositions élémentaires semi-quantitatives a été réalisée avec le Niton Xlt 700 uniquement qui dispose de programmes d'analyse adaptés à l'étude des sols, des minerais et des alliages métalliques. Quant à l'appareillage de l'IRAMAT-CEB (Artax) son utilisation s'est limitée à la caractérisation qualitative des matériaux.

2.3.2.4.2. La microspectrométrie Raman

La microspectrométrie Raman a été mise en œuvre pour l'étude des minerais issus des prospections d'une part et des recherches archéologiques d'autre part, dans la cadre d'une collaboration avec le LAPA²³⁷. Il s'agit d'une technique d'observation et de caractérisation des matériaux non-invasive et non-destructive dont les champs d'application sont multiples tant pour l'étude des collections patrimoniales que des mobiliers archéologiques²³⁸. Cependant, elle a été très peu mise en œuvre dans le cadre de recherches en archéologie minière et métallurgique bien que des résultats prometteurs aient mis en lumière son potentiel²³⁹.

Le principe de la microspectrométrie Raman repose sur l'interaction entre une onde lumineuse monochromatique et le matériau étudié. Le faisceau lumineux entraîne la vibration du réseau cristallin (ou des liaisons moléculaires) et une

²³⁷ Flament J., Mercier F., Dubois C. et Téreygeol F., « Mining archaeology and micro-Raman analysis associated to ESEM-EDX: toward chrono-spatial definition of ores consumption in a Pyrenean medieval workshop (14th-16th c.) », *Archaeometry*, à paraître.

²³⁸ État de l'art dans Smith G. D. et Clark R. J. H., « Raman microscopy in archaeological science », *Journal of Archaeological Sciences*, 31, 2004, p. 1137-1160.

²³⁹ Killick D. « From ores to metals », In Roberts B. W. et Thornton C. P. (éd.), *Archaeometallurgy in Global Perspective*, Springer, New York, 2004, p. 11-45.

modification de son énergie qui peut être représentée par un décalage en nombre d'onde. Les décalages sont caractéristiques du matériau étudié. Ils sont représentés, avec leur intensité, sous la forme de bande sur un spectre Raman (figure 29). L'identification des matériaux passe par une comparaison des spectres Raman avec ceux contenus dans la littérature ou avec des spectres de référence regroupés dans des bases de données²⁴⁰. La préparation préalable des échantillons est indispensable : elle comprend une mise en résine et un polissage au micron.

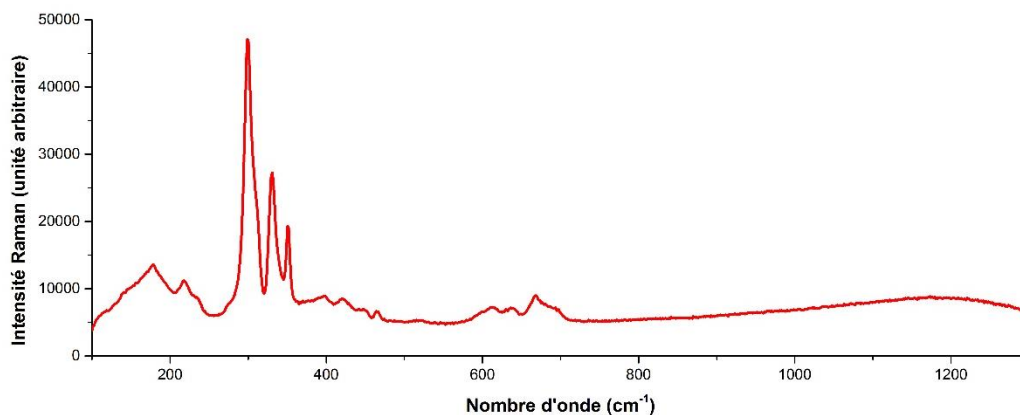


Figure 29 : Spectre Raman de la sphalérite. Énergie du faisceau : 0,1 mW, temps d'analyse : 60 s.

La microspectrométrie Raman est adaptée à la fois à la caractérisation des minerais métalliques et à celle de la gangue/roche encaissante qui l'accompagne. La rapidité et la facilité de mise en œuvre autorisent l'étude de larges séries. De plus, la résolution spatiale (de l'ordre de 1 μm) permet d'étudier les inclusions contenues dans les minerais et dont la nature participe à la caractérisation géochimique des gisements dont ils proviennent. Quant aux limitations de la méthode, elles concernent en premier lieu la fluorescence qui peut apparaître durant les analyses et détériorer la qualité du spectre Raman. De plus, certains matériaux sont « silencieux » c'est-à-dire que leur interaction avec le faisceau lumineux n'engendre pas de décalage Raman : pour ce qui nous intéresse, c'est le cas en particulier de la galène (PbS) et des métaux. En outre, les

²⁴⁰ Projet RRUFF (rruff.info) et « Handbook of Minerals Raman Spectra » de l'École normale supérieure de Lyon, document en ligne, consulté le 20 mai 2017, [<http://www.ens-lyon.fr/LST/Raman/index.php>].

spectres résultant de l'analyse d'objets archéologiques présentent fréquemment une variabilité qui s'explique par l'altération qu'ils ont subie au cours de l'enfouissement et qui a pu entraîner des modifications de leur structure atomique compliquant l'identification du matériau.

Les analyses Raman des minerais ont été réalisées à température ambiante au moyen d'un spectromètre Invia Reflex et avec une longueur d'onde d'excitation produite par un laser Nd : YAG doublé en fréquence émettant à 532 nm. Le spectromètre est focalisé sur l'échantillon au moyen d'un microscope optique disposant de plusieurs objectifs (X5, X20, X50, X100 et un objectif longue distance X50). Ce couplage est très utile pour l'étude des minerais très hétérogènes puisqu'il permet de sélectionner précisément de très petites zones d'analyse. Le diamètre du faisceau est de 1 μm et la profondeur d'investigation est d'environ 1 μm . Préalablement aux analyses, une calibration de l'énergie du spectromètre est réalisée au moyen d'un cristal de silicium. Le temps d'acquisition des spectres est fixé à 60 s et la puissance du faisceau est adaptée pour chaque phase minérale analysée de manière à éviter leur transformation²⁴¹. Pour l'analyse des phases sulfurées, la puissance du laser est filtrée et fixée à 0,1 mW. Cette valeur est réduite à 0,05 mW pour l'analyse de la gangue/roche encaissante. L'acquisition du signal et son traitement ont été réalisés avec le logiciel Wire 3.4. Les spectres sont enregistrés avec une résolution de 2 cm^{-1} . Dans ce travail, ils sont toujours présentés bruts, c'est-à-dire sans lissage ni ajustement de courbe.

²⁴¹ Par exemple la transformation de la galène en oxydes ou sulfates : Shapter J. G., Brooker M. H. et Skinner W. M., « Observation of the oxidation of galena using Raman spectroscopy », *International Journal of Mineral Processing*, 60, 2000, p. 199-211 ; Mercier-Bion F. et Téreygeol F., « Suivi de la fusion de la galène de Melle (79) par microspectroscopie Raman », *ArchéoSciences*, 2016, p. 137-148.

2.3.2.5. Caractérisation spectrométrique quantitative : la spectrométrie de masse à plasma avec prélèvement laser (LA-ICP-MS)

2.3.2.5.1. Présentation de la méthode

Au sein du spectre des techniques d'analyse qui constitue notre méthodologie archéométrique, la spectrométrie de masse à plasma avec prélèvement laser (LA-ICP-MS) occupe une place de choix. De nombreux matériaux de notre corpus ont été caractérisés grâce à cette méthode. Certaines matrices ont nécessité le développement de protocoles d'analyse spécifiques, notamment les alliages à base de cuivre ou les minerais sulfurés, tandis que d'autres ont été caractérisées au utilisant des protocoles développés à l'IRAMAT-CEB dans le cadre de travaux antérieurs avec parfois quelques ajustements mineurs.

La spectrométrie de masse à plasma avec prélèvement laser est une technique de caractérisation multi-élémentaire qui permet d'étudier une large gamme de matériaux de façon très précise grâce à la possibilité de mesurer les éléments majeurs et traces. Le faible volume de matière prélevé (autour du millièème de mm³) préserve l'intégrité des objets analysés et permet de considérer la technique LA-ICP-MS comme peu invasive.

La plate-forme analytique de l'IRAMAT-CEB est formée d'un système de prélèvement couplé à un spectromètre de masse. Le système de prélèvement se compose d'une cellule, dans laquelle sont disposés les échantillons, et d'un laser à impulsions courtes (durée de l'ordre de 6 à 8 ns) conçu par la société Resonetics (modèle RESolution S155-E). Le rayonnement laser est généré au moyen d'un excimère ArF qui émet dans l'ultraviolet (193 nm). Le faisceau laser emprunte ensuite un chemin optique qui permet de l'homogénéiser, de choisir son diamètre (de 2 µm à 100 µm) puis de le focaliser sur l'échantillon à analyser (figure 31).

Le faisceau laser couvre une gamme d'énergie qui s'étend de 0,1 à 15 mJ tandis que la fréquence des impulsions peut être ajustée de 0,1 à 300 Hz. Les interactions entre le laser et le matériau analysé sont complexes et peuvent se résumer en trois étapes :

l'ablation, l'éjection des particules et la formation puis l'expansion d'un aérosol. Ce dernier est entraîné vers le spectromètre de masse au moyen d'un mélange gazeux porteur, composé d'argon et d'hélium, qui balaie la cellule.

Un système de caméra vidéo doté de plusieurs grossissements permet d'observer la surface de l'échantillon en temps réel et de sélectionner précisément les zones d'intérêt. L'originalité de l'installation réside dans la possibilité d'analyser des objets de grandes dimensions grâce à une large gamme de cellules d'ablation (figure 30).

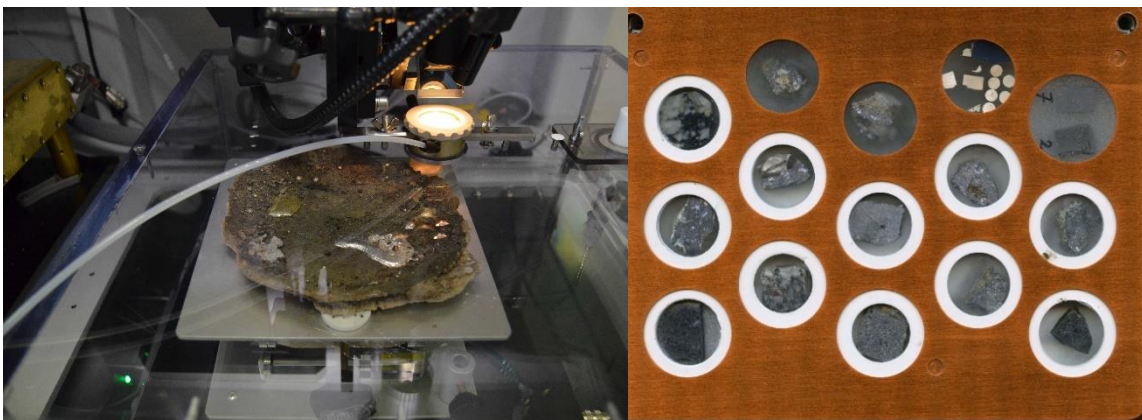


Figure 30 : À gauche, sole de coupellation en cours d'analyse dans la grande cellule (diamètre de la sole : 15 cm).
À droite, minerais en cours d'analyse dans la cellule S155 (diamètre des pastilles : 30 mm).

Le spectromètre couplé au système de prélèvement laser est un modèle Element XR de la société Thermo Fischer Scientific. Cet équipement se compose d'une torche à plasma, d'une interface, d'un analyseur doté de secteurs magnétique et électrostatique et d'un système de détection des ions (figure 31). Le mélange gazeux transportant les particules prélevées par le laser est tout d'abord introduit dans la torche dans laquelle des électrons sont créés par des décharges électriques successives. Ces particules élémentaires sont ensuite accélérées par un champ magnétique produit par une bobine d'induction puis entrent en collision avec les atomes du mélange gazeux, conduisant à la formation d'ions au sein d'un plasma de très haute température (de l'ordre de 5000 K).

L'interface permet de lier le système d'ionisation au spectromètre de masse. Elle doit remplir plusieurs conditions : extraire les ions en quantité suffisante, résister à une température élevée, passer de la pression atmosphérique à une pression réduite (indispensable pour le fonctionnement du spectromètre de masse) et éviter les réactions parasites pendant l'extraction. L'interface utilise la technique du jet supersonique, qui permet de prélever un gaz à pression atmosphérique. Un premier cône, appelé « échantillonneur », est utilisé pour prélever les ions du plasma. Un vide poussé (de l'ordre de 10^2 Pa) est établi derrière ce premier cône. Il se produit alors un jet supersonique qui permet d'aspirer le gaz. L'expansion de celui-ci en aval du cône échantillonneur conduit à un refroidissement important. Un second cône, dit « écorceur », prélève le centre du jet supersonique. Une fois passé le second cône, le faisceau d'ions divergent est focalisé au moyen d'une optique ionique (lentilles électrostatiques) de manière à le rendre concentrique à l'axe de l'analyseur de masse. Seules les particules électriquement chargées sont focalisées. Le faisceau d'ions pénètre ensuite dans l'analyseur composé de secteurs magnétique et électrostatique dans lequel il est focalisé respectivement en direction et en énergie. Dans le premier secteur, la variation du champ magnétique permet de trier les ions selon le rapport masse/charge. Dans le second, la trajectoire des ions est déviée en fonction de leur énergie cinétique.

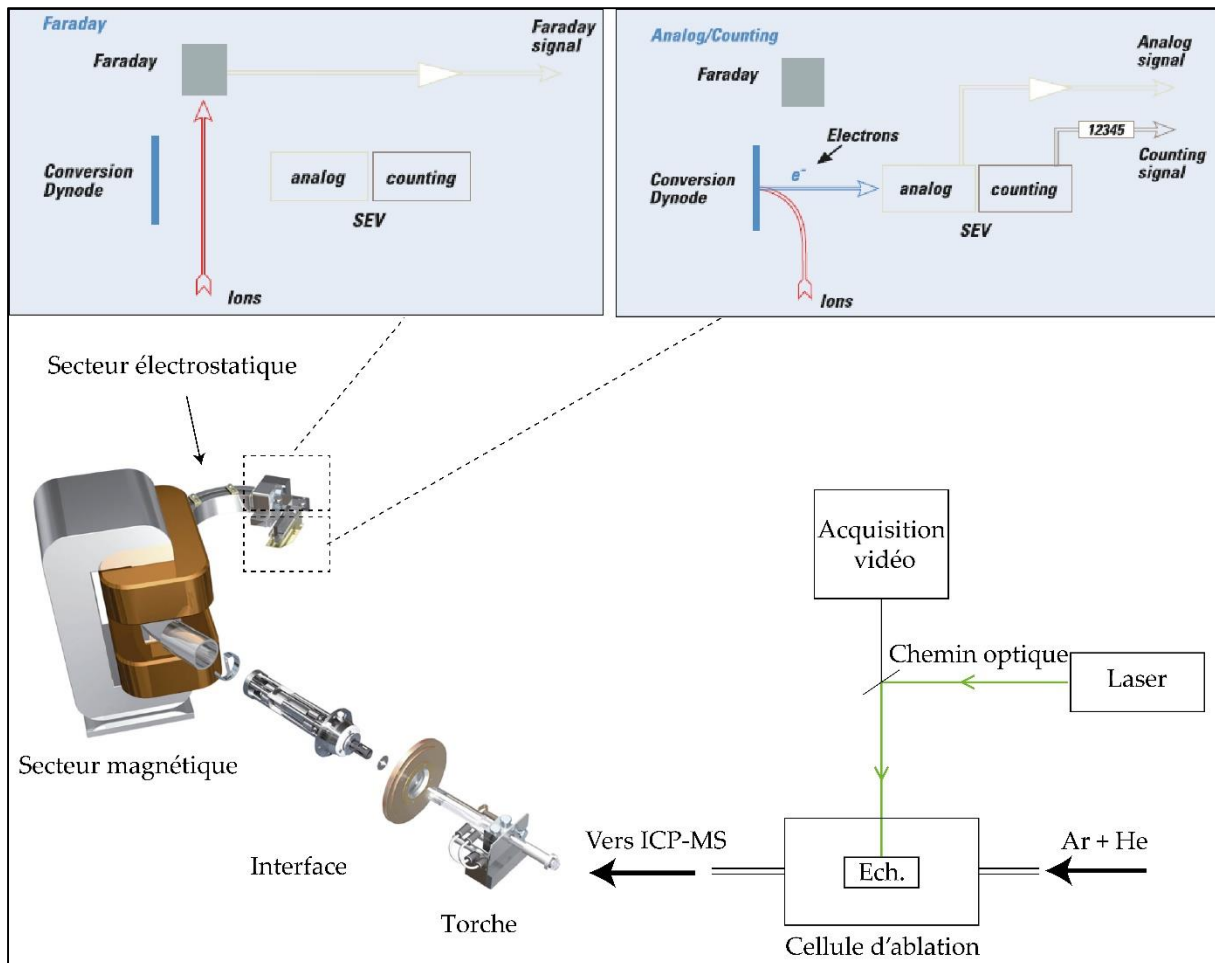


Figure 31 : Schéma de principe du système LA-ICP-MS et détails des modes de détection. Modifié d'après la documentation du constructeur : *Thermo Scientific ELEMENT XR: Extended Dynamic Range High Resolution ICP-MS*, Application Note : 30064, 2007.

La détection des ions est assurée par un collecteur de Faraday ou un multiplicateur d'électrons (figure 31). Dans le premier cas, les ions heurtent une cage de Faraday créant ainsi un courant de décharge qui est amplifié et mesuré. Ce système de détection est préféré pour la mesure des éléments majeurs pour lesquels les électrons ont des taux de comptage compris entre 5×10^7 et 1×10^{12} coups.ms⁻¹. Quant au multiplicateur d'électrons, il est formé de dynodes discrètes qui permettent de convertir les ions en électrons puis de les multiplier et de les focaliser vers un système de détection doté de deux modes : *analog* et *counting*, dont le choix dépend du nombre d'électrons à compter (entre 5×10^4 et 1×10^9 coups.ms⁻¹ pour le mode *analog* ; entre 0,2 et 5×10^6 coups.ms⁻¹ pour le mode *counting*). Le spectromètre de masse est capable de

basculer d'un mode à un autre au cours de l'analyse en fonction de l'évolution de la matrice étudiée et de la sensibilité.

Les données récupérées sont de deux types selon le mode d'intégration des signaux. Il s'agit d'une part d'un chromatogramme qui représente, en nombre de coups, la variation de l'intensité du flux d'électrons en fonction du temps et d'autre part d'un tableau contenant l'intensité moyenne du flux d'électrons sur l'ensemble de l'analyse. La méthode de calcul des concentrations que nous avons appliquée dans nos travaux a été développée par Bernard Gratuze et repose sur une calibration interne et externe²⁴². Le bruit de fond, mesuré préalablement à chaque analyse, est tout d'abord retranché du signal brut pour obtenir le signal net de chaque isotope. Ce signal est corrigé par le facteur d'abondance de l'isotope qu'il représente afin d'obtenir l'intensité totale de l'élément chimique. Il est ensuite rapporté à celui d'un isotope particulier, l'étalon interne, de manière à s'affranchir des effets de matrice et des variations dans le rendement de l'extraction et le transport de l'aérosol. Le choix de l'étalon interne répond à certaines contraintes : les autres isotopes ne doivent pas fractionner par rapport à lui, sa répartition doit être homogène dans l'échantillon et dans les matériaux de référence et sa concentration largement supérieure aux limites de détection. Afin de déterminer les concentrations des éléments présents dans les échantillons, il est nécessaire de recourir à un étalonnage externe. Pour cela, on utilise des matériaux de référence dont les teneurs élémentaires sont certifiées. Il est alors possible d'établir une relation entre les concentrations des échantillons et des étalons. Cette relation s'exprime par le coefficient de sensibilité K. Ce coefficient se calcule grâce aux étalons dont les concentrations sont connues :

$$(1) \quad K = \frac{I_{\text{yet}}}{I_{\text{eiet}}} \times \frac{[e]_{\text{et}}}{[Y]_{\text{et}}}$$

²⁴² Gratuze B., « Obsidian Characterization by Laser Ablation ICP-MS and its Application to Prehistoric Trade in the Mediterranean and the Near East: Sources and Distribution of Obsidian within the Aegean and Anatolia », *Journal of Archaeological Science*, 26, 1999, p. 869-881.

Avec $I_{Y_{et}}$ et $I_{ei_{et}}$ les intensités de l'élément Y et de l'étalon interne ; $[ei]_{et}$ et $[Y]_{et}$ les concentrations de l'élément Y et de l'étalon interne dans l'étalon. Le coefficient de sensibilité est constant pour des matrices similaires ce qui permet d'écrire :

$$(2) \quad K = \frac{I_{Y_{ech}}}{I_{ei_{ech}}} \times \frac{[ei]_{ech}}{[Y]_{ech}}$$

Avec $I_{Y_{ech}}$ et $I_{ei_{ech}}$ les intensités de l'élément Y et de l'étalon interne ; $[ei]_{ech}$ et $[Y]_{ech}$ les concentrations de l'élément Y et de l'étalon interne dans l'échantillon. L'équivalence entre (1) et (2) permet d'écrire :

$$[Y]_{ech} = \frac{I_{Y_{ech}}}{I_{ei_{ech}}} \times \frac{[ei]_{ech}}{[ei]_{et}} \times \frac{I_{ei_{et}}}{I_{Y_{et}}} \times [Y]_{et}$$

Où, en faisant apparaître K :

$$[Y]_{ech} = \frac{I_{Y_{ech}}}{I_{ei_{ech}}} \times \frac{[ei]_{ech}}{K}$$

La teneur en étalon interne dans l'échantillon $[ei]_{ech}$ n'étant pas connue, on l'élimine en effectuant une normalisation à partir de tous les éléments qu'il contient. Cette opération est possible si l'on suppose que la somme de toutes les teneurs est égale à 1. Finalement :

$$[Y]_{ech} = \frac{\frac{I_{Y_{ech}}}{I_{ei_{ech}}} \times \frac{[ei]_{ech}}{K}}{\sum_i \frac{I_{i_{ech}}}{I_{ei_{ech}}} \times \frac{[ei]_{ech}}{K}}$$

$$[Y]_{ech} = \frac{\frac{I_{Y_{ech}}}{I_{ei_{ech}}} \times K}{\sum_i \frac{I_{i_{ech}}}{I_{ei_{ech}}} \times K}$$

Cette méthode de calcul permet de déterminer la concentration de tous les éléments sous réserve qu'ils soient également contenus dans des matériaux de référence et quelle que soit leur gamme de concentration. La précision et la reproductibilité des résultats obtenus dépendent de plusieurs facteurs dont certains sont discutés dans la suite. Les principaux concernent d'une part le système de prélèvement, en particulier les paramètres de l'ablation laser ainsi que la géométrie de la cellule, et d'autre part le spectromètre de masse à plasma notamment la qualité de l'ionisation dans la torche et la sensibilité de la détection.

Les principales limitations de la méthode LA-ICP-MS tiennent d'une part à la nature des échantillons analysés et d'autre part aux particularités de l'analyse spectrométrique et au mode de calcul des teneurs élémentaires. Par nature, le prélèvement laser est ponctuel avec une surface d'échantillonnage maximale inscrite dans un cercle de 100 μm de diamètre. Selon l'homogénéité des matrices étudiées, en particulier pour les structures polyphasées, la représentativité des résultats peut être insatisfaisante même en multipliant les analyses sur un même échantillon. Il convient donc d'effectuer des intercomparaisons avec des techniques de caractérisation globales, notamment les méthodes nucléaires, de manière à évaluer la représentativité des analyses ponctuelles par LA-ICP-MS.

Par ailleurs, le calcul des concentrations requiert des matériaux de référence ayant une matrice similaire aux artefacts étudiés et contenant l'ensemble des éléments dosés. Les étalons disponibles dans le commerce sont destinés à la caractérisation de matériaux modernes dont les standards qualitatifs sont très différents de leurs homologues archéologiques, tout particulièrement au niveau des niveaux d'impuretés. Cette contrainte a conduit fréquemment les équipes de recherche travaillant sur les archéomatériaux à concevoir des étalons adaptés aux particularités des matrices analysées.

Enfin, les limites instrumentales concernent l'ionisation des particules prélevées et leur détection. Dans la torche, certains éléments peuvent former des ions doublement chargés d'autant plus facilement que leur énergie de seconde ionisation

est inférieure à l'énergie de première ionisation des gaz du plasma (hélium et argon)²⁴³. De surcroît, certaines interférences peuvent se produire au cours de l'analyse, entraînant une détection qui ne correspond pas exclusivement à l'espèce attendue à une valeur de rapport masse/charge. C'est le cas des interférences isobariques qui interviennent lorsque deux éléments disposent d'un isotope à la même masse (par exemple ¹¹⁵Sn et ¹¹⁵In). Au sein du plasma, des interférences polyatomiques qui résultent de la recombinaison de plusieurs ions issus du matériau analysé et du mélange gazeux assurant le transport peuvent également se produire. Elles sont induites principalement par les espèces composées de ¹⁶O, de ⁴⁰Ar et dans une moindre mesure de ⁴He. Ainsi l'isotope du fer ⁵⁶Fe est interféré par le composé ⁴⁰Ar¹⁶O de même que ⁴⁰Ar¹H avec ⁴¹Ca. Ces différents conflits peuvent être en partie évités en choisissant judicieusement les isotopes mesurés. On privilégiera donc, s'il existe, un isotope non-confluciel avec néanmoins le risque de voir la sensibilité de la détection diminuer si son abondance est moindre.

2.3.2.5.2. Intérêt de la méthode LA-ICP-MS en archéométrie

Développée par Gray²⁴⁴ à partir de 1985, la technique de caractérisation reposant sur le couplage d'un laser et d'un spectromètre de masse a bénéficié d'un essor rapide marqué par la diversification des applications et l'élargissement à de nouveaux champs disciplinaires tels que l'archéométrie. La non-destructivité des analyses, leur rapidité et la précision des résultats obtenus ont permis à cette méthode de s'imposer comme un outil de tout premier plan pour les analyses multi-élémentaires d'objets archéologiques de natures variées. Les premières recherches ont été engagées dans les

²⁴³ Jeffries T. E., « Laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry », *In* Janssens K. et Van Grieken R. (éd.), *Comprehensive Analytical Chemistry XLII*, Elsevier, Amsterdam, 2004, p. 313-358.

²⁴⁴ Gray A. L., « Solid sample introduction by laser ablation for inductively coupled plasma source mass spectrometry », *Analyst*, 110, 1985, p. 551-556.

années 1990 sur différents corpus de mobilier vitreux naturels ou artificiels²⁴⁵. Le potentiel des analyses LA-ICP-MS pour la mesure des éléments majeurs et traces a été clairement démontré et plusieurs thématiques de recherche ont été engagées, en particulier à l'IRAMAT-CEB, qu'il s'agisse de l'étude de la qualité des productions, de la compréhension des chaînes opératoires ou encore de la reconstruction des réseaux d'échange et de circulation des matières premières et des produits finis²⁴⁶.

L'introduction de l'échantillon à l'état solide dans le spectromètre de masse présente un avantage déterminant qui a permis, au cours de la dernière décennie, le développement de protocoles spécifiques pour l'étude des matrices métalliques archéologiques²⁴⁷. Contrairement à une mise en solution, le prélèvement laser préserve l'information spatiale attachée à la composition élémentaire du matériau. En d'autres termes, il est possible d'étudier le profil de concentration à mesure que le laser pénètre dans le matériau. Cet avantage a été mis à profit pour l'étude des matériaux métalliques archéologiques pour lesquels la surface est fréquemment altérée suite à un séjour prolongé dans le sol. L'épaisseur de la corrosion qui recouvre les objets peut être significative et, dans certains cas, un décapage mécanique pour atteindre le métal sain ne peut être envisagé. En outre, pour certains alliages métalliques, la corrosion peut être différentielle et n'affecter qu'une partie des métaux qui les composent. C'est le cas par exemple du cuivre lorsqu'il est allié avec l'argent : le potentiel d'oxydoréduction moins élevé du métal rouge entraîne son oxydation et son élimination à la surface de l'alliage. Par conséquent, si la composition est mesurée en surface, elle n'est pas représentative de l'alliage sain : l'argent est surestimé, c'est le

²⁴⁵ Gratuze B., Giovagnoli A., Barrandon J.-N., Telouk P., Imbert J.-L., « Apport de la méthode ICP-MS couplée à l'ablation laser pour la caractérisation des archéomatériaux », *Revue d'Archéométrie*, 17, 1993, p. 89-104 ; Gratuze B. « Obsidian Characterization... », *op. cit.* ; Telouk P., *Développements de la spectrométrie ICP-MS dans les domaines de l'archéologie et de la géologie, Utilisation de l'ablation laser*, Thèse de 3^e cycle, Université de Lyon, 1993.

²⁴⁶ Pour une synthèse récente sur les développements de l'analyse LA-ICP-MS appliquée à l'archéologie voir Dussubieux L., Golitko M. et Gratuze B. (éd.), *Recent Advances in Laser Ablation ICP-MS for Archaeology*, Springer-Verlag, Berlin, 2016.

²⁴⁷ Guerra M. F., Sarthre C.-O., Gondonneau A. et Barrandon, J.-N., « Precious metals and provenance enquiries using LA-ICP-MS. *Journal of Archaeological Science.* », 26, 1999, p. 1101-1110.

phénomène d'enrichissement de surface²⁴⁸. Ses origines sont en réalité multiples : l'altération post-dépositionnelle est la cause majeure à laquelle s'ajoutent plusieurs mécanismes physico-chimiques à l'œuvre dès la fabrication des objets métalliques notamment les ségrégations pendant la fonte ou les traitements thermiques durant les opérations mécaniques de mise en forme²⁴⁹. Le problème de l'enrichissement de surface se pose également pour les alliages cuivreux archéologiques notamment pour les bronzes et les laitons qui peuvent présenter respectivement un enrichissement de surface en étain et une dézincification.

La méthode LA-ICP-MS apporte une réponse efficace aux problèmes de corrosion et d'enrichissement de surface²⁵⁰. La réalisation d'une pré-ablation sans acquisition du signal permet tout d'abord de s'affranchir d'une partie de la corrosion. Dans un second temps, l'analyse du profil de concentration permet d'apprécier un éventuel enrichissement de surface puis d'identifier la portion représentative du métal sain (figure 32). Les capacités d'analyse en profil de la méthode LA-ICP-MS, qui pallient les problèmes de corrosion tout en préservant l'intégrité des artefacts,

²⁴⁸ Le phénomène a été décrit pour la première fois par E. T. Hall : « Surface-enrichment of buried metals », *Archaeometry*, 4, 1961, p. 62-66. Voir également Condamin J. et Picon M., « Changes Suffered by Coins in the Course of the Time and the Influence of the results of Different Methods of Analysis. », In Hall E. T. et Metcalf D. M. (éd.), *Methods of Chemical and Metallurgical Investigation of Ancient Coinage*, Royal Numismatic Society, 1972, p. 49-66.

²⁴⁹ Le caractère multi-causal de l'enrichissement de surface a été mis en évidence pour les alliages monétaires médiévaux cuivre-argent et la contribution de chaque étape de la chaîne opératoire de production a pu être appréciée. Voir en particulier les travaux de thèse d'Adrien Arles, *Entre monnayage officiel et faux-monnayage. La fabrication de la monnaie au marteau en France (XIII^e - XVII^e siècles). Approche physico-chimique, expérimentale et historique*, thèse de 3^e cycle, Université d'Orléans, 2009 ; Beck L., Alloin E., Berthier C., Réveillon S. et Costa V., « Silver surface enrichment controlled by simultaneous RBS for reliable PIXE analysis of ancient coins », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 266(10), 2008, p. 2320-2324.

²⁵⁰ Gratuze B., Blet-Lemarquand M. et Barrandon J.-N., « Caractérisation des alliages monétaires à base d'or par LA-ICP-MS », *Bulletin de la Société Française de Numismatique*, 6, 2004, p. 162-168 ; Sarah G. et Gratuze B. « LA-ICP-MS Analysis of Ancient Silver Coins Using Concentration Profiles. » In Dussubieux L., Golitko M. et Gratuze B. (éd.), *Recent Advances in Laser Ablation ICP-MS for Archaeology*, Springer-Verlag, Berlin, 2016, p. 73-87.

permettent également d'étudier des objets hétérogènes en s'intéressant aux différents matériaux qui les composent²⁵¹.

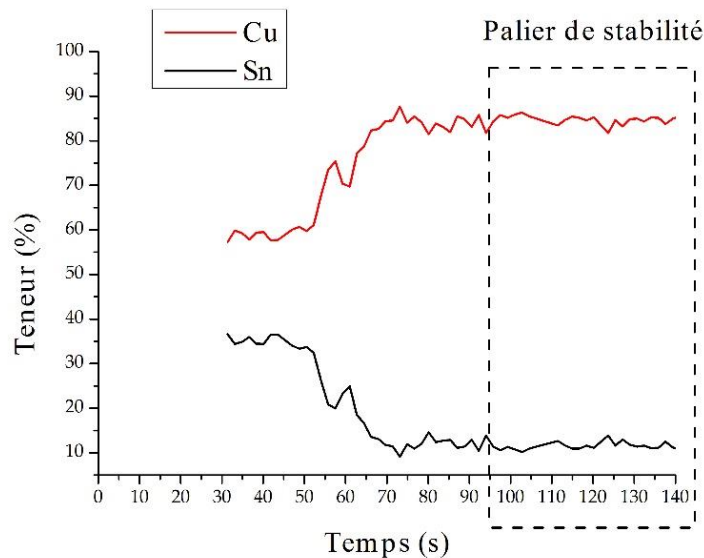


Figure 32 : Analyse LA-ICP-MS en profil d'un bronze archéologique issu de Castel-Minier (CL 10138). Mise en évidence de l'enrichissement de surface en étain et identification du palier de stabilité qui représente la composition de l'alliage sain.

2.3.2.5.3. Protocole d'analyse des matrices plombées

2.3.2.5.3.1. État de l'art

Les matrices à base de plomb constituent une proportion importante de notre corpus archéologique qu'il s'agisse de sulfures (galène), d'oxydes (litharges) ou de métaux. Ces matériaux présentent fréquemment des teneurs en éléments-traces qu'il convient de quantifier de manière à apprécier leur « qualité », leur place dans les chaînes opératoires de métallurgie extractive, mais également leur devenir. Pour autant, l'analyse élémentaire des matrices plombées se heurte à plusieurs contraintes qu'il est difficile de surmonter avec les techniques classiques de

²⁵¹ Mason P. R. et Mank A. J. G., « Depth-resolved analysis in multi-layered glass and metal materials using laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry (LA-ICP-MS) », *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 16(12), 2001, p. 1381-1388 ; Neff H., « Analysis of Mesoamerican Plumbate Pottery Surfaces by Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (LA-ICP-MS) », *Journal of Archaeological Science*, 30(1), 2003, p. 21-35.

caractérisation des matériaux. En effet, les teneurs en éléments-traces sont fréquemment inférieures à 0,1 %, soit en-deçà des limites de détection des principales méthodes d'investigation qu'il s'agisse de la microanalyse électronique à balayage ou de la spectrométrie de fluorescence X. Par ailleurs, l'analyse globale par les méthodes nucléaires, notamment l'activation neutronique, est rendue délicate par le phénomène d'autoabsorption. En effet, les émissions γ de faible énergie créées à partir du plomb sont absorbées en partie par la matrice – d'autant plus facilement que la teneur en plomb et l'épaisseur de l'échantillon sont importantes – et n'atteignent pas le détecteur²⁵². Pour tenir compte de ce phénomène, il est donc nécessaire d'établir plusieurs corrections qui peuvent nuire à la qualité des résultats. À cette contrainte s'ajoute celle de la durée relativement longue des analyses (plusieurs jours) et l'observation de mesures de radioprotection.

La méthode LA-ICP-MS est une alternative pertinente aux contraintes analytiques que pose l'étude des matrices plumbeuses. Les travaux de développement méthodologiques ont été menés à l'IRAMAT-CEB par Adrien Arles entre 2010 et 2012 dans le cadre d'un projet post-doctoral. Les premières applications ont concerné des plombs architecturaux, notamment les tables de couverture de la cathédrale de Beauvais pour lesquelles la mesure des éléments-traces a permis d'établir un phasage relatif des différents chantiers de construction et de réfection²⁵³. Par la suite, la méthode a été étendue à l'étude d'autres édifices²⁵⁴, mais également à des demi-produits découverts en contexte halieutique²⁵⁵. Une publication récente fait le point sur la

²⁵² Deraisme A., *Apport de la physique à l'étude du faux-monnayage du III^e siècle après J.-C.*, thèse de 3^e cycle, Université d'Orléans, 2005, p. 30 et suivantes.

²⁵³ Arles A., *Rapport d'analyse des tables en plomb de la couverture du chœur de la cathédrale Saint-Pierre de Beauvais*, IRAMAT-CEB, Orléans, 2012.

²⁵⁴ Cathédrale de Bourges : Baron S., L'Héritier M. et Arles A., « Le plomb : de son exploitation à son traçage dans les matériaux archéologiques et l'environnement », In Dillmann P. et Bellot-Gurlet L. (éd.), « *Circulation et provenance des matériaux dans les sociétés anciennes*, Éditions des archives contemporaines, Paris, 2014, p. 175-194.

²⁵⁵ Téreygeol F. et Arles A. « Mise en forme et provenance des plombs halieutiques. » In Dumont A. et Mariotti J.-F. (éd.), *Archéologie et Histoire du fleuve Charente, Taillebourg-Port d'Envaux : une zone portuaire du haut Moyen Age sur le fleuve Charente*, Éditions Universitaires de Dijon, Dijon, 2013, p. 194-223.

méthodologie et les apports en archéologie du bâti notamment pour la compréhension des dynamiques de construction²⁵⁶. Ces acquis ont été intégrés à notre démarche méthodologique dont ils constituent le point de départ. La méthodologie publiée a été reprise pour l'étude des plombs et des litharges avec quelques ajustements de manière à prendre en compte les évolutions des instruments d'analyse²⁵⁷. En revanche, l'analyse du sulfure de plomb a fait l'objet d'un protocole développé spécifiquement durant notre thèse et que nous allons présenter.

2.3.2.5.3.2. Les minerais de plomb sulfurés

2.3.2.5.3.2.1. Paramètres d'analyse

L'analyse des éléments-traces présents dans les galènes archéologiques est un point central de nos recherches consacrées à la chaîne opératoire de l'argent à Castel-Minier. Les compositions élémentaires de ces minerais sulfurés et leur variation sur le site en fonction des structures dans lesquelles ils ont été mis au jour permettent d'une part d'évaluer de manière diachronique le potentiel économique des minerais et d'autre part d'étudier leur signature géochimique afin de la comparer aux référentiels établis. Le choix des éléments mesurés repose sur des considérations métallogéniques de manière à identifier les traces qui accompagnent les sulfures de plomb au moment de la formation des minéralisations. Les matériaux de référence à notre disposition sont des plombs contenant plusieurs autres métaux à l'état d'impuretés dans des proportions variées²⁵⁸. Les isotopes retenus sont : ³²S, ⁶⁰Ni, ⁶³Cu, ⁶⁶Zn, ⁷⁵As, ¹⁰⁵Pd, ¹⁰⁷Ag, ¹¹¹Cd, ¹¹⁵In, ¹¹⁸Sn, ¹²¹Sb, ¹²⁵Te, ¹⁹⁵Pt, ¹⁹⁷Au, ²⁰⁴Pb, ²⁰⁵Tl et ²⁰⁹Bi. Dans la mesure du possible, le choix de l'isotope s'est porté vers le plus abondant. Ce critère n'a pas été respecté

²⁵⁶ L'Héritier M., Arles A., Dissier A. et Gratuze B., « Lead it be! Identifying the construction phases of gothic cathedrals using lead analysis by LA-ICP-MS », *Journal of Archaeological Science: Reports*, 6, 2016, p. 252-265.

²⁵⁷ Dans les diverses publications mentionnées, le système de prélèvement était doté d'un laser Nd : YAG (266 nm) remplacé depuis par un Excimer ArF (193 nm) présenté plus haut.

²⁵⁸ Les compositions élémentaires de ces étalons sont reportées dans l'annexe 3.

pour le nickel, le zinc, le palladium, le cadmium, l'étain et le tellure afin d'éviter les interférences isobariques²⁵⁹. En outre, parmi les différents isotopes du plomb, le moins abondant a été préféré de manière à éviter la saturation du détecteur d'ions et son usure prématurée. Afin de doser le soufre, absent des matériaux de référence, un fragment de galène prélevé dans la mine de Castel-Minier a été utilisé comme étalon après une caractérisation à la microsonde.

Préalablement à l'analyse par LA-ICP-MS, les galènes ont fait l'objet d'analyses en spectrométrie Raman de manière à évaluer leur hétérogénéité et identifier les éventuelles inclusions minérales. Cette étape préliminaire a permis de sélectionner les zones adaptées à un prélèvement laser. Afin d'améliorer la représentativité des résultats, une méthode d'échantillonnage spécifique a été mise en place. Elle repose sur un prélèvement dynamique par déplacement du laser sur la surface du minerai (figure 33). Outre un gain de représentativité lié à l'augmentation de la surface caractérisée, l'amélioration de la sensibilité est notable puisque, contrairement à une analyse en profil, le faisceau laser demeure focalisé sur l'échantillon tout au long de l'analyse. Ce mode de prélèvement est permis pour les minerais archéologiques qui ont été découpés et polis : les problèmes d'altération durant l'enfouissement sont donc écartés. Les paramètres du laser ont été définis de manière à maximiser la sensibilité. Ainsi, le diamètre du faisceau mesure 100 μm , la fréquence est fixée à 7 Hz tandis que la fluence²⁶⁰ mesurée à la surface de l'échantillon est de 2,2 $\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$.

²⁵⁹ Ces interférences concernent principalement : ^{58}Ni avec ^{58}Fe ; ^{64}Ni avec ^{64}Zn ; ^{106}Pd avec ^{106}Cd ; ^{107}Pd avec ^{107}Co ; ^{110}Pd avec ^{110}Cd ; ^{112}Cd avec ^{112}Sn ; ^{113}Cd avec ^{113}In ; ^{114}Cd avec ^{114}Sn ; ^{116}Cd avec ^{116}Sn ; ^{115}Sn avec ^{115}In ; ^{120}Te avec ^{120}Sn et ^{130}Te avec ^{130}Ba .

²⁶⁰ Dans la suite, il sera systématiquement fait référence à la fluence reçue par les échantillons analysés plutôt qu'à l'énergie initiale du faisceau laser (mesurée au début du chemin optique). En effet, la pertinence de l'énergie initiale est limitée puisqu'une large part est absorbée par les différents miroirs et filtres du chemin optique. La perte énergétique dépend du modèle de laser employé et du chemin optique emprunté par le faisceau. Ainsi, afin d'établir des comparaisons avec la littérature, le recours à la fluence, calculée au niveau de l'échantillon, est plus judicieux. La relation entre l'énergie initiale du faisceau laser est la fluence est donnée dans l'annexe 4.

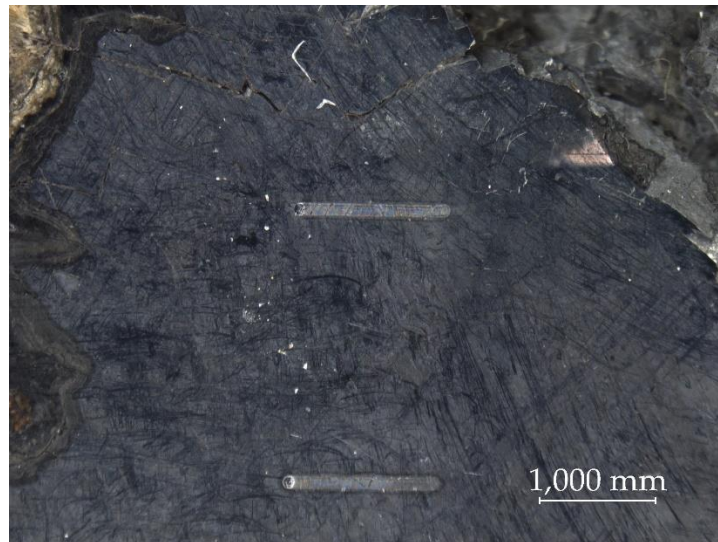


Figure 33 : Sillons laissés par le faisceau laser à l'issue d'un prélèvement dynamique à la surface d'un cristal de galène.

2.3.2.5.3.2.2. Limites de détection

Les limites de détection de la méthode sont reportées dans le tableau 3. Elles découlent d'un calcul qui est explicité dans l'annexe 2 et qui sera repris pour l'ensemble des protocoles LA-ICP-MS présentés dans la suite. Celui-ci est fondé sur l'écart-type du bruit de fond (approche « 3σ ») et fait intervenir un modèle d'étalonnage. C'est l'approche la plus couramment utilisée en spectrométrie de masse à plasma²⁶¹. À l'exception des éléments majeurs que sont le soufre et le plomb, les limites de détection sont faibles.

S	1560
Ni	1,53
Cu	1,23
Zn	0,96
As	5,35
Pd	0,84
Ag	0,84
Cd	0,57
In	0,44
Sn	0,39

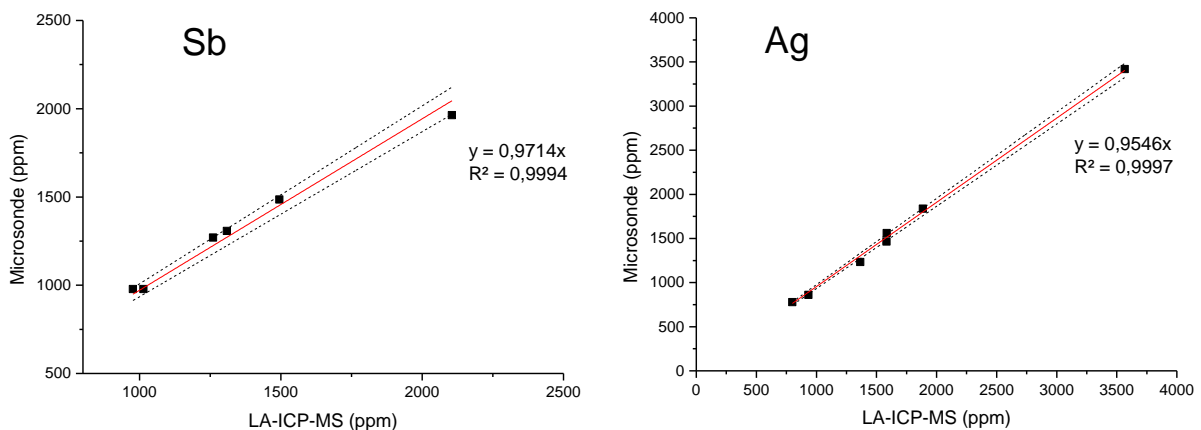
²⁶¹ Pollard M., Batt C., Stern B. et Young S. M. M., *Analytical chemistry in archaeology*, Cambridge University Press, Cambridge, 2006, p. 219 ; Rivier C. et Crozet M., « Limite de détection de méthodes d'analyse et termes apparentés », *Techniques de l'ingénieur Qualité au laboratoire*, ref. article : p262, 2014.

Sb	1,54
Te	20 ppb
Pt	0,63
Au	71 ppb
Tl	1,3 ppb
Pb	1249
Bi	47 ppb

Tableau 3 : Limites de détection des éléments mesurés dans les galènes.
Calcul fondé sur une approche « 3σ ». Sauf mention contraire, les valeurs sont en ppm.

2.3.2.5.3.2.3. Intercomparaison de méthodes

La validité des teneurs élémentaires obtenues pour les matrices plombeuses avec le système LA-ICP-MS de l'IRAMAT-CEB a déjà été démontrée : les résultats produits ont été confrontés à ceux issus d'analyses HR-ICP-MS en mode liquide réalisées dans un laboratoire externe²⁶². Nous avons complété ces données par une comparaison des dosages obtenus par LA-ICP-MS et à la microsonde pour les deux principaux éléments-traces contenus dans la galène : l'antimoine et l'argent²⁶³. On constate une très bonne corrélation entre les résultats obtenus par les deux techniques avec des erreurs relatives faibles (figure 34).



²⁶² L'Héritier M., Arles A., Dissier A. et Gratuze B., « Lead it be! ... », *op. cit.*, p. 259.

²⁶³ Les analyses à la microsonde ont été réalisées à l'Institut des Sciences de la Terre d'Orléans (ISTO). Nous tenons à remercier Mme Ida Di Carlo qui nous a facilité l'accès à l'instrument, s'est chargée de concevoir le protocole analytique et nous a assisté durant les mesures.

Figure 34 : Comparaison des mesures de l'antimoine et de l'argent obtenues à la microsonde et par LA-ICP-MS pour huit galènes archéologiques. Les droites d'erreur à plus ou moins 5 % relatif sont figurées en pointillés.

2.3.2.5.4. Protocole d'analyse des matrices à base d'argent

Bien qu'il constitue la production majeure de l'atelier de Castel-Minier, le métal blanc est discret au sein du corpus étudié et se limite à quelques billes millimétriques dispersées à la surface des casses de coupellation ou accrochées aux parois de quelques céramiques métallurgiques. Afin d'étudier leur composition, les résidus métalliques ont été soumis à l'analyse par LA-ICP-MS selon un protocole développé depuis une décennie et largement éprouvé qui exploite le potentiel des analyses en profil de manière à s'affranchir des phénomènes de corrosion et d'enrichissement de surface²⁶⁴. Nous lui avons apporté des modifications mineures qui concernent les paramètres d'ablation laser et les étalons utilisés pour caractériser les matrices. Un mode de prélèvement ponctuel a été choisi compte tenu du faible volume des échantillons analysés. Le diamètre du faisceau a été maximisé (100 μm) de manière à augmenter la représentativité du signal mesuré et améliorer la sensibilité de la détection. La fréquence des impulsions laser est fixée à 7 Hz tandis que la fluence mesurée au niveau de l'échantillon est de 2,2 $\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$. Afin de prendre en compte les particularités des matrices à base d'argent rencontrées sur le site de Castel-Minier, notamment l'existence d'alliages argent-plomb (témoins des étapes d'affinage) et la variabilité des

²⁶⁴ Le développement d'un protocole LA-ICP-MS adapté aux matrices à base d'argent et son application aux objets archéologiques, notamment les monnaies carolingiennes, fait l'objet des travaux de thèse de Guillaume Sarah : *Caractérisation de la composition et de la structure des alliages argent-cuivre par ICP-MS avec prélèvement par ablation laser. Application au monnayage carolingien*, thèse de 3^e cycle, Université d'Orléans, 2008. Par la suite, la méthode a été étendue à d'autres monnayages anciens : Olivier J., *Archè et Chrèmata en Égypte au II^e siècle avant J.-C. (204 – 81 av. J.-C.). Étude de numismatique et d'histoire*, thèse de 3^e cycle, Université d'Orléans, 2012 ; Parisot-Sillon C., *Neruus belli. Argent monnayé, guerre et intégration en Occident nord-méditerranéen (c. 200-c. 40 a.C.)*, thèse de 3^e cycle, Université d'Orléans, 2016.

teneurs en éléments-traces, deux étalons ont été spécialement confectionnés²⁶⁵.

Les éléments mesurés ont été sélectionnés en fonction des propriétés géochimiques des minerais argentifères et des acquis de travaux antérieurs portant sur le traçage du métal blanc. Quant au choix des isotopes, il est dicté par leur abondance et par la nécessité de limiter les interférences isobariques et polyatomiques. Finalement les isotopes retenus sont : ⁶⁰Ni, ⁶³Cu, ⁶⁴Zn, ⁷⁵As, ¹⁰¹Ru, ¹⁰³Rh, ¹⁰⁴Pd, ¹⁰⁷Ag, ¹¹¹Cd, ¹¹⁵In, ¹¹⁸Sn, ¹²¹Sb, ¹²⁸Te, ¹⁸⁹Os, ¹⁹⁷Au, ²⁰²Hg, ²⁰⁴Pb, ²⁰⁵Tl, ²⁰⁹Bi. Il subsiste néanmoins une interférence entre ¹¹⁵In et ¹¹⁵Sn qu'il convient de prendre en compte et de corriger. Enfin, les limites de détection calculées par Guillaume Sarah et Bernard Gratuze²⁶⁶ sont très faibles : de l'ordre de la ppm pour la majorité des éléments quantifiés.

2.3.2.5.5. Protocole d'analyse du cuivre et de ses alliages

2.3.2.5.5.1. État de l'art

L'application de la méthode LA-ICP-MS à l'étude d'objets archéologiques dont la matrice est constituée majoritairement de cuivre est relativement rare. Seuls quelques travaux de recherche ponctuels ont été consacrés d'une part au développement d'un protocole adapté à ces matériaux complexes et d'autre part à des études de cas portant sur des produits finis issus des collections du patrimoine ou de fouilles archéologiques. Les méthodes nucléaires, qui permettent de déterminer la composition élémentaire globale des artefacts, sont bien souvent préférées de même que les techniques spectrométriques fondées sur la fluorescence X ou l'absorption

²⁶⁵ Leur composition élémentaire, ainsi que celle de l'ensemble des étalons utilisés dans ce protocole, figurent dans l'annexe 3. Les étalons ont été fabriqués à partir de métaux purs (produits par la société Goodfellow). Après une pesée précise, la fonte des métaux a été réalisée dans un creuset en graphite chauffé au moyen d'un inducteur sous atmosphère inerte. Ces opérations ont été conduites à l'Institut de Chimie et des Matériaux de Paris-Est (ICMPE). Nous tenons à exprimer notre gratitude à MM. Ivan Guillot et Loïc Perrière pour leur accueil au sein de cette structure et leur disponibilité. Une fois obtenus, les alliages ont été caractérisés par ICP-MS (après mise en solution) au Service d'Analyse des Roches et Minéraux (SARM) du CRPG.

²⁶⁶ Sarah G. et Gratuze B., « LA-ICP-MS analysis... », *op. cit.*, p. 82.

atomique. Si ces méthodes (spectrométrie de fluorescence X exceptée) permettent de mesurer les éléments majeurs et traces, elles peuvent être destructives, coûteuses et nécessiter des préparations complexes.

En 2007, un premier protocole LA-ICP-MS a été mis au point par Laure Dussubieux avec une application à l'étude des bronzes sculptés de Matisse conservés au musée de Baltimore²⁶⁷. L'appareillage utilisé comprend un laser nanoseconde émettant dans l'ultraviolet (213 nm) et un spectromètre quadripôles Varian 810. Le diamètre du faisceau laser est fixé à 55 µm avec éventuellement une pré-ablation de manière à s'affranchir des produits de corrosion. La standardisation des analyses passe par un étalonnage interne (normalisation sur l'isotope ⁶⁵Cu) et externe au moyen de matériaux de référence. L'intercomparaison des résultats issus des mesures ICP-MS en mode laser et en mode liquide a montré une corrélation forte pour certains éléments dont l'argent, l'arsenic et l'étain tandis que les teneurs en plomb, bismuth et zinc ne sont pas identiques d'une technique à l'autre. Dans sa publication, l'auteure insiste sur l'hétérogénéité des matrices – qui ont pu être affectées par des ségrégations importantes lors des opérations de mise en forme – et met en avant le manque de matériaux de référence adaptés à l'étude des alliages cuivreux anciens. Ces travaux pionniers ont été suivis d'une nouvelle étude s'intéressant à des objets archéologiques à base de cuivre découverts en Amérique du Nord sur des sites d'habitat amérindiens occupés entre le XVI^e et le XVIII^e siècle²⁶⁸. L'analyse de ces artefacts a présenté des difficultés liées à la présence de couches de corrosion importantes entraînant des enrichissements de surface. Toutefois, les teneurs en éléments-traces ont permis de distinguer des groupes et d'identifier leur provenance. Ainsi, les cuivres natifs

²⁶⁷ Dussubieux L., « Laser ablation-inductively coupled plasma-mass spectrometry of ancient copper alloy artifacts », In Glascock, M. D., Speakman R. J. et Popelka-Filcoff R. S. (éd.), *Archaeological chemistry: analytical methods and archaeological interpretation*, American Chemical Society, Washington, 2007, p 336-348.

²⁶⁸ Dussubieux L., Deraisme A., Frot G., Stevenson C., Creech A. M. Y. et Bienvenu Y., « LA-ICP-MS, SEM-EDS and EPMA Analysis of Eastern North American Copper-Based Artefacts: Impact of Corrosion and Heterogeneity on the Reliability of the LA-ICP-MS Compositional Results », *Archaeometry*, 50(4), 2008, p. 643-657.

travaillés par les Amérindiens durant l'époque moderne ont pu être clairement distingués des cuivres importés en Amérique du Nord par les Européens.

Parallèlement, des recherches sur les gisements de cuivre natif exploités par les Amérindiens ont été entreprises. Plusieurs référentiels ont été établis et leur signature a pu être comparée à celle des métaux archéologiques²⁶⁹. Plus récemment, Walaszek *et al.* ont proposé une méthodologie pour la caractérisation des bronzes anciens qui combine différentes approches dont l'analyse par LA-ICP-MS²⁷⁰. Les auteurs ont particulièrement étudié les paramètres d'ablation (diamètre du faisceau, mode statique ou dynamique) et leur influence sur l'exactitude et la précision des résultats.

Enfin, l'analyse par LA-ICP-MS d'objets préhistoriques (XIII^e au IX^e siècle avant J.-C.) à base de cuivre issus de deux nécropoles du sud du Caucase a permis de mettre en évidence les pratiques de fonderie ainsi que plusieurs corrélations entre le type d'alliage utilisé (bronze, bronze à l'arsenic et/ou au plomb) et la typologie des objets analysés (bijoux, armes)²⁷¹. Les auteurs de cette étude se sont également attachés à évaluer la fiabilité des résultats obtenus en les comparant avec ceux issus d'analyses par spectrométrie d'émission optique à source étincelle.

²⁶⁹ Cooper H. K., Duke M. J. M., Simonetti A. et Chen G., « Trace element and Pb isotope provenance analyses of native copper in northwestern North America: results of a recent pilot study using INAA, ICP-MS, and LA-MC-ICP-MS », *Journal of Archaeological Science*, 35(6), 2008, p. 1732-1747 ; Hill M. A., Greenlee D. M. et Neff H., « Assessing the provenance of Poverty Point copper through LA-ICP-MS compositional analysis », *Journal of Archaeological Science: Reports*, 6, 2016, p. 351-360.

²⁷⁰ Walaszek D., Senn M., Faller M., Philippe L., Wagner B., Bulska E. et Ulrich A., « Metallurgical and chemical characterization of copper alloy reference materials within laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry: Method development for minimally-invasive analysis of ancient bronze objects », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 79-80, 2013, p. 17-30 ; Walaszek D., Senn M., Wichser A., Faller M., Wagner B., Bulska E. et Ulrich A., « Minimally-invasive Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry analysis of model ancient copper alloys », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 99, 2014, p. 115-120.

²⁷¹ Peterson D. L., Dudgeon J. V., Tromp M. et Bobokhyan A., « LA-ICP-MS Analysis of Prehistoric Copper and bronze metalwork from Armenia », In Dussubieux L., Golitko M. et Gratuze B. (éd.), *Recent Advances in Laser Ablation ICP-MS for Archaeology*, Springer-Verlag, Berlin, 2016, p. 115-133

2.3.2.5.5.2. Difficultés inhérentes à la nature des alliages cuivreux et particularité du corpus étudié

L'étude des objets archéologiques dont la matrice est à base de cuivre s'avère délicate à plus d'un titre. La première difficulté découle de la structure de l'alliage métallique et notamment de son caractère plus ou moins hétérogène qui dépend non seulement de sa composition, mais aussi de son histoire technique. La production du cuivre et de ses alliages durant la période médiévale nécessite la plupart du temps une étape de coulée, soit au cours de la métallurgie extractive, soit au moment des travaux de métallurgie secondaire destinés à concevoir un produit fini. Selon les paramètres thermodynamiques du refroidissement et le niveau d'impuretés²⁷² de l'alliage, la solidification peut s'accompagner de phénomènes de ségrégation de plusieurs types. La ségrégation la plus courante se caractérise par la croissance d'une structure dendritique dont la morphologie (dimensions et nombre de branches) dépend de la vitesse de refroidissement (figure 35). Les dendrites elles-mêmes sont souvent hétérogènes avec un gradient de concentration depuis le cœur vers l'extérieur. Plus rares, les ségrégations normales et inverses (selon que le métal au point de fusion le plus bas soit concentré au cœur ou à la surface des objets coulés) concernent surtout les bronzes à l'arsenic ou à l'antimoine²⁷³.

²⁷² En effet, les impuretés constituent des germes de solidification.

²⁷³ Mödlinger M. et Sabatini B., « A Re-evaluation of inverse segregation in prehistoric As-Cu objects », *Journal of Archaeological Science*, 74, 2016, p. 60-74 ; Scott D. A., *Metallography and microstructure...*, *op. cit.*, p. 5-6.

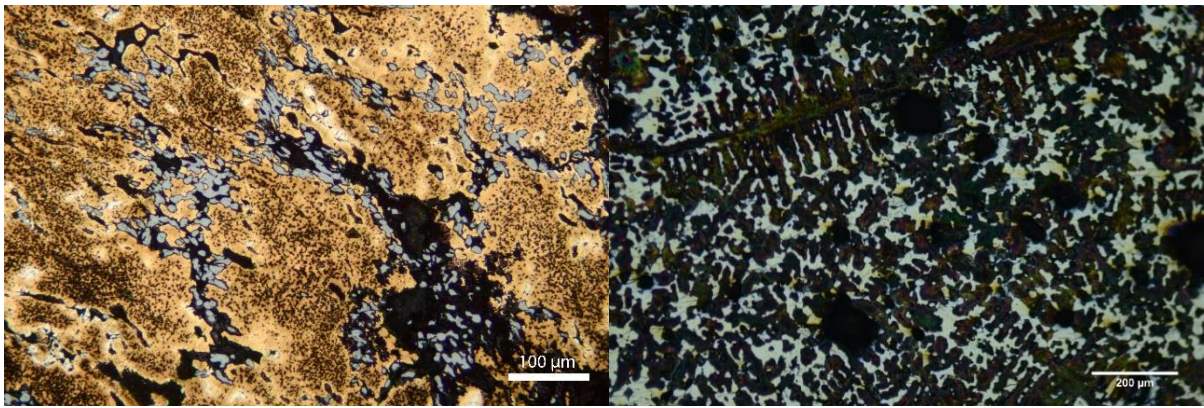


Figure 35 : Métallographie d'un bronze au plomb (gauche, CL 11280) et d'un bronze au plomb antimonié (droite, CL 11107) (attaque FeCl_3). À gauche, structure granulaire riche en cuivre (phase α) avec phase $(\alpha + \delta)$ eutectoïde aux joints de grains (gris) et plages de plomb (noir). À droite, structure dendritique riche en cuivre dans une matrice formée d'un alliage cuivre-antimoine-étain (gris).

Le second problème que pose l'analyse des alliages cuivreux est lié à la présence récurrente de plomb dans les matrices métalliques qui peut atteindre des proportions importantes²⁷⁴. Le plomb n'est pas soluble dans le cuivre et le mélange liquide subit, au cours du refroidissement, une réaction monotectique conduisant à la solidification d'une phase riche en cuivre et à la formation d'une nouvelle phase liquide riche en plomb. Cette seconde phase se solidifie en dessous de 327 °C et forme des globules disséminés aux joints de grains ou dans les espaces interdendritiques dont la taille peut atteindre plusieurs millimètres de diamètre, de sorte qu'il est parfois possible de les distinguer à l'œil nu²⁷⁵. Dans certains cas, la répartition des globules de plomb n'est pas homogène, mais obéit à une ségrégation gravimétrique. En effet, la deuxième phase liquide riche en plomb est plus dense que le mélange initial et a tendance à migrer vers le bas. Ce phénomène s'observe pour les alliages bruts de coulée avec une concentration des globules de plomb dans les zones mises en forme dans la partie basse du moule. Quelles qu'en soient les origines, les ségrégations observées dans les matrices cuivreuses sont nuisibles à la représentativité des analyses de surcroît

²⁷⁴ Des teneurs en plomb supérieures à 15 % ne sont pas rares dans les synthèses analytiques sur les bronzes médiévaux : Werner O., « Analysen mittelalterlicher Bronzen und Messinge », *Berliner Beiträge zur Archäometrie*, 7, 1982, p. 35-174 ; Blades N. W., *Copper Alloys From English Archaeological Sites 400-1600 AD: an Analytical Study using ICP-AES*, thèse de 3^e cycle, University of London, 1995.

²⁷⁵ Hughes M. J., Northover J. P. et Staniaszek B. E. P., « Problems in the Analysis of Leaded Bronze Alloys in Ancient Artefacts », *Oxford Journal of Archaeology*, 1(3), 1982, p. 359-363.

lorsqu'elles sont issues d'analyses ponctuelles (figure 36). La prise en compte de la microstructure est donc un paramètre fondamental pour établir un protocole d'échantillonnage pertinent.

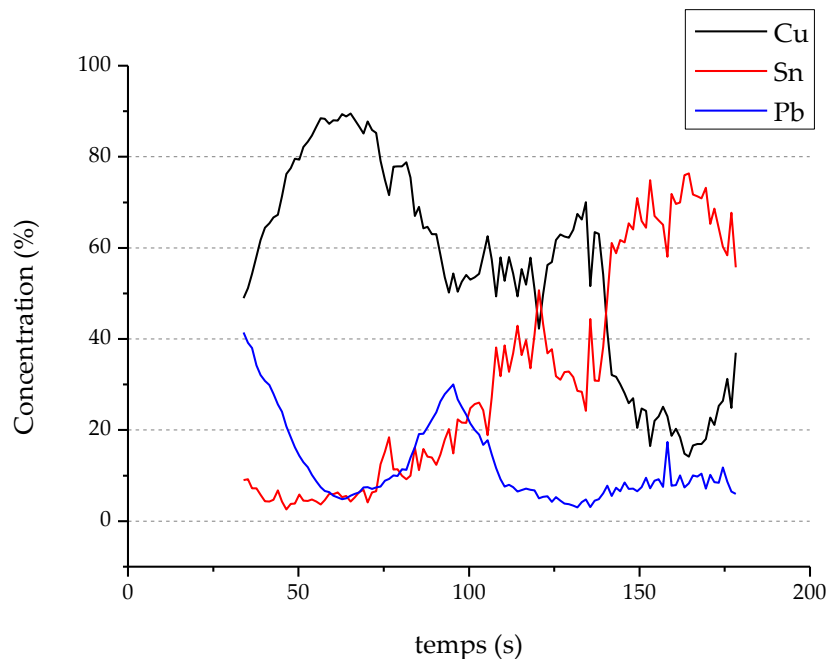


Figure 36 : Profils de concentration obtenu par LA-ICP-MS des éléments majeurs d'un bronze au plomb de Castel-Minier (CL 11945). Le passage du faisceau laser dans un globule de plomb se répercute sur la concentration instantanée calculée après 100 s d'ablation. Par ailleurs, la fluctuation des teneurs en cuivre et en étain illustre l'hétérogénéité de la matrice.

Les alliages cuivreux archéologiques sont fréquemment recouverts d'une couche de corrosion, formée principalement d'oxydes, d'hydroxydes, de chlorures voire de carbonates de cuivre, qui peut atteindre quelques dizaines de micromètres. L'altération du matériau au cours de l'enfouissement est une des causes de l'enrichissement de surface dont les origines diverses ont déjà été évoquées. Les bronzes peuvent présenter un enrichissement en étain en surface qui résulte du départ d'une partie du cuivre oxydé tandis que les laitons peuvent faire l'objet d'une dézincification qui découle également d'une corrosion sélective²⁷⁶. Ces difficultés

²⁷⁶ Le potentiel rédox du couple Zn^{2+}/Zn est en effet plus faible que celui du couple Cu^{2+}/Cu . Le phénomène de dézincification des laitons anciens a été mis en évidence dans de précédents travaux : Calliari I., Magrini M., Zambon A., Guerriero P. et Martini R., « Microstructural and Compositional Characterization of Roman Coins », *X-Ray Spectrometry*, 28, 1999, p. 86-90.

peuvent être surmontées en effectuant un décapage préalable sur une petite surface de l'objet analysé qui présente toutefois l'inconvénient d'entamer son intégrité. Le recours à une analyse en profil par LA-ICP-MS peut être une alternative fiable et peu invasive sous réserve de définir des paramètres d'ablation permettant d'atteindre l'alliage sain.

Malgré les nombreux avantages de l'analyse par LA-ICP-MS, cette méthode n'est pas adaptée à certains types d'artéfacts cuivreux qui ne peuvent être caractérisés sans recourir à des méthodes destructives. C'est le cas des matériaux composites qui résultent de l'assemblage d'alliages de natures différentes. Ainsi, l'association de bronze, de bronze au plomb et de cuivre non allié a été détectée dans un fragment cuivreux issu de la fouille de Castel-Minier (figure 37). Qu'elle soit globale ou ponctuelle, une investigation archéométrique sans découpe ne peut pas rendre compte d'une telle structure.

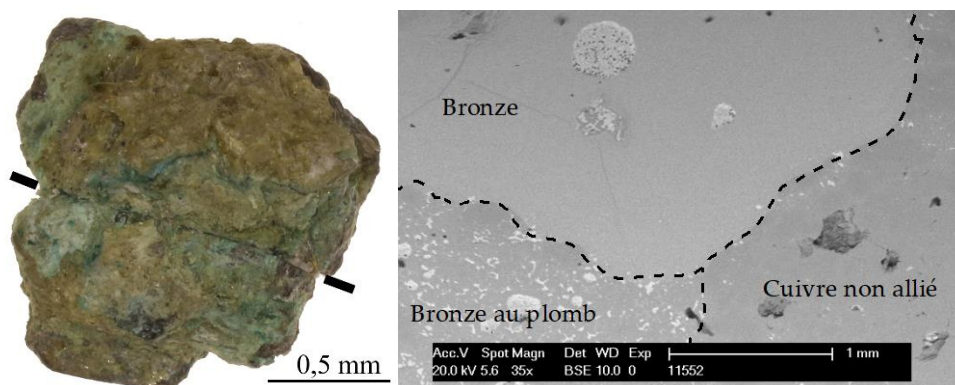


Figure 37 : CL 11552. À gauche, photographie du fragment parallélépipédique et axe de découpe. À droite, agrandissement MEB de la surface découpée et polie avec identification des différents alliages.

2.3.2.5.5.3. Paramètres du protocole LA-ICP-MS

2.3.2.5.5.3.1. Choix des éléments dosés

Les éléments chimiques étudiés dans le cadre de nos travaux sur la production de cuivre et d'alliages cuivreux à Castel-Minier ont été sélectionnés sur des critères techniques et chimiques. Il s'agit tout d'abord des principaux constituants des alliages cuivreux en circulation durant la période médiévale : cuivre, étain, plomb et zinc.

Viennent ensuite les éléments mineurs et les traces parmi lesquels figurent l'antimoine et l'arsenic qui peuvent être ajoutés volontairement aux alliages ou provenir d'un minerai polymétallique. De même l'argent, le nickel et le fer accompagnent fréquemment certains minerais sulfurés de la famille des « cuivres gris » qui sont des sources potentielles de métal rouge. Enfin, des traces en or et bismuth peuvent subsister dans les artefacts une fois les opérations métallurgiques terminées. Ces deux éléments sont particulièrement utiles pour identifier la source du minerai utilisé dans les ateliers²⁷⁷. Pour chacun des éléments, les isotopes mesurés ont été choisis selon les critères présentés plus haut, c'est-à-dire une abondance permettant d'assurer une détection satisfaisante tout en évitant les interférences. La liste suivante a été déterminée : ⁵⁷Fe, ⁶⁰Ni, ⁶³Cu, ⁶⁶Zn, ⁷⁵As, ¹⁰⁷Ag, ¹¹⁸Sn, ¹²¹Sb, ¹⁹⁷Au, ²⁰⁴Pb et ²⁰⁹Bi. La caractérisation préalable des objets par spectrométrie de fluorescence X a permis de sélectionner pour certains isotopes le mode de détection adapté, en particulier pour l'étain, le zinc et le plomb mesurés avec le détecteur Faraday ou le multiplicateur d'électrons selon qu'il s'agisse de matrices de bronze ou de laiton plus ou moins riches en plomb.

2.3.2.5.5.3.2. Paramètres d'ablation laser

Les paramètres d'ablation qui peuvent être ajustés par l'utilisateur sont la fluence du faisceau laser, son diamètre, la fréquence des impulsions et la durée d'analyse. Tous les prélèvements laser réalisés sur les matrices cuivreuses ont été précédés d'une pré-ablation de 20 s effectuée à la fréquence de 30 Hz avec une fluence de 2,5 J.cm⁻². Cette étape préliminaire permet de traverser la couche corrosion et d'atteindre le métal sain qui est détecté visuellement dans le fond du cratère à l'issue de l'opération grâce au système d'imagerie associé au laser. Le diamètre du faisceau

²⁷⁷ Pernicka E., « Trace element fingerprinting of ancient copper », In Young S. M. M., Pollard A. M., Budd P. et Ixer R. A. (éd.), *Metals in Antiquity*, Archaeopress. BAR International Series 792, Oxford, 1999, p. 163-171. Voir également *infra* p. 573.

laser le plus élevé, c'est-à-dire 100 μm , doit être préféré pour d'une part améliorer la sensibilité de la détection et produire des mesures représentatives de la microstructure et d'autre part réduire le phénomène de fractionnement inter-élémentaire qui sera discuté plus loin. La fluence du faisceau laser et la fréquence des impulsions sur l'échantillon doivent ensuite être définis. Une fluence élevée permet d'améliorer le nombre de particules prélevées et par conséquent la sensibilité de la détection (figure 38). Néanmoins, une valeur trop élevée peut conduire à la saturation des détecteurs (et nuire à la qualité des analyses) ainsi qu'à des problèmes de fractionnement isotopique. La figure 38 met en évidence une corrélation entre la fréquence et la sensibilité de la détection. L'élévation de la fréquence permet d'augmenter le volume des particules prélevées et conduites vers l'ICP-MS pour y être ionisées. En revanche, on remarque l'existence d'un seuil, autour de 8 Hz, au-delà duquel la sensibilité n'augmente plus puis décroît. Ce comportement résulte de la défocalisation progressive du faisceau laser à mesure qu'il progresse dans l'échantillon, ce qui entraîne une diminution du rendement d'extraction. La fréquence de travail retenue est donc de 8 Hz de manière à optimiser la sensibilité.

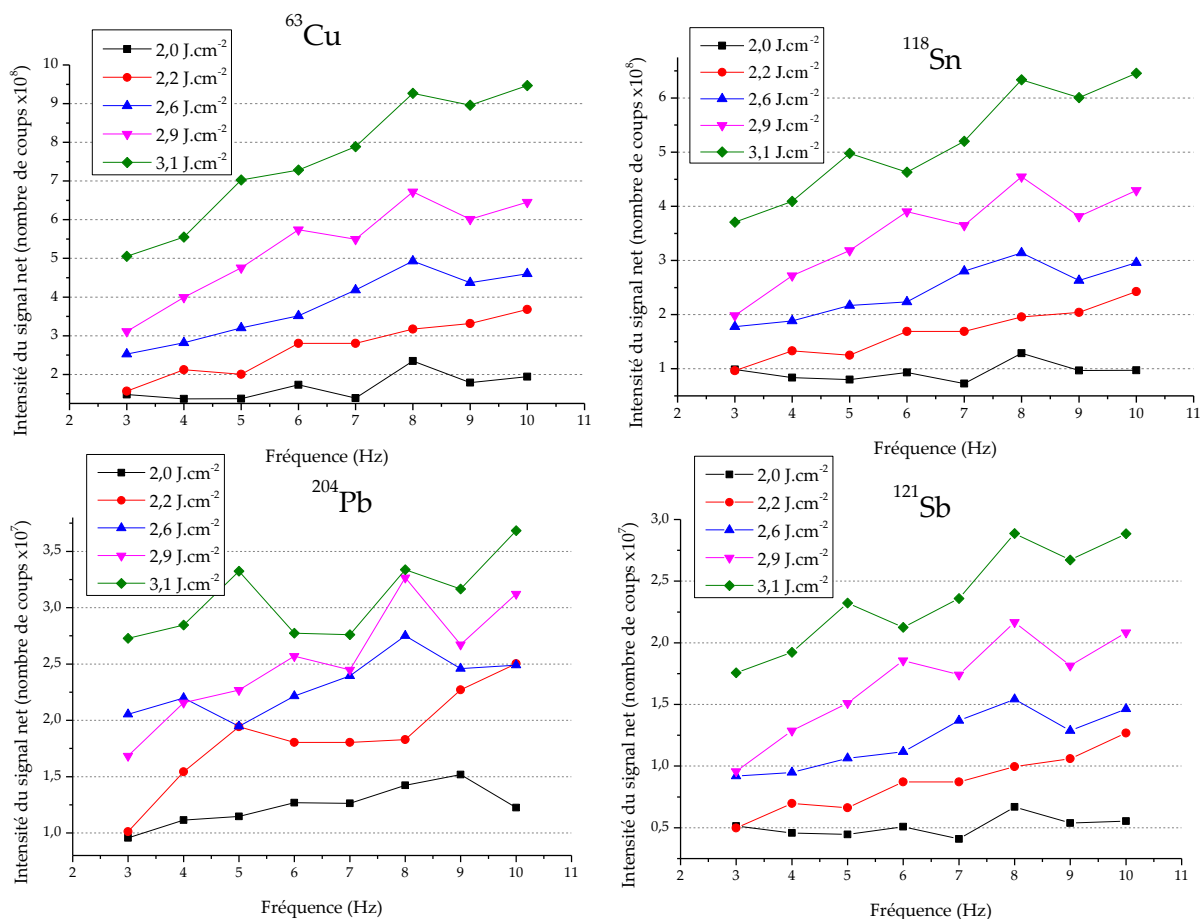


Figure 38 : Sensibilité moyenne de quelques isotopes mesurés dans l'étalon UE10 en fonction de la fréquence des impulsions et de la fluence du faisceau laser.

2.3.2.5.5.3.3. Le fractionnement

Le phénomène de fractionnement se caractérise par la génération d'un aérosol dont les proportions élémentaires ne correspondent pas à la stœchiométrie de l'échantillon étudié. Les sources de fractionnement sont de natures variées et concernent tant le prélèvement laser que le transport de l'aérosol et sa vaporisation dans le plasma²⁷⁸. Ainsi, une fluence ou une fréquence trop élevées entraînent localement de fortes augmentations de température qui peuvent conduire à la volatilisation des éléments dont le point d'ébullition est faible tels que le zinc ou

²⁷⁸ Fricker M. B. et Günther D., « Instrumentation, Fundamentals, and application of Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry », In Dussubieux L., Golitko M. et Gratuze B. (éd.), *Recent Advances in Laser Ablation ICP-MS for Archaeology*, Springer-Verlag, Berlin, 2016, p. 6 et suivantes.

l'arsenic. Au contraire, une fluence trop faible conduit à une mauvaise ablation : les particules sont grosses, mal séparées et leur ionisation est incomplète dans l'ICP-MS ce qui entraîne un fractionnement important et conduit à des ratios entre éléments non-stœchiométriques comme le suggèrent les résultats de la figure 39. Le fractionnement peut être fortement réduit en ajustant d'une part l'énergie du faisceau laser et d'autre part le mélange gazeux, notamment en augmentant le débit d'hélium²⁷⁹. Le choix de la fluence de travail résulte d'un compromis entre la réduction du fractionnement et l'obligation d'éviter la saturation des détecteurs. Ainsi, nous avons choisi de travailler avec un faisceau laser dont la fluence était comprise entre 2,9 et 3,0 J.cm⁻² et avec un débit d'hélium dans la cellule de 650 ml.min⁻¹.

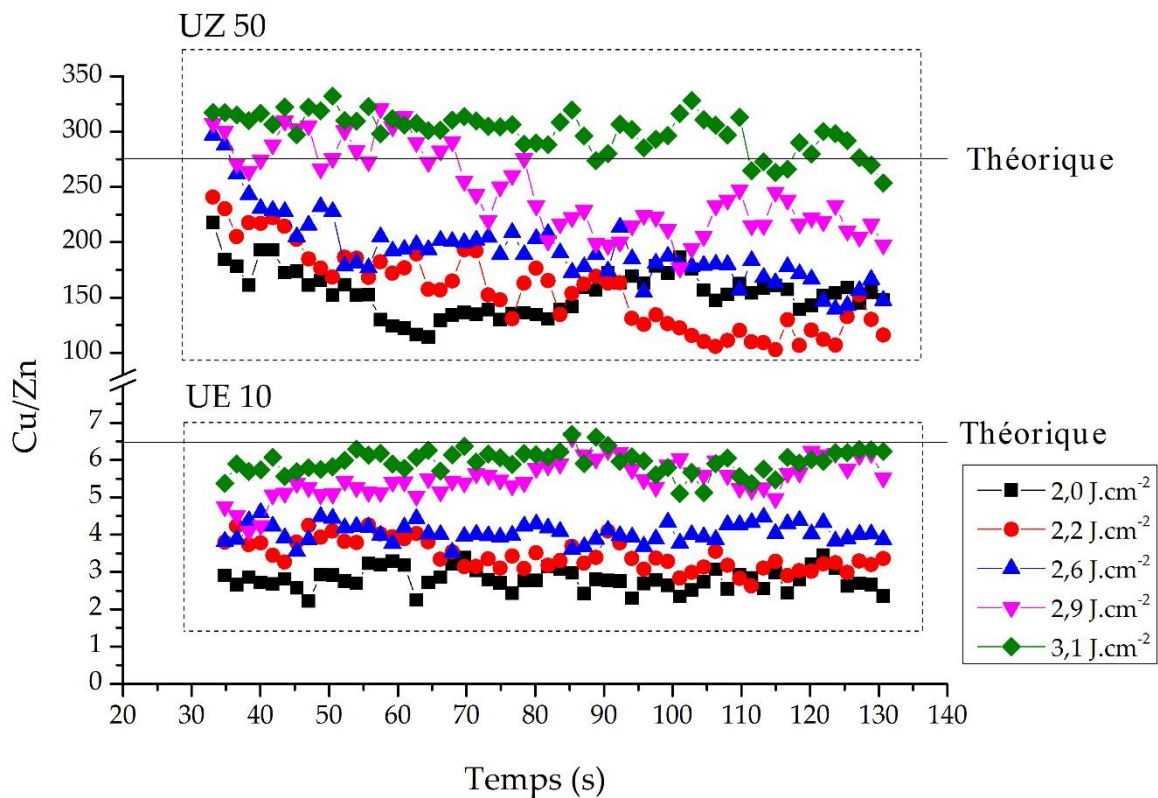


Figure 39 : Evolution du ratio Cu/Zn des étalons UZ50 et UE10 au cours d'une analyse en profil à différentes fluences. Comparaison avec la valeur théorique. Fréquence : 8 Hz, diamètre du faisceau : 100 μm .

²⁷⁹ Sur l'influence du mélange gazeux : Kuhn H. R. et Günther D., « Elemental Fractionation Studies in Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry on Laser-Induced Brass Aerosols », *Anal. Chem.*, 75, 2003, p. 747-753.

Parmi les autres facteurs favorisant le fractionnement, il convient d'évoquer l'effet de cratère. Ce phénomène est gouverné par la morphologie et les dimensions du cratère, notamment le diamètre et la profondeur. Lors de la pénétration du faisceau laser dans le matériau analysé, l'énergie qui lui est transmise diminue progressivement à cause de la défocalisation. Cette perte d'énergie entraîne une modification de la forme du cratère. Plutôt que cylindrique, celui-ci devient conique avec un facteur de réduction du diamètre important entre la surface et le fond du cratère (figure 42). Ce phénomène est d'autant plus marqué que le diamètre initial du faisceau est réduit et que la profondeur atteinte est élevée. Il entraîne un second type de fractionnement, distinct de celui illustré²⁸⁰ par la figure 39, qui consiste en une extraction préférentielle des éléments volatils. En effet, un cratère profond et étroit favorise la condensation des éléments réfractaires sur les parois durant leur extraction à la faveur d'une diminution de la température. Au contraire, les éléments volatils sont extraits plus facilement et un risque de surestimation de leur teneur est possible. L'analyse du voisinage du cratère permet de mettre en évidence la prépondérance des éléments volatils dans la couche de particules redéposées (exemple du zinc, figure 40).

²⁸⁰ Les mesures présentées dans cette figure ont été volontairement réalisées avec un diamètre de faisceau laser de 100 μm afin de s'affranchir de l'effet de cratère.

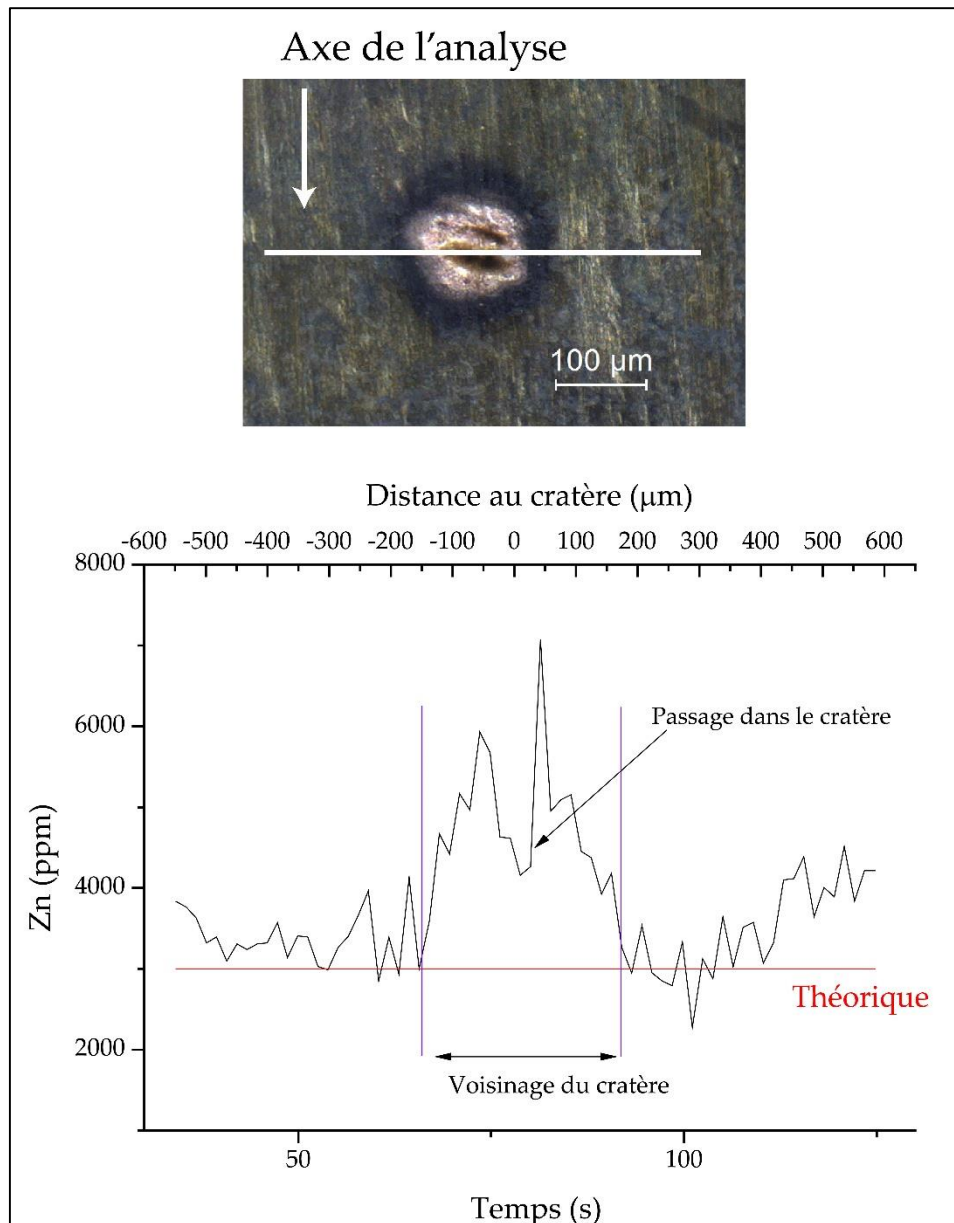


Figure 40 : En haut : cratère d'ablation de 100 μm de diamètre laissé dans l'étalon UE10. La couche de redéposition est bien visible et forme une couronne noire au voisinage de cratère. En bas : Analyse LA-ICP-MS du voisinage du cratère d'ablation (selon l'axe dessiné sur l'image du haut). La teneur élevée en zinc dans la matière redéposée autour du cratère met en évidence une extraction préférentielle de cet élément qui bénéficie de l'effet de cratère.

L'utilisation d'un indice mathématique est commode pour évaluer l'influence du diamètre du cratère sur le fractionnement. L'indice de fractionnement ϕ est défini²⁸¹ comme le ratio entre le signal normalisé de l'élément étudié à l'instant t et le signal

²⁸¹ Mank A. J. G. et Mason P. R. D., « A critical assessment of laser ablation ICP-MS as an analytical tool for depth analysis in silica-based glass samples », *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 14, 1999, p. 1145.

normalisé de ce même élément à l'instant initial, c'est-à-dire en début d'ablation :

$$\varphi_y = \frac{I_{Yt}I_{r0}}{I_{Y0}I_{rt}}$$

Avec :

I_{Yt} le signal net de l'élément Y à l'instant t.

I_{Y0} le signal net de l'élément Y à l'instant initial.

I_{rt} le signal net de l'élément de référence à l'instant t.

I_{r0} le signal net de l'élément de référence à l'instant initial.

Le cuivre est choisi comme élément de référence. Il s'agit du constituant majeur des matrices étudiées qui présente la sensibilité la plus élevée et pour lequel les effets de matrice sont réduits. En outre, cet élément est peu sujet au fractionnement. Nous nous sommes intéressé en particulier aux conséquences de l'effet de cratère sur le zinc. Celles-ci sont remarquables comme l'illustre la figure 41. L'effet de cratère est observable pour des diamètres de faisceau laser inférieurs à 80 μm : l'indice de fractionnement commence à augmenter aux alentours de 80 secondes lorsque le cratère devient trop étroit pour permettre l'extraction efficace de tous les éléments et notamment du cuivre. L'indice de fractionnement peut atteindre des valeurs proches de 2 ce qui entraîne des écarts non négligeables entre les concentrations élémentaires calculées et les valeurs certifiées²⁸². Mank et Manson ont montré que le fractionnement devient significatif quand le ratio profondeur/diamètre est supérieur à 6. Par conséquent, il semble judicieux de choisir le diamètre de faisceau le plus élevé ce qui dans notre cas permettrait de limiter le fractionnement jusqu'à une profondeur théorique de 600 μm . Cette condition a été respectée autant que possible pour l'analyse des alliages de Castel-Minier. Dans le cas contraire, une correction de l'effet de cratère

²⁸² Ecart-type respectif de 116 % et 66 % par rapport à la valeur certifiée pour la teneur en zinc des étalons UE11 et UE15 déterminée par LA-ICP-MS avec un diamètre de faisceau de 70 μm .

est toujours possible. Elle repose sur une modélisation de l'indice de fractionnement qui permet d'estimer un coefficient de correction²⁸³.

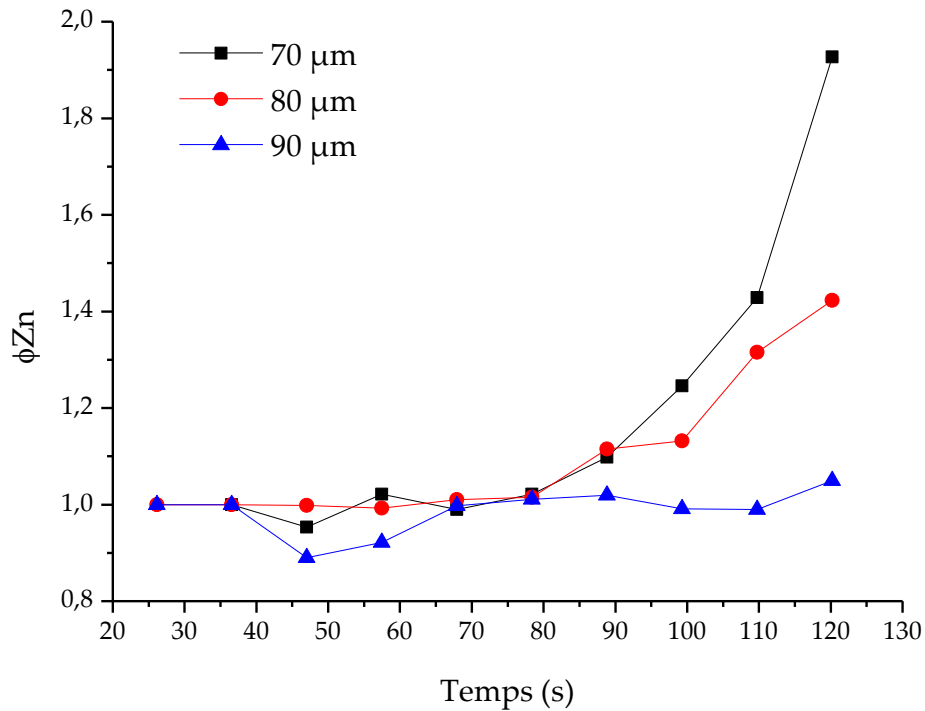


Figure 41 : Évolution de l'indice de fractionnement du zinc au cours de l'analyse LA-ICP-MS. Influence du diamètre du faisceau laser. Fréquence 8 Hz, fluence 2,9 J.cm⁻².

2.3.2.5.5.3.4. Profondeur atteinte par le faisceau laser

L'estimation de la profondeur atteinte en fin d'analyse met en jeu plusieurs paramètres qui se rapportent d'une part aux propriétés intrinsèques du matériau échantillonné, en particulier la composition et l'homogénéité de la matrice, et d'autre part aux paramètres de l'ablation tels que le diamètre et la fluence du faisceau ainsi que le nombre total d'impulsions. La détermination de la vitesse moyenne d'ablation (VMA), exprimée en $\mu\text{m}\cdot\text{impact}^{-1}$, est un prérequis au calcul de la profondeur des cratères. Nous proposons des valeurs moyennes déterminées à partir d'ablations

²⁸³ Chen Z., « Inter element fractionation and correction in LA-ICP-MS », *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 14, 1999, p. 1823-1828.

réalisées sur plusieurs étalons cuivreux dont les teneurs se rapprochent de celles des objets archéologiques issus de Castel-Minier. Des tirs laser de 5 minutes ont été réalisés sur la tranche de chaque matrice étalon (bronze, bronze au plomb, laiton rouge, cuivre non allié) en faisant varier la fluence du faisceau et en fixant son diamètre à 100 μm . À l'issue de l'ablation, les cratères ont été observés à la loupe binoculaire et leur profondeur mesurée (figure 42) de manière à calculer la VMA. Cette dernière dépend de la fluence comme l'illustre la figure 43. Plus précisément, il semble que l'on puisse ajuster une fonction logistique définie par le modèle de Verhulst.

La VMA croît exponentiellement à mesure que la fluence augmente puis tend vers une valeur finie. Ce comportement asymptotique découle de la défocalisation du laser à mesure qu'il progresse dans la matière : l'énergie n'est plus suffisante pour assurer l'ablation. La VMA dépend également de la matrice cuivreuse analysée. Ainsi, à la fluence retenue pour nos analyses (2,9 à 3,0 $\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$), on constate une progression lente dans l'étalon de bronze UE15 (0,093 $\mu\text{m}\cdot\text{impact}^{-1}$) tandis qu'elle est plus rapide dans l'étalon de laiton rouge au plomb UE53 (0,341 $\mu\text{m}\cdot\text{impact}^{-1}$). Pour autant, il n'est pas évident de discerner l'origine exacte des variations de la VMA. La composition des étalons et leur microstructure sont les paramètres les plus évidents. Ainsi, la présence de certaines impuretés dans les étalons entraîne des ségrégations qui peuvent favoriser la rupture : c'est le cas du plomb pour l'étalon UE53. Dans la gamme de compositions de nos étalons, les profondeurs atteintes pour une analyse de 3 min avec pré-ablation de 20 s s'échelonnent de 190 μm à 696 μm . Ces valeurs démontrent la capacité de l'analyse LA-ICP-MS à s'affranchir des problèmes de corrosion évoqués plus haut. Le faisceau laser atteint l'alliage sain qui se trouve généralement quelques dizaines de micromètres sous la surface comme l'ont montré nos mesures de l'épaisseur des couches de corrosion sur le mobilier cuivreux issu de Castel-Minier.

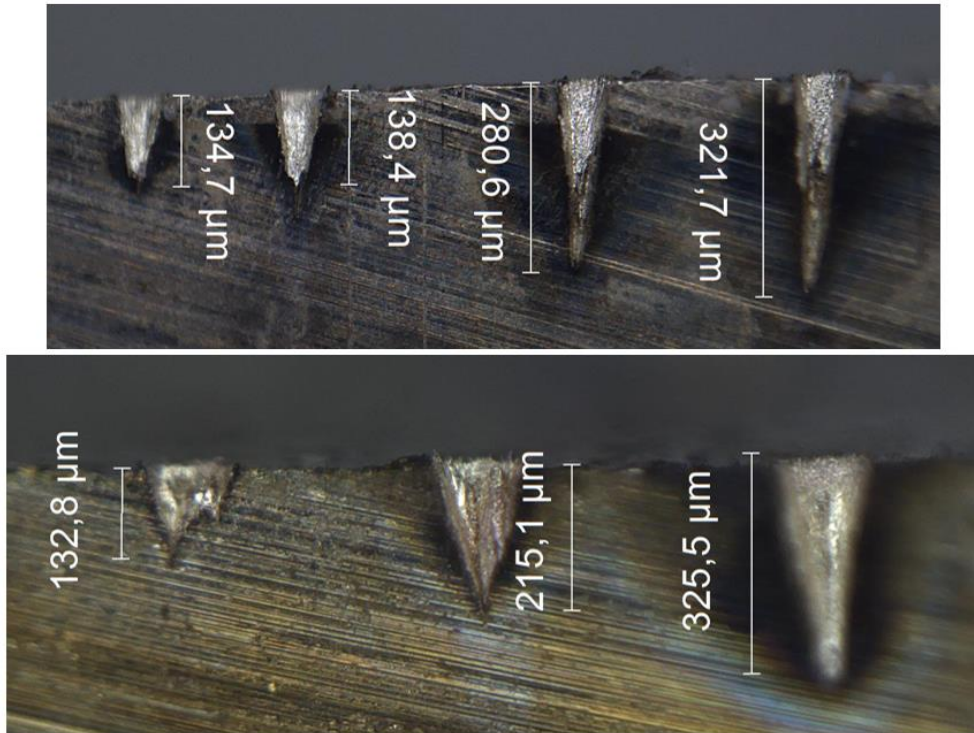


Figure 42 : En haut, cratères laissés dans l'étalon de bronze UE11 à l'issue d'une ablation laser (fréquence : 10 Hz, durée : 300 s, fluences (de gauche à droite) : 2,5 ; 2,7 ; 3,0 ; 3,1 J.cm⁻², diamètre du faisceau : 100 μm). En bas, cratères laissés dans l'étalon de laiton UZ53 (fréquence : 10 Hz, durée : 300 s, fluences (de gauche à droite) : 2,5 ; 2,7 ; 3,0 J.cm⁻², diamètre du faisceau : 100 μm)

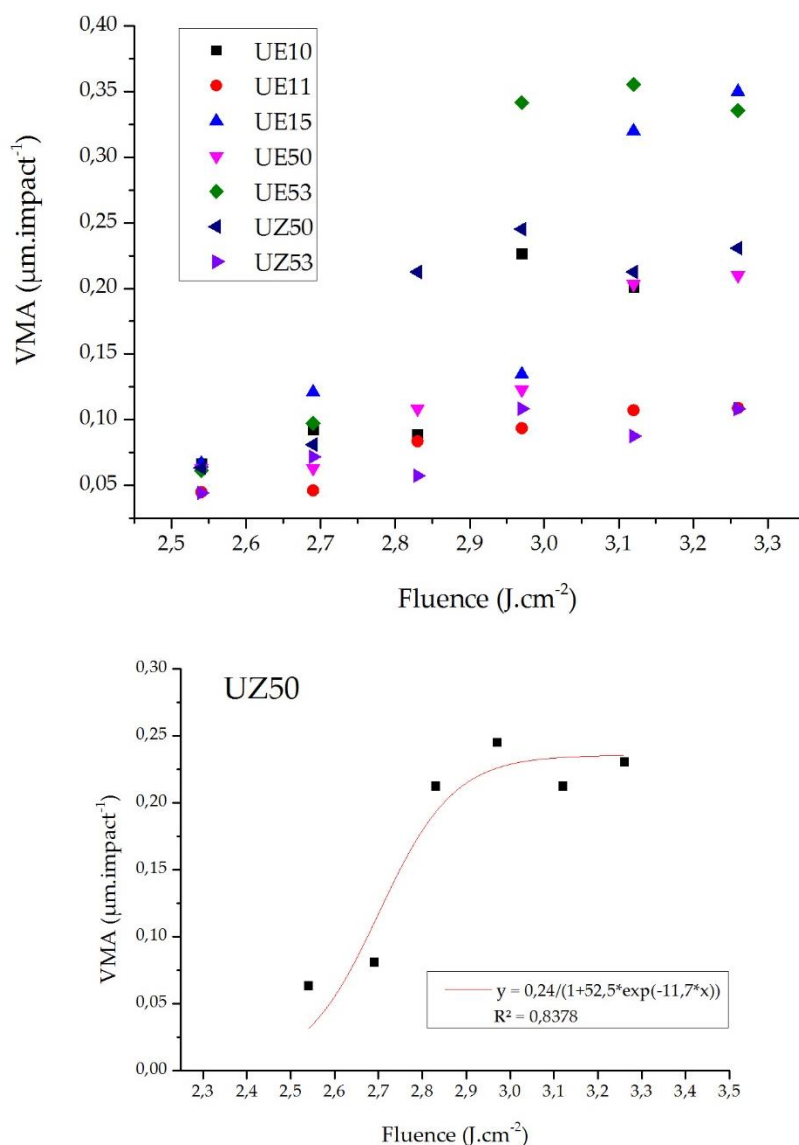


Figure 43 : Représentation de la VMA en fonction de la fluence pour les étalons cuivreux (haut) et ajustement d'une courbe logistique pour l'étalon UZ50 (bas).

2.3.2.5.5.3.5. Calcul des concentrations et limites de détection

La composition élémentaire des matériaux analysés a été calculée selon la méthode présentée ci-dessous. L'étalon interne retenu est le cuivre, constituant majeur des matrices étudiées, tandis que l'étalonnage externe repose sur des matériaux de référence dont les concentrations sont certifiées²⁸⁴. Les limites de détection de la méthode LA-ICP-MS développée pour l'analyse des alliages cuivreux sont présentées

²⁸⁴ Les teneurs élémentaires de ces étalons sont reportées dans l'annexe 3.

dans le tableau 4. Elles ont été calculées selon une approche « 3σ » qui a déjà été évoquée. La limite de détection particulièrement élevée du cuivre résulte du mode de détection choisi (Faraday) pour lequel le bruit de fond est important. Néanmoins, cette contrainte instrumentale n'a pas d'incidence sur les mesures puisque la concentration du métal rouge dans les échantillons analysés est bien supérieure à 5000 ppm. L'interférence entre ^{57}Fe et $^{57}\text{ArOH}$ contribue à l'élévation du bruit de fond et par conséquent de la limite de détection du fer. Mis à part ces deux éléments, les limites de détection de la méthode sont relativement faibles.

Élément	Limite de détection (ppm)
Fe	293
Ni	11
Cu	5010
Zn	2,2
As	7,0
Ag	6,5
Sn	5,4
Sb	1,8
Au	0,6
Pb	3,7
Bi	1,5

Tableau 4 : Limites de détection de la méthode LA-ICP-MS développée pour l'analyse des alliages cuivreux.

2.3.2.5.5.3.6. Validité des résultats

Afin d'apprécier la fiabilité des résultats obtenus par LA-ICP-MS sur les matrices cuivreuses issues de Castel-Minier, des comparaisons ont été effectuées avec la méthode d'activation neutronique. Cette technique de caractérisation consiste à irradier l'échantillon à analyser avec des neutrons rapides de cyclotron. Les radioéléments γ générés par l'irradiation sont caractéristiques des éléments qui composent le matériau étudié : leur mesure permet donc de déterminer sa composition

élémentaire²⁸⁵. Il est possible d'irradier la totalité du volume du matériau c'est pourquoi l'activation neutronique peut être considérée comme une méthode de caractérisation globale. En outre, un choix judicieux de l'énergie du rayonnement incident autorise la mesure des éléments mineurs et traces.

Les résultats obtenus par LA-ICP-MS ont été confrontés à ceux fournis par l'activation neutronique. Les comparaisons se limitent aux principaux éléments : cuivre, étain, antimoine, arsenic, nickel, argent et plomb. Les autres éléments dosés par LA-ICP-MS ne peuvent pas être mesurés par activation neutronique à cause de limites de détection trop élevées. Les résultats sont présentés sur la figure 44. L'examen des graphiques montre un bon accord entre les deux méthodes pour la plupart des éléments avec des écarts relatifs inférieurs à 5 %. Seul le plomb détone par une corrélation moins bonne entre les résultats des deux méthodes. Les écarts sont prononcés lorsque cet élément se trouve incorporé en quantité importante dans les matrices cuivreuses (au-delà de 10 %). Dans ce cas de figure, le phénomène d'autoabsorption du plomb est à prendre en compte pour la détermination des concentrations et une correction doit être réalisée. Son modèle n'est pas linéaire et se fonde sur des abaques. L'estimation du coefficient de correction est donc approximatif ce qui peut expliquer les différences constatées sur la figure 44.

²⁸⁵ Pour une présentation détaillée de la méthode d'activation neutronique mise en œuvre à l'IRAMAT-CEB voir : Beauchesne F. et Barrandon J.-N., « Analyse globale et non destructive des objets archéologiques cuivreux par activation avec des neutrons rapides de cyclotron », *Revue d'Archéométrie*, 10, 1986, p. 75-85 ; Beauchesne F., Barrandon J.-N., Alves L., Gil F. B. et Guerra M., « Ion beam analysis of copper and copper alloy coins », *Archaeometry*, 30(2), 1988, p. 187-197.

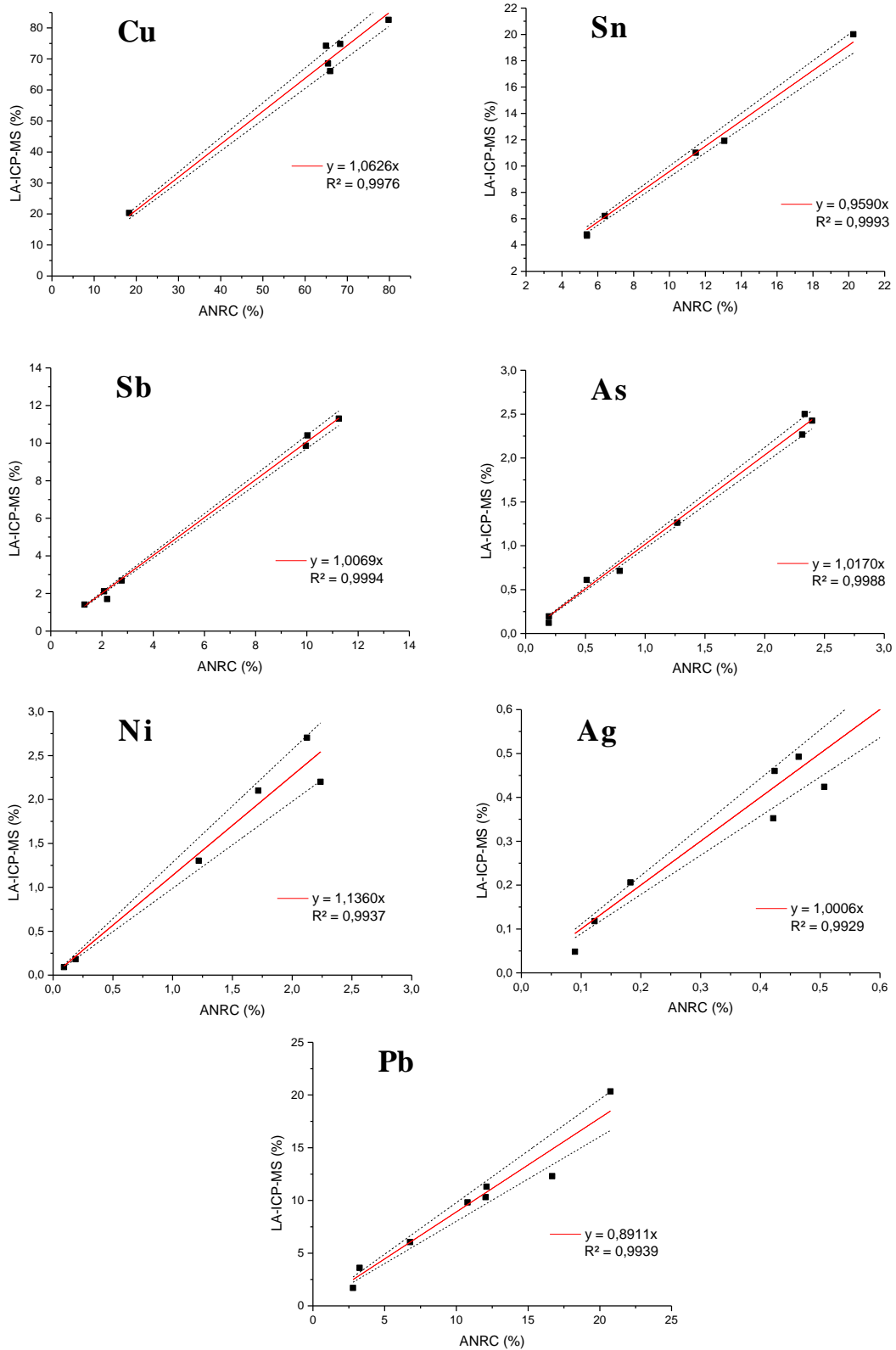


Figure 44 : Comparaison des teneurs élémentaires déterminées par LA-ICP-MS et par activation neutronique pour les principaux éléments qui composent les matrices cuivreuses. Les droites d'erreur à plus ou moins 5 % relatif sont figurées en pointillés.

2.3.2.5.5.4. Protocole d'analyses des argiles rubéfiées des structures de chauffe

Les argiles rubéfiées provenant des structures de chauffe, foyers ou fours, ont d'abord fait l'objet d'analyse *in situ* par XRF. Dans un second temps, elles ont été échantillonnées en vue d'une analyse par LA-ICP-MS afin de déterminer les teneurs en éléments-traces métalliques, notamment pour le plomb, le cuivre et l'argent. Ces résultats peuvent permettre de préciser la fonction de ces structures et le type de métallurgie auquel elles se rattachent.

Les prélèvements ont fait l'objet d'une préparation préliminaire qui consiste en une dessiccation dans une étuve à 60 °C pendant 2 h suivie d'un broyage dans un mortier en agate. Ils ont ensuite été passés dans une colonne de tamisage dont la maille la plus fine est de 100 µm. Enfin, les prélèvements ont été compactés avec une presse hydraulique de manière à agglomérer le matériau en formant des pastilles de 12 mm de diamètre²⁸⁶.

Le protocole d'analyse LA-ICP-MS utilisé a été développé par Bernard Gratuze pour l'étude des matrices silicatées telles que l'obsidienne ou le verre²⁸⁷. Nous l'avons repris en adaptant les paramètres de l'ablation laser. En particulier, le prélèvement s'effectue en mode dynamique, sur une distance d'environ 3 mm afin d'assurer une sensibilité maximale. La fréquence des impulsions laser est fixée à 10 Hz. Le diamètre du faisceau est de 100 µm et sa fluence vaut 3,0 J.cm². La durée totale d'analyse est de 60 s. Le calcul des teneurs repose sur un étalonnage interne sur l'isotope ²⁹Si et externe au moyen de matériaux de référence²⁸⁸ (étalons NIST 610 et Corn B et D). Chaque pastille a fait l'objet de trois analyses puis les teneurs moyennes ont été calculées.

²⁸⁶ L'influence du tamisage sur les teneurs élémentaires est négligeable. Nous l'avons démontré en analysant des pastilles d'argile confectionnées à partir des refus de tamis. L'écart-type est systématiquement inférieur à 5 %.

²⁸⁷ Gratuze B., « Obsidian Characterization by Laser Ablation... », *op. cit.* ; Gratuze B., « Glass Characterization Using Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry Methods », In Dussubieux L., Golitko M. et Gratuze B. (éd.), *Recent Advances in Laser Ablation ICP-MS for Archaeology*, Springer-Verlag, Berlin, 2016, p. 179-196.

²⁸⁸ Les teneurs des matériaux de référence figurent dans l'annexe 3.

Partie 3 : Les ressources minérales

3.1 À l'origine de l'atelier multi-métaux, des ressources minières variées

Nous avons évoqué dans la première partie de quelle manière, au cours de la longue et complexe histoire géologique des Pyrénées centrales, les conditions favorables à la formation de gisements métalliques variés ont pu être réunies. L'exploitation des richesses minières du Couserans a débuté dès la Protohistoire et se poursuit actuellement. Cette activité fut cependant discontinuée et jalonnée d'espoirs déçus. Néanmoins, les productions couserannaises se sont trouvées fréquemment associées aux périodes d'essor et de mutation du marché des métaux, en particulier pour le zinc, le manganèse ou plus récemment le tungstène²⁸⁹. Ces exemples récents ne doivent pas pour autant occulter l'essor certain de l'extraction et de la transformation des minerais non-ferreux, principalement le plomb argentifère et dans une moindre mesure les minerais de cuivre, au cours des derniers siècles du Moyen Âge. Si Castel-Minier en est un exemple éloquent, les sources écrites médiévales révèlent l'exploitation d'autres gisements de minerais non-ferreux. Toutefois, les nombreux travaux miniers anciens qui parsèment le paysage actuel forment un écheveau dont il n'est pas toujours aisé de démêler les fils médiévaux.

²⁸⁹ Parmi les exploitations d'envergure figurent la mine de Bulard (comm. Bonac-Irazein) qui a fourni en 1902 et en 1906 23 % de la sphalérite marchande extraite en France avec respectivement 1748 et 1819 t : Dubois C., *Les mangeuses d'hommes...*, op. cit., p. 180-181 ; la mine de zinc de Carbouère (comm. Ustou) avec 3 500 000 t de réserve de tout-venant à 6 % de zinc : Laforêt C., Monchoux P., Oudin E. et Tollon F., *Inventaire minéralogique...*, op. cit., p. 10 ; la mine de manganèse de Las Cabesses (comm. Rivèrenert), deuxième producteur français au début du XX^e siècle avec 113 000 t de minerai extraites en neuf années : Dubois C., « Réputation métallifère, administration des mines et spéculateurs dans les Pyrénées centrales », *Revue de Comminges et des Pyrénées centrales*, tome 66, n° 4, 2000, p. 723-740 ; mine de tungstène d'Anglade (comm. Salau) exploitée de 1971 à 1986 et qui fait actuellement l'objet d'un permis de recherche.

3.1.1. Le district minier à travers les sources écrites

3.1.1.1. Sources médiévales et modernes

Le district médiéval du Haut-Couserans peut être caractérisé à partir des quelques sources écrites disponibles. La vallée d'Aulus et la mine d'argent qu'elle abrite sont clairement mentionnées dès 1319 au moment du procès que nous avons étudié²⁹⁰. À la même époque, le vicomte de Couserans se trouve être également en possession de mines à Rivèrenert et Ustou. Ainsi, un premier district se dessine en ce début de XIV^e siècle dont la nature polymétallique ne fait aucun doute : les métaux extraits sont « de fer de plomb et d'argent²⁹¹ ». Malgré ces mentions, la localisation des mines demeure imprécise. Seule exception, la mine d'Aulus, située au mont de « Passio » c'est-à-dire probablement dans la montagne du Pouech de Gouaff.

Il faut attendre le début du XVII^e siècle et le récit de Jean de Malus pour localiser plus précisément les exploitations médiévales²⁹². Malus, maître de la Monnaie de Bordeaux est chargé par le roi Henri IV d'une mission de prospection minière dans les montagnes pyrénéennes à la recherche des anciens travaux. Le périple ne consiste pas uniquement en un inventaire ; les observations de Malus doivent servir à évaluer le potentiel minier des vallées visitées dans l'optique d'une éventuelle mise en exploitation. Une première campagne de prospection avait été menée en 1599 par Corbeyran d'Aure, « commissaire en la recherche des mines ès vallées d'Aure, l'Arboust, Luchon, Couzerans et comté de Foix²⁹³ ». En 1600, il charge Malus,

²⁹⁰ *Supra* p. 103.

²⁹¹ ADA 1J251.

²⁹² Le périple de Malus a été consigné par Jean Dupuy, lieutenant principal de la jugerie de Rivière, et publié en 1601 à Bordeaux chez Simon Millanges. La seconde édition, augmentée d'une note de Malus fils de 1632, figure dans Gobet N. (éd.), *Les anciens minéralogistes du royaume de France*, Ruault, Paris, 1779, p. 75-175. Dernière édition : Dupuy J., *La recherche et découverte des mines des montagnes Pyrénées, faite en l'an mil six cens par Jean de Malus Escuyer & Maître de la monoye de Bourdeaux*, Milan, Toulouse, 1990.

²⁹³ Dupuy J., « La recherche et découverte... », p. 91 et suivantes.

accompagné de Guillaume Boucaut, commissaire à la recherche des mines de Guyenne, de poursuivre cette entreprise²⁹⁴.

Les prospections estivales débutent dans la vallée d'Aure et s'étendent jusqu'au pays de Foix (mines de Saint-Paul-de-Jarrat). L'intérêt des observations concernant le Couserans est inégal : si les mines d'Aulus font l'objet d'un long développement et d'une visite approfondie, certaines vallées sont décrites plus sommairement et les caractères très généraux des mines évoquées font douter d'une visite effective de Malus. Ainsi la description de la vallée de Rivèrenert se limite à la mention de « mines d'or & de cuivre fort abondantes » sans que l'extraction de minerais de fer soit évoquée.

Dans la vallée d'Ustou, Malus a visité plusieurs mines dans les environs du village du Trein. Devant l'importance des travaux anciens, il suggère que les exploitations furent particulièrement profitables. Les prospections dans la vallée d'Ercé, bien qu'elles aient livré quelques indices de minéralisations, n'ont pas révélé de travaux anciens. Lorsqu'il s'agit de présenter les mines d'Aulus, l'auteur est plus prolix. Le toponyme de « Castel Minié » est mentionné pour la première fois ainsi que d'autres indications topographiques – telle la cascade du « Pic de la Gruë » que franchit le Garbet en amont de Castel-Minier – qui permettent de saisir l'étendue des travaux miniers (figure 45).

Nous pouvons considérer qu'au moment de la visite de Malus, les anciennes installations de surface n'ont pas été oblitérées par des reprises plus récentes. En effet, elles semblent encore en place et lisibles dans le paysage : c'est le cas de la « grande fonte » à laquelle on accède depuis le château. De surcroît, Malus relate la découverte d'un lingot de plomb par des habitants du village dans les années 1580. Cette anecdote souligne le caractère soudain de l'abandon du site dont les activités se sont figées peu de temps avant son passage. À proximité de Castel-Minier, le Pouech de Gouaff (figure 45), enserré par les rivières du Garbet et d'Ars, est percé de nombreuses galeries d'envergure variée (d'une demi-lieue à une lieue et demie). Parmi celles-ci, le « trou

²⁹⁴ Dupuy J., « La recherche et découverte... », p.91.

de la barre » correspond à l'un des puits du quartier des Raspes et la galerie qui le jouxte peut être identifié à la galerie des « Tuttotes²⁹⁵ ». Enfin les « neuf soupiraux » se réfèrent sans ambiguïté à la mine de Castel-Minier et en particulier aux « Ouels » (ou « Trous des yeux »), vastes ouvertures irrégulières qui témoignent d'une exploitation semi-souterraine d'une partie du gisement. Les « grands esgouts » de la mine désignent les ouvrages d'exhaure qui drainent les eaux souterraines jusqu'au Garbet.

Après avoir décrit les installations de surface, Jean Dupuy relate avec force détails les explorations souterraines auxquelles s'est livré Jean de Malus. Non sans louer le courage et la témérité de ce dernier, le récit permet d'identifier certains ouvrages. Malus visite une ancienne galerie découverte trois mois avant sa venue par un charbonnier. Il s'agit d'un petit ouvrage étroit dont la minéralisation n'a pu être reconnue. Nous pouvons l'identifier à l'ancien gisement du « Single du bois des charbonniers » sis en rive gauche du ravin d'Aubac et décrit par Dietrich²⁹⁶. Malus entreprend ensuite de visiter la mine de Castel-Minier dans laquelle il aurait passé plus d'une heure et demie, empruntant les nombreuses ramifications du réseau²⁹⁷.

Aux travaux miniers de Castel-Minier, s'ajoutent les « grands & vieux voyages faits pour tirer la mine » qui se trouvent dans les montagnes de « Monbias, de Montarisse, des Argentieres ». Il s'agit du « Mont Béas », de la vallée de l'Ars et du « pic des Argentières » où Malus ne semble pas s'être rendu (figure 45).

²⁹⁵ Dubois C., « Les mines de plomb argentifère... », *op. cit.*, p. 193.

²⁹⁶ Dietrich P.-F. de., *Description des gîtes de minerai, des forges et des salines des Pyrénées*, Didot, Paris, 1786, p. 243-244.

²⁹⁷ La sortie de Malus a trois quarts de lieue de l'entrée semble impossible compte tenu de la configuration des lieux et l'on peut à nouveau suspecter une exagération.

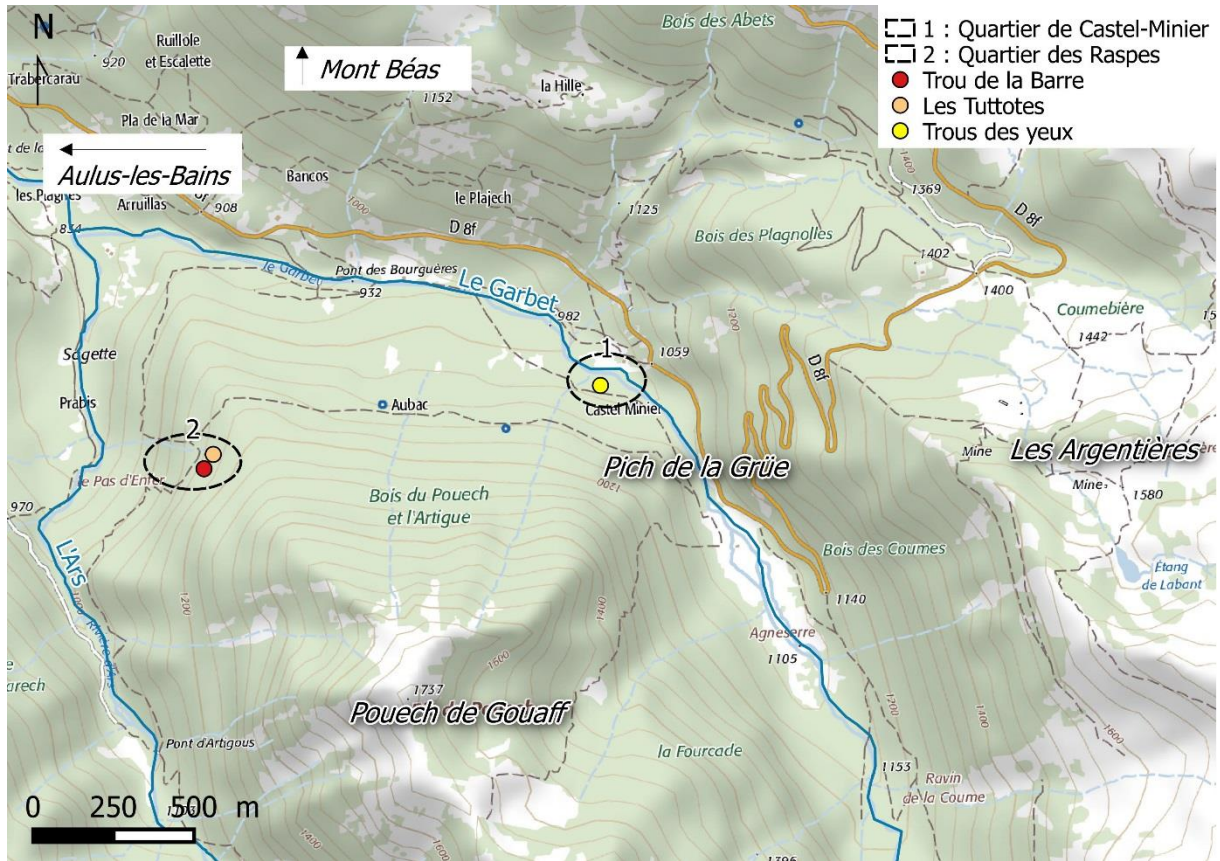


Figure 45 : Détails des travaux miniers de la vallée d'Aulus cités par Jean Dupuy.

Une première cartographie du district minier du Couserans se dessine donc à partir des sources médiévales et du récit des prospections de Malus. Plusieurs singularités méritent d'être relevées. Le caractère polymétallique des ressources minières se double d'une spatialisation prononcée entre un premier espace centré sur Rivèrenert et concentrant les minerais de fer et un second plus vaste regroupant les mines non-ferreuses de la région d'Aulus et d'Ustou. Au sein de ce second espace, la répartition des gisements n'est pas homogène : la plupart sont localisés autour de Castel-Minier qui apparaît comme un centre minier de premier plan. Un effet de source peut facilement être invoqué pour nuancer cette interprétation. Quoiqu'il en soit, on ne peut guère conjecturer davantage à partir du seul examen des textes.

3.1.1.2. Compléments : l'intérêt des sources contemporaines

Le cadre du district minier du Couserans médiéval a pu être défini à partir de l'étude des sources écrites médiévales et modernes. Il demeure toutefois incomplet en particulier lorsqu'il s'agit de localiser précisément les anciens travaux. Ceux-ci sont définis par la vallée dans laquelle ils sont inclus voire, dans le meilleur des cas, par la mention du village le plus proche. Afin de préciser l'emplacement des sites d'extraction, les sources écrites contemporaines ont été étudiées. Elles sont disparates et comprennent aussi bien les rapports des ingénieurs des Mines, les archives des compagnies minières qui ont repris certaines exploitations anciennes ou encore les études minéralogiques. Notre travail a également bénéficié de l'importante synthèse de Claude Dubatik consacrée aux anciens travaux miniers du Haut-Salat²⁹⁸. Outre une localisation plus précise des travaux, l'intérêt des sources contemporaines réside dans les notices descriptives qui donnent fréquemment des précisions géologiques et gîtologiques ainsi qu'une description des réseaux souterrains voire une topographie.

L'étude diachronique des mines du Haut-Couserans se justifie à plusieurs niveaux. Sur le plan métallogénique, une exploitation récente peut avoir les mêmes propriétés qu'une mine médiévale proche pour laquelle le réseau souterrain n'est plus accessible. Dans ce cas, elle peut constituer un analogue permettant de caractériser l'espace métallifère exploité. Par ailleurs, les documents modernes peuvent mentionner des aménagements anciens (puits, galeries, installations de traitement des minerais, mobiliers) rencontrés lors des travaux de reprise et inconnus des sources écrites médiévales. Sur le plan géochimique, les teneurs en métaux issus des essais de minerais (qui sont souvent le fait des ingénieurs des Mines) sont des données particulièrement intéressantes pour évaluer l'intérêt économique des anciennes mines. Ces résultats forment également une base de comparaison pour nos propres analyses issues de prélèvements dans les minéralisations.

²⁹⁸ Dubatik C., *Recherches sur les travaux...*, *op. cit.*

Nous nous sommes intéressé principalement aux minerais connus à l'époque médiévale dont un traitement métallurgique à Castel-Minier peut être envisagé. Cela concerne essentiellement les minerais de plomb, de cuivre ou polymétalliques de type « cuivres gris ».

L'étude des sources écrites contemporaines permet d'étoffer la carte du district minier et de préparer les visites sur le terrain (figure 46). La vallée d'Aulus est de loin la zone qui contient le plus de gisements. Aux travaux des Argentières et de Castel-Minier s'ajoutent le réseau de Lacore, de Lauqueille ainsi que plusieurs exploitations sur le Pouech de Gouaff et dans la vallée de l'Ars. Dans la zone d'Ustou, les anciens travaux se répartissent dans la vallée de l'Alet. Il s'agit des mines de Carboire, d'Ichedets et de Caboussat. Un troisième espace minier a été pris en compte au sud du bourg de Seix. Il s'agit de la zone environnant la confluence du ruisseau d'Estours et du Salat.

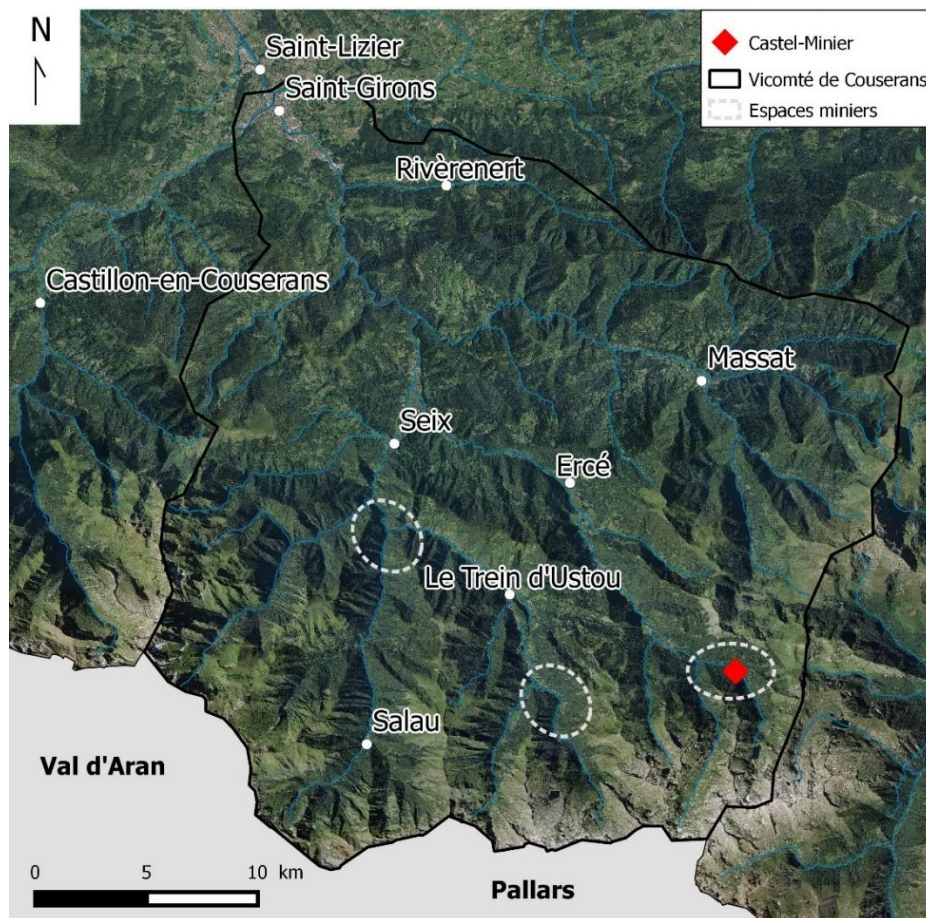


Figure 46 : Espaces miniers de la vicomté de Couserans d'après les sources écrites.

3.1.2. Caractérisation minéralogique et géochimique du district : les campagnes de prospection minière

3.1.2.1. Secteur d'Aulus

Les travaux du secteur d'Aulus se situent dans les vallées du Garbet et de L'Ars (figure 47). Les minéralisations qu'ils exploitent se situent principalement dans les terrains paléozoïques du système Dévonien qui se composent de schistes et de dolomies. Il s'agit en majorité de gisements de type filonien.

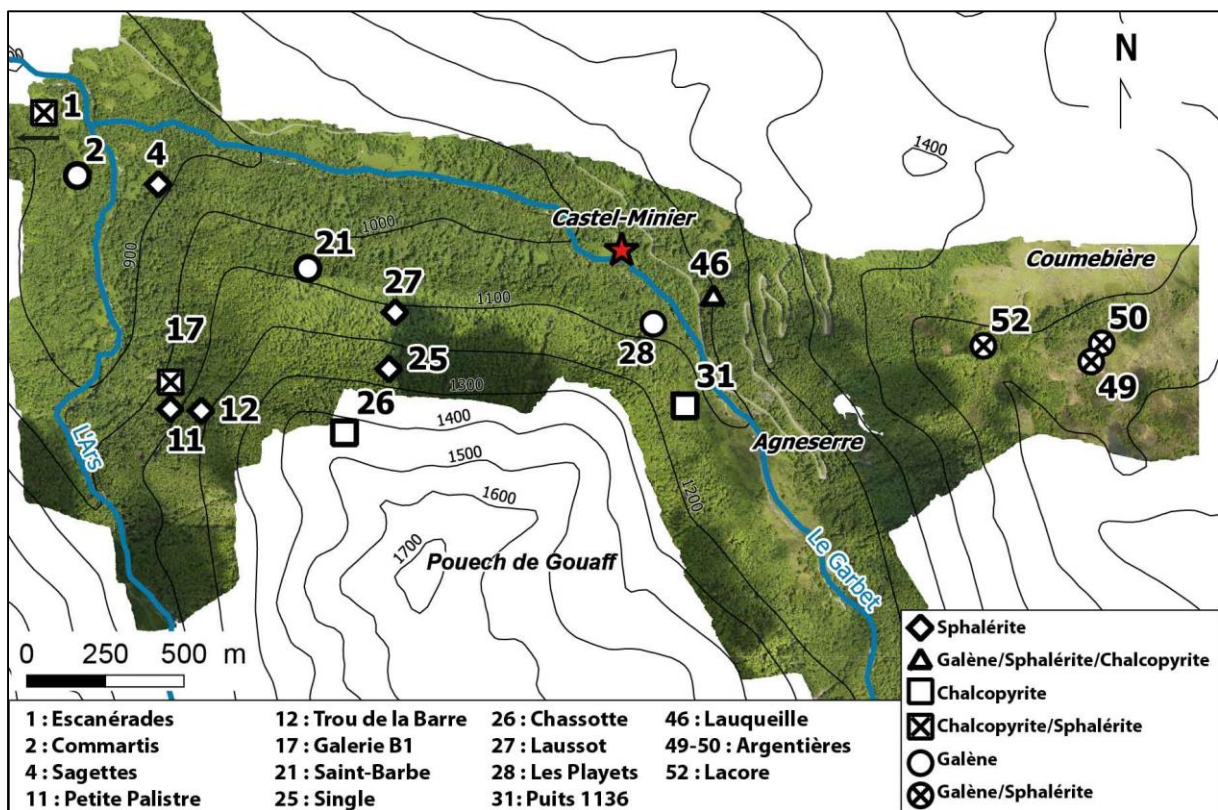


Figure 47 : Travaux miniers de la zone d'Aulus.

- Les Argentières

Le pic des Argentières se situe au sud du plateau glaciaire de Coumebière. Sur son versant méridional, on rencontre d'abord une tranchée de 4 m dirigée nord-sud

menant à une galerie bouchée. Au-devant de cette tranchée, une halde conséquente est au contact du granite (Halde sud, figure 48). En progressant sur le sentier vers le sommet, on trouve une nouvelle halde (Halde sud-est, figure 48). Au cœur de celle-ci une structure bâtie en pierres sèches d'environ 4 m de long pour 1,5 m de hauteur évoque un quai de chargement. Au pied du versant est, un replat jonché de stériles s'étend sur une dizaine de mètres. Le pic des Argentières est percé d'une salle (Cavité est, figure 48) qui donne accès à une galerie, dirigée est-ouest, dont les 6 premiers mètres sont visitables. Au flanc nord, à environ 5 m du sommet, des débris stériles de quartz ainsi que des charbons de bois laissent supposer la présence de haldes (Halde nord, figure 48). Au sommet du pic (alt. 1 600 m), plusieurs excavations sont visibles dont l'une, d'environ 2 m de profondeur, marque l'emprise d'un puits aujourd'hui obstrué. Le gîte se caractérise par une colonne minéralisée ayant exploité le croisement de deux fractures²⁹⁹. Le puits devait en attaquer le centre. Cette colonne est constituée d'une brèche de quartz, calcite, dolomie et schiste encaissée dans la dolomie du Dévonien inférieur et minéralisée en galène et sphalérite.

Le toponyme « Argentières » suggère une exploitation ancienne. Lors de son voyage en 1600 Malus y signale de « grands et vieux voyages faits pour tirer les mines ». À la fin du XVIII^e siècle, MM. de Chamilly et de Villepinte réexploitent les Argentières. En 1786 le baron de Dietrich écrit que les travaux sont abandonnés. Plusieurs reprises se limitant à des travaux superficiels ont été engagées dans la seconde moitié du XIX^e siècle. Des datations récentes réalisées sur des charbons de bois issus d'un sondage dans une halde ancienne ont mis en évidence une exploitation dès le second âge du fer³⁰⁰.

Plusieurs prélèvements ont été réalisés sur le gisement des Argentières. La cavité orientale a d'abord été échantillonnée en trois endroits : le premier au front de

²⁹⁹ Dubatik C., *Recherches sur les travaux... op. cit.* p. 60.

³⁰⁰ Deux dates : horizon stratigraphique le plus ancien : 366-192 cal BC ; horizon le plus récent : 151 cal BC-55 cal AD. Py-Saragaglia V., Cunill Artigas R., Métaillé J.-P., Ancel B., Baron S., Paradis-Grenouillet S., Lerigoleur É., Badache N., Barcet H. et Galop D., « Late Holocene history... », *op. cit.*, sous presse.

taille de la galerie est-ouest (Cavité est) à 17 m du jour ; le deuxième au parement sud de la salle (Cavité est) à 10 m du jour ; le troisième à l'entrée de la cavité est. Un quatrième prélèvement a été effectué sur les haldes nord, ainsi qu'un cinquième sur les haldes sud et un sixième sur les haldes sud-est. Les minerais prélevés consistent en sphalérite et galène avec une gangue de quartz et/ou de dolomie. La galène présente dans certains cas une structure en cocarde et une teneur en argent élevée avec une moyenne à 2,81 Ag(kg)/Pb(t) (2 fragments analysés à 2407 et 2379 ppm d'argent). À titre de comparaison, les valeurs obtenues par Mussy³⁰¹, après conversion, fluctuent entre 1,58 et 2,31 Ag(kg)/Pb(t). En revanche, si la tétraédrite a pu être reconnue en inclusions dans la galène par certains auteurs³⁰², nous ne l'avons pas identifiée.

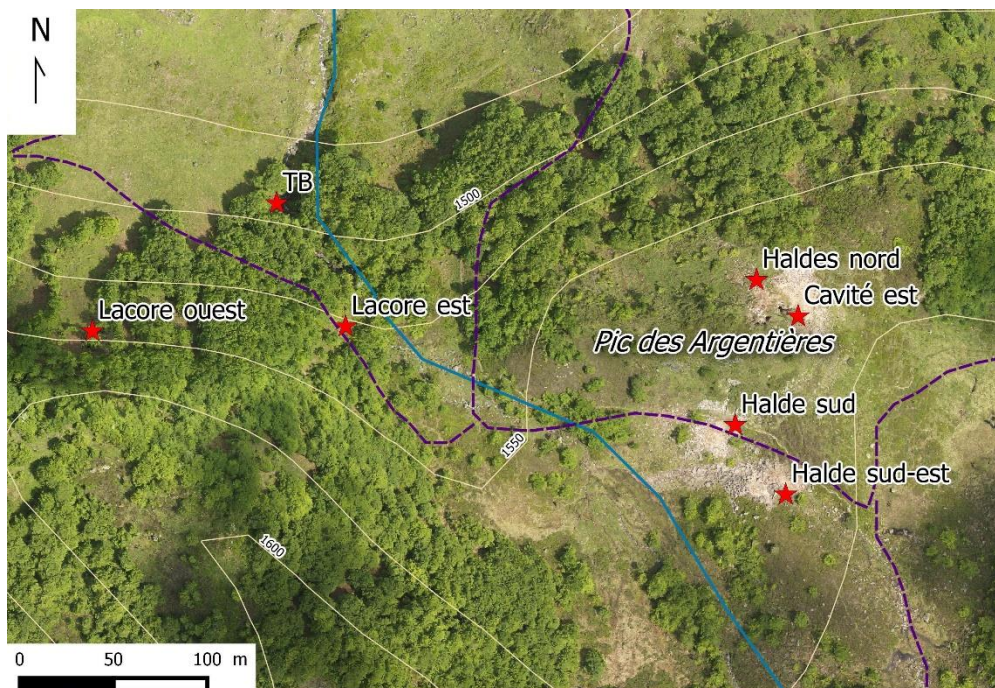


Figure 48 : Travaux miniers au sud de Coumebière : Les Argentières et Lacore.

³⁰¹ Mussy J., « Note sur les gîtes... », *op. cit.*, p. 215 et Mussy J., « Ressources minérales de l'Ariège », *Annales des Mines*, 6^e série, tome 16, 1869, p. 261.

³⁰² Munoz M., Baron S., Boucher A., Béziat D., et Salvi S., « Mesozoic vein-type Pb-Zn... », *op. cit.*, p. 326 et suivantes.

- Lacore

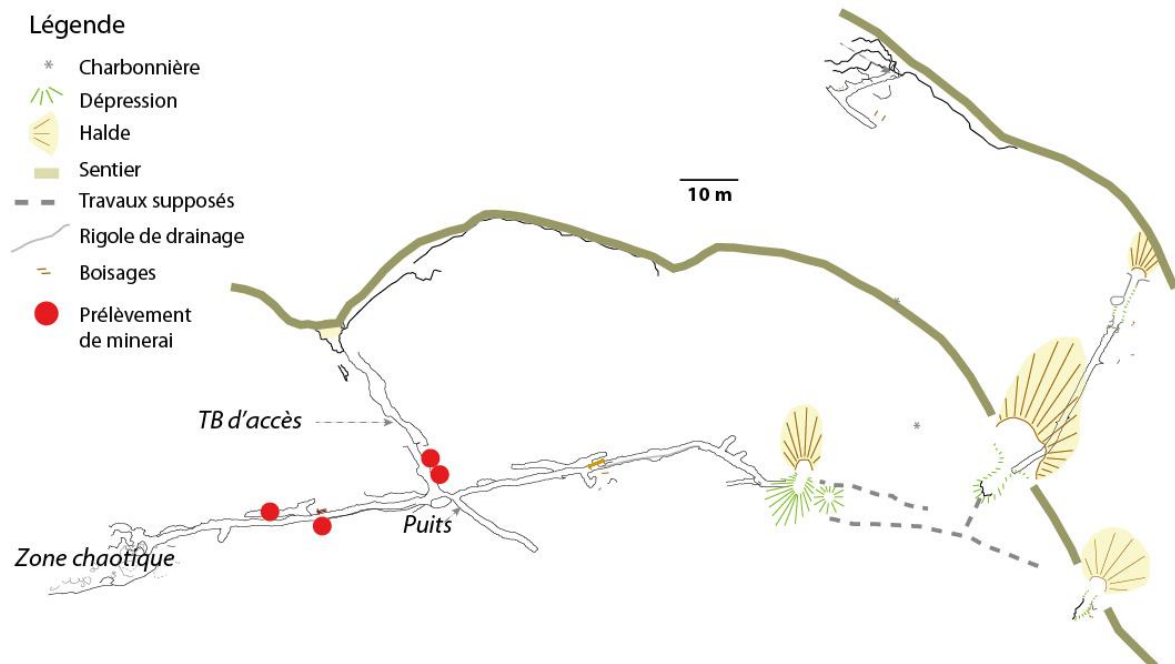
La mine de Lacore se situe au sud du plateau de Coumebière (figure 48). Alors qu'elles occupaient une pente dégagée dans les années 1980 lorsque Dubatik³⁰³ visite le site, les entrées est et ouest, dans l'axe du pic des Argentières, sont aujourd'hui masquées par un abondant couvert végétal. Leurs abords sont jonchés de déblais. L'entrée occidentale est un travers-banc de 34 m de longueur dirigé NO-SE (figure 49) qui suit un filon croiseur rejoignant un puits inondé, emplacement de la colonne minéralisée. À l'ouest du puits, un défilage est-ouest s'étend sur trois étages. Nous avons visité le premier sur 34 m et le second sur 51 m. Pour des raisons de sécurité, l'exploration n'a pas été poussée plus avant.

Le gisement de Lacore occupe une fracture au contact des schistes et de la dolomie. Le travers-banc d'accès traverse des schistes. Il suit un filon croiseur de quartz. La galène, encaissée dans la dolomie du Dévonien inférieur, est le minerai principal. Elle peut être associée à des carbonates de plomb et, plus ponctuellement, à de la calamine. Mussy note que le minerai, à gangue terreuse, est disséminé dans le gîte en nodules et plaquettes³⁰⁴. La datation de la mine est rendue délicate par les travaux plus récents qui s'échelonnent du XVIII^e au XIX^e siècle. Lors de sa visite vers 1785 le baron de Dietrich décrit³⁰⁵ des dépôts de roche issus de l'entreprise de M. de Villepinte qui conduisit des travaux d'extraction à Lacore dans les années 1770. Incluse dans la concession Lecour, la mine a été à nouveau travaillée au XIX^e siècle. L'ingénieur des Mines Mussy décrit ces travaux qui ont consisté à ouvrir un chantier d'abattage à l'est du travers-banc d'accès.

³⁰³ Dubatik C., *Recherches sur les travaux... op. cit.* p. 61 et suivantes.

³⁰⁴ Mussy J., « Note sur les gîtes... », *op. cit.*, p. 216.

³⁰⁵ Dietrich P.-F. de., *Description des gîtes...*, *op. cit.*, p. 240.



La mine a fait l'objet de cinq prélèvements en place dans les zones minéralisées occidentales (figure 49). Des échantillons ont été collectés dans le travers-banc d'accès : le premier à 8 m au nord du puits, le second à 10 m dans la même direction à proximité d'une crevasse karstique. Les trois autres prélèvements ont été réalisés dans les niveaux du défilage ouest : à l'étage inférieur, deux prélèvements à 34 m du puits ; à l'étage intermédiaire, un prélèvement à 51 m du puits. L'examen minéralogique des échantillons a permis d'identifier de la galène à gangue de calcite associée à du carbonate de plomb (cérusite) ainsi que de la sphalérite contenant des inclusions de pyrite. Les haldes que nous avons identifiées au-devant des entrées est et ouest ont fait l'objet de recherches de minerais qui se sont révélées infructueuses.

- Lauqueille

Les travaux de Lauqueille s'étagent depuis la rive droite du Garbet, au niveau du Pich de la Grüe, jusqu'à une altitude de 1200 m en direction du nord-est (figure 47). Les haldes ont été remaniées lors de la construction de la route D8f et certains accès à

la mine ont été comblés. La minéralisation occupe une faille au contact des dolomies et des schistes de l'étage dévonien. Le filon a été exploité à différents niveaux à partir de galeries numérotées G0, G1, G2 et G3 (figure 50). La galerie G0, dirigée est-ouest, est longue de 144 m. Un puits inondé se trouve à 128 m du jour tandis qu'à 130 m, un défilage communique avec la galerie G1. À l'extérieur, il n'est plus possible de pénétrer dans la galerie G1 et seul un puits est aujourd'hui visible au bord de la route. D'après les Archives des Mines de 1899-1890, cette galerie mesure 140 m avec plusieurs recoupes à gauche et à droite³⁰⁶. D'après un plan de Mussy³⁰⁷, la galerie comprend un petit défilage aval et amont à 20 m du jour ainsi qu'un défilage par gradins renversés à 50 m du jour. La galerie G2 est quant à elle inondée tout comme son homologue G3.

Hormis peut-être le puits situé dans le secteur G1, qualifié de « Puits des Romains³⁰⁸ », les travaux de Lauqueille ont été exécutés dans la deuxième moitié du XIX^e siècle et s'intéressaient au minerai de zinc. Notre échantillonnage n'a malheureusement pas pu être réalisé directement sur la minéralisation. Il se limite à une collecte de roches éparpillées au sol au niveau du puits inondé de G0 et sur un probable carreau à l'entrée de G2 (figure 50). Les minerais collectés sont à gangue de quartz. Au niveau du puits inondé, il s'agit d'un petit bloc de galène associé à de la sphalérite et de la chalcopryrite. Le teneur en argent, mesurée par LA-ICP-MS, s'élève à 1585 ppm. Elle est en-dessous des valeurs données par Mussy après essai du minerai de Lauqueille dans son laboratoire de Vicdessos³⁰⁹.

³⁰⁶ Dubatik C., *Recherches sur les travaux...*, *op. cit.* p. 55.

³⁰⁷ Mussy J., « Ressources minérales... », *op. cit.*, planche IV.

³⁰⁸ Ce puits est découvert en 1860 lorsque O de Bardies, qui a pris à ferme la concession Lecour, fait ouvrir le secteur de Lauqueille : Dubois C., « Les mines de plomb argentifère... », *op. cit.*, p. 197.

³⁰⁹ Mussy indique que le schlich lavé contient 60 % de plomb et rend 150 à 160 g d'argent au 100 kgs soit après conversion entre 2,50 Ag(kg)/Pb(t) et 2,66 Ag(kg)/Pb(t). Notre analyse de minerai donne une valeur de 1,77 Ag(kg)/Pb(t).

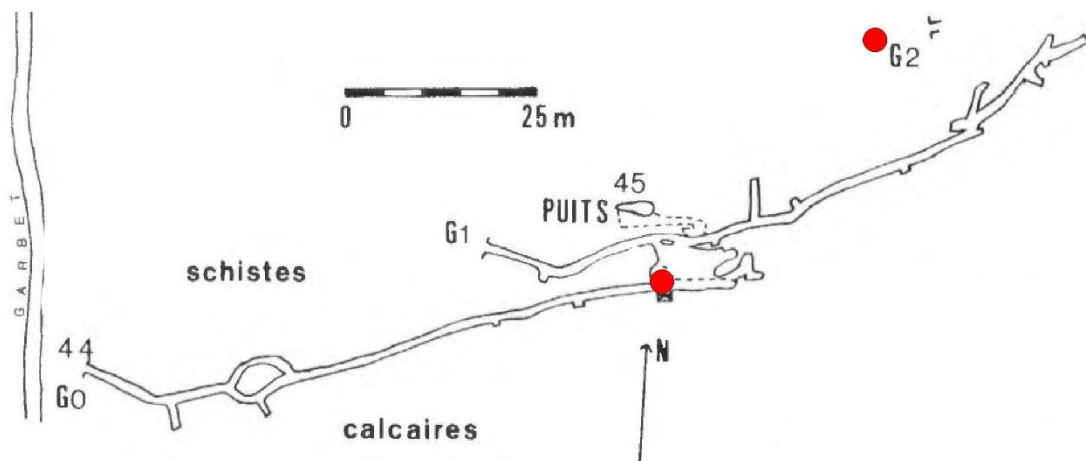


Figure 50 : Lauqueille, localisation des prélèvements. Plan d'après Dubatik C., *Recherches sur les travaux miniers...*, *op. cit.*, p. 53. La galerie G3, à l'est de G2, est hors plan.

- Le puits 1136

L'indice minier se situe sur le versant sud du Pouech qui domine la pâture d'Agneserre. Ce puits est nommé d'après l'altitude à laquelle il se trouve. L'ouvrage est totalement comblé et dissimulé sous les feuilles mortes ; quelques déblais épars sont identifiables aux alentours. Le plan de la concession du Pouech levé par Brahy en novembre 1913 qualifie cet ouvrage « d'ancien puits ». L'orifice a été foncé dans les dolomies puis les barégiennes³¹⁰ (phyllades formées d'une alternance de schistes et de carbonates). Nous avons prélevé de la pyrite (avec inclusions d'arsénopyrite) ainsi que quelques mouches de chalcoppyrite prises dans les barégiennes.

- Les Playets

Le modèle numérique établi d'après le relevé LIDAR révèle la présence d'une anomalie sur la crête des Playets de Lasmès qui borde l'extrémité méridionale des travaux de Castel-Minier. Il s'agit d'une tranchée longue de 15 m, large de 4 m à

³¹⁰ Gramont X. de, « les mines d'Aulus... », *op. cit.*, p. 478.

l'entrée et de 1 m au front de taille, qui attaque transversalement la crête dolomitique du Dévonien inférieur (figure 51). Le secteur des Playets est parsemé de filonnets de quartz qui ont guidé nos prospections et il est très probable qu'il en fut de même pour les Anciens. Le parement de la tranchée a fait l'objet d'un prélèvement dont l'observation sous binoculaire révèle la présence de pyrite. Au bas de cet ouvrage, à environ 20 m à l'ouest, un travail qui semble s'apparenter à un grattage ou à une descenderie a également été repéré (figure 51). La couronne de l'ouvrage est bien visible, mais les travaux souterrains sont obstrués par des feuilles mortes après 3 m et il n'est pas possible de conclure quant à l'ampleur des aménagements.

À environ 30 m à l'ouest de cet ouvrage, un affleurement de dolomie rousse a été repéré. Il contient un filon vertical de quartz et de galène, d'une puissance d'environ 5 cm, qui a fait l'objet d'un prélèvement. L'analyse de la galène révèle une composition atypique avec de fortes teneurs en argent et en bismuth et dans une moindre mesure en tellure.

Le potentiel minier des Playets de Lasmès a déjà été relevé par Dietrich qui décrit sur le versant occidental de la crête un petit travail nord-sud d'environ 1 m de profondeur qui s'intéresse à de la chalcoppyrite et de l'arsénopyrite³¹¹. Il pourrait s'agir de la petite descenderie que nous avons identifiée lors de nos prospections. En revanche, la descenderie décrite par Passaqui ainsi que les grattages découverts par Dubatik se situent plus bas, en bordure du Garbet³¹².

³¹¹ Dietrich P.-F. de., *Description des gîtes...*, op. cit., p. 244.

³¹² Dubatik C., *Recherches sur les travaux miniers...*, op. cit., p. 42.

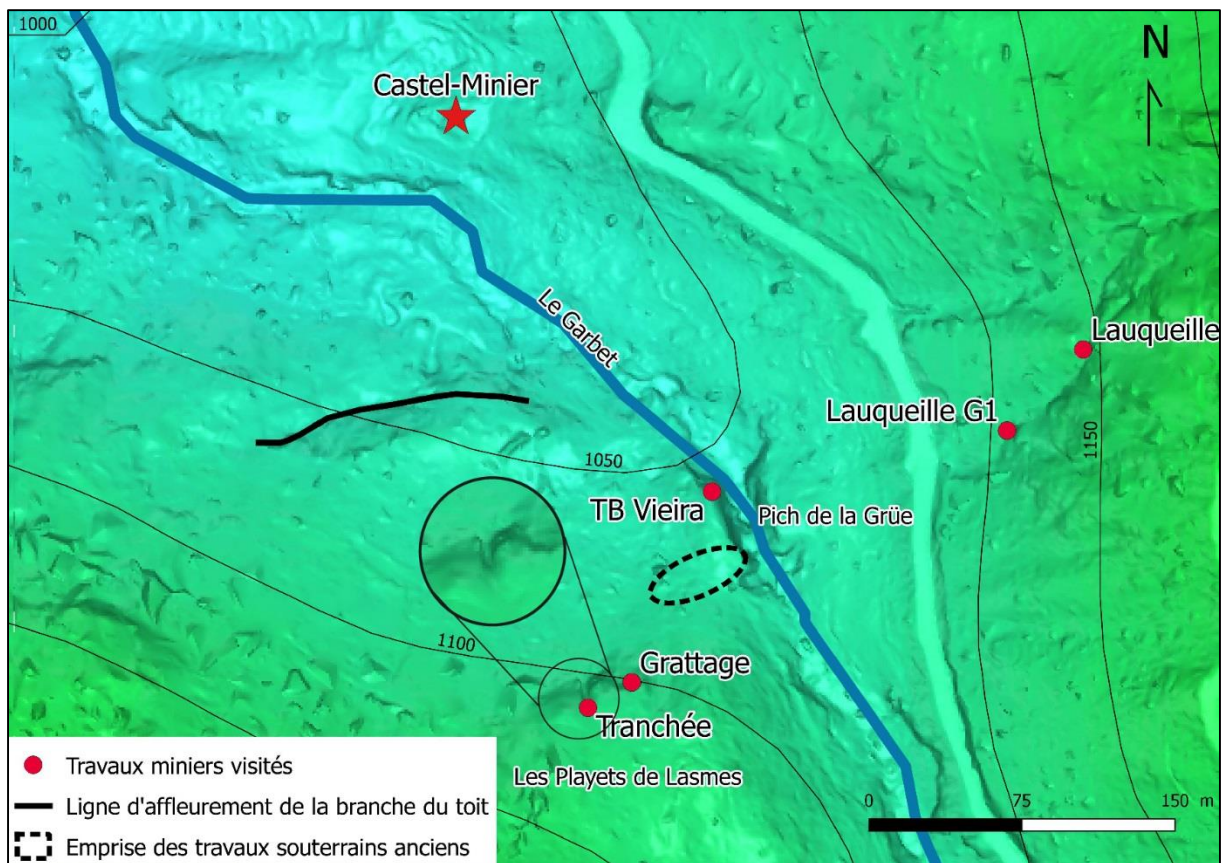


Figure 51 : Prospections dans le secteur des Playets de Lasmès.
Localisation des travaux anciens et détail de la tranchée.

- Laussot

Le gisement de Laussot est situé sur le versant nord du Pouech, à proximité du ravin d'Aubac. Les anciens travaux souterrains³¹³ sont inaccessibles et seules la couronne de la galerie d'accès et une halde ont pu être échantillonnées. Le minerai se compose de sphalérite et de pyrite prises dans une gangue de quartz.

- Single du bois des charbonniers

Nous avons déjà évoqué les activités de charbonnage dans la vallée du Garbet. Qu'il soit destiné aux usages locaux ou qu'il fasse l'objet d'un échange avec la

³¹³ Mussy décrit une galerie de 5 à 6 m prolongée d'une descenderie de 10 m. Mussy J., « Note sur les gîtes... », *op. cit.*, p. 267.

communauté de Vicdessos contre du minerai de fer, le charbon occupe une place non négligeable dans l'économie médiévale des hautes vallées couserannaises. Les pentes du Pouech de Gouaff recèlent de nombreuses plates-formes de charbonnage parfois implantées à proximité des travaux miniers. Ainsi lors de ses prospections à Aulus, Malus visite une galerie d'extraction très étroite découverte trois mois avant sa venue par un charbonnier. Depuis, la profession de l'inventeur semble avoir été retenue pour désigner cette excavation. Sous la plume de Dietrich, « la Sangle du bois des Charbonniers » est un travail ancien dans le secteur du ravin d'Aubac dont la minéralisation se compose de galène et de sphalérite³¹⁴. Le gisement se trouve à proximité de la partie supérieure du ravin d'Aubac. Deux tranchées comblées se succèdent dans la pente. L'une est dirigée nord-sud et la seconde est-ouest ; elles sont associées à des haldes. Il semble, d'après Mussy³¹⁵, qu'une de ces tranchées (longue de 20 m) était suivie d'un puits de 10 m. Ces deux tranchées percent la dolomie du Dévonien inférieur. Les haldes ont fait l'objet d'un prélèvement ayant livré de la sphalérite (avec inclusions de pyrite) à gangue dolomitique.

- Tail de Catoy

Les travaux du Tail de Catoy se sont concentrés sur une barre rocheuse dolomitique à l'ouest du Single du bois des charbonniers. Ils se développent sur environ 25 m de dénivelé. Au pied de la barre rocheuse, une halde précède une galerie nord-sud qui s'étend sur 10 m dans la dolomie. À 4 m du jour, une descenderie débouche en couronne de la galerie. L'origine ancienne de cette descenderie, ouverte au pic, a été suggérée par Dubatik³¹⁶. Au sud-est de ces travaux, à 35 m plus haut en dénivelé, on remarque deux excavations partiellement comblées par des feuilles ainsi

³¹⁴ Dietrich P.-F. de., *Description des gîtes...*, *op. cit.*, p. 243.

³¹⁵ Mussy J., « Note sur les gîtes... », *op. cit.*, p. 267.

³¹⁶ Dubatik C., *Recherches sur les travaux miniers...*, *op. cit.*, p. 38-39.

qu'une galerie en descenderie dont on distingue les boisages. Les prélèvements de roche que nous avons réalisés n'ont pas livré de minerai métallique.

- La Chassotte

Ce travail de modeste envergure se situe au sud-ouest du Single de bois des charbonniers, à 130 m en dénivelé. Une tranchée et un petit grattage exécutés dans une barre rocheuse dolomitique ont été reconnus. Mettrier indique que l'extraction s'y est déroulée entre 1856 et 1863³¹⁷. Un prélèvement sur le parement est de la tranchée a livré de la chalcopryrite prise dans une gangue de calcite.

- Sainte-Barbe

Les travaux de Sainte-Barbe se trouvent en bordure de l'ancien chemin joignant le quartier des Raspes au plateau d'Agneserre. Les indices d'une activité minière ancienne sont ténus. Nous avons localisé une galerie obstruée ainsi qu'une dépression pouvant indiquer la présence d'un ancien puits. La couronne de la galerie est inscrite dans les schistes. Mussy donne une description et un plan des travaux souterrains³¹⁸. Ils se composent d'une galerie recoupée plusieurs fois et terminée par une descenderie. Les haldes sont bien visibles et les déblais s'étalent dans la pente.

L'échantillonnage de la halde a livré de la galène disséminée entre les feuillets de schiste dont un dosage a fourni une teneur de 1366 ppm d'argent. L'étude minéralogique par microspectrométrie Raman a révélé, outre des inclusions de sphalérite, la présence d'ullmannite (figure 52), un sulfure d'antimoine nickélicifère (NiSbS). Ce minéral est relativement rare et se rencontre principalement dans les minéralisations sulfurées d'origine hydrothermale. Le nickel provient des roches

³¹⁷ Mettrier M., « Description des gîtes minéraux du haut Bassin de la Garonne », *Bulletin de la société de géographie de Toulouse*, 1894, p. 244.

³¹⁸ Mussy J., « Ressources minérales... », *op. cit.*, p. 270.

À l'origine de l'atelier multi-métaux, des ressources minières variées

ultrabasiques et précipite à basse température³¹⁹. La présence d'ullmannite dans le gisement de Sainte-Barbe constitue un marqueur géochimique pertinent pour étudier la provenance des minerais archéologiques, sous réserve d'une exploitation médiévale effective.

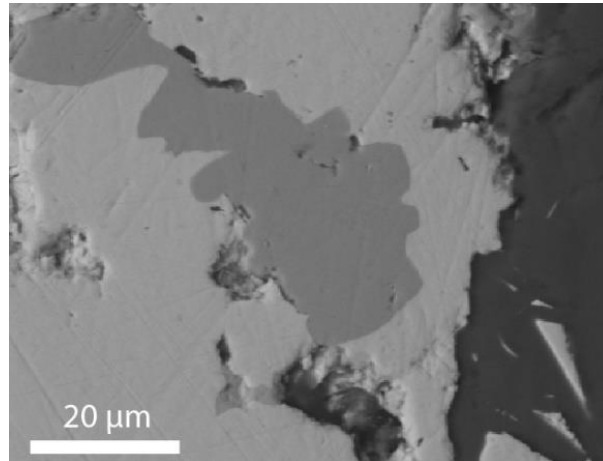


Figure 52 : Image MEB en électrons rétrodiffusés d'une inclusion d'ullmannite (gris foncé) dans une matrice de galène (gris clair), entourée de dolomie (noire).

³¹⁹ Radosavljević S. A., Stojanović J. N., Vuković N. S., Radosavljević-Mihajlović A. S., et Kašić V. D., « Low-temperature Ni-As-Sb-S mineralization of the Pb(Ag)-Zn deposits within the Rogozna ore field, Serbo-Macedonian Metallogenic Province: Ore mineralogy, crystal chemistry and paragenetic relationships », *Ore Geology Reviews*, 65, Part 1, 2015, p. 213-227.

- Le quartier des Raspes

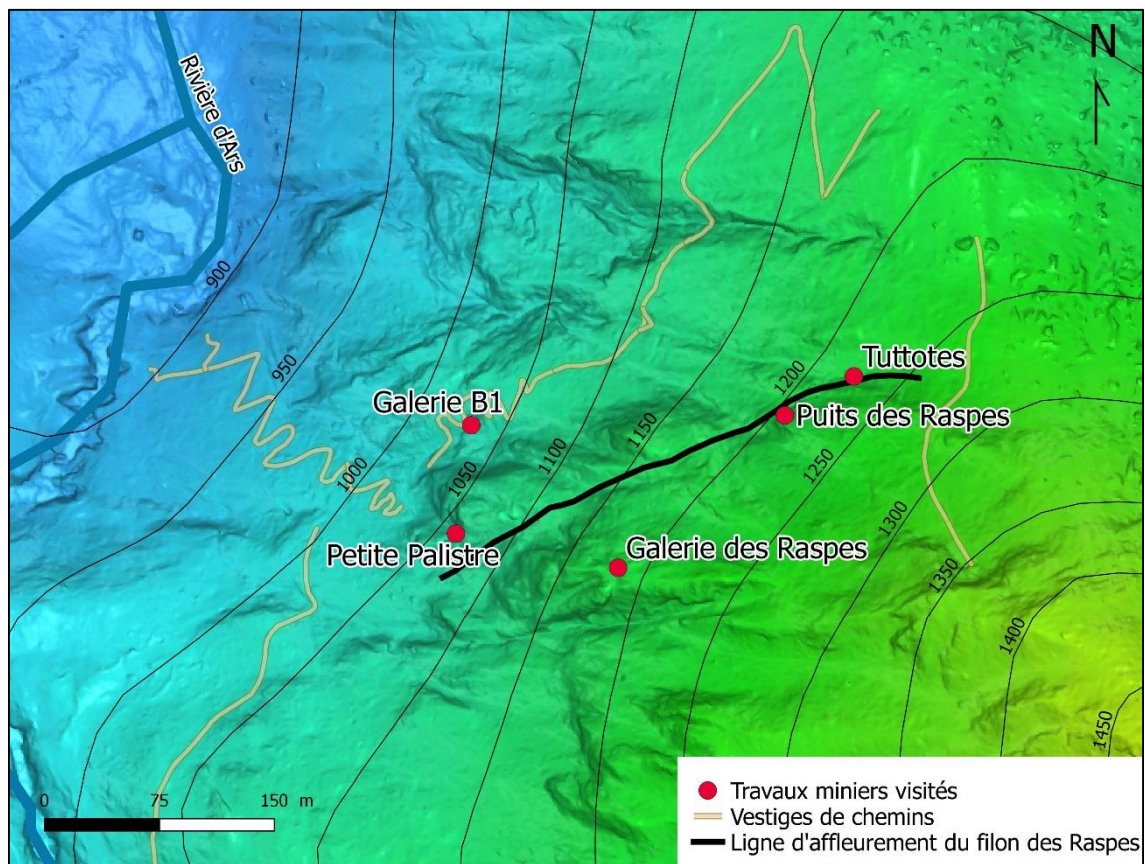


Figure 53 : Travaux miniers du versant ouest du Pouech de Gouaff.
Topographie obtenue à partir des relevés LIDAR.

Le quartier des Raspes est un chantier minier d'envergure qui regroupe plusieurs aménagements situés sur le versant ouest du Pouech de Gouaff (figure 53). Ils exploitent, sur environ 200 m de hauteur, un filon de galène et de sphalérite qui occupe une fracture dans la dolomie. L'ancienneté des travaux est suggérée par Malus qui décrit un trou en forme de puits « si profond, qu'il va jusqu'au fonds de la montagne ». Il s'agit du « le trou de la barre ». Il signale qu'il se trouve à proximité d'un départ de galerie. Dubatik a proposé³²⁰ d'identifier le « trou de la barre » à l'un des deux puits des Raspes ouverts dans une barre rocheuse et la galerie à celle des Tuttotes (figure 53). L'exploitation souterraine qu'il a entreprise lui a permis en outre

³²⁰ Dubatik C., *Recherches sur les travaux miniers...*, op. cit., p. 27.

de constater la présence de traces de coups de pics entre les deux puits. Cette observation conforte l'origine ancienne des travaux des Raspes.

Le chantier des Raspes n'a pas connu de reprise avant la deuxième moitié du XIX^e siècle. En 1869, Mussy décrit le percement récent d'un travers-banc d'exhaure (Galerie de la Palistre, figure 54) destiné à dénoyer la base des travaux anciens dans l'espoir d'y trouver du minerai³²¹. La réexploitation intensive des Raspes s'opère à partir de 1892 et surtout de 1898 à 1913³²². Les travaux se concentrent à la fois sur le minerai de zinc laissé en place par les Anciens et sur le retraitement des déblais.

Actuellement, l'exploration du réseau est rendue dangereuse tant par l'ampleur des vides laissés que par l'instabilité des montages et la fragilité des boisages. Nous n'avons pu réaliser qu'un échantillonnage dans la galerie de la Palistre au bas du dépilage³²³ (figure 54). Le minerai se compose de sphalérite dans une gangue dolomitique.

³²¹ Mussy J., « Ressources minérales... », *op. cit.*, p. 268.

³²² Dubois C., « Les mines de plomb argentifère... », *op. cit.*, p. 200. En outre, le plan de la Société de la Vieille Montagne de 1913 (figure 54) distingue bien les travaux anciens (médiévaux) des travaux antérieurs (XIX^e siècle).

³²³ Nous souhaitons exprimer notre reconnaissance aux spéléo-archéologues Clara Azémard et Alexandre Disser qui sont descendus par deux fois dans le puits des Raspes à la recherche de minerai en place. Devant les difficultés d'amarrage et l'instabilité des anciens montages, l'exploration n'a pas pu être poussée plus avant.

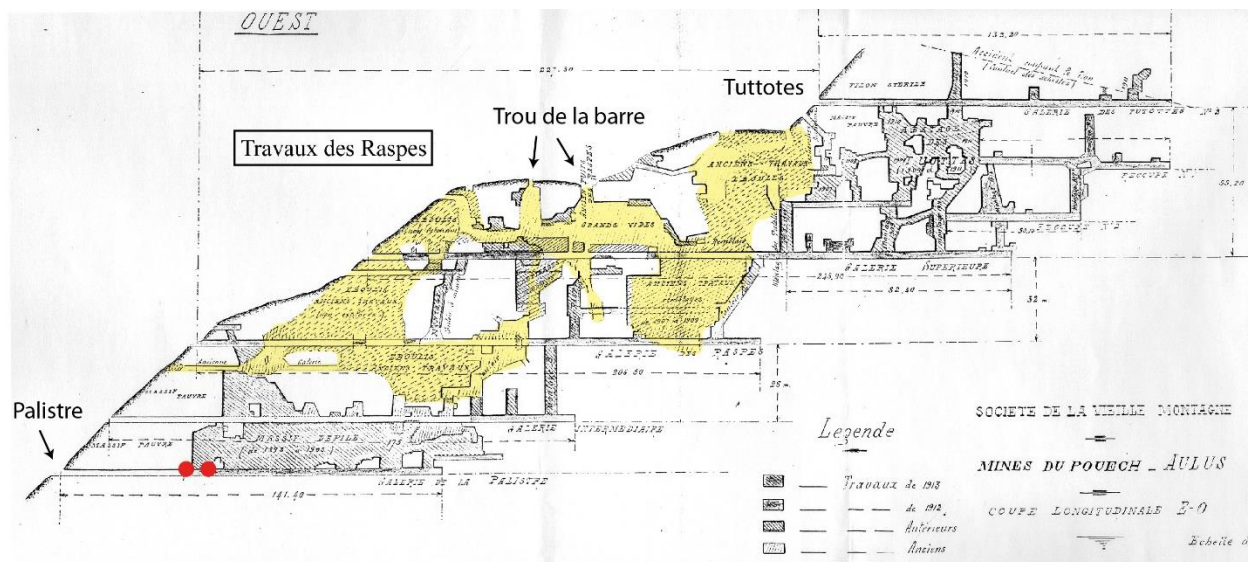


Figure 54 : Coupe longitudinale est-ouest du filon des Raspes dressée en 1913 par la Société de la Vieille Montagne. En rouge, la localisation de nos prélèvements de minerais. En jaune, l'emprise des travaux anciens.

Galerie B1

La galerie B1 se trouve en bordure d'un ancien chemin (figure 53) dont les lacets serrés mènent à une cabane en pierre sèche devant laquelle s'étend une halde. L'entrée de la galerie B1 est double avec un premier orifice anciennement muré qui donne sur les haldes tandis que le second, bouché, s'ouvre sur le ravin. La galerie s'étend sur 72 m (direction NO-SE) ; une voie ferrée y était aménagée. Ces travaux de recherche ont été exécutés dans la première moitié du XX^e siècle. Deux recoupes ouest se trouvent à 10 et 41 m du jour. La galerie attaque la dolomie du Dévonien inférieur avant de rencontrer des siltites. Il s'agit d'un gîte de fracture dont le filon de calcite est incliné vers l'ouest. Dans la galerie, le filon a été échantillonné à 41 m du jour au niveau de la recoupe ouest, puis à 70 m du jour. Au dehors, la halde a également fait l'objet d'un prélèvement. Les échantillonnages souterrains ont livré de la pyrite et de la chalcopryrite pris dans une gangue de quartz. Sur la halde, le prélèvement se compose de minerai mixte associant pyrite et sphalérite dans une gangue également constituée de quartz.

- Escanérades

Les travaux se trouvent au sud-est du village d'Aulus-les-Bains en contrebas de la piste d'Ars menant, depuis le village d'Aulus, à la cascade éponyme. Dietrich³²⁴ les attribue à M. de Villepinte, qui exploite la concession d'Aulus dans les années 1770. Les travaux consistent en deux puits qui communiquent par une galerie d'exhaure. L'auteur rapporte les analyses de M. Sage selon lesquelles le minerai de cuivre serait aurifère et argentifère. Perplexe, Dietrich soupçonne une mystification destinée à gonfler la valeur de la mine.

Nous n'avons reconnu qu'un puits de 5 m de diamètre non visitable car reconverti en captage d'eau. Une première halde enserre le puits tandis qu'une seconde se situe en aval à proximité d'une petite source. Une tranchée, dirigée est-ouest, s'ouvre à 20 m en contrebas du puits. Comblée dès les premiers mètres, elle attaquait un filon de quartz enclavé dans des schistes argileux du Dévonien inférieur. L'échantillonnage des haldes a livré de la chalcopryrite et de la sphalérite à gangue de quartz. L'analyse par LA-ICP-MS de la chalcopryrite semble aller dans le sens de Dietrich puisque ni l'or ni l'argent n'ont été détectés³²⁵. Toutefois on ne saurait tirer, à partir de ces résultats, des conclusions définitives sur la présence des métaux précieux aux Escanérades compte tenu de la représentativité limitée du seul échantillon disponible.

- Commartis

Les travaux de Commartis se trouvent à proximité d'un chemin qui mène, depuis la piste d'Ars, à la confluence du Garbet et de l'Ars. Les travaux s'étagent sur deux niveaux. Au niveau inférieur, un grattage dans l'affleurement rocheux se poursuit par un boyau ascendant totalement comblé par des éboulis. Environ 10 m au-

³²⁴ Dietrich P.-F. de., *Description des ...*, op. cit., p. 245-246.

³²⁵ *Infra* p. 229.

dessus, l'étage supérieur se compose d'une tranchée de 25 m dirigée NE-SO avec un puits comblé au parement nord. La tranchée se poursuit par une galerie de 25 m qui présente une recoupe sud non loin du jour. En 1786, le puits est déjà comblé³²⁶. Les travaux sont succinctement repris par A. Ferrière en 1855. Le principal minerai exploité était la chalcopryrite mêlée à de faibles quantités de galène. Ce dernier minerai a été prélevé en place à la couronne du grattage du niveau inférieur et dans la galerie supérieure à 15 m du jour. Sa teneur en argent est faible (400 ppm) tandis que celle du bismuth est inhabituellement élevée pour le district (73 ppm).

- Sassettes

En rive droite de l'Ars, sur le versant opposé à Commartis, s'ouvrent les travaux des Sassettes. Ils sont comblés et seules deux voûtes sont aujourd'hui visibles. En revanche, les haldes associées sont volumineuses. Leur examen révèle la présence d'un filon de calcite encaissé dans la dolomie du Dévonien inférieur. Les travaux des Sassettes ont fait l'objet de deux prélèvements : l'un sur la halde principale associée à la voûte ouest ; l'autre au contact de la voûte est dont les travaux sont vraisemblablement de moindre importance. L'examen visuel révèle la présence de sphalérite et de chalcopryrite.

3.1.2.2. Secteur d'Ustou

Nos prospections dans la vallée d'Ustou se sont concentrées dans la haute-vallée de l'Alet qu'encadrent le pic de Carboire à l'ouest, le pic de Freychet à l'est et le cirque de Cagaille au sud (figure 55). D'après les sources écrites, cette région est susceptible d'abriter des travaux miniers anciens. Sur le plan géologique, les terrains

³²⁶ Dietrich P.-F. de., *Description des gîtes ...*, op. cit., p. 245.

À l'origine de l'atelier multi-métaux, des ressources minières variées paléozoïques du secteur étudié relèvent du système Dévonien et de ses deux faciès « nord » et « sud » déjà présentés³²⁷.



Figure 55 : Gisements prospectés dans la zone d'Ustou.

- Caboussat

En amont de la confluence de l'Alet et du ruisseau d'Ossès, dans le hameau de Caboussat, s'ouvre une ancienne exploitation attenante au ravin de Hauga. Il n'en subsiste qu'une galerie bouchée dont on distingue à la voûte un affleurement de quartz qui emprisonne quelques mouches de chalcopryrite que nous avons échantillonnées.

- Ichedets

Les travaux d'Ichedets se situent sur le versant opposé à Caboussat, en rive gauche du ruisseau des Cors. Ils ont été instigués par M. de Villepinte dans les années

³²⁷ *Supra* p. 78.

1770. Dietrich décrit une exploitation étagée composée de trois galeries attaquant un filon de quartz et de chalcopryrite³²⁸. Mussy mentionne d'anciens travaux qui consistent en deux galeries de 15 et 46 m étagées sur une hauteur de 40 à 50 m³²⁹. Nous n'avons reconnu qu'une galerie de 28 m dirigée est-ouest. D'un point de vue géologique, Ichedets est le pendant de Caboussat. L'exploitation attaque un même filon coupé par le ruisseau des Cors. Les travaux percent les schistes dans lesquels est enchâssé un filon de quartz. L'échantillonnage a livré de la pyrite et de la chalcopryrite dans une gangue de quartz.

- Carboire

Les travaux miniers de Carboire se trouvent sur la rive gauche du ruisseau des Cors à mi-parcours du chemin menant, depuis la fin de la route goudronnée, à l'étang d'Alet. À 1350 m d'altitude, une halde enherbée et stérile pourrait correspondre à des travaux anciens de faible envergure. Quant aux reprises des années 1960, leur ampleur est considérable. En particulier, deux haldes sont facilement repérables depuis le fond de la vallée (figure 56). La première, à 1400 m d'altitude, mesure environ 100 m de long. Elle se situe à l'entrée d'un ancien travers-banc fermé par de gros blocs de roche. La seconde halde se trouve à 1600 m d'altitude. À mi-chemin entre ces deux haldes, nous avons identifié une galerie de recherche.

L'exploitation du gisement de Carboire est attestée à la fin du XVIII^e siècle. La compagnie de M. de Chamilly, avec ses associés M. de Pernon et M. de Bourgogne, reprend des anciennes mines de plomb et de cuivre dans la région d'Ustou en juillet 1774³³⁰. Des bâtiments pour loger les mineurs sont construits ainsi qu'un bocard et une fonderie. L'exploitation de la forêt suscite de vives tensions entre la communauté d'Ustou, leur seigneur le baron de Pointis-Inard et les exploitants de la mine. Dietrich

³²⁸ Dietrich P.-F. de., *Description des gîtes ...*, *op. cit.*, p. 250-251.

³²⁹ Mussy J., « Ressources minérales... », *op. cit.* p. 281.

³³⁰ ADHG, 13J86.

indique que la mine n'est plus travaillée en 1786. Il identifie « deux amas de filons » minéralisés en sphalérite intimement mêlée à de la galène³³¹. Mussy voit trois filons qui coalescent vers le sommet du pic de Carboire³³². Le site a fait l'objet de reprises pour la sphalérite entre 1857 et 1860 puis de 1901 à 1905. Quant aux travaux d'envergure qui ont conduit à la formation des deux haldes volumineuses, ils ont été conduits dans la deuxième moitié du XX^e siècle, en 1956 et 1957 puis de 1963 à 1967 et enfin en 1975 et 1976. Les réserves actuelles sont estimées à 3 500 000 t de minerai à 6 % de zinc pour moins de 1 % de plomb³³³.

Mussy avait noté la particularité de Carboire³³⁴ qui relève des gisements de type sédimentaire exhalatif. Plus précisément, le gisement est établi le long du contact faillé entre le Dévonien « nord » et le Dévonien « sud ». La minéralisation consiste en trois formations : un banc de sphalérite massif parsemé de galène, un rubané (alternance de sphalérite et de schistes/calcschistes) et un réticulé (distribution irrégulière de la sphalérite et de la galène dans les carbonates)³³⁵. Nous avons prélevé sur les haldes un minerai mixte galène-sphalérite pris dans une gangue dolomitique.

³³¹ Dietrich P.-F. de., *Description des ...*, *op. cit.*, p. 249-250.

³³² Mussy J., « Ressources minérales... », *op. cit.* p. 239-240.

³³³ Ternet Y., Colchen M., Debroyas E.J., Azambre B., Debon F., Bouchez J.L., Gleizes G., Leblanc D., Bakalowicz M., Jauzion G., Mangin A. et Soulé J.C., *Carte géologique de la France...*, *op. cit.*, p. 128-129.

³³⁴ À propos de la morphologie du gisement : « pas de fentes dans les roches, pas d'épentes, pas de traces de glissement du toit sur le mur, mais simplement pénétration de la matière métallique dans les schistes, pénétration irrégulière, soit en direction, soit en épaisseur, qui a produit des rejets de la matière métallique assez nombreux, sans rejet des couches qui l'enclavent ». Mussy J., « Ressources minérales... », *op. cit.* p. 239.

³³⁵ Balcon J., *Compte-rendu de visite à Carboire et à l'Hospice de France les 9 et 10 juillet 1965*, BRGM, Orléans, 1965, p. 5.



Figure 56 : Vue depuis le ruisseau des Cors en direction de l'ouest : pic de Carboire (droite) et pic de Montagnou (gauche) avec au premier plan les haldes modernes (ellipses en pointillés) et, en incrusation, le profil de la halde principale.

3.1.2.3. Secteur de Seix

Les anciens travaux miniers du secteur de Seix se concentrent au niveau de la confluence du ruisseau d'Estours et de l'Alet, à proximité des hameaux de Moulin Lauga et de Couflens de Betmajou (figure 57). Les gisements sont localisés dans le Dévonien « nord » à proximité de la faille nord-pyrénéenne. Ils attaquent des formations de schistes et de dolomies disposées en éventail entre les calcaires griottes.

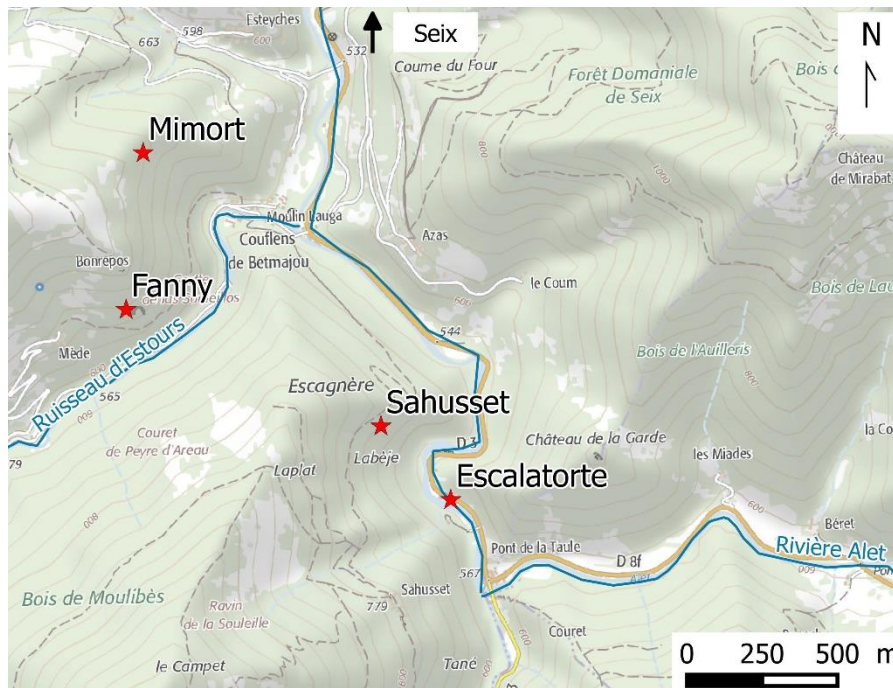


Figure 57 : Gisements prospectés dans la zone de Seix.

- Escalatorte

En rive droite de l'Alet et en amont du hameau du Pont de la Taule s'ouvrent les travaux d'Escalatorte. La voûte d'une galerie noyée et partiellement obstruée est visible. La minéralisation n'est pas apparente à l'extérieur. On ne remarque aucune halde. Dietrich décrit une galerie d'environ 20 m dans le milieu de laquelle on rencontre deux puits noyés de 12 m se joignant à leur base³³⁶. L'exploitation comprend également une amorce de puits 5 m au-dessus de la galerie. La minéralisation, encaissée dans les schistes, se compose de galène et de chalcoppyrite à gangue de quartz. À proximité de la galerie, nous avons échantillonné un bloc de quartz appartenant à des remblais stériles. Il contient de la chalcoppyrite ainsi que de la galène relativement riche en argent (1509 ppm).

³³⁶ Dietrich P.-F. de., *Description des gîtes...*, op. cit., p. 254.

- Sahusset

Les travaux de Sahusset se trouvent à mi-chemin entre le hameau éponyme et Couflens-de-Betmajou. Ils consistent en un dépilage d'environ 80 cm de large et de 10 m de haut auquel succède une galerie que nous avons reconnue sur 25 m. L'exploitation s'intéressait à un filon de quartz enchâssant de la chalcoppyrite. Les parements présentent de nombreux « trous de mine » dans lesquels étaient disposés les explosifs, indiquant assurément une exploitation post-médiévale. Le gisement est exploité vers 1756 par le sieur d'Elgart qui travaille aussi à Mimort. Il fait bâtir une fonderie à Seix en 1756-1757, mais l'entreprise périlite rapidement³³⁷. Des travaux sont exécutés vers 1774 par M. de Villepinte puis le gisement est abandonné³³⁸. Les prélèvements effectués sur les parements du dépilage et sur le carreau se composent de mouches de chalcoppyrite et de malachite prises dans une gangue de quartz et de calcite.

- Mimort

Les travaux se trouvent en rive gauche du ruisseau d'Estours, sur le flanc sud de la colline de Mimort, à proximité du sommet. Ils comprennent une halde enherbée au-devant de laquelle se développe une tranchée d'environ 10 m dirigée NO-SE. La minéralisation est en colonne de quartz prise dans les calcschistes : la tranchée la rejoint tandis qu'un dépilage, situé environ 10 m plus haut, attaque sa tête. Le gisement est exploité momentanément en 1756 par le sieur d'Elgart. D'après Dietrich, parmi les travaux de M. de Villepinte, ceux de Mimort sont les plus considérables. Il y tirait de la galène ainsi que de la chalcoppyrite. Nous avons réalisé un premier prélèvement sur

³³⁷ Chateaufort M. de, « Mémoire sur les différentes espèces de mines qui ont été et sont encore exploitées en Gascogne », *In* Gobet N. (éd.), *Les anciens minéralogistes du royaume de France*, Ruault, Paris, 1779, p. 237.

³³⁸ Mussy J., « Notes sur les gîtes... », *op. cit.* p. 261.

le filon de quartz dans la tranchée et un second à la tête du dépilage. Seules quelques mouches de chalcopryrite ont été identifiées dans une gangue de quartz.

- Fanny

Le travail se compose d'une galerie située en rive gauche du ruisseau d'Estours, à proximité du hameau de Mède. Longue de 6 m et dirigée nord-sud, elle attaque des calcshistes. Un dépilage d'environ 12 m de haut et donnant au jour lui succède. Nous identifions ce travail aux recherches de 1855 menées par l'entrepreneur Aristide Ferrère dans les secteurs d'Aulus-les-Bains, Ustou et Seix³³⁹. D'après un plan non daté représentant les travaux entrepris par Ferrère dans le secteur de Couflens-de-Betmajou, cette galerie correspondrait au chantier « Fanny » qui s'étage sur 3 niveaux dans la colline de Bonrepos. Un prélèvement dans la galerie a livré de la chalcopryrite à gangue de quartz avec des placages de malachite et des inclusions de pyrite.

3.1.2.4. Synthèse géochimique

Lorsque la quantité prélevée le permettait, les minerais issus des prospections ont été soumis à des analyses élémentaires par LA-ICP-MS de manière à déterminer les teneurs en éléments majeurs et en éléments-traces. La sphalérite a été exclue de notre étude puisque la métallurgie extractive du zinc métallique est inconnue au Moyen Âge. De même, les produits d'altération des minerais primaires n'ont pas été pris en compte. Ils se rencontrent uniquement sous la forme de couches superficielles entourant les minerais collectés. Leur formation résulte d'un phénomène d'altération postérieur aux travaux d'extraction. Par conséquent, ils ne sont pas représentatifs des minerais effectivement exploités par les mineurs médiévaux. Les minerais retenus pour l'étude géochimique sont donc la galène et la chalcopryrite.

³³⁹ Dubois C., « Les mines de plomb... », *op. cit.* p. 197.

La détermination des compositions élémentaires vise tout d'abord à évaluer le potentiel des anciens gisements, c'est-à-dire en premier lieu la proportion des différents métaux que renferme le minerai. Ainsi, notre attention se porte tout particulièrement sur la teneur en argent de la galène et la proportion de cuivre contenue dans la chalcoppyrite. Pour le moment, la définition d'un seuil économique, c'est-à-dire la valeur en-dessous de laquelle le coût de traitement du minerai est supposé être supérieur au bénéfice résultant de la commercialisation du métal, ne peut être envisagée au sein de notre espace d'étude pour la période médiévale. Cependant, la détermination des teneurs en argent autorise la construction d'une classification relative des différents gisements. Toutefois, on ne saurait considérer uniquement cette donnée analytique pour définir la qualité d'une minéralisation.

La concentration du minerai dans la roche abattue constitue une variable supplémentaire. Ainsi, une galène très riche en argent peut se trouver disséminée dans la roche encaissante ou la gangue³⁴⁰ ce qui rend l'extraction et la séparation laborieuses. La proportion de ces roches stériles incorporées au minerai est donc une donnée importante pour comprendre les stratégies d'extraction. Elle est néanmoins difficile à intégrer faute de minerais archéologiques associés aux anciennes mines étudiées. Enfin, il est nécessaire de considérer plusieurs autres facteurs qui influencent le potentiel économique des gisements. Les difficultés d'accès à la minéralisation, la disponibilité de la main d'œuvre et des ressources (telles que le bois), mais également les problèmes d'exhaure et d'aération – qui nécessitent des aménagements coûteux – sont les principaux.

L'étude des éléments-traces contenus dans la galène et dans la chalcoppyrite constitue le second volet de notre étude géochimique. Il apparaît que le nickel, le cuivre, le zinc, l'étain, l'antimoine et le bismuth sont particulièrement discriminants pour isoler la signature géochimique des gisements de galène étudiés. Les variations dans les teneurs élémentaires résultent des conditions de formation des minéralisations. Elles sont liées à la composition des fluides minéralisateurs (dans le

³⁴⁰ Dans le cas d'une minéralisation de type *stockwerk* par exemple.

cas de gisements de type filonien), à la nature des roches encaissantes et aux variations de pression et de température pour ne citer que les principaux facteurs.

Dans notre zone d'étude, la chalcopryrite est le seul représentant des minerais de cuivre. Les concentrations élémentaires des éléments majeurs que sont le fer, le cuivre et le soufre ne varient que légèrement au sein des secteurs étudiés. En revanche, les éléments-traces, en particulier le nickel, le zinc, l'arsenic, l'argent, l'étain, l'antimoine et le plomb permettent de différencier les gisements.

L'établissement d'un référentiel géochimique des minerais non-ferreux à partir de nos prospections dans le Couserans est une étape préalable aux études de provenance. Ainsi, les minerais archéologiques découverts à Castel-Minier, une fois analysés, peuvent être confrontés à ce référentiel de manière à identifier les réseaux dont ils sont issus et les stratégies d'approvisionnement de l'atelier.

3.1.2.4.1. La galène

Au sein du district minier de Couserans, la galène est prépondérante parmi les minerais non-ferreux. Les échantillons collectés dans les anciens travaux miniers ont fait l'objet d'analyses élémentaires par LA-ICP-MS qui ont permis d'identifier les principaux éléments-traces associés au soufre et au plomb (tableau 5). À l'exception d'un individu provenant de la mine d'Escalatorte, les prélèvements sont tous originaires du secteur d'Aulus. La proportion d'argent incorporée dans la galène est variable d'un gisement à l'autre avec un minimum de 400 ppm pour les travaux de Commartis et un maximum de 7226 ppm pour le filonnet des Playets. Si l'on met de côté ces deux gisements, les galènes étudiées présentent toute une corrélation entre l'argent et l'antimoine.

La structure de la galène peut incorporer une certaine quantité d'argent grâce à une substitution du couple argent-antimoine ou argent-bismuth à deux atomes de

plomb³⁴¹. Il se forme alors, sous certaines conditions thermodynamiques, des solutions solides telles que la miargyrite (AgSbS₂) ou la matildite (AgBiS₂) disséminées dans la galène et dont la proportion conditionne son caractère plus ou moins argentifère. Dans le cas des galènes issues de nos prospections minières, le rapport Ag/Sb est proche de 1 ce qui permet d'identifier le minéral porteur d'argent à la miargyrite. Quant au rapport Ag/Bi de la galène des Playets qui s'établit autour de 0,5, il indique la présence de matildite. L'originalité de la galène des Playets est également renforcée par la présence de tellure.

À côté de ces deux grandes tendances gouvernées par la nature des porteurs d'argent, des éléments-traces supplémentaires permettent d'affiner la signature géochimique des galènes issues des prospections et de souligner des particularismes. On note d'une part des teneurs en étain plus élevées pour le gisement des Argentières et dans une moindre mesure pour celui de Sainte-Barbe. D'autre part, la teneur en bismuth permet d'isoler les gisements de Commartis et de Laquorre au sein du secteur d'Aulus.

Gisement	Secteur	Pb	S	Ag	Cu	Zn	Cd	Sn	Sb	Te	Tl	Bi
Commartis	Aulus	87,5 %	12,5 %	400	39	81	3,7	-	58	-	10	73
Laquorre	Aulus	84,0 %	15,6 %	1477	11	44	8,8	2,5	1532	-	2,1	34
Lauqueille	Aulus	89,4 %	10,3 %	1585	11	11	10	3,3	1495	-	2,2	16
Sainte-Barbe	Aulus	85,3 %	14,4 %	1366	-	-	27	11	1373	-	2,2	4,2
Argentières	Aulus	85,6 %	14,0 %	2407	2,5	38	20	32	2309	-	2,4	5,9
Argentières	Aulus	84,0 %	15,5 %	2379	-	0,7	26	93	2565	-	3,9	7,1
Escalatorte	Seix	85,4 %	14,3 %	1509	3,9	-	23	0,7	1491	-	1,9	10
Les Playets	Aulus	85,6 %	11,8 %	7226	85	-	16	3,7	673	90	2,7	1,8 %
Les Playets	Aulus	85,4 %	12,2 %	6728	62	-	12	3,5	707	92	2,7	1,7 %

Tableau 5 : Résultats des analyses élémentaires par LA-ICP-MS des galènes issues des prospections. Sauf indication contraire, les teneurs sont en ppm. Pour chaque gisement, la teneur moyenne a été obtenue à partir de trois analyses réalisées sur un échantillon de minerai.

³⁴¹ Chutas N. I., Kress V. C., Ghiorso M. S. et Sack R. O., « A solution model for high-temperature PbS-AgSbS₂-AgBiS₂ galena », *American mineralogist*, 93, 2008, p. 1630-1640.

3.1.2.4.2. La chalcoppyrite

Seulement six des onze prélèvements de chalcoppyrite ont pu être analysés par LA-ICP-MS (tableau 6). Les individus exclus contenaient de trop faibles quantités de minerai qui n'ont pas permis de déterminer leur composition élémentaire. Il s'agissait généralement de mouches de chalcoppyrite disséminées dans la roche stérile. Les principaux éléments-traces identifiés dans les chalcoppyrites sont le zinc, l'argent et l'étain. Les teneurs sont assez homogènes à l'échelle du district minier du Couserans, mais il est toutefois possible de mettre en évidence les particularités de certains gisements (figure 58). Ainsi, la chalcoppyrite des Escanérades, issue du secteur d'Aulus, présente une concentration en étain élevée par rapport aux autres individus de district ce qui permet de distinguer le gisement. De la même manière, la chalcoppyrite des travaux d'Escalortorte se caractérise par des teneurs importantes en argent, antimoine et plomb.

Élément	Gisement (secteur)					
	Fanny (Seix)	Puits 1136 (Aulus)	Ichedets (Ustou)	Escanérades (Aulus)	Escalortorte (Seix)	Chassotte (Aulus)
S	34,6 %	34,4 %	34,6 %	34,6 %	35,0 %	35,7 %
Fe	31,8 %	32,7 %	31,2 %	31,7 %	31,3 %	30,9 %
Cu	33,6 %	32,9 %	34,1 %	33,6 %	33,6 %	33,3 %
Ni	-	-	13	-	-	13
Zn	135	201	217	162	116	139
As	-	19	-	-	8,9	-
Ag	-	73	165	46	341	56
Sn	123	14	27	451	19	36
Sb	2,4	2,6	2,3	4,4	247	5,4
Au	0,6	-	-	-	-	-
Pb	-	4,5	21	2,7	209	3,8
Bi	-	22	-	-	-	-

Tableau 6 : Résultats des analyses élémentaires LA-ICP-MS des chalcoppyrites issues des prospections. Sauf indication contraire, les teneurs sont en ppm. Pour chaque gisement, la teneur moyenne a été obtenue à partir de trois analyses réalisées sur un échantillon de minerai.

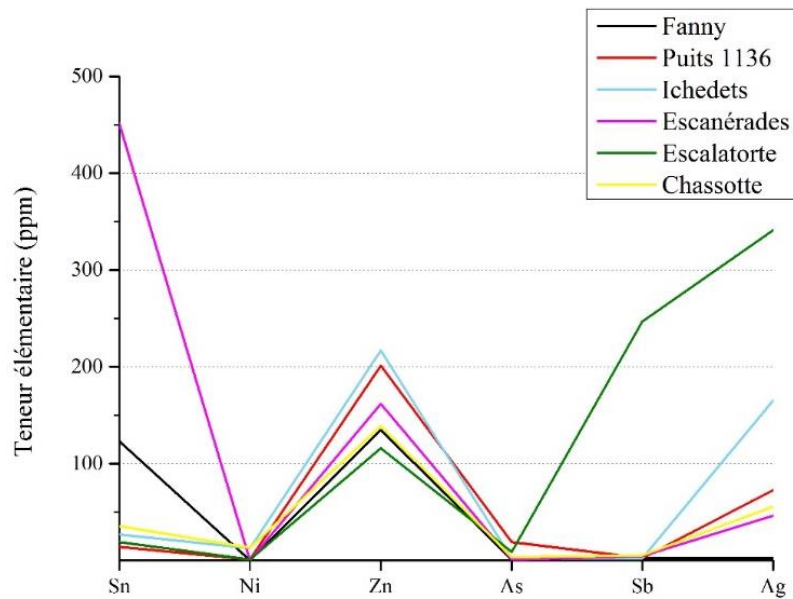


Figure 58 : Comparaison de six éléments-traces pour les échantillons de chalcopryrite issus des prospections.

3.1.3. Castel-Minier : un site d'extraction privilégié

3.1.3.1. Présentation du gisement et des recherches archéologiques

Au sein du district minier du Couserans, le secteur de Castel-Minier occupe une place privilégiée. L'importance du gisement éponyme est peut-être un des facteurs ayant conditionné l'implantation des ateliers métallurgiques au voisinage immédiat des minéralisations à partir de la fin du XIII^e siècle. L'ampleur des travaux miniers qui ont été exécutés pendant la période médiévale en fait un site d'exception qui se prête particulièrement à une étude diachronique conduite dans deux directions. Le premier champ de recherche s'attache à comprendre les dynamiques d'exploitation des différentes minéralisations. Il s'agit de définir les modalités du travail souterrain en identifiant la progression des mineurs ainsi que les différents ouvrages mis en œuvre pour la circulation, le transport des matériaux, l'exhaure, le levage ou encore la ventilation. Dans cette optique, la prise en compte des différentes datations obtenues grâce au mobilier archéologique permet d'établir une chronologie absolue qui peut être mise en regard des sources textuelles et des phases d'activité des ateliers métallurgiques de surface. Enfin, l'étude minéralogique et géochimique de la mine

permet de préciser la nature des minerais et d'apprécier leurs variations selon les chantiers d'abattage. Toutefois, la définition d'un modèle chrono-spatial d'ensemble ne peut pas être assurée pour l'intégralité des travaux miniers et il faut se contenter d'un schéma partiel. En effet, aux aménagements médiévaux fortement perturbés voire détruits par les reprises modernes s'ajoutent les secteurs devenus inaccessibles car éboulés ou inondés.

Les travaux miniers de Castel-Minier se situent en rive gauche du Garbet, face à l'espace castral et aux ateliers métallurgiques établis sur la rive opposée (figure 59). Le gisement étudié, de type hydrothermal, s'est mis en place dans les terrains sédimentaires paléozoïques. Il exploite une faille entre les formations des systèmes Silurien et Dévonien au contact des schistes au nord et des dolomies au sud. Les vides au niveau de cette zone de contact ont permis la circulation des fluides hydrothermaux tandis que les variations du milieu chimique entre les schistes et les dolomies ont pu favoriser leur précipitation. Dans les schistes, les minéralisations sont limitées et circonscrites au départ des travers-bancs des niveaux³⁴² 0, 13 et 23 (figure 60). Elles se rencontrent principalement dans les dolomies ou au contact schistes-dolomies en progressant vers le sud depuis ces ouvrages. Cette caractéristique gîtologique s'explique par les propriétés mécaniques des roches encaissantes³⁴³. La dolomie a la faculté de se fracturer facilement et présente une perméabilité aux solutions autorisant ainsi le développement de réseaux filoniens significatifs. A contrario, les schistes ne se fracturent pas, ce qui ne facilite pas la circulation des fluides minéralisateurs dont l'action se limite aux espaces séparant les feuillets³⁴⁴.

³⁴² Nous introduisons ici le système de notation propre aux travaux miniers : les différents niveaux d'exploitation sont affectés d'un nombre qui précise leur cote (en mètre) : par exemple TB0 ou TB21. Il ne s'agit pas de l'altitude absolue des travaux, mais d'une valeur relative dans un référentiel propre à la mine où les travaux les plus bas sont pris comme origine.

³⁴³ Gramont X. de, « Les mines d'Aulus... », *op. cit.*, p. 493.

³⁴⁴ Il en résulte une minéralisation interstratifiée de faible puissance. C'est le cas par exemple du gisement de Sainte-Barbe : *supra* p. 216.

La minéralisation de Castel-Minier consiste en une brèche à ciment de quartz et de calcite contenant dolomies et schistes³⁴⁵. Le minerai se compose de galène et de sphalérite concentrées dans deux branches filoniennes principales : la branche du mur³⁴⁶ au nord et la branche du toit au sud (figure 60). La branche du toit est la plus puissante et la plus développée : encaissée dans la dolomie, elle est dirigée approximativement est-ouest avec un pendage de 70 à 50 ° vers le sud. La branche du mur, parallèle à la branche du toit, occupe une fracture au contact schistes-dolomies avec un pendage de 60 à 40 ° vers le sud. Les branches principales du toit et du mur présentent, surtout dans leurs parties terminales orientale et occidentale, une structure ramifiée exploitant des failles transversales de sorte qu'il existe des connexions ponctuelles entre les faisceaux filoniens.

³⁴⁵ Dubatik C., *Recherches sur les travaux...*, *op. cit.*, p. 48.

³⁴⁶ Dans la terminologie minière, le mur et le toit désignent les espaces situés respectivement au-dessous et au-dessus de la minéralisation. Dans le cas du gisement de Castel-Minier, les deux branches filoniennes principales ont un pendage vers le sud de 40 à 70 ° : elles sont donc superposées avec une branche plus basse (mur) que l'autre (toit).

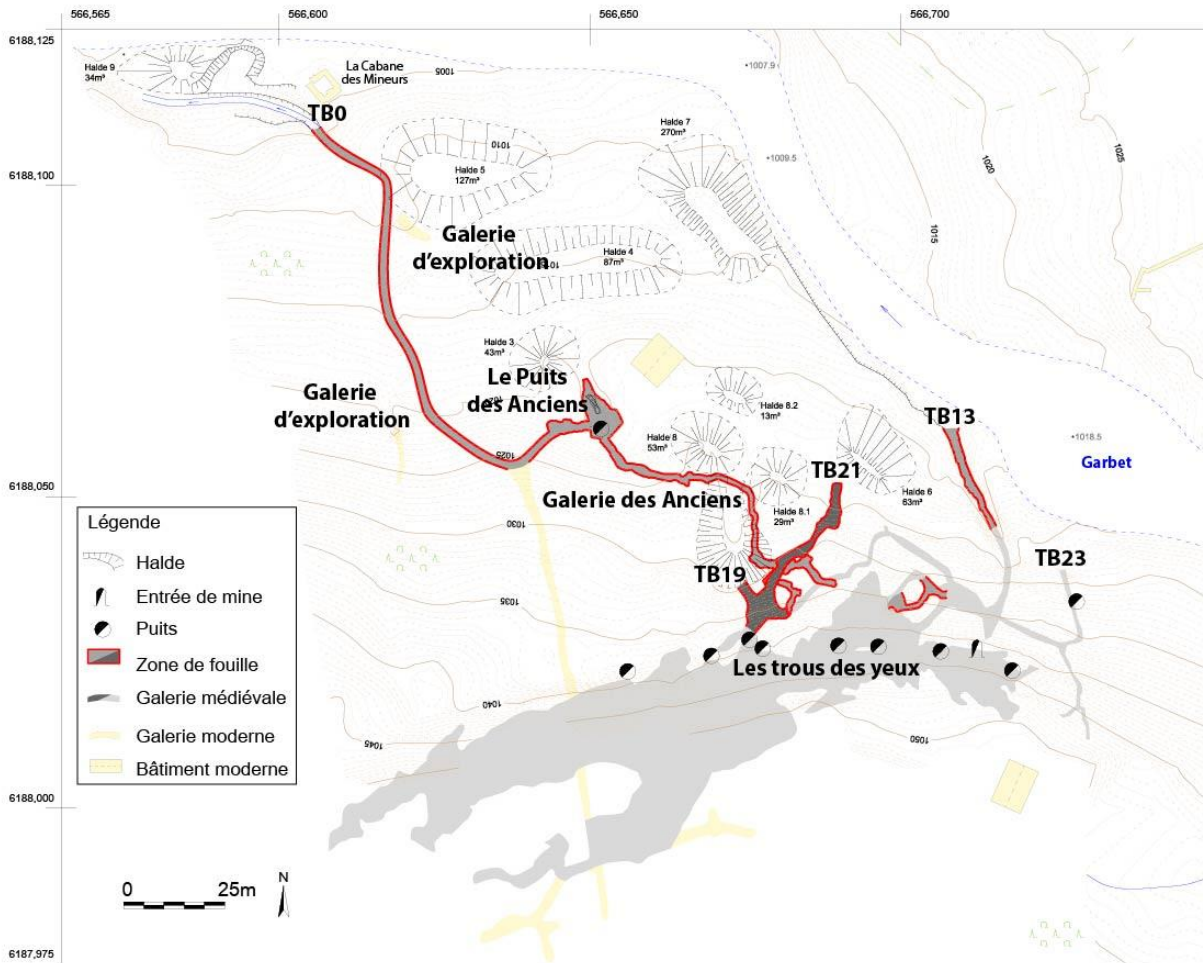


Figure 59 : Le secteur minier de Castel-Minier. D'après Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport intermédiaire 2015*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2015, p. 100.

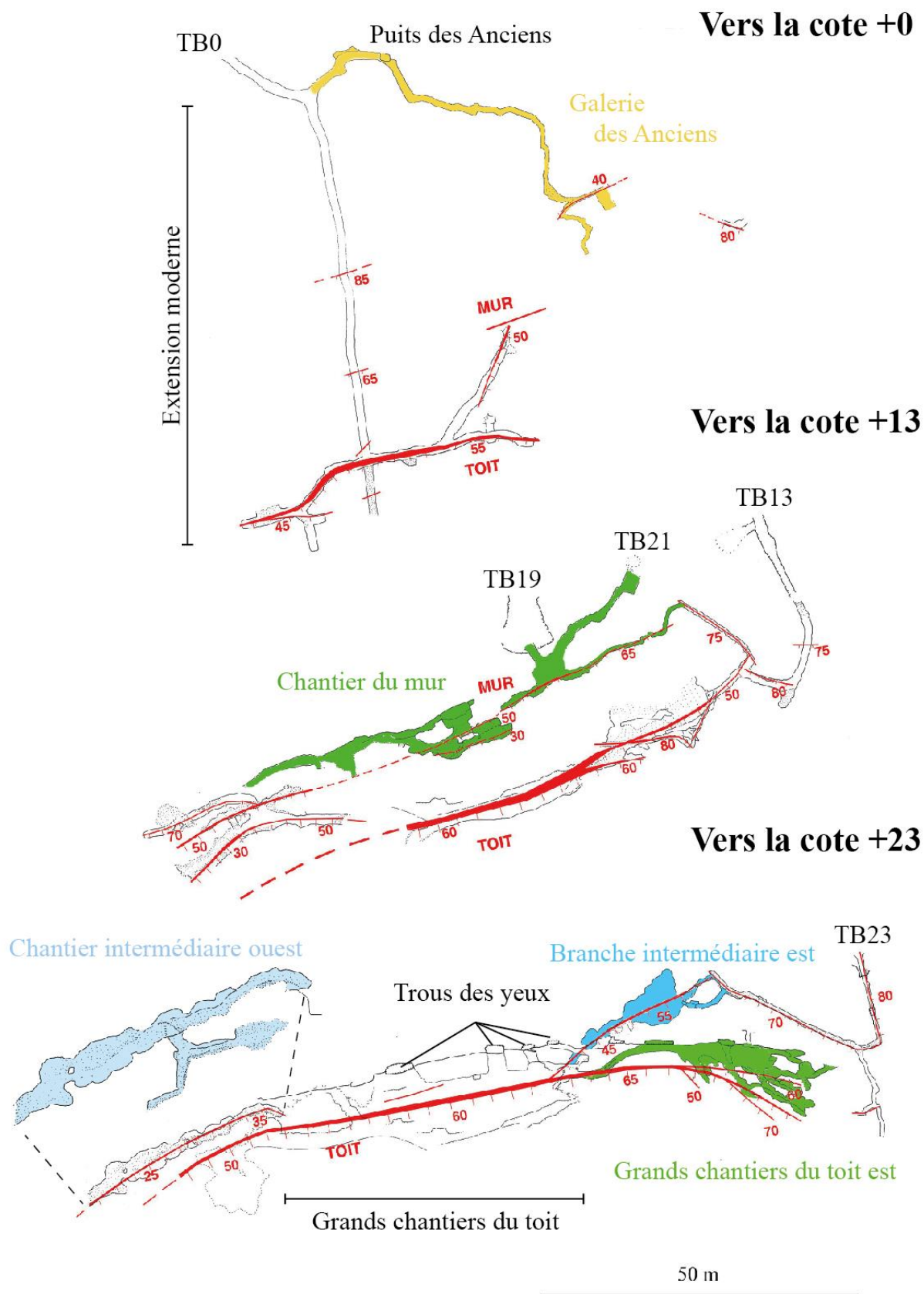


Figure 60 : Plans des minéralisations de la mine de Castel-Minier (rouge) et localisation des différents chantiers étudiés. Document modifié d'après Ancel B., « Étude du réseau minier », In Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2003, p. 45.

Nous avons déjà étudié les quelques sources écrites médiévales et modernes mentionnant la mine de Castel-Minier. Avant la fin du XVIII^e siècle, hormis le récit de Malus qui décrit plusieurs travers-bancs d'exhaure ainsi que le chantier des « Trous des yeux », les documents ne sont d'aucun secours pour saisir l'architecture et l'ampleur des travaux souterrains. En 1786, Dietrich n'est pas plus prolix : il estime la puissance du filon à 1 m et indique que les travaux n'ont été ni remblayés ni étayés. D'après des preuves qu'il n'explique pas, le creusement a été poursuivi jusqu'au niveau du Garbet puis abandonné suite à des problèmes d'exhaure qui n'ont pu être résolus faute de machines adaptées³⁴⁷.

Les descriptions de l'ingénieur des Mines Mussy sont beaucoup plus détaillées tant d'un point de vue géologique et minéralogique qu'historique grâce à la distinction qu'il établit entre les travaux anciens et modernes. Ses différentes publications permettent de suivre l'avancement des reprises amorcées à partir des années 1860³⁴⁸. Sa description de Castel-Minier fait d'abord état d'anciens travaux, étendus sur 300 m de longueur, et qui débouchent au jour par plusieurs orifices³⁴⁹. Il s'agit des Ouels ou « Trous des yeux » (figure 59), dont les ouvertures irrégulières de section ovale ou rectangulaire donnent accès à un dépilage atteignant par endroits 30 m de profondeur. Ce chantier attaquait la branche filonienne du toit. Mussy décrit également trois travers-bancs dont un, qui mesure plus de 100 m, peut sans aucun doute être identifié au TB0 (figure 59). En 1865-1866, le TB0 est élargi (de manière à permettre l'évacuation sur rail du minerai et des déblais) et poursuivi : à 70 m du jour, le front est repris et le creusement est dirigé vers le sud afin de recouper la branche filonienne du toit³⁵⁰ (figure 60). Les mineurs découvrent un filonnet de galène qui se pince rapidement puis

³⁴⁷ Dietrich P.-F. de., *Description des gîtes...*, *op. cit.*, p. 241.

³⁴⁸ Bien que nous ayons mentionné une tentative de reprise par MM. de Chamilly et de Villepinte en 1774, celle-ci semble s'être limitée à quelques recherches et les associés se sont rapidement tournés vers les secteurs d'Ustou et de Seix.

³⁴⁹ Mussy J., « Note sur les gîtes... », *op. cit.*, p. 221-227. Bien que cette publication date de 1864, C. Dubois a remarqué que la description de Castel-Minier reprend celle du procès-verbal de visite du 24 octobre 1862.

³⁵⁰ Mussy J., « Ressources minérales... », *op. cit.*, p. 267.

les travaux sont abandonnés. Ils sont repris de 1884 à 1892 et, grâce à l'extension est du TB0 (figure 60), atteignent d'anciens quartiers éboulés ou remblayés de la branche du toit³⁵¹.

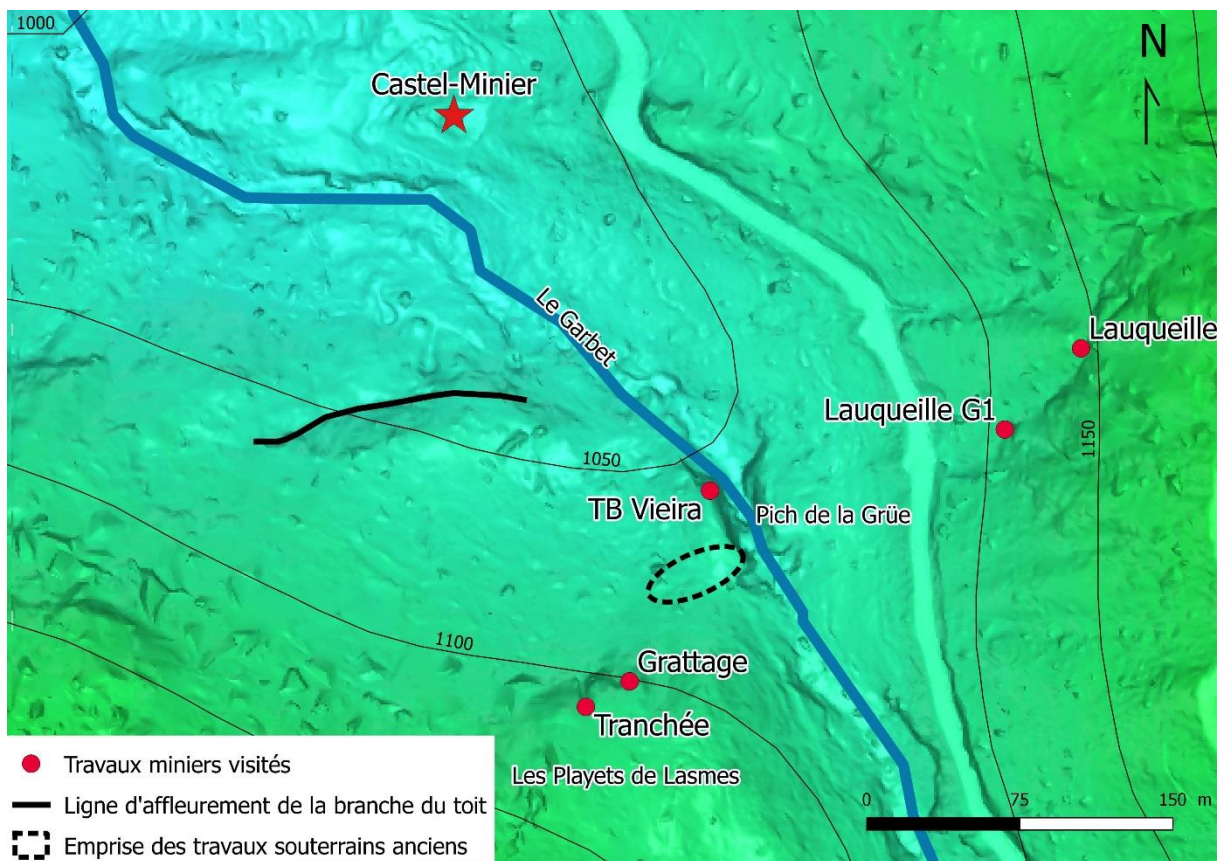


Figure 61 : Localisation des travaux miniers dans la zone orientale du secteur de Castel-Minier.

Les recherches s'orientent alors vers la partie orientale du secteur de Castel-Minier où l'ingénieur Vieira s'intéresse à d'anciens travaux qu'il a identifiés au niveau de la cascade du Pich de la Grüe (figure 61). Il entreprend le percement d'une galerie d'accès (TB Viera, figure 61) pour les rejoindre et assurer leur assèchement. Trompé par les exagérations du récit de Malus, Vieira imagine que le secteur de Castel-Minier communique avec celui des Rases malgré la grande distance qui les sépare. L'opération tourne court et les travaux de Vieira sont abandonnés. Durant les années

³⁵¹ Dubois C., « Les mines de plomb... », *op. cit.*, p. 199.

1913, 1919 et 1920, la Société de la Vieille Montagne, après avoir repris l'extraction aux Raspes, s'intéresse à Castel-Minier³⁵². Les travers-bancs sont remis en état et les travaux progressent dans les remblais et montages anciens depuis les niveaux 13 et 0. Les mineurs extraient les sulfures de zinc et de plomb laissés en place par les Anciens dans certaines portions filoniennes. Au terme d'une activité – certes intermittente – de plus de six siècles, l'épopée de Castel-Minier s'achève dans les années 1960 après d'ultimes recherches menées par le BRGM.

Les premières recherches d'archéologie minière dans le district d'Aulus ont été conduites par Claude Dubatik en 1980. Outre l'étude géologique et minéralogique du gisement, l'archéologue a décrit les vestiges de surface et réalisé la topographie de certains chantiers souterrains. Les recherches ont été poursuivies en 1990 et 1991 dans la cadre du PCR *Mines, métallurgie et forêts dans les Pyrénées ariégeoises de l'Antiquité au Moyen-Âge*. Une première synthèse a permis de dégager les grands traits de l'exploitation médiévale³⁵³. L'étude de la morphologie des galeries et des traces d'outils démontre que les techniques d'abattage au feu et à la pointerolle ont été employées concomitamment par les mineurs. Sur la base des travaux alors connus, une estimation des volumes de tout-venant extraits a été proposée. Elle varie entre 1000 et 2000 m³, soit 10 fois moins que l'estimation faite pour le gisement des Raspes.

Depuis 2003, les recherches archéologiques se poursuivent à Castel-Minier par des campagnes annuelles de fouilles programmées. Elles concernent deux espaces : les installations métallurgiques en rive droite du Garbet d'une part et le réseau minier souterrain et les ouvrages associés en surface d'autre part. Les travaux d'archéologie minière ont été conduits selon une méthodologie particulière et ont nécessité la mise en œuvre de moyens humains et matériels importants. Dans un premier temps, la réalisation d'une topographie exhaustive des chantiers miniers a permis

³⁵² Dubois C., « Les mines de plomb argentifère... », *op. cit.*, p. 200-201.

³⁵³ *Ibidem*, p. 205-206.

d'appréhender la mine dans son ensemble et d'étudier son architecture spécifique et adaptée à la morphologie des minéralisations³⁵⁴. Dans un second temps, la désobstruction du TB0 a permis la fouille complète d'une galerie médiévale : la « galerie des Anciens³⁵⁵ » (figure 59). Cette galerie communique avec la surface au moyen d'un puits (puits des Anciens, figure 59) qui a été foncé sur 18 m. La fouille de la galerie des Anciens a livré un mobilier abondant constitué de plusieurs pointerolles (dont un dépôt de huit individus) et d'une auge en bois destinée au transport du minerai. La galerie est taillée à l'outil (pic et pointerolle) excepté un petit chantier montant dans sa partie terminale pour lequel les mineurs ont eu recours à l'abattage au feu. La datation du carbone contenu dans les parties aciérées d'une pointerolle montre que la galerie est en exploitation au milieu du XV^e siècle³⁵⁶.

Le dessein poursuivi par les instigateurs de la galerie des Anciens était d'atteindre la partie inférieure de la branche du toit de manière à poursuivre l'extraction. Comme Mussy le soupçonnait³⁵⁷, l'ouvrage n'a jamais recoupé la branche principale du toit mais uniquement une ramification de la branche du mur. Technicien avisé, l'ingénieur des Mines se montre également perplexe quant à l'usage du puits des Anciens qu'il identifie comme un ouvrage d'aéragé. Le décombrement³⁵⁸ de cet aménagement a permis de préciser sa morphologie et sa fonction. C'est un puits composite de section carrée (de 1 m de côté) dont le percement débute par un escalier descendant en ligne droite auquel succède une cage d'escalier entourant le puits. Cette dernière s'arrête à mi-hauteur. La fonction de l'ensemble formé par le puits et la galerie des Anciens est aujourd'hui établie. Le puits est un ouvrage de recherche indépendant

³⁵⁴ Ancel B., « Étude du réseau minier », In Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique*, SRA Midi-Pyrénées, 2003, p. 40-80.

³⁵⁵ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport intermédiaire 2015*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2015, p. 26-37.

³⁵⁶ Résultats calibrés à deux sigmas : 1445 à 1515.

³⁵⁷ À propos de la galerie des Anciens : « elle marchait irrégulièrement du nord vers le sud, pouvait avoir 120 mètres et paraissait avoir été abandonnée avant de recouper le gîte » : Mussy J., « Ressources minérales... », *op. cit.*, p. 267.

³⁵⁸ Le puits des Anciens avait déjà fait l'objet d'un décombrement en 1865. Il fut volontairement comblé en 1920 suite à l'arrêt des activités de la Société de la Vieille Montagne dans le secteur d'Aulus.

du TB0 et prolongé par une galerie³⁵⁹. Ce n'est qu'une fois le filon du mur recoupé que les mineurs auraient modifié le tracé du TB0 pour le connecter à la galerie des Anciens. La présence d'un escalier, qui donne un accès direct et rapide au front de taille, ainsi que le sens de percement révélé par l'étude des traces d'outil au niveau du puits des Anciens, renforcent cette hypothèse.

Les recherches archéologiques se sont également intéressées aux vestiges d'exploitation de la branche filonienne du mur. Tout d'abord, une ancienne entrée, baptisée TB21, et la galerie médiévale qui la poursuit ont été intégralement fouillées³⁶⁰ (figure 60 et figure 62). L'ouvrage débute par une descenderie dotée d'un escalier formé de 12 marches relativement larges (1,2 m) qui donne accès à une galerie de 14 m ouverte à l'outil et attaquant le filon du mur au niveau du contact schistes-dolomies. La galerie débouche sur un espace vide de grandes dimensions désigné comme une « salle des machines ». Une fois le minerai extrait, la galerie a été rectifiée et convertie en ouvrage de circulation. Le mobilier mis au jour est abondant : le bois domine de loin avec 50 pièces relevant tant de la planche ou de la poutre que du tasseau ou du rondin. Plusieurs fragments de minerai ont été collectés dans les remblais ainsi que des éléments métalliques liés à l'aménagement souterrain (tenaille, cornière, rondelle). En outre, la découverte d'un liard au dauphin de Louis XI, frappé entre 1467 et 1483, permet de préciser la chronologie des travaux.

Au-devant de la descenderie s'étend une halde d'environ 63 m³ qui a fait l'objet d'un sondage. Le socle rocheux n'a pu être atteint. Néanmoins, la datation des charbons de bois associés aux roches stériles du niveau le plus récent de la halde s'inscrit dans le XIV^e siècle (1290-1405 cal AD). Par ailleurs, la datation par ¹⁴C d'un des rondins de hêtre formant les deux dernières marches de la descenderie permet

³⁵⁹ D'après Téreygeol F, *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport intermédiaire 2015...*, op. cit., p. 26-27.

³⁶⁰ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Document final de synthèse 2014*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, p. 112-121.

d'identifier une ultime réfection de l'ouvrage dans la première moitié du XV^e siècle (1413-1450 cal AD). En outre, l'étude dendrochronologie de deux pièces de bois issues du comblement de la galerie montre qu'elles proviennent d'un arbre abattu à l'automne/hiver 1403-1404. Pour finir, la datation par ¹⁴C des vestiges d'un sol d'abattage au feu dans le Chantier du mur montre qu'il est en exploitation dès le XIII^e siècle (1185-1295 cal AD). Ainsi, le démarrage de l'exploitation de la branche du mur s'opère au XIII^e siècle. La descenderie en escalier et la galerie sont en place au XIV^e siècle et sont utilisées pour la circulation jusque dans la première moitié du XV^e siècle.

Au débouché de la galerie qui prolonge le TB21 se trouve la « salle des machines » (figure 62). Il s'agit en réalité de la partie supérieure d'un défilage qui se prolonge à l'ouest. Il occupe l'espace laissé par la branche du mur qui a été entièrement exploitée. La microtopographie réalisée en surface avait permis de repérer une dépression à proximité de la « salle des machines », suggérant l'existence d'un débouché au jour. Cette hypothèse a été confirmée par la découverte d'une tranchée qui se poursuit en souterrain et donne accès à la salle grâce à cinq marches taillées dans la roche encaissante. La fouille de cet ouvrage (nommé TB19, figure 62) a permis de mettre en évidence des aménagements dans la partie terminale de la tranchée. Il s'agit d'une fosse et de plusieurs encoches taillées dans les parements ainsi que les traces d'un passage de corde. L'entrée de la salle était vraisemblablement équipée d'une structure en bois complexe et imposante s'apparentant à un système de treuillage dont l'actionnement hydraulique a été suggéré³⁶¹. L'étude dendrochronologie de deux pièces de bois provenant du comblement de l'entrée de la « salle des machines » permet de préciser la chronologie du chantier. L'arbre dont elles proviennent a été abattu en 1397 ou à l'automne hiver 1397-1398. La machinerie équipant l'entrée 19 est donc déjà en place à la fin du XIV^e siècle. Outre les bois de mines susmentionnés, plusieurs objets ont été mis au jour dont certains paraissent associés à la machinerie

³⁶¹ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport intermédiaire 2016... op. cit.*, p. 17-18.

À l'origine de l'atelier multi-métaux, des ressources minières variées

tels les fiches, clous, crochets et anneaux. De plus, une découverte inhabituelle dans un contexte minier retient l'attention. Il s'agit d'une dague à oreilles, particulièrement bien conservée, exhumée dans la fosse du TB19. Les comparaisons typologiques permettent d'établir une datation entre la fin du XV^e et le début du XVI^e siècle. Outre la question du statut social des acteurs de l'extraction minière, aspect sur lequel nous reviendrons, la découverte de cet objet repousse la chronologie de la fin de l'extraction minière.

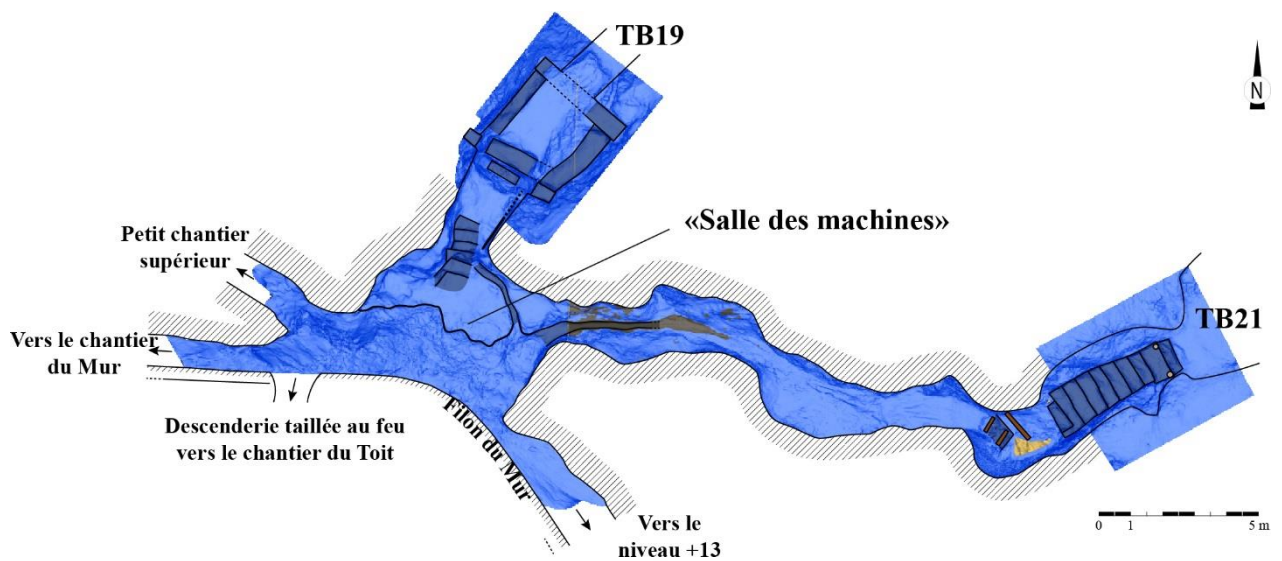


Figure 62 : Plan cumulé du TB19 et du TB21 établi d'après les relevés photogrammétriques. D'après Téreygeol F. *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport intermédiaire 2016*. SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2016, p. 14.

3.1.3.2. Échantillonnage du gisement de Castel-Minier

La mine de Castel-Minier a fait l'objet d'une étude minéralogique de manière à identifier les minerais extraits par les Anciens dans les différents chantiers. L'échantillonnage fin des branches filoniennes et de leurs nombreuses ramifications, qui nécessite l'exploration approfondie de la mine et la multiplication des prélèvements, est un prérequis fondamental à ce travail. Au total, 34 échantillons de minerais ont pu être collectés en place aux épontes des filons (figure 64). Certains secteurs qui se trouvaient éboulés ou noyés n'ont pas pu faire l'objet de prélèvements. Malgré ces contraintes, le maillage se veut le plus régulier et exhaustif possible. Les

prélèvements consistent la plupart du temps en de petites quantités de minerais de quelques dizaines de grammes associées à de la gangue et/ou de la roche encaissante. Il s'agit de minerais sulfurés parmi lesquels la galène domine. On rencontre également la chalcopryrite, la sphalérite, la pyrite et la tétraédrite ainsi que plusieurs minerais secondaires résultant de l'altération des sulfures : malachite, azurite, anglésite, hydrozincite... La gangue, lorsqu'elle subsiste, est constituée de calcite et/ou de quartz tandis que la roche encaissante est principalement dolomitique dans la branche du toit tandis que dans la branche du mur elle se compose de schistes et de dolomies.

La chalcopryrite provient des grands travaux du Chantier du toit (n° 23 et 25, figure 64) et du TB21 (n° TB21_12148, figure 64), c'est-à-dire de la branche du mur dont un placage de minerai subsiste au bas des escaliers. La tétraédrite (n° 34) se rencontre dans la partie supérieure de ces travaux, à proximité d'un accès au jour dorénavant obstrué. Ce minéral n'existe pas uniquement sous une forme massive, mais également en inclusions plus ou moins importantes dans la galène, formant ainsi un minerai que l'on peut qualifier de « mixte » (figure 63). Ces minerais mixtes tétraédrite-galène se rencontrent également dans les grands travaux, au départ d'une ramification nord-est de la branche filonienne d'une part (n° 9) et dans un dépilage de cette ramification d'autre part (n° 2). Au niveau du TB0, dans le dépilage de la galerie des Anciens, le minerai se partage entre sphalérite, pyrite et galène pris dans une gangue de quartz. Dans le prolongement moderne du TB0, il subsiste quelques placages de galène contenant de la sphalérite.

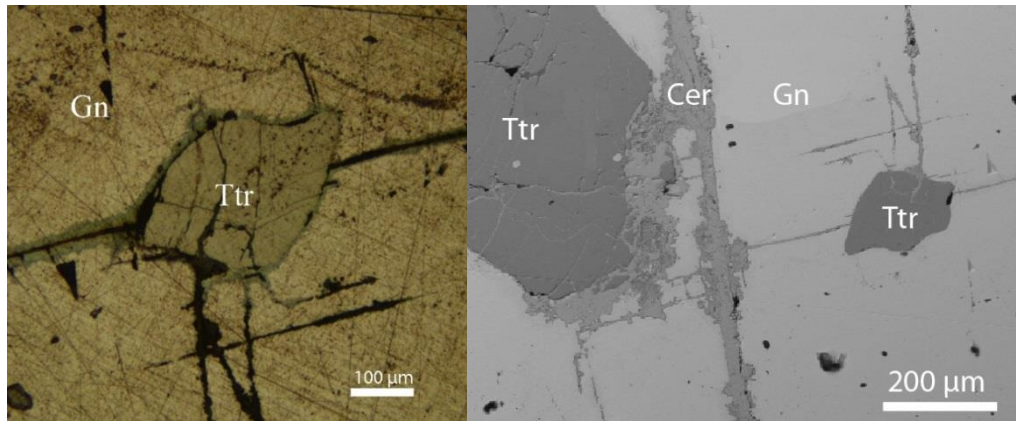


Figure 63 : Section polie du prélèvement n° 9 observée en microscopie optique (gauche) et au MEB (droite). Inclusions de tétraédrite (Ttr) dans une matrice de galène (Gn) contenant de la cérusite (Cer).

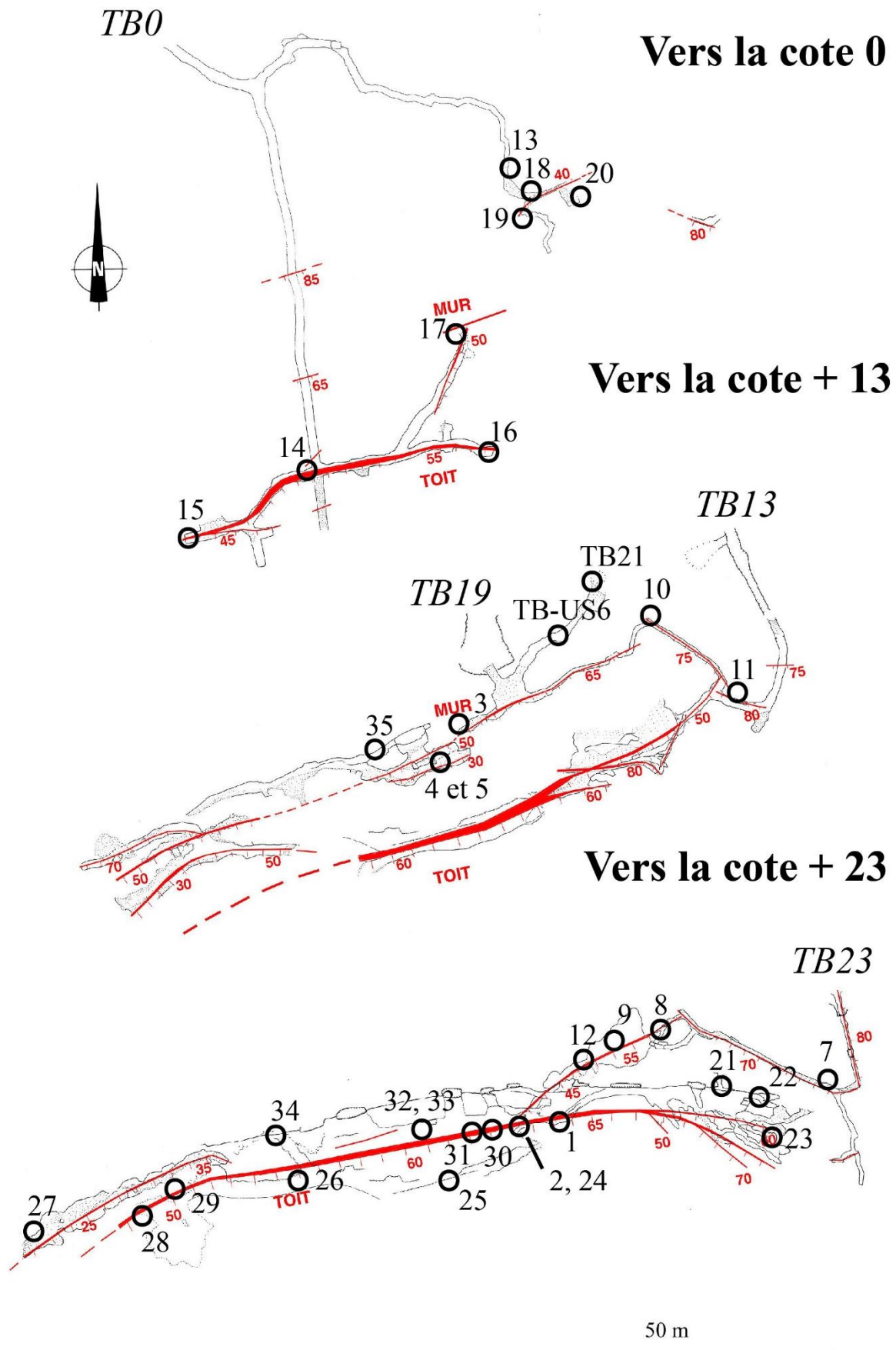


Figure 64 : Localisation des prélèvements de minerais dans le gisement de Castel-Minier. Plan des minéralisations d'après Ancel B., « Étude du réseau minier... », op. cit., p.45.

3.1.3.3. Analyses élémentaires des minerais

Les minerais prélevés dans la mine de Castel-Minier ont fait l'objet d'analyses élémentaires par LA-ICP-MS et MEB-EDX de manière à évaluer les teneurs en métaux aussi bien pour les éléments majeurs que pour les éléments-traces. Les résultats permettent d'une part d'étudier les caractéristiques géochimiques du gisement et d'autre part d'évaluer l'intérêt économique des faisceaux filoniens exploités. Ce deuxième aspect est envisagé uniquement sur le plan de la teneur en éléments métalliques et ne prend pas en compte la fraction de gangue/roche encaissante associée au minerai. En effet, cette proportion est surreprésentée dans les échantillons étudiés dans lesquels le minerai n'est présent qu'à l'état de résidu. Enfin, seuls ont été pris en compte les minerais susceptibles d'avoir été transformés durant la période médiévale : la sphalérite a donc été écartée. En outre, certains échantillons contenaient une quantité trop faible de minerai métallique qui n'a pas permis l'analyse élémentaire.

- La Chalcopyrite

La chalcopyrite de la branche du toit à fait l'objet de deux analyses par LA-ICP-MS (n° 23 et n° 25a). Les teneurs en éléments majeurs sont comparables avec une proportion de cuivre autour de 33 % (tableau 7). Les principaux éléments-traces sont le zinc, l'argent et l'étain. L'incorporation de zinc résulte d'inclusions microscopiques de sphalérite dans la chalcopyrite.

Élément	N° de prélèvement		
	N° 23	N° 25a	TB21_12148a
Filon		Toit	Mur
S	35,7 %	36,5 %	35,1 %
Fe	31,1 %	30,5 %	33,7 %
Cu	33,3 %	32,9 %	30,8 %
Ni	-	-	19
Zn	90	130	139
As	-	7,3	275
Ag	-	49	67
Sn	62	8,9	59
Sb	2,1	6,7	109
Au	-	-	-
Pb	-	-	2919
Bi	-	-	-
Σtraces	159	204	3588

Tableau 7 : Résultats des analyses élémentaires LA-ICP-MS des chalcopyrites prélevées dans la mine de Castel-Minier. Sauf indication contraire, les teneurs sont en ppm. Pour chaque prélèvement, la teneur moyenne a été obtenue à partir de trois analyses réalisées sur un échantillon de minerai.

La chalcopyrite provenant du filon du mur (TB21_12148a) présente une signature en éléments-traces différente. Tout d'abord, il y a plus d'impuretés dans l'échantillon analysé, avec un total de 3588 ppm contre 159 et 294 ppm pour la chalcopyrite de la branche du toit. La contribution majeure du plomb à ce résultat s'explique par l'incorporation de galène sous la forme d'inclusions dans la chalcopyrite. En revanche, les teneurs nettement plus élevées en arsenic et en antimoine ainsi que la présence de nickel contribuent à différencier les branches filoniennes du toit et du mur. Cette particularité géochimique de la branche du mur est à mettre en relation avec l'histoire métallogénique de la mine de Castel-Minier et les différents mécanismes qui ont présidé à la formation de la minéralisation. Le contact schistes-dolomies où s'est mis en place le filon du mur constitue un point de rupture entre deux roches aux propriétés différentes ce qui a pu favoriser d'une part l'incorporation de certains éléments métalliques dans le fluide minéralisateur et

d'autre part une précipitation rapide³⁶². Ces paramètres pourraient être responsables de la signature géochimique particulière de la chalcopryrite du filon du mur (figure 65).

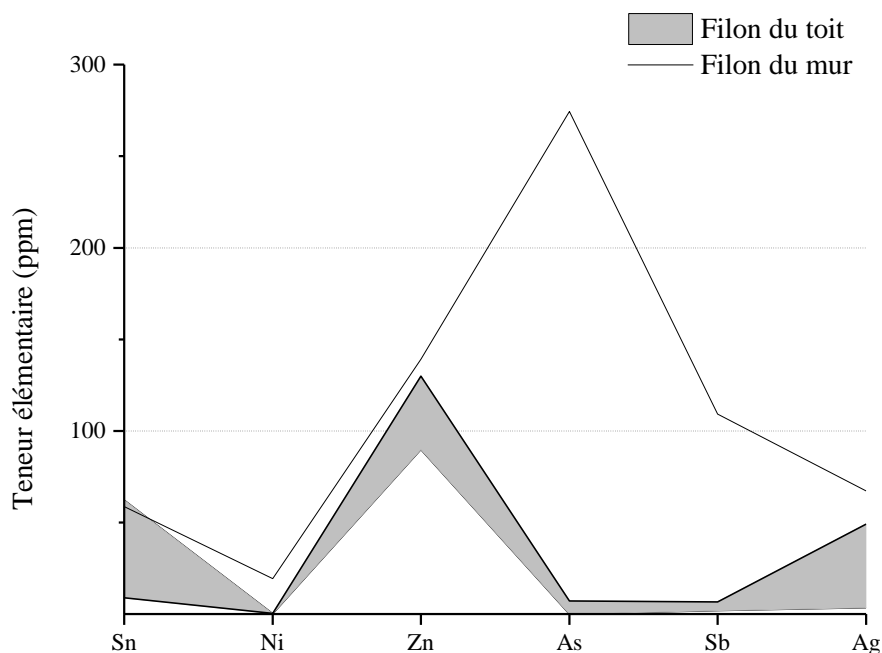


Figure 65 : Comparaison de six éléments-traces des chalcopryrites des branches filoniennes du toit (n° 23 et n° 25a) et du mur (TB21_12148a).

- Tétrahédrite

La tétrahédrite n'a été échantillonnée qu'en un seul point de la mine de Castel-Minier, dans la partie supérieure du Grand chantier du toit. La composition élémentaire du minéral a été obtenue par MEB-EDX, il s'agit par conséquent d'une mesure semi-quantitative (tableau 8). Par rapport à la formule structurale théorique ($\text{Cu}_{12}\text{Sb}_4\text{S}_{13}$), les principales substitutions concernent l'argent, le fer et le zinc (substitués au cuivre). La formule structurale a été calculée sur la base de trois analyses élémentaires. Elle obéit à la formule générale simplifiée suivante : $(\text{Cu}_{0,60}, \text{Ag}_{0,25}, \text{Fe}_{0,11}, \text{Zn}_{0,06})_{12}(\text{Sb}, \text{As}_{0,05})_4\text{S}_{13}$. Avec une teneur élevée en métal blanc (18,2 %), la tétrahédrite de Castel-Minier n'est pas seulement une source potentielle de cuivre. Elle a pu intéresser les mineurs médiévaux dans la cadre d'une production métallique concernant avant

³⁶² Gramont X. de, « les mines d'Aulus... », *op. cit.*, p. 497.

tout l'argent. Encore faudra-t-il démontrer la réalité d'une métallurgie extractive adaptée à ce minéral complexe qui associe plusieurs métaux aux propriétés physiques variées (notamment les températures de fusion).

	S	Fe	Cu	Zn	As	Ag	Sb
N° 34a	23,0 %	4,2 %	25,2 %	2,7 %	0,8 %	18,2 %	26,3 %

Tableau 8 : Résultat de l'analyse élémentaire MEB-EDX de la tétraédrite prélevée dans la mine de Castel-Minier. Teneur moyenne obtenue à partir de trois analyses réalisées sur un échantillon de minerai.

- Galène

La galène est le principal minerai métallique rencontré lors des prospections dans la mine de Castel-Minier. Une analyse par LA-ICP-MS a pu être menée sur 24 échantillons couvrant la majeure partie du réseau souterrain accessible. Les résultats sont présentés dans le tableau 9. Hormis les constituants majeurs que sont le plomb et le soufre, les galènes se composent de plusieurs éléments-traces dont les principaux sont l'argent et l'antimoine. La teneur en argent des galènes est une donnée fondamentale pour discuter l'intérêt économique du gisement de Castel-Minier.

Le premier enseignement à tirer des teneurs en argent est la très grande hétérogénéité des compositions. Elles varient du simple au septuple sur l'ensemble de la mine. Cette observation est en accord avec les données issues de la littérature, en particulier avec les résultats des essais effectués par différents auteurs sur des galènes prélevées dans les haldes³⁶³. Ainsi, bien que le potentiel économique de la mine soit attesté par la mise en évidence de galènes argentifères, la variation des teneurs en métal blanc au sein du gisement souligne le caractère hautement incertain et aléatoire des profits miniers. Néanmoins, de grandes tendances peuvent être identifiées pour

³⁶³ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Document final de synthèse 2009-2011*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, p. 75.

certaines chantiers d'abattage en replaçant les analyses élémentaires dans une perspective spatiale.

Tout d'abord, les galènes des Grands chantiers du toit, pour lesquelles les analyses sont nombreuses, sont celles qui présentent les teneurs en argent les plus élevées. C'est également dans cet espace que se rencontrent les minerais mixtes galène-tétraédrite (n° 9 et n° 2) dont la teneur globale en argent est augmentée par les inclusions de tétraédrite argentifère. Ainsi, la teneur moyenne en argent de la galène issue des Grands chantiers du filon du toit s'établit à 1899 ppm. Dans la branche est de ce filon, la galène présente une teneur moindre en argent avec une moyenne de 1155 ppm. Quant à la Branche intermédiaire est, elle a livré des minerais médiocres (galène à 757 ppm d'argent en moyenne) excepté un individu particulièrement riche en argent (1807 ppm) collecté dans le défilage. Comme nous l'avons évoqué précédemment, la partie inférieure du filon du toit qui a fait l'objet de travaux modernes dans le TB0 est pauvre en galène. De surcroît, la teneur en argent de celle-ci est moyenne (1162 ppm). Le Chantier du mur, dont les travaux principaux s'articulent autour des TB19 et 21, est le plus homogène. La teneur moyenne en argent de la galène est de 1315 ppm. En revanche, les travaux du niveau 0 qui attaquent la partie terminale du filon du mur (galerie des Anciens et TB0 mur) n'ont rencontré qu'une galène très pauvre en argent dans des filonnets peu puissants qui ont été rapidement épuisés.

Partie 3 : Les ressources minérales

N° de prélèvement	Chantier	Pb	S	Ag	Cu	Zn	Cd	Sn	Sb	Tl	Bi
N°3	Chantier du mur	86,1 %	13,5 %	1714	4,5	-	6,3	63	19339	2,1	18
N°5	Chantier du mur	81,5 %	18,3 %	1107	9,4	-	15	9,6	1132	1,8	46
TB21a_US6	Chantier du mur	85,9 %	13,9 %	1314	3,3	-	14	1,5	1363	2,3	4,4
TB21_12148b	Chantier du mur	84,5 %	15,3 %	1125	1,2	-	12	2,3	1135	2	6,5
N°17	TB0 mur	83,9 %	16,0 %	486	3,4	2,8	15	1,2	593	2,1	4,3
N°14	TB0 toit	91,3 %	8,3 %	1162	60	1660	5,8	4,9	554	2,2	560
N°20	Galerie des Anciens Branche	87,0 %	12,8 %	846	1,3	-	14	5,1	902	2,5	6,4
N°8	intermédiaire est Branche	83,4 %	16,4 %	883	53	3,9	12	1,7	998	2,1	8,1
N°9	intermédiaire est Branche	82,4 %	17,2 %	1951	27	3,6	6,1	2,4	1807	1,9	5,2
N°12	intermédiaire est Grands chantiers toit est	82,9 %	17,0 %	631	3,8	-	7,5	1,1	681	1,9	10
N°21	Grands chantiers toit est	89,0 %	10,9 %	936	-	-	9,6	1,1	876	2,1	6,1
N°22	Grands chantiers toit est	88,4 %	11,3 %	1319	12	-	8,6	1,5	1211	2,1	6,2
N°1	Grands chantiers toit	89,5 %	10,3 %	1145	-	-	12	1,2	1059	2,1	4,5
N°2	Grands chantiers toit	85,5 %	13,9 %	2836	7,9	-	11	3,1	2778	2,1	6,1
N°24	Grands chantiers toit	82,4 %	17,0 %	2832	16	-	14	3,2	3129	2,2	6,9
N°25	Grands chantiers toit	87,3 %	12,4 %	1505	63	-	6,7	0,4	1450	2,1	8,7
N°26	Grands chantiers toit	87,5 %	12,2 %	1175	-	-	11	8,1	1485	2,2	7,4
N°30	Grands chantiers toit	86,5 %	13,2 %	1518	18	-	6,5	1,1	1889	2,3	6,4
N° 31	Grands chantiers toit	85,9 %	13,8 %	1460	1,2	-	6,9	1,1	1392	1,9	5,7
N°32	Grands chantiers toit	83,1 %	16,1 %	4011	30	-	9,3	2,2	3932	1,9	5,9
N°34	Grands chantiers toit	86,4 %	13,3 %	607	932	162	9,5	3,7	587	1,9	5,8
N°28	Chantier intermédiaire ouest	83,1 %	16,7 %	1063	-	1,7	7,5	0,7	1025	1,9	15
N°29	Chantier intermédiaire ouest	85,7 %	14,1 %	1063	-	-	6,0	2,3	1062	2,1	5,6

Tableau 9 : Résultats des analyses élémentaires par LA-ICP-MS des galènes prélevées dans la mine de Castel-Minier. Sauf indication contraire, les teneurs sont en ppm. Se reporter à la figure 64 pour la localisation des prélèvements.

L'étude des teneurs en argent permet également de s'intéresser à la signature géochimique du gisement de Castel-Minier. Plus précisément c'est l'existence d'une corrélation entre l'argent, l'antimoine et le bismuth, déjà observée pour les minerais issus des prospections, qui permet de mettre en évidence les porteurs d'argent disséminés dans la galène. Dans le cas de Castel-Minier, les teneurs en bismuth sont très faibles, ce qui indique que le minéral porteur d'argent est principalement de la miargyrite³⁶⁴ avec un rapport Ag/Sb proche de 1 (figure 66).

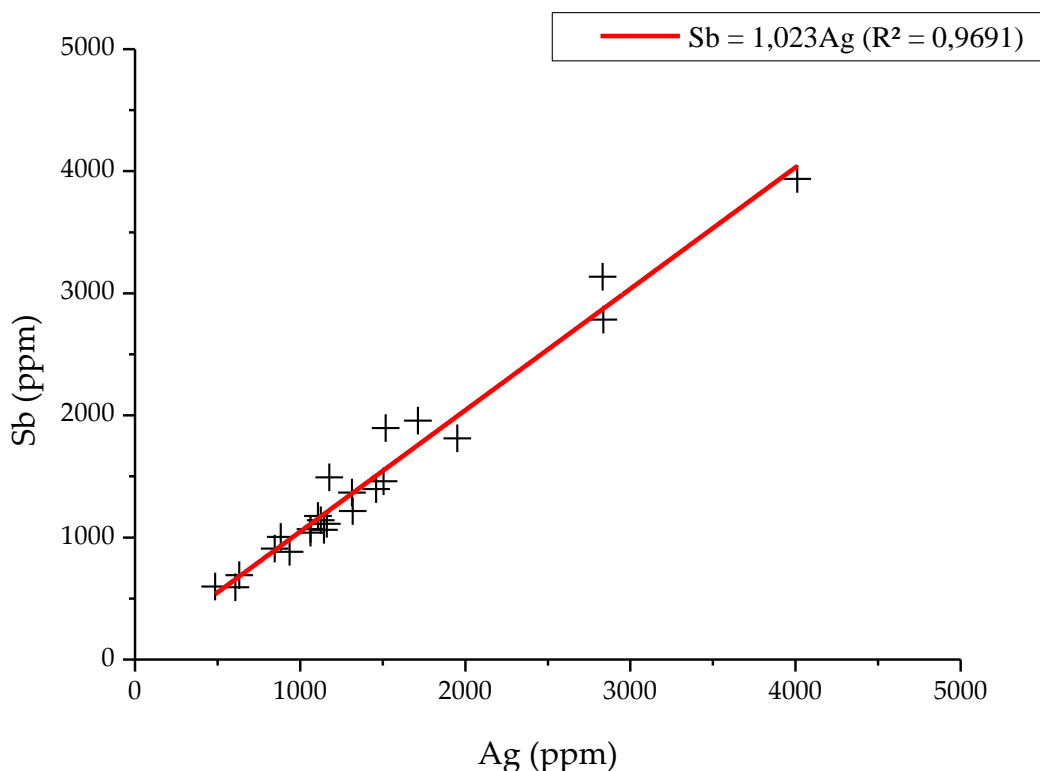


Figure 66 : Diagramme binaire représentant les teneurs en argent et en bismuth pour les galènes issues de la mine de Castel-Minier. Analyses LA-ICP-MS.

Les autres éléments-traces détectés dans la galène de Castel-Minier sont le cuivre, le cadmium, l'étain et le thallium. Les teneurs en thallium sont faibles et très homogènes à l'échelle du gisement. De même, les teneurs en cuivre sont basses sauf

³⁶⁴ Seul la galène du prélèvement n° 14 contient un porteur d'argent de type matildite. Ce minéral s'est formé dans des conditions thermodynamiques différentes, en particulier de température. La localisation de ce prélèvement, dans la partie inférieure du filon du toit (travaux moderne du TB0) renforce cette hypothèse.

pour un échantillon (n° 34) qui contient des inclusions microscopiques de chalcopyrite. Les minerais sont exempts de zinc exceptés deux échantillons qui présentent des teneurs élevées indiquant l'incorporation de sphalérite sous la forme d'inclusions dans les cristaux de galène.

3.1.3.4. Synthèse : les dynamiques d'exploitation

La caractérisation minéralogique de la mine de Castel-Minier et l'étude géochimique des minerais contribuent grandement à la compréhension du gisement dont les particularités ont pu être dégagées, qu'il s'agisse de la géométrie complexe du réseau filonien ou du caractère polymétallique des minéralisations. Les résultats obtenus s'inscrivent dans une recherche de longue durée portant à la fois sur l'extraction et la transformation des minerais à Castel-Minier au cours des derniers siècles du Moyen Âge. La complémentarité des approches de terrain et de laboratoire permet d'étudier les stratégies d'exploitation souterraine en les replaçant dans une perspective économique, notamment par la confrontation de l'ampleur et de la complexité des travaux réalisés avec l'évolution de la « qualité » des ressources minérales disponibles. En outre, la réalisation de plusieurs datations en contexte minier permet de dégager un schéma diachronique de l'exploitation.

La mine est en activité dès la fin du XIII^e siècle comme le prouve la datation des charbons d'un sol d'abattage au feu dans le Chantier du mur. L'extraction a vraisemblablement débuté par la découverte de la branche filonienne du toit dont certaines portions débouchaient au jour (au niveau des « Trous des yeux ») en contrebas d'une barre rocheuse dolomitique, indice supplémentaire de minéralisation. Le chantier a commencé à ciel ouvert directement sur les affleurements du filon. L'extension des travaux s'est poursuivie à la verticale et le filon du toit a été méthodiquement dépilé, laissant de grands vides : les Grands chantiers du toit et les Grands chantiers du toit est. L'évacuation des déblais et du minerai s'effectuait vraisemblablement par les « Trous des yeux ». Néanmoins, quelques recoupes

horizontales visibles en surface en contrebas de ces orifices ont pu également tenir ce rôle.

Le recours à la technique de percement par le feu est généralisé dans les Grands chantiers. D'un point de vue économique, ce secteur a fourni les galènes les plus argentifères du gisement ainsi que de la tétraédrite riche en argent à proximité du jour, c'est-à-dire dans la phase précoce d'exploitation. Ces considérations qualitatives sur les minerais doivent être confrontées aux sources écrites médiévales relatives au procès qui oppose le vicomte de Couserans aux exploitants de la mine entre 1319 et 1349. Nous avons supposé qu'un problème de fiscalité est à l'origine du différend. Les données géochimiques sur la mine de Castel-Minier confortent cette hypothèse bien qu'elle demeure fragile faute de données sur le grand gisement des Raspes. Si la mine concédée par le vicomte a été évaluée à l'origine comme un gisement de plomb argentifère, la découverte de tétraédrite argentifère a dû modifier considérablement la physionomie et la rentabilité de l'atelier métallurgique de Castel-Minier. La teneur en métal blanc du sulfure de plomb est en effet environ cent fois inférieure à celle de la tétraédrite. Le vicomte de Couserans, moins précautionneux que Charles le Mauvais en Navarre³⁶⁵, n'a pas pris soin d'ajouter une clause spécifique au bail, tel qu'un taux de prélèvement proportionnel à la richesse des minerais, pour faire face à ce cas de figure. Pire, en ne précisant pas sa durée, il a concédé un bail emphytéotique aux exploitants sans recours pour récupérer la mine. Que cette situation témoigne d'une expertise inaboutie du gisement ou d'une méconnaissance du droit minier dans l'entourage du vicomte, elle n'en demeure pas moins préjudiciable pour ses revenus. En définitive, il est permis de penser que la découverte de l'important filon du toit et de ses minerais argentifères est à l'origine de la procédure judiciaire longue et complexe dont Castel-Minier fut l'objet.

L'extension des travaux s'est poursuivie par l'exploitation des ramifications du filon du toit (Grands chantiers du toit est, Branche intermédiaire est et Chantier

³⁶⁵ *Supra*, p. 105.

intermédiaire ouest, figure 67). Si les teneurs en argent de la galène sont intéressantes dans ces secteurs, elles sont toutefois moins élevées que dans les Grands chantiers du toit.

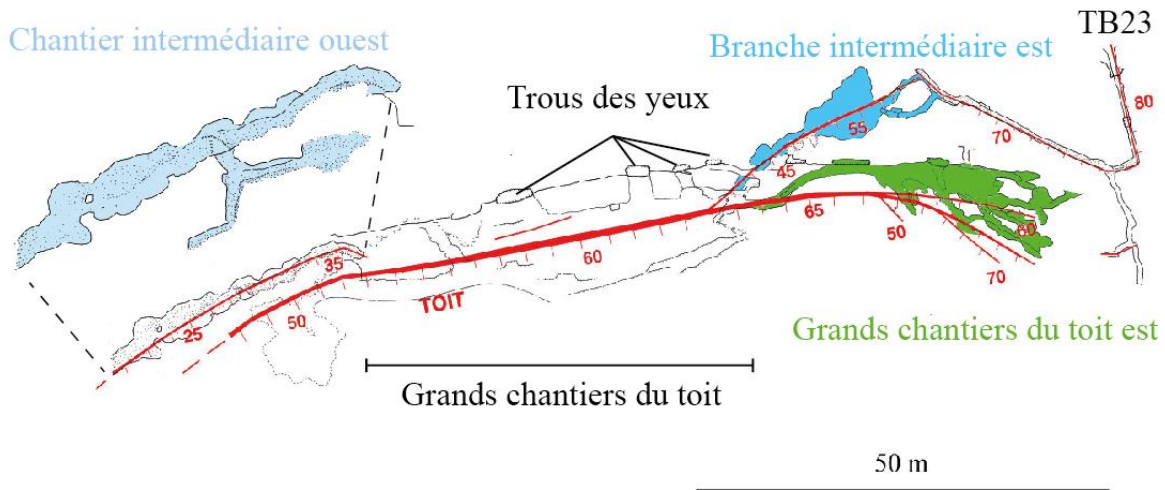


Figure 67 : Identification des chantiers du filon du toit au niveau de la cote +23.

Parallèlement à l'approfondissement des travaux d'extraction sur la branche du toit, la découverte de la branche du mur, de moindre envergure, a entraîné l'ouverture d'un nouveau quartier d'abattage. Les travaux ont probablement débuté au niveau du TB21 selon le modèle consacré d'une tranchée munie d'escaliers (figure 68). Recoupée rapidement, la branche du mur a été suivie grâce à une galerie ouverte au feu : les minerais extraits se partageaient entre chalcoppyrite et galène de qualité intermédiaire. Une zone d'enrichissement a été atteinte au contact schistes-dolomies (au niveau de la salle des machines) entraînant le développement du Chantier du mur, actif au cours du XIII^e siècle (figure 68). C'est probablement à cette occasion qu'est ouvert le TB19 de manière à faciliter l'évacuation des matériaux. L'état le plus ancien de la machinerie qui en occupe l'entrée est daté de la fin du XIV^e siècle. Cet appareil était-il en place dès l'origine ou témoigne-t-il d'une reprise et d'un approfondissement des travaux qui auraient nécessité la mise en place d'un système de pompage et/ou de levage ? Quoi qu'il en soit, une fois la machinerie installée, les hommes circulent via le TB21 jusqu'à

l'arrêt de l'extraction dans la première moitié du XV^e siècle. Plusieurs communications sont établies entre les branches du toit et du mur au moyen de descenderies ouvertes au feu dont certaines exploitent des ramifications du faisceau filonien. Une fois achevés, ces ouvrages permettent l'aéragé des chantiers, mais également la circulation des hommes et des matériaux.

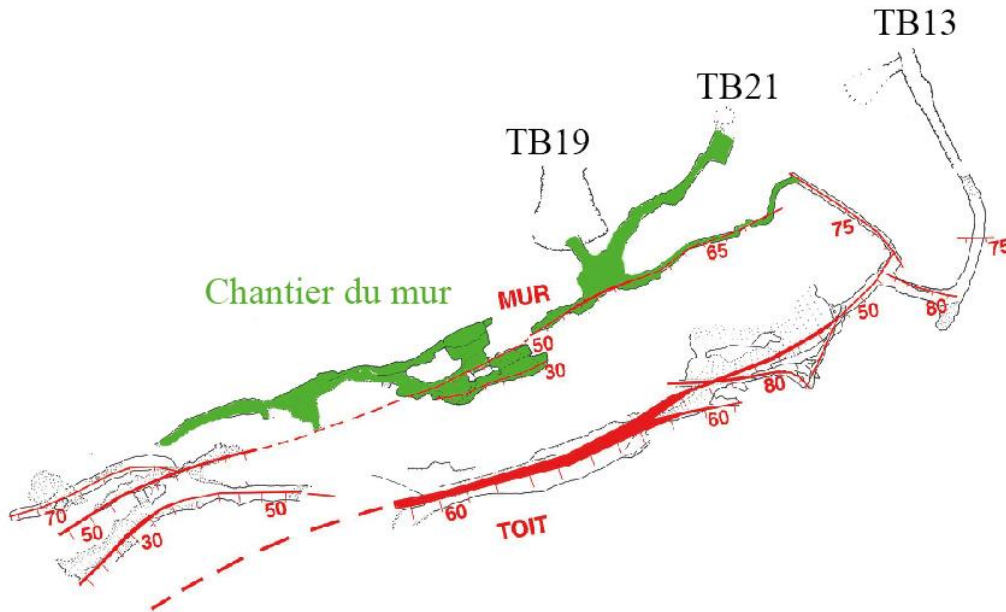


Figure 68 : Identification des chantiers au niveau de la cote +13.

Le TB23 est un ouvrage de recherche et d'aéragé dont le départ suit une ramification de la branche du toit, qui semble stérile après examen, au contact schistes-dolomies. L'extension méridionale de la recherche n'a pas rencontré de minerai tandis que l'extension occidentale a permis la connexion avec la Branche intermédiaire est au moyen d'une galerie qui suit le contact schistes-dolomies. Cette jonction assure l'évacuation des fumées générées par les bûchers d'abattage dans la Branche intermédiaire est qui, contrairement aux Grands chantiers du toit, ne débouche pas au jour. Cependant, la galène provenant de ce quartier n'a pas satisfait les attentes des exploitants puisque sa teneur en argent est médiocre.

Le percement du TB13 vise quant à lui à résoudre les problèmes d'exhaure qui n'ont pas manqué de se poser au fur et à mesure de l'approfondissement des travaux

(figure 68). L'ouvrage qui débute à proximité du Garbet a d'abord rencontré les schistes puis le contact schistes-dolomies. Il rejoint la partie inférieure du Chantier intermédiaire ouest puis les Grands chantiers du toit. Le TB13 est également en connexion avec le Chantier du mur via deux galeries exigües qui se rejoignent et dont la finalité demeure incertaine. Le décombrement de la salle des machines permettra de discuter l'hypothèse d'une mise hors d'eau de cet espace.

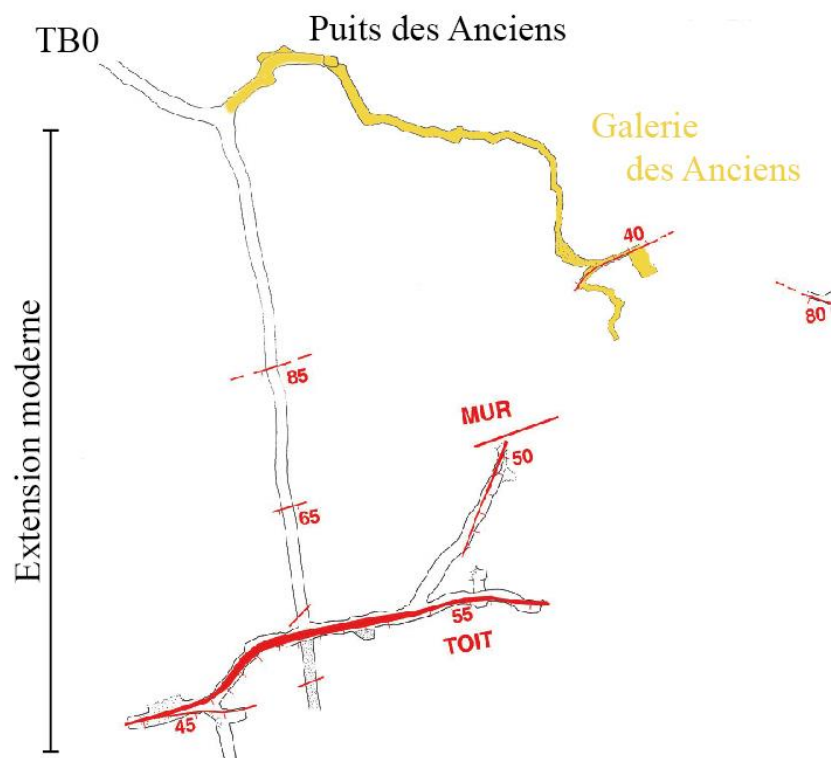


Figure 69 : Identification des chantiers au niveau de la cote 0.

Nous avons déjà évoqué l'ouvrage d'envergure que constitue le TB0 et son prolongement par la galerie des Anciens (figure 69). Parmi les hypothèses avancées pour expliquer la fonction du TB0, celle d'un ouvrage visant à assurer l'exhaure de chantiers miniers toujours plus profonds et approchant le niveau du Garbet est la plus probable. La jonction du TB0 avec le puits des Anciens et la galerie éponyme fut probablement dictée par la découverte d'une ramification du filon du mur au fond de la galerie des Anciens et que les mineurs espéraient suivre selon un chantier montant

afin d'assurer la jonction avec les travaux supérieurs et les mettre hors d'eau. Cet ouvrage de réalisation tardive (milieu du XV^e siècle) qui représentait un investissement considérable n'a pas tenu ses promesses et fut abandonné après un parcours de 140 m depuis le jour et à quelques mètres de la base des filons principaux.

L'étude fine de la terminaison de la galerie des Anciens permet de saisir la stratégie mise en œuvre par les mineurs dans la dernière phase d'exploitation médiévale de la mine au moment où ses ressources s'épuisent et que résonnent les derniers coups de pointerole. La galerie est ouverte dans les schistes stériles (secteur 1, figure 70) avant d'atteindre une fracture NE-SO (secteur 2, figure 70) dont la minéralisation se compose de pyrite. L'extension au nord-est des travaux a permis de découvrir de la galène prise dans une gangue de quartz. L'abattage du minerai s'est fait selon un chantier montant dans lequel la dureté de la roche a obligé les mineurs à recourir à l'abattage au feu (secteur 3, figure 70). Outre la faible teneur en argent de la galène qu'elle contenait, la poche minéralisée n'occupait qu'un faible volume rapidement prélevé. Les recherches se sont ensuite concentrées au sud-ouest dans le prolongement de la fracture minéralisée (secteur 4, figure 70) dans l'espoir de découvrir un changement dans la minéralisation au profit de la galène. Cette transition est effective mais elle s'opère malheureusement au bénéfice de la sphalérite dont l'intérêt pour les mineurs médiévaux est nul. Dans une dernière phase, les mineurs reprennent leurs recherches vers le sud via une galerie sinueuse de profil étroit tracée dans des schistes plus durs (secteur 5, figure 70). Le pied du filon du toit n'est pas atteint et le grand projet d'exploration et d'exhaure est abandonné.

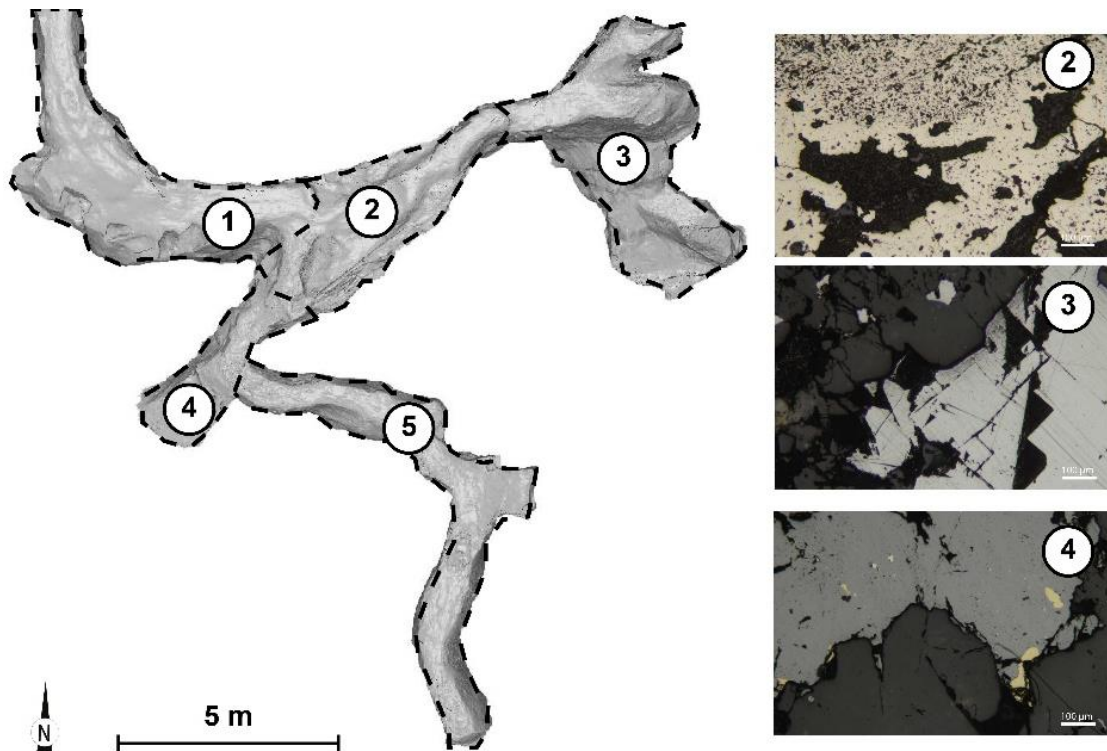


Figure 70 : Partie terminale de la galerie des Anciens. Localisation des secteurs étudiés et sections polies des roches prélevées. 2 : pyrite dans une gangue de schiste, 3 : galène dans une gangue de quartz, 4 : sphalérite (avec inclusions de chalcoppyrite) dans une gangue de schiste.

3.2 La question de la préparation des minerais

Les minerais qui ont alimenté les ateliers de Castel-Minier – qu’ils proviennent de la mine éponyme ou de gisements plus distants que nous venons de présenter – ont fait l’objet, pour certains d’entre eux, de plusieurs étapes de préparation destinées à modifier leur granulométrie et à les enrichir. La chaîne opératoire minéralurgique mise en œuvre à Castel-Minier est exposée ci-dessous à la lumière des données archéologiques et des résultats des expérimentations.

3.2.1. État de l’art

La préparation des minerais recouvre une variété de techniques mécaniques et densimétriques qui forment le domaine de la minéralurgie. À mi-chemin entre l’extraction minière et la métallurgie, les étapes minéralurgiques ont pour objectif la

séparation du minerai et de la gangue qui l'accompagne afin de faciliter les opérations métallurgiques ultérieures. Notre enquête sur les travaux miniers médiévaux de la vicomté de Couserans a révélé l'hétérogénéité de certains gisements tant du point de vue de la nature des minerais rencontrés que de la puissance des minéralisations. La gangue peut dans certains cas représenter une fraction notable de la roche abattue qui n'est pas profitable à la production métallique. De surcroît, la présence de minerais mixtes associant par exemple de la galène et de la sphalérite ou encore des minéralisations de type *stockwerk* nécessitent la mise en place de procédés de séparation adéquats. Généralement, la préparation des minerais suit une séquence de tri, concassage, broyage et lavage. Le traitement débute inévitablement sous terre avec le tri de la fraction visiblement stérile qui n'est pas tirée hors des réseaux souterrains. Les étapes minéralurgiques peuvent mettre en œuvre l'énergie humaine, animale ou hydraulique suivant des critères techniques dictés par la nature des minerais exploités, les contraintes matérielles imposées par l'environnement naturel, mais également le coût de la main d'œuvre.

3.2.1.1. Sources textuelles et iconographiques

La préparation des minerais est documentée dans les sources écrites dès le XIV^e siècle. C'est néanmoins au début de la période moderne que cette documentation devient plus abondante, avec en particulier la production de plusieurs traités métallurgiques – qui réservent une place particulière aux opérations minéralurgiques – et de quelques documents iconographiques. La minéralurgie n'est pas l'apanage des minerais non-ferreux, elle concerne également leurs homologues ferreux. Néanmoins, les sources sont plus abondantes pour les métaux monétaires tels que l'or et l'argent. La production du fer quant à elle, bien qu'elle soit abondante, a laissé des traces plus rares dans la documentation³⁶⁶.

³⁶⁶ Braunstein P., *Travail et entreprise au Moyen Âge...*, op. cit., p. 119-120.

Le mémoire de Paolo Girardi que nous avons déjà présenté est particulièrement précieux pour étudier la minéralurgie et notamment la chaîne opératoire que le Florentin propose de mettre en œuvre en 1340 dans la mine navarroise d'Urrobi.

« Item y a mestier 4 hommes qui tireront hors la mine et terre au tour, et coustera chascun 7 sous la semaine. Item 2 hommes qui videront les paniers et cabars, en quoi l'en monte la mine et la terre, et auront chascun 7 sous la semaine [...]. Item en la semaine 3 journees de bestie qui porte la mine du minier au moulin, 6 sous pour les 3 jours. Item 2 hommes pour trenchier et piconnar la mine avant que e elle boise au moulin, 6 sous chascun la semaine. Item 1 homme qui e meule la mine et tiengne le moulin bien appareillie, 7 sous la semaine. Item plus 3 e fames qui laveront la mine, 5 ou 6 sous la semaine chascune. Item 5 fames a servir les 3 et a servir la place, chascun 2 sous 6 deniers la semaine³⁶⁷. »

Bien que l'exploitation soit contemporaine de Castel-Minier, les indications fournies par Girardi ne peuvent pas être simplement transposées d'un site pyrénéen à l'autre, en particulier du fait de la nature différente du minerai d'Urrobi, composé essentiellement de cuivre argentifère. Girardi prévoit quatre hommes pour évacuer du front de taille « la mine et terre au tour » et deux hommes à la surface qui vident les « paniers et cabars » qui le contiennent. Le minerai est ensuite convoyé à dos d'animal vers le moulin où il est concassé (« trenchier et piconnar la mine »). Quelques remarques s'imposent : tout d'abord le minerai livré a vraisemblablement subi une étape de débouillage puisqu'il est débarrassé de la « terre » qui l'accompagnait. Le débouillage permet d'éliminer la fraction terreuse ou argileuse mêlée à la roche tirée de la mine, mais également les charbons dans le cas d'un abattage par le feu. Le minerai est placé dans une corbeille en vannerie et plongé à plusieurs reprises selon un mouvement vertical rapide dans une fosse remplie d'eau. Les charbons surnagent et sont éliminés tandis que les particules de terre, d'argile et de cendre se désagrègent et

³⁶⁷ Édition de Mugueta Moreno Í., « Política monetaria... », *op. cit.*, p. 103.

s'accumulent au fond de la fosse. Le minerai est ensuite broyé dans un moulin hydraulique afin d'obtenir une poudre contenant du minerai et des roches stériles. À Urrobi, le transport vers le moulin n'a lieu que trois fois par semaine, lorsqu'une masse critique de minerai à traiter est atteinte. Le fonctionnement et l'entretien de l'appareil requièrent un seul homme tandis que l'étape suivante de lavage, confié à du personnel féminin, nécessite le concours de huit personnes.

Le lavage permet de séparer par hydrogravimétrie les poudres de minerais et de roches stériles en jouant sur la différence de densité entre les minéraux. Le minerai est placé sur un plan incliné sur lequel circule un courant d'eau : avec une bonne adéquation entre la pente du plan incliné et le débit d'eau, les particules stériles, moins denses, sont emportées tandis que le minerai s'accumule en tête avant d'être finalement prélevé. À la lecture du texte de Girardi, il semble que le broyage de la totalité du minerai extrait soit prévu. Peut-être cette disposition est-elle à mettre en relation avec un type de minerai intimement mêlé à la gangue de sorte qu'un broyage fin est nécessaire pour assurer une bonne séparation. De surcroît, et bien qu'il soit long et coûteux, le traitement de l'intégralité de la roche peut s'avérer très rentable dans le cas d'un minerai de « cuivre gris » particulièrement riche en argent. Malheureusement, nous ne pouvons pas dépasser le stade de la conjecture puisque Urrobi est la seule mine navarraise pour laquelle Girardi ne livre pas les résultats des essais qu'il a conduits sur les minerais³⁶⁸.

Les productions iconographiques de Bohême centrale et notamment celles issues du district minier de Kutná Hora sont d'un intérêt majeur pour étudier les modalités de la préparation des minerais à la fin du XV^e siècle. L'antiphonaire de Kutná Hora³⁶⁹, réalisé en 1471 dans l'atelier de l'enlumineur Valentin Noha, s'ouvre sur une scène minière figurant l'extraction du minerai puis le concassage à même le

³⁶⁸ Sur les essais de Girardi en Navarre, voir la thèse de Joseph Gauthier : *La fortune des entreprises minières : histoire et archéologie de l'essai des minerais par voie sèche en Europe, du haut Moyen Âge au XVIII^e siècle*, thèse de 3^e cycle, Université de Haute-Alsace, 2012, p. 98-102.

³⁶⁹ Prague, Knihovna Národní Galerie.

sol au moyen d'un marteau (figure 71). Exécuté par l'enlumineur Matthäus en 1490, le graduel de Kutná Hora³⁷⁰ contient un célèbre folio qui présente l'organisation verticale de l'entreprise minière qui débute par une mise en lumière du monde souterrain de l'extraction auquel succède le traitement du minerai en surface et enfin son partage entre les différents parçoniars. L'artiste a consacré une place importante au tri et au concassage des minerais (figure 71). Enfin, un feuillet issu d'un graduel anonyme³⁷¹, dont le style le rapproche des productions bohémiennes de la fin du XV^e siècle, contient, outre les opérations de tri et de concassage, une représentation de plusieurs techniques de lavage du minerai mettant en œuvre différents types de tamis (figure 71).



Figure 71 : À gauche : scènes de lavage du minerai, graduel anonyme, Bohême, fin du XV^e siècle, illustration extraite de Hrubý P., Hejhal P., Hoch A., Kočár P., Malý K., Macháňová L., Petr L. et Štelcl J., « Středověký úpravnický a hornický areál Cvilíněk u Černova na Pelhřimovsku », Památky Archeologické CIII, 2012, p. 363. En haut à droite : concassage du minerai, antiphonaire de Kutná Hora, 1471. En bas à droite : concassage du minerai, graduel de Kutná Hora, 1490.

³⁷⁰ Vienne, Österreichische Nationalbibliothek.

³⁷¹ Kutná Hora, Galerie Středočeského kraje.

Parmi les sources iconographiques, il convient de citer également le graduel de la collégiale de Saint-Dié-des-Vosges³⁷², exécuté entre 1494 et 1515, dont les scènes du folio 338 r. exposent au lecteur le parcours du minerai d'argent depuis la sortie de la mine de La-Croix-aux-Mines jusqu'à l'obtention du métal blanc³⁷³ (figure 72). Les opérations minéralurgiques y figurent en bonne place et se répartissent en cinq étapes dont la première se compose d'un débourbage. La roche est ensuite concassée au marteau sur un billot de manière à effectuer un premier tri. Le minerai mêlé à la gangue doit ensuite être broyé plus finement au moyen d'un appareil hydraulique : le bocard, dont le graduel de Saint-Dié-des-Vosges contient l'une des premières représentations. Une roue hydraulique met en rotation un arbre muni de cames qui permettent de soulever alternativement des pilons. Le minerai fragmenté est ensuite jeté contre un tamis incliné afin d'opérer une séparation en fonction de la granulométrie. La fraction qui le traverse est ensuite lavée tandis que celle qui a été arrêtée par les mailles repasse au bocard. Le lavage est effectué sous eau sur une table en bois légèrement inclinée. Les particules stériles, de plus faible densité, sont entraînées par l'eau tandis que le minerai, plus lourd, s'accumule avant d'être prélevé. Le laveur facilite la séparation en déplaçant les minéraux avec un râble.

³⁷² Saint-Dié-des-Vosges, bibliothèque municipale.

³⁷³ Pour mise en perspective technique et historique des scènes minières et métallurgiques du graduel de Saint-Dié : Pierre F., « Les mines de La Croix d'après le graduel de Saint-Dié : réalité ou décor ?, fo 338 », *Art de l'enluminure*, n° 26, 2008, p. 62-67.



Figure 72 : Graduel de Saint-Dié-des-Vosges, f 338 r., fin XV^e-début XVI^e siècle. Concassage et débourage à la sortie de la mine (gauche), bocardage (centre), passage au tamis incliné et lavage au râble (droite).

En Saxe, le retable de l'église Saint-Anne d'Annaberg, réalisé en 1521 par Hans Hesse, présente une technique de lavage utilisant des tamis à maille très fine : le minerai réduit en poudre est déposé dans le tamis qui est vigoureusement plongé dans un cuveau d'eau de manière à soulever les particules les plus légères qui sont ensuite évacuées. À la même époque, la description des étapes de préparation des minerais atteint un degré de précision exceptionnel avec les dessins d'Henrich Gross exécutés en 1529 pour la visite du duc de Lorraine à la rouge myne de Saint-Nicolas-de-La-Croix³⁷⁴. Les techniques de lavage combinent le travail au tamis et sur des rampes de lavage aux cotés fermés (sluice). Enfin, l'art minéralurgique atteint son apogée en 1556 avec la parution du *De Re Metallica* d'Agricola dans lequel pas moins de sept techniques de lavage sont décrites mettant en œuvre principalement des sluices complexes installés en série ainsi que des tamis extrêmement fins³⁷⁵.

³⁷⁴ Reproduction et commentaire des dessins d'Henrich Gross dans : Groff H., Bari H., Benoit P. et Brugerolles E., *La mine, mode d'emploi : la rouge mine de Saint-Nicolas-de-la-Croix*, Gallimard, Paris, 1992.

³⁷⁵ Hoover H. C. et Hoover L. H., *Georgius Agricola De re Metallica*, Dover, New-York, 1950 (1^{re} édition 1912), livre VIII, p. 267-351.

3.2.1.2. Sources archéologiques

Les sources qui viennent d'être présentées, essentiellement postmédiévales, ont été produites dans des districts miniers de l'espace germanique. Elles rendent compte d'opérations minéralurgiques spécifiques et adaptées à la nature des minerais exploités, mais également d'une certaine culture technique. Le degré d'avancement des procédés de préparation des minerais atteint son paroxysme avec la mise en exploitation de gisements polymétalliques complexes qui requiert la création d'importantes compagnies minières capables de mobiliser des capitaux pour l'équipement des installations. Qu'en est-il des techniques minéralurgiques dans l'Europe médiévale avant l'essor des districts germaniques ?

Les recherches archéologiques apportent des éléments de réponse grâce à la fouille de plusieurs installations destinées à la préparation des minerais. Pour le haut Moyen Âge, le district minier poitevin de Melle (Deux-Sèvres), exploité entre le VI^e et la fin du X^e siècle, offre un cadre unique pour l'étude des opérations minéralurgiques dont la galène argentifère faisait l'objet³⁷⁶. Parmi les six sites identifiés à ce jour et sur lesquels prenaient place ces activités, la laverie des Boulitotes a fait l'objet de deux campagnes de fouilles de sauvetage en 1996 et 1997 qui ont permis de restituer les pratiques qui y étaient en vigueur³⁷⁷. Le site est daté par radiocarbone entre le milieu du IX^e siècle et la fin du X^e siècle avec une période de fonctionnement relativement courte limitée à quelques années. La roche abattue était soumise à un débouillage dans des fosses circulaires puis concassée sur des mortiers en pierre avant de subir un premier tri. La fraction fine issue du concassage était ensuite lavée dans des fosses allongées et fonctionnant sous eau courante. Les boues issues de cet enrichissement ont pu éventuellement faire l'objet d'un retraitement dans des fosses trapézoïdales. La

³⁷⁶ Sur le district minier et métallurgique de Melle au haut Moyen Âge, voir la thèse de Florian Téreygeol : *Les mines d'argent carolingiennes de Melle*, thèse de 3^e cycle, Université Paris I, 2001.

³⁷⁷ Téreygeol F., « La préparation des minerais argentifères au haut Moyen Âge : le rôle de l'eau », In Téreygeol F. (éd.), *Du Monde franc aux califats omeyyade et abbasside : extraction et production des mines d'argent de Melle et de Jabali*, Deutsches Bergbau-Museum, Bochum, 2014, p. 93-131.

compréhension de la chaîne opératoire a été améliorée grâce à plusieurs expérimentations qui ont permis d'éprouver certaines hypothèses archéologiques et amené de nouveaux questionnements³⁷⁸. C'est le cas tout particulièrement des opérations de lavage pour lesquelles la confrontation des données expérimentales et archéologiques a permis d'étudier le taux d'enrichissement en fonction des propriétés de la mouture initiale et de préciser les limites techniques du procédé.

Le cas exemplaire de la laverie des Boulitotes est complété par les résultats des recherches archéologiques menées sur le site minier et minéralurgique de Brandes (Isère) installé dans les montagnes de l'Oisans et qui exploite principalement de la galène argentifère entre le milieu du XII^e siècle et le milieu du XIV^e siècle. Les étapes de préparation du minerai attestées archéologiquement sont le concassage, le broyage et le lavage³⁷⁹. La première opération était réalisée avec un mortier et un percuteur en grès et débouchait sur un premier tri. Dans un second temps, une partie du minerai faisait l'objet d'un broyage de manière à le réduire à l'état de poudre. Sur le site de Brandes, cette étape était assurée par des meules à minerai actionnées par l'énergie hydraulique³⁸⁰. La présence de meules sur le site de Brandes démontre le besoin de disposer d'une granulométrie très fine qui ne peut pas être atteinte par un simple concassage. L'aménagement d'un système de broyage lourd et couteux peut témoigner de contraintes techniques liées à la nature du minerai qui doit être réduit en fine mouture pour assurer un enrichissement optimal. À Brandes, l'enrichissement du minerai était réalisé selon différentes techniques dont le lavage au tamis et au sluice.

L'usage du moulin hydraulique pour le broyage, documenté sur plusieurs sites d'extraction des minerais non-ferreux à partir du second Moyen Âge, coïncide avec la

³⁷⁸ Sarah G. et Téreygeol F., « La préparation des minerais selon la chaîne opératoire carolingienne melloise », In Téreygeol F. (dir.), *PCR Paléoméallurgies et expérimentations*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2012, p. 28-37.

³⁷⁹ Bailly-Maître M.-C., « Extraction et traitement d'un minerai d'argent au Moyen Âge (XII^e-XIV^e siècle) », *ArchéoSciences*, 34, 2010, p. 221-233.

³⁸⁰ Longtemps soupçonné, le recours à l'énergie hydraulique pour la mise en rotation des meules de Brandes a été confirmé en 2014 par la découverte d'un moulin à minerai à roue horizontale daté de 1211 : Bailly-Maître M.-C. et Minvielle Larousse N., *Brandes-en-Oisans. Rapport final 2012-2014*, SRA Rhône-Alpes, Lyon, 2014, p. 111-256.

diffusion de la force hydraulique dans différents domaines d'activité (tannerie, meunerie, foulonnerie...) et participe de l'essor technique et économique qualifié par certains auteurs de « révolution industrielle³⁸¹ ». La découverte de moulins à minerai en contexte archéologique est rare : hormis l'exemple de Brandes, on recense un moulin des XIII^e-XIV^e siècles destiné au traitement des minerais d'or en Bohême³⁸². C'est donc principalement sous l'angle des fragments de meule que le broyage des minerais a pu être étudié selon une méthodologie spécifique s'attachant d'une part aux aspects techniques du façonnage des meules et d'autre part aux traces d'usure dont elles sont marquées³⁸³.

Nous avons déjà mentionné les précieuses sources iconographiques bohémiennes et saxonnes et leur intérêt pour étudier la chaîne opératoire de la préparation des minerais. La contribution de cette région minière se fait également sur le plan archéologique avec la fouille de plusieurs sites minéralo-métallurgiques actifs principalement au XIII^e siècle et ayant fait l'objet d'une synthèse récente³⁸⁴. Parmi les installations mises au jour, celles du site de Cvilínek en Bohême orientale sont exceptionnelles par leur état de conservation qui a permis la préservation des cuvelages des bassins de décantation et des structures en bois des sluices³⁸⁵. Dans le

³⁸¹ Burnouf J. (éd.), *Archéologie médiévale en France. Le second Moyen Âge (XII^e-XVI^e siècle)*, La Découverte, Paris, 2008, p. 119.

³⁸² Kurdnáč J., « Recherches archéologiques sur la production d'or en Bohême », *Les techniques minières de l'Antiquité au XVIII^e siècle, Actes du Congrès national des sociétés savantes. Section d'histoire des sciences et des techniques, Strasbourg, 1988*, Éditions du CTHS, Paris, 1992, p. 299-313.

³⁸³ Voir à ce sujet pour les sites de Pampailly, Brandes, Castel-Minier et Peyrusse-le-Roc : Benoit P., Bailly-Maître M.-C. et Dubois C., « Meules rotatives médiévales pour le broyage des minerais », *Techniques et économie antiques et médiévales. Le temps de l'innovation, Aix-en-Provence, 1996*, Garcia D. et Meeks D. (éd.), Errance, Paris, 1997, p. 62-69. Sur les meules de Brandes voir en particulier : Minvielle Larousse N. et Bailly-Maître M.-C., « Ore grinding in the Middle Ages: the example of Brandes-en-Oisans (France, Isère) », *Bread for the people: The archaeology of Mills and Milling, Rome, 2009*, Williams D. et Peacock D. (éd.), British Archaeological Reports, International Series 2274. Archaeopress, Oxford, p. 217-230.

³⁸⁴ Derner K., Hrubý P. et Schubert M., « Mittelalterliche Silberproduktion im wettinischen und premyslidischen Regierungsraum: Neue archäologische Untersuchungen », *Der Anschnitt*, 68, 2016, p. 216-241.

³⁸⁵ Hrubý P., Hejhal P., Hoch A., Kočár P., Malý K., Macháňová L., Petr L. et Štelcl J., « Středověký úpravnický a hornický areál Cvilínek u Černova na Pelhřimovsku », *Památky Archeologické CIII*, 2012, p. 339-418.

district de Jihlava, la fouille de l'établissement minier et minéralurgique de Staré Hory, actif entre 1238 et 1330, a livré plusieurs structures d'enrichissement de la galène argentifère dont des sluices associés à des bassins de décantation³⁸⁶.

Signalons également la fouille en cours d'un atelier de préparation des minerais du XV^e siècle dans le district minier alsacien de Sainte-Marie-aux-Mines (Altenberg, carreau Sainte-Barbe) qui a livré des structures de débouillage, de concassage ainsi que des bacs de décantation recueillant les boues de lavage. L'approche géochimique et sédimentologique met en évidence les modalités et l'efficacité du lavage ainsi que le fonctionnement intermittent de cette opération³⁸⁷.

Enfin, pour la période moderne, les changements techniques perceptibles dans les traités, notamment dans le *De Re Metallica*, sont documentés par les travaux archéologiques, notamment la fouille de l'atelier minéralurgique de la mine de cuivre argentifère du Samson, situé à Sainte-Croix-aux-Mines et actif au milieu du XVI^e siècle (Haut-Rhin, France). L'étude des structures de lavage met en évidence la complexité de la chaîne opératoire avec un premier lavage au tamis suivi de deux lavages successifs dans des sluices compartimentés munis de bassins de décantation³⁸⁸.

3.2.2. La préparation des minerais à Castel-Minier

Les données archéologiques relatives à la préparation des minerais sur le site de Castel-Minier sont inégales selon l'étape de la chaîne opératoire considérée. Ténus pour le concassage, les indices sont plus probants pour le broyage tandis que les structures de lavage ne sont pas encore connues. Bien que certaines lacunes puissent être en partie comblées par les résultats tirés de l'archéologie expérimentale et les

³⁸⁶ Hrubý P., Hejhal P. et Malý K., « Montanarchäologische Untersuchungen in Jihlava-Staré Hory (Iglau-Altenberg, Tschechien) », *Zeitschrift für Archäologie des Mittelalters*, 35, 2007, p. 17-60.

³⁸⁷ Gauthier J., *Le carreau Sainte-Barbe. Massif de l'Altenberg, Sainte-Marie-aux-Mines (68)*, SRA Alsace, Strasbourg, 2016.

³⁸⁸ Grandemange J., « Le lavage des minerais argentifères au Samson (Saint-Croix-aux-Mines, Haut-Rhin) d'après l'archéologie et les textes », *Mines et métallurgie, Brussieu-Lyon, 1991*, Benoit P. (éd.), PPHS, Les chemins de la recherche n° 26, Lyon, 1994, p. 77-92.

comparaisons avec d'autres sites, les certitudes sont rares et la prudence et de mise.

3.2.2.1. Le tri au front de taille

À Castel-Minier, la préparation des minerais pour l'extraction des métaux débute dans la mine, au plus près du front de taille, une fois la roche abattue. Bien que le tri puisse être malaisé dans un environnement souterrain, il n'en demeure pas moins une étape importante qui permet de rationaliser la production. Ainsi, les morceaux de minerai les plus riches, c'est-à-dire contenant peu de gangue, sont mis de côté de manière à être évacués directement vers les ateliers métallurgiques sans subir de traitements minéralurgiques. Les minerais mêlés à la gangue sont également tirés hors de terre mais doivent subir des étapes de préparation. Enfin, l'essentiel des roches stériles demeure sous terre. Elles sont employées pour remblayer des chantiers achevés ou pour concevoir des aménagements tels que des fausses-galeries pour faciliter la circulation.

Les indices du tri en mine sont livrés par les recherches archéologiques notamment celles menées dans la galerie des Anciens. Dans sa partie terminale, la galerie présente plusieurs ramifications correspondant à des travaux de recherche exécutés dans la seconde moitié du XV^e siècle. La fouille d'un front de taille a permis de dégager un niveau de charbons sous lequel une auge à minerai a été découverte. Il s'agit d'une pièce monoxyde en bois présentant une surface convexe et dotée d'un bourrelet de préhension (figure 73). Ce type de contenant, décrit dans le *De Re Metallica* d'Agricola et figuré sur le graduel de Kutná Hora, a été découvert dans d'autres contextes miniers, notamment sur le site saxon de Niederpöbel où est exploitée la galène argentifère entre le XII^e et le XIII^e siècle (figure 73).

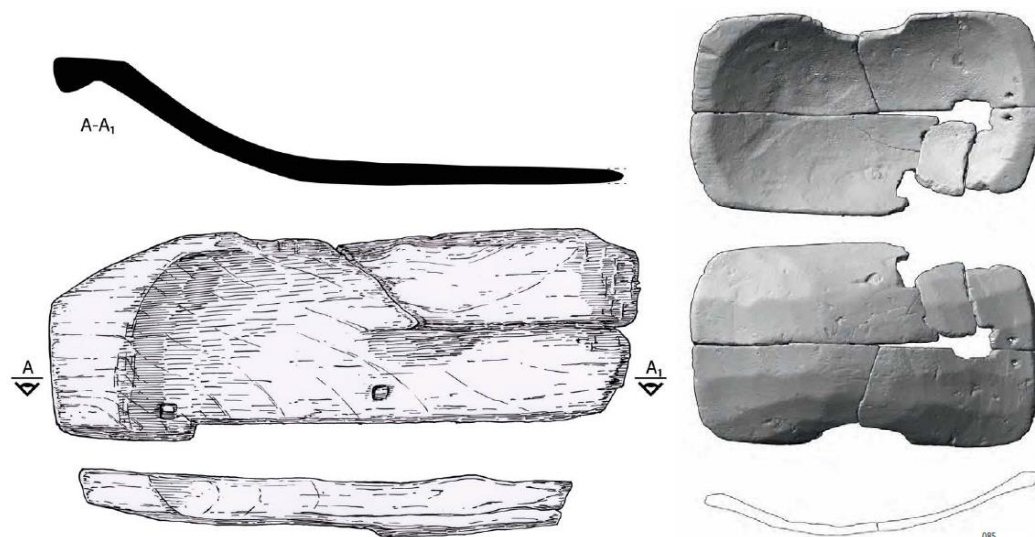


Figure 73 : À gauche : auge à minerai de Castel-Minier (dimensions : 44×20×10 cm). Dessin extrait de Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport intermédiaire 2015*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2015, Annexe II. Pl. 17. À droite : auge à minerai du site de Nierderpöbel (dimensions : 48×28×8 cm d'après Schröder F., « Die montanarchaologischen Ausgrabungen in Nierderpöbel (2011–2013) », In Smolnik R. (éd.), *Archaeomontan 2015. Montanarchäologie im Osterzgebirge*, Landesamt für Archäologie Sachsen, Dresde, p. 122.

Au front de taille, l'identification des minerais et l'évaluation de leur potentiel économique se fondent uniquement sur une appréciation sensorielle. L'observation permet d'identifier la nature du minerai tandis que la proportion de gangue peut être évaluée qualitativement en soupesant les fragments dont la densité est d'autant plus élevée que la proportion de minerai est grande. L'importance de ces gestes préliminaires est capitale pour le succès des opérations métallurgiques. Pour autant ils relèvent pour une large part de l'expérience de chaque mineur, d'un savoir tacite qui n'a pas laissé de trace. D'ailleurs, était-il maîtrisé par tous ou réservé à quelques spécialistes tel ce personnage barbu représenté sur le graduel de Kutna Hora qui examine attentivement un bloc de minerai concassé à la lumière du jour ? Ces considérations générales demeurent abstraites et la réalité du minerai de bonne « qualité » est difficile à appréhender. L'étude des vestiges des minéralisations visibles dans les anciens réseaux miniers, pâles reflets du gisement originel aujourd'hui épuisé, n'est d'aucun secours pour aborder la question du potentiel économique des minerais.



Figure 74 : Échantillon de galène du dépôt de minerais (US 3172, CL 12806) découvert dans le bâtiment 10.

La fouille des ateliers de Castel-Minier livre néanmoins quelques éléments de réflexion, en particulier le bâtiment 10 où un important dépôt de galène a été découvert (figure 74). D'une part, il s'agit du plus important ensemble de minerai non-ferreux mis au jour sur la fouille avec une masse totale de 1,58 kg. Qui plus est, il est situé à proximité immédiate des trois structures de chauffe qu'abrite le bâtiment 10 (fours Fr42, Fr62 et Fr72). D'autre part, les fragments qui composent ce dépôt sont calibrés (module d'environ 5 cm) témoignant d'une volonté de contrôler la granulométrie du minerai soumis aux opérations métallurgiques.

La densité moyenne du dépôt a été déterminée à partir de 40 individus : elle vaut $6,45 \pm 1,13$ (figure 75). Cette valeur particulièrement élevée et proche de la densité théorique de la galène (7,4 à 7,6) indique qu'une quantité réduite de gangue accompagne le minerai³⁸⁹. De plus, l'homogénéité des densités calculées met en valeur le triage particulièrement efficient réalisé par les mineurs (figure 75). La localisation de ce dépôt et les caractéristiques physiques de la galène qui la compose constituent un faisceau d'indices en faveur d'une identification à du minerai collecté directement sur le front de taille au moyen d'une auge et ayant subi pour tout traitement minéralurgique un éventuel concassage afin de le calibrer.

³⁸⁹ La densité moindre de la galène archéologique par rapport à la valeur théorique s'explique également par la formation de produits d'altération dont la densité (notamment pour les carbonates de plomb) est plus faible que celle du sulfure de plomb.

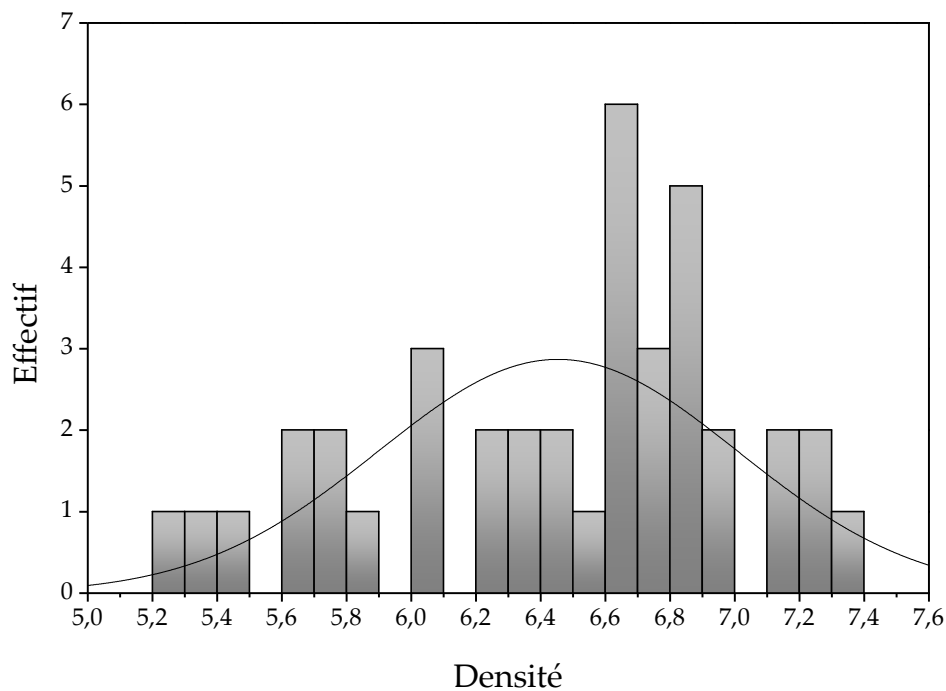


Figure 75 : Histogramme représentant la distribution de la densité des galènes provenant du dépôt du bâtiment 10.

3.2.2.2. Le concassage

L'étape de concassage est relativement simple à mettre en œuvre puisqu'avant l'apparition de systèmes plus sophistiqués à la fin du Moyen Âge, tel que le bocard, elle repose sur l'utilisation d'une enclume de pierre et d'un percuteur. Ces outils peuvent être confectionnés à partir de matériaux de récupération. Les recherches archéologiques conduites dans le travers-banc du niveau 0 ont livré un bloc de granite dont la morphologie et les traces d'usure suggèrent une identification à une table de concassage (figure 76). La surface de travail est large (41 × 32 cm) et relativement plane. En outre, elle présente des dépressions caractéristiques d'un geste de percussion. Cet outil lithique a été confectionné à partir de granite erratique provenant du massif de Bassiès et charrié dans la vallée d'Aulus par l'activité glaciaire de l'Éocène. La dureté et la résilience élevées du granite en font un matériau de choix pour une utilisation comme enclume de concassage.

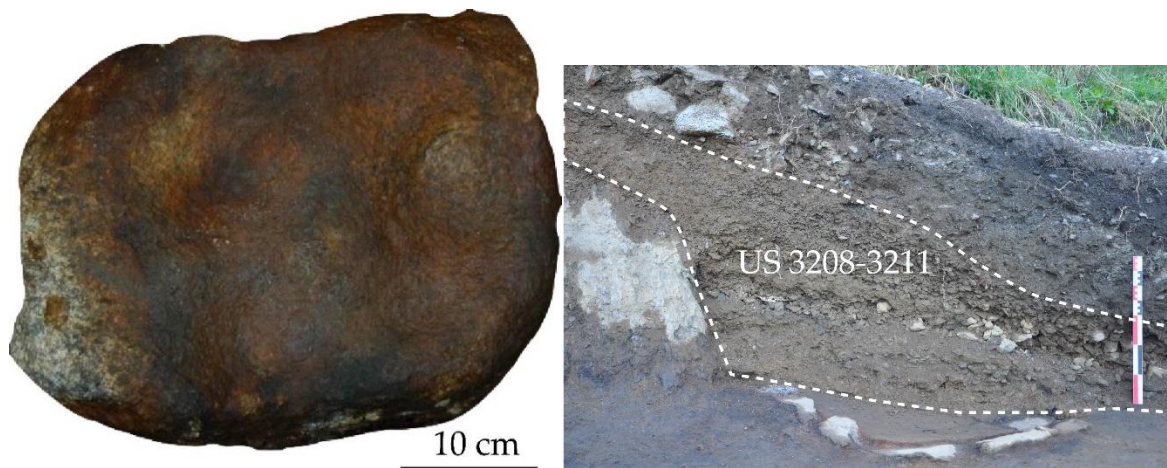


Figure 76 : table de concassage découverte dans le travers-banc 0 (gauche) ; halde de concassage sur le Plat-du-Roi : US 3208-3211 (droite).

La découverte d'une table de concassage en mine semble indiquer que cette activité prenait place, au moins en partie, dans l'espace souterrain. Cette disposition de la chaîne opératoire permettait de faciliter les opérations ultérieures de préparation en séparant le minerai de la roche stérile avant que cette dernière ne rejoigne les haldes en surface ou soit remise sous terre. Le concassage partiel en mine est d'ailleurs attesté sur le graduel de Kutná Hora. Si cette pratique peut être avancée à Castel-Minier pour la seconde moitié du XV^e siècle, lorsque le travers-banc 0 et la galerie des Anciens sont en fonctionnement, elle ne représente qu'une partie du concassage dont l'activité est également documentée en surface pour les périodes plus anciennes. Ainsi, la découverte en 2016 d'une halde de concassage dans la partie est du Plat-du-Roi, dont la fouille est toujours en cours, révèle la vocation minéralurgique de cet espace dans la première moitié du XIV^e siècle (figure 76). Le contenu de la halde se compose de fragments de dolomie centimétriques pris dans une matrice terreuse³⁹⁰. La calibration des roches atteste d'une activité de concassage et de tri ayant pris place sur le bourrelet rocheux antérieurement à l'édification de l'enceinte castrale. À l'issue de l'opération, les roches stériles étaient rejetées dans la pente.

L'efficacité du tri ne fait aucun doute : le minerai est très rare dans la halde et

³⁹⁰ La halde de concassage se distingue nettement des haldes minières par la granulométrie beaucoup plus fine des roches qui la composent et l'absence de charbons provenant de l'abattage au feu.

n'existe qu'à l'état de « mouches » disséminées dans la roche stérile³⁹¹. L'installation des activités de concassage en rive droite du Garbet pourrait avoir été dictée par des contraintes topographiques qui n'ont pas permis de réaliser cette étape à la sortie de la mine. Par ailleurs, l'espace du Plat-du-Roi se trouve à proximité de la Prairie-des-Meules dont le toponyme suggère l'existence d'activités de broyage du minerai. Il semble donc qu'il y ait une volonté de dissociation des activités minières et minéralurgiques avec une spatialisation de ces dernières à l'extrémité orientale du site et à proximité des installations métallurgiques. Cette organisation rejoint celle préconisée par Girardi qui regroupe le concassage et le broyage dans un même espace. Elle nécessite toutefois la mise en place d'un système de transport des pondéreux.

3.2.2.3. Le broyage

Le broyage est documenté sur le site de Castel-Minier dès 1600 lors de la visite de Jean de Malus qui dénombre quatre-vingt sept meules à minerai à proximité des travaux miniers. Le prospecteur indique qu'en certains endroits les meules sont groupées : « en un endroit dix, en un autre six, en d'autres quatre, ou plus ou moins³⁹² ». Cette répartition peut suggérer l'existence d'espaces de travail privilégiés dont la localisation précise n'est pas connue. Le récit de Malus est corroboré par le procès-verbal de l'ingénieur des Mines Jean Mussy dressé en 1862 dans lequel il mentionne, sans les dénombrer, des restes de meules en plusieurs endroits³⁹³. Dans ses souvenirs de voyage à Aulus-les-Bains, D'Assier fait une brève allusion aux meules de Castel-Minier³⁹⁴. Ce n'est qu'en 1913, grâce à un plan établi le 16 novembre par l'ingénieur Brahy pour la Société de la Vieille Montagne, qu'apparaît clairement le toponyme de Prairie-des-Meules en rive droite du Garbet à l'est de la grange (figure

³⁹¹ Nous avons concassé un échantillon de 27 kg de dolomie issu de la halde afin d'apprécier l'efficacité du tri. La galène n'a été rencontrée qu'à une seule reprise sous la forme d'inclusions millimétriques dans un gravier de dolomie.

³⁹² Du Puy J, *La recherche et découverte...*, *op. cit.*, p. 131.

³⁹³ Dubois C., « Les mines de plomb argentifères... », *op. cit.*, p. 198.

³⁹⁴ D'Assier A., *Souvenirs des Pyrénées...*, *op. cit.*, p. 97.

77). Elle est traversée par un petit torrent qui a pu fournir l'énergie hydraulique nécessaire au fonctionnement des moulins à minerai.

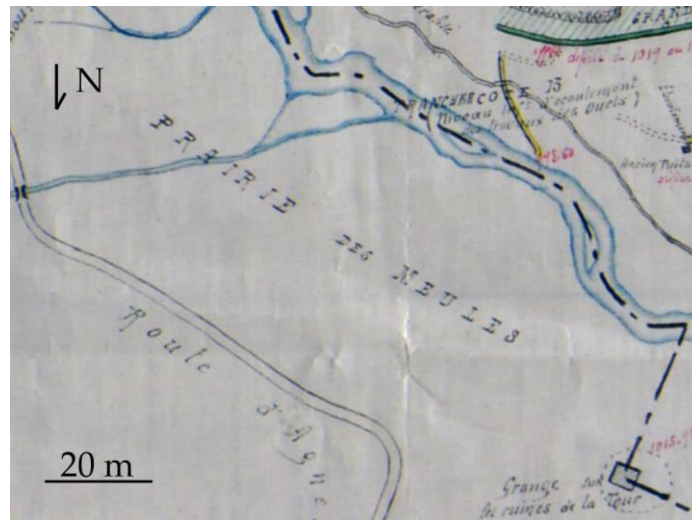


Figure 77 : Localisation de la Prairie-des-Meules sur le plan de la Société de la Vieille Montagne de novembre 1913 (Nord en bas). Au sud le Garbet et au nord-ouest la grange.

Depuis plus d'une décennie, les recherches archéologiques ont permis de constituer un corpus de six meules et de vingt fragments qui ne cesse de s'accroître à mesure que la fouille progresse. Les contextes de découverte sont de deux types. Il s'agit tout d'abord de neuf individus découverts dans le lit du Garbet ou sur ses berges depuis la pâture d'Agneserre jusqu'aux travaux miniers de Castel-Minier. Les dix-sept autres individus ont été exhumés au cours de la fouille, en réemploi dans le bâti médiéval où en position de rejet dans les niveaux de démolition. En outre, plusieurs fragments de meules ont servi à l'édification de structures agro-pastorales ou minières (cabane des mineurs à l'entrée du travers-banc 0). La répartition des meules fluviales n'est pas aléatoire : elle s'organise autour de deux pôles formés par la pâture d'Agneserre et les rives du Garbet au niveau de Castel-Minier (figure 78). À Agneserre, la présence d'une activité minéralurgique avait déjà été constatée lors de prospections géochimiques et de sondages³⁹⁵. La présence de meules vient renforcer cette hypothèse.

³⁹⁵ *Supra* p. 132.

À Castel-Minier, la concentration de meules à proximité du Garbet et de la Prairie-des-Meules définit un second espace consacré à la minéralurgie³⁹⁶. Par ailleurs, des deux sondages pratiqués dans la Prairie-des-Meules, l'un a révélé la présence de scories ferreuses et non-ferreuses associées à des fragments de galène³⁹⁷. L'existence de deux sites de broyage conduit à s'interroger sur l'évolution spatiale des activités. Il est impossible pour le moment d'avancer un quelconque séquençage chronologique et par conséquent de discuter la contemporanéité des installations. Quoiqu'il en soit, les différences topographiques entre ces deux lieux sont notables. D'un côté la pâture d'Agneserre, relativement large et plane, traversée par le Garbet au régime plutôt calme ; de l'autre les abords de Castel-Minier où la vallée plus étroite est exposée à la violence des crues. Il est clair que l'installation dans cette zone d'appareils hydrauliques pour le broyage a dû être difficile à pérenniser, ce qui pourrait expliquer un déplacement des activités vers Agneserre.

³⁹⁶ Pour ce second espace, on ne peut exclure un charriage des meules par le Garbet depuis la pâture d'Agneserre située en amont.

³⁹⁷ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Document Final de Synthèse (2009-2011)*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2011, p. 81-81.

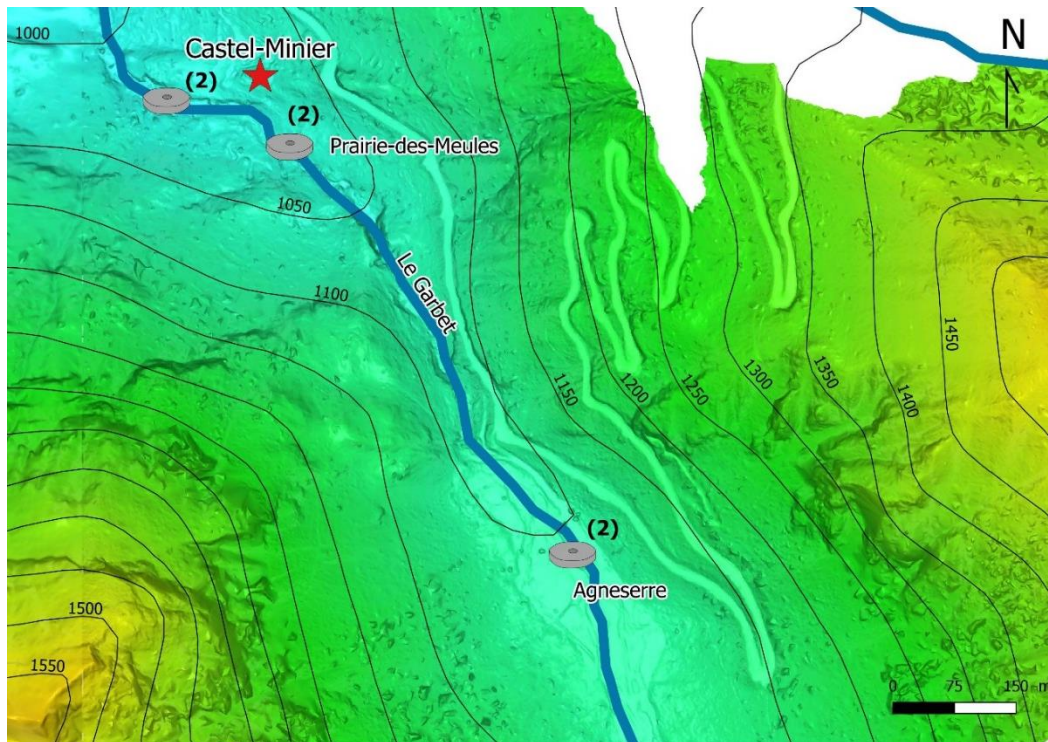


Figure 78 : Répartition des meules à minerai fluviales.
Le nombre d'exemplaires découverts figure entre parenthèses.

Les meules employées pour la minéralurgie à Castel-Minier ont été confectionnées à partir de blocs erratiques de granite, matériau abondant et facile d'accès, plutôt que débitées dans des gisements. L'absence de meulière conforte l'hypothèse d'un recours systématique à cette technique. Soigneusement choisis, les blocs erratiques constituent des préformes qui facilitent le travail de taille. Une ébauche de meule découverte dans le torrent du Garbet à proximité immédiate des zones d'extraction et de transformation des minerais livre des informations essentielles sur la phase de conception.

Les meules de Castel-Minier sont taillées au pic et au burin. L'élaboration débute par le perçage de l'œil (figure 79). Cette première étape permet de tester la pierre au niveau de la partie la plus sensible, celle qui assure la liaison entre le système d'entraînement et la meule. Le bloc de granite est ensuite équarri puis les surfaces sont dégauchies. Enfin les encoches de l'anille sont taillées tandis que la surface de contact reçoit des rayonnages. L'anille est une pièce, généralement métallique, qui permet la liaison mécanique entre la meule et l'arbre moteur mû par l'énergie hydraulique.

Lorsque les volumes conservés le permettaient, il a été systématiquement constaté la présence d'encoches pour l'anille sur les fragments de meules mis au jour ce qui permet de les identifier à des meules allantes. Le corpus de meules archéologiques de Castel-Minier présente une homogénéité remarquable. Les dimensions sont standardisées avec un diamètre moyen de 90 cm pour une épaisseur de 20 cm, soit un volume de 0,13 m³ et une masse de 280 kg. Néanmoins, la surface libre des meules n'est que rarement aplanie. Si cette caractéristique peut découler d'une volonté d'économie dans l'étape de façonnage, elle introduit néanmoins une contrainte technique supplémentaire lors du fonctionnement. En effet, la présence d'un balourd consécutif à un mauvais équilibrage est susceptible de générer une force centrifuge induisant un mouvement vibratoire sur le système d'entraînement.

Les meules de Castel-Minier présentent sur leur surface active des stries radiales accompagnées plus rarement de marques de piquetage (figure 79). La question de l'utilité de ces stries n'est pour le moment pas entièrement résolue. Les fonctions d'un tel dispositif, dont la mise en place requiert un travail fin et précis, peuvent être multiples : accroissement de la capacité de broyage, évacuation du minerai vers la feullure de la meule ou encore création d'une contrainte de cisaillement sur les blocs piégés dans les rainures.

La géométrie de la surface active des meules est particulière et présente une concavité. Ainsi, la surface lacunaire entre meule allante et dormante diminue à mesure que l'on s'éloigne du cœur. Il y a donc un resserrement progressif vers la feullure, zone de production de la mouture (figure 79). Toutes les meules mises au jour au cours des recherches archéologiques ont été utilisées comme en témoigne la présence d'une usure distale matérialisée par des stries concentriques (figure 79). Stigmates du passage du minerai pendant le broyage, la répartition de ces stries sur la surface ainsi que leurs dimensions renseignent sur l'écartement des meules et le déroulement de l'opération. Le modèle mis en place par Nicolas Minvielle Larousse et

Marie-Christine Bailly-Maître s'applique aisément aux meules de Castel-Minier³⁹⁸. Ainsi, les stries distales sont quasiment inexistantes au cœur. Elles apparaissent ensuite progressivement au niveau de l'entrepied sous la forme de sillons espacés et grossiers. Enfin elles sont nombreuses et fines à la feuillure où l'on observe fréquemment un poli.

L'absence d'une structure d'entraînement associée aux découvertes de meules soulève plusieurs problèmes relatifs aux modalités du broyage tel qu'il était pratiqué à Castel-Minier. Il s'agit en particulier des paramètres physiques tels que la puissance nécessaire à la mise en mouvement des meules ou encore leur vitesse de rotation. En outre, l'absence de meules dormantes sur le site pose la question d'une usure différentielle selon qu'il s'agisse d'un élément moteur ou passif. Cette problématique recouvre également celle de la durée de vie du système et de la fréquence de son renouvellement : on constate en effet la présence de meules en réemploi dès la première moitié du XIV^e siècle³⁹⁹. Enfin, l'étape de concassage est en partie conditionnée par le système de broyage et la granulométrie du minerai qu'il tolère.

³⁹⁸ Minvielle Larousse N. et Bailly-Maître M.-C., « Ore grinding in the Middle Ages... », *op. cit.*, p. 223-225.

³⁹⁹ C'est le cas dans le bâtiment 10 où le piédroit ouest du four Fr62 réemploie une meule brisée.

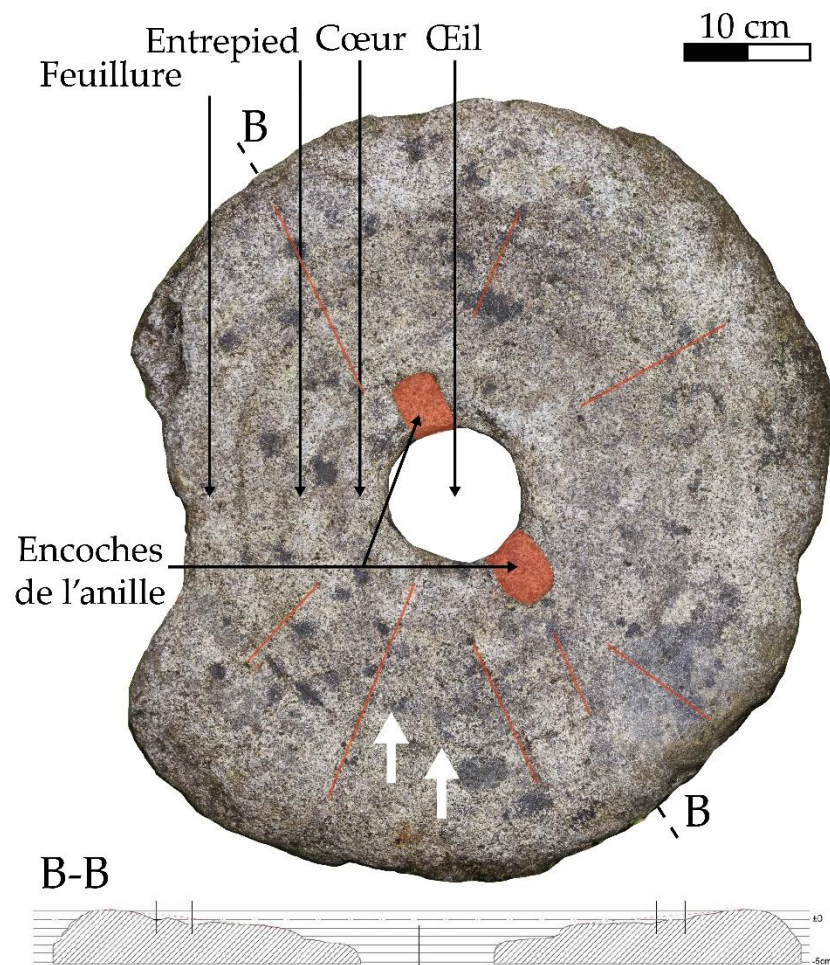


Figure 79 : Exemple de meule allante archéologique vue du dessus et en coupe. Les flèches blanches indiquent les stries concentriques tandis que les traits rouges matérialisent les rainures.
Modélisation photogrammétrique : J. Heckes.

3.2.2.4. Apports de l'expérimentation à la compréhension du broyage

Afin d'aller plus loin dans la restitution de la chaîne opératoire minéralurgique et tenter de répondre aux questionnements soulevés par les vestiges lacunaires de l'étape de broyage, plusieurs sessions d'archéologie expérimentale ont été réalisées entre 2013 et 2016⁴⁰⁰. Les travaux ont débuté par la confection, sur le modèle des exemplaires archéologiques, d'un jeu de meules en granite sur le site de Castel-Minier par le tailleur de pierre C. U. Daumann. Dans un premier temps, les stries radiales n'ont pas été façonnées. Leur utilité sera appréciée ultérieurement une fois le système

⁴⁰⁰ Téreygeol F., Flament J., Méaudre J.-C., Sarah G., Florsch N., « Le moulin à minerai », *In* Téreygeol F. (dir.), *PCR Paléoméallurgies et expérimentations*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2016, p. 9-15.

parfaitement rodé. En revanche une forme concave a été donnée à la surface active de la meule allante. Les deux meules, d'une masse unitaire d'environ 450 kg, ont rejoint la plate-forme d'archéologie expérimentale des arts du feu de Melle à l'été 2014. La surface libre de la meule allante a été rectifiée et sa masse abaissée à 340 kg puis les premiers tests ont débuté.

La mise en rotation de l'ensemble est assurée par un système d'entraînement combinant un motoréducteur et un jeu de poulies (figure 80). Dans ce système, la vitesse angulaire de la meule allante est de 10 tr.min^{-1} tandis que la puissance transmise à l'axe de la meule est d'environ 1,0 kW. La meule allante est entraînée par le dessus : l'axe ne traverse pas la meule dormante. Cette solution est la plus simple à mettre en œuvre. Enfin, le système fonctionne sous eau avec un débit d'environ $0,3 \text{ l.s}^{-1}$ assurant la lubrification et l'évacuation de la mouture.



Figure 80 : moulin à minerai expérimental (gauche) ; meule allante en cours de surfaçage (en haut à droite) ; mouture récupérée à l'issue du broyage (en bas à droite) : la poudre de galène (gris) est bien visible.

Pour le moment, les meules sont en phase de rodage : la surface de contact annulaire au niveau de la feuilure est en cours d'homogénéisation (figure 80). Au cours de cette étape la meule a été chargée régulièrement avec de la dolomie qui a produit une farine grossière. Après quelques heures de fonctionnement, un poli apparaît progressivement à la feuilure de la meule. Dans sa configuration actuelle, le système accepte des fragments de roche jusqu'à un module de 3 à 4 cm. Au-delà, la puissance n'est plus suffisante pour en assurer le broyage. Cette limitation est également valable dans le cas d'un entraînement de la meule allante par le dessous : un calibre supérieur à 4 cm risque de soulever la meule et de la désaccoupler de l'anille.

Il est intéressant de transposer les données énergétiques de notre système expérimental vers un modèle hydraulique de manière à replacer le procédé technique de broyage dans le contexte de Castel-Minier et discuter sa mise en œuvre au regard de la source d'énergie que représente le torrent du Garbet. La puissance nécessaire à l'actionnement de l'axe de la meule est de 1,0 kW. Si l'on se place dans le cas le plus simple, c'est-à-dire en faisant l'hypothèse d'un entraînement avec une roue horizontale⁴⁰¹ (qui ne nécessite pas de renvoi d'angle) alors la puissance utile à la roue ne varie pas si l'on néglige les frottements. En se fondant sur des abaques⁴⁰², il est possible d'estimer la hauteur de chute nécessaire et le débit correspondant pour différents rendements de roue (compris généralement entre 30 et 50 %). Ainsi les meules de Castel-Minier pouvaient être entraînées avec un débit d'environ 0,15 m³.s⁻¹ à 0,30 m³.s⁻¹ pour des rendements de roue respectifs de 30 % et 50 % et une hauteur de chute de 1 m. Ces débits peuvent paraître élevés : à titre de comparaison, le débit moyen⁴⁰³ du Garbet au niveau de Castel-Minier est de 0,67 m³.s⁻¹. Cette contrainte peut

⁴⁰¹ C'est d'ailleurs ce type d'entraînement qui a été mis en évidence pour le moulin de Brandes mentionné plus haut.

⁴⁰² Guichané R., « L'aménagement hydraulique de la Claise tourangelle et de ses affluents du Moyen-Âge à nos jours », *Revue archéologique du Centre de la France*, 32(1), 1993, p. 130.

⁴⁰³ Cette valeur ne reflète pas le débit moyen actuel du Garbet qui est amoindri par la présence d'une conduite forcée en amont de Castel-Minier. La valeur que nous donnons correspond à une situation sans prélèvement, telle qu'on peut l'envisager pour la période médiévale.

être contournée en ajustant la hauteur de chute. Plus celle-ci augmente, plus le débit requis diminue (de façon hyperbolique).

L'obtention rapide d'un poli au niveau de la zone de contact permet de remettre en perspective l'une des particularités du corpus de Castel-Minier : la présence exclusive de meules allantes. L'usure de ces meules motrices au cours du fonctionnement conduit irrémédiablement à leur aplatissement et par conséquent à la disparition de la concavité qui est une caractéristique géométrique primordiale pour assurer un broyage progressif. Le remplacement des meules allantes devait donc intervenir plus fréquemment que celui des meules dormantes pour lesquelles l'usure est moins problématique et la réfection de la surface plane plus aisée.

Plusieurs essais de broyage ont été réalisés avec du minerai pauvre issu de la mine de Melle et semblable à celui de Castel-Minier. Il s'agit de dolomie dans laquelle de petits filonnets de galène sont disséminés. Le broyage a permis d'obtenir une poudre suffisamment fine pour assurer la séparation de la roche stérile et du minerai (figure 80). Les expérimentations livrent également des informations sur la durée de l'opération en particulier sa rapidité : la capacité de broyage du système s'élève à $0,75 \text{ kg} \cdot \text{min}^{-1}$. Ainsi, sur une journée de travail de huit heures, il est théoriquement possible de traiter 360 kg d'un mélange de minerais et de roches stériles. La seule limitation réside donc dans la disponibilité de la matière première. Le concassage préalable du minerai est une opération beaucoup plus longue qui nécessite un tri rigoureux des roches et une main d'œuvre importante. On peut donc imaginer que les meules n'étaient pas alimentées en continu mais qu'elles fonctionnaient par intermittence dès qu'une quantité significative de minerai concassé était disponible. L'importance du broyage dans la chaîne opératoire de traitement de la galène argentifère est difficile à apprécier. Nous l'avons vu, certains minerais exempts de gangue sont dispensés de broyage et d'enrichissement.

3.2.2.5. Synthèse et perspectives : la question du lavage

En l'état actuel des connaissances, il est possible de proposer une restitution partielle de la chaîne opératoire de préparation des minerais à Castel-Minier. La première étape consiste en un tri du minerai réalisé en mine, au plus près du front de taille. Transporté dans une auge à minerai, le minerai exempt de gangue rejoignait directement les ateliers métallurgiques après avoir subi une calibration par concassage, au moyen d'un système enclume-percuteur. Le minerai mêlé à la gangue subissait lui aussi un concassage qui se déroulait à proximité de la mine, mais également, au moins dans la première moitié du XIV^e siècle, en rive droite du Garbet, sur le bourrelet rocheux qui domine le site. Les stériles étaient rejetés dans la pente du Plat-du-Roi tandis que les mélanges à enrichir étaient réduits en poudre au moyen de meules à minerais entraînées par l'énergie hydraulique. Le broyage prenait place d'une part à Castel-Minier, probablement dans la zone de la Prairie-des-Meules et d'autre part dans la pâture d'Agneserre, sans qu'il soit possible de préciser si ces sites étaient contemporains ou si leur existence témoigne d'une réorganisation spatiale des étapes de préparation des minerais. Comme le suggèrent les expérimentations, le broyage était une activité intermittente avec des phases de chômage rythmées par la disponibilité du matériau concassé.

Pour l'heure, l'étape ultime de préparation des minerais nous échappe en partie. Elle consistait à traiter la mouture issue du broyage selon un procédé hydrogravimétrique de manière à isoler la fraction lourde contenant le minerai. Une structure de lavage a été mise au jour dans les ateliers métallurgiques du XV^e siècle, plus précisément sur la plate-forme 3 (figure 81)⁴⁰⁴. Il s'agit d'une dalle de schiste trapézoïdale posée à plat avec un pendage de 5,1 ° vers le sud-est. En tête, un niveau de sol contenant des imprégnations de carbonates de plomb a été dosé par XRF : il contient en moyenne 9,8 % de plomb. Cette installation pourrait correspondre à une

⁴⁰⁴ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Document Final de Synthèse (2009-2011)*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2014, p. 140.

table de lavage fonctionnant sous eau et destinée à enrichir la galène.



Figure 81 : Structure de lavage (US 2386) sur la plate-forme 3.

La poursuite des expérimentations de broyage ouvre des perspectives prometteuses. Si le système aulusien assure la production d'une mouture dont la granulométrie est adaptée à la séparation de la galène et de la roche stérile, il faut également envisager le broyage de minerais mixtes tels qu'un mélange galène-tétraédrite ou galène-chalcopryrite et évaluer la faisabilité d'une séparation⁴⁰⁵. Enfin, la question du traitement métallurgique de la poudre enrichie en minerai, demeure entière. Faut-il envisager une chaîne opératoire spécifique ou un mélange avec du minerai plus riche (et non broyé) au moment de la réduction ? Si la poudre de galène peut être traitée sans problème à petite échelle, dans le cadre de l'essai notamment⁴⁰⁶, l'incorporation dans un réacteur de type fourneau et le contact avec le combustible sont rédhibitoires. En effet, la poudre de minerai a tendance à « étouffer » le four en

⁴⁰⁵ L'analyse des billes métalliques présentes sur les casses de coupellation a révélé dans certains cas la présence de plusieurs pour cent de cuivre dans le plomb d'œuvre ce qui traduit le traitement de galène mêlée à un minerai de cuivre (chalcopryrite ou tétraédrite).

⁴⁰⁶ Gauthier J., « L'essai des minerais au XVI^e siècle : réduction expérimentale de la galène au four à moufle », *In* Téreygeol (éd.), *Comprendre les savoir-faire métallurgiques antiques et médiévaux*, Errance, Paris, 2012, p. 155-167.

entravant la circulation de l'air. Si malgré tout une petite quantité de métal est produite, elle ne parvient pas à se rassembler⁴⁰⁷. Nous inclinons plutôt pour un mélange⁴⁰⁸ de la poudre avec du minerai non broyé ou un traitement de la poudre seule dans un contenant de type creuset sans contact direct avec le combustible. Cette dernière hypothèse sera discutée plus loin dans une section consacrée à la réduction du minerai.

3.3 Approvisionnement des ateliers : le minerai archéologique

Les minerais constituent, en termes de masse et de nombre d'individus, le plus important corpus de mobilier archéologique relatif à la métallurgie découvert sur le site de Castel-Minier. Il se compose de 119 individus représentant une masse totale de 11,45 kg (tableau 10). L'identification des minéraux repose sur un examen visuel complété en cas d'ambiguïté par une caractérisation par spectrométrie Raman. Les résultats mettent en évidence la présence exclusive de minerais sulfurés dont la diversité est notable. Cependant, le corpus est dominé par la galène qui occupe une place privilégiée au sein des ateliers métallurgiques. Les autres minerais, bien qu'ils représentent des masses anecdotiques, témoignent néanmoins du caractère

⁴⁰⁷ Ce constat découle des expérimentations conduites dans un bas-fourneau carolingien avec de la poudre de galène : Téreygeol F., Sarah G. et Flament J. « La réduction au bas-fourneau », *In* Téreygeol F. (dir.), *PCR Paléométaballurgies et expérimentations*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2014, p. 53-63.

⁴⁰⁸ L'association de poudres enrichies en minerai avec du minerai massif de meilleure qualité semble documentée à la mine de Ceilhes-et-Rocozeles entre 1221 et 1470 : Bonami C., « Dans la haute vallée de l'Orb les mines de Ceilhes-et-Rocozeles au Moyen Âge », *Mines et mineurs en Languedoc-Roussillon et régions voisines de l'Antiquité à nos jours. Actes du XLIX^e Congrès de la Fédération historique du Languedoc méditerranéen et du Roussillon, Alès, 22 et 23 mai 1976*, Fédération historique du Languedoc méditerranéen et du Roussillon, Montpellier, 1977, p. 93-105. La production minière était divisée en dix-sept monceaux composés de minerais et de « terres mineuses ». Une part revenait au seigneur et les autres étaient partagées entre les parçonniers à hauteur de leur participation dans l'entreprise. D'après Nicolas Minvielle Larousse (communication personnelle) « les terres mineuses » seraient les poudres enrichies en minerai issues du broyage et du lavage plutôt que le minerai non trié comme le pense Charles Bonami. En effet, le partage est plus simple et plus équitable s'il concerne un produit enrichi et prêt à l'emploi plutôt que des roches contenant plus ou moins de minerai. Il faut donc supposer l'existence d'une chaîne opératoire de préparation des minerais mise en place dans le cadre de l'entreprise minière. Dans le cas contraire, la charge de l'enrichissement reviendrait à chaque parçonnier et serait difficilement soutenable économiquement.

polymétallique de l'exploitation de Castel-Minier. Il s'agit de sulfures polymétalliques parmi lesquelles la chalcopryrite et la bournonite sont des sources potentielles de cuivre. Le cas de la tétraédrite est quelque peu différent. Elle fournit à la fois de l'argent et du cuivre sous réserve que le procédé technique utilisé permette l'extraction de ce dernier métal. Associée à la galène, elle forme un minerai mixte qui peut s'avérer être une source d'argent profitable.

Minerai	Individus	Masse (g)
Galène	105	11217
Bournonite	4	115
Chalcopryrite	4	77
Mélange galène-tétraédrite	4	63
Tétraédrite	2	4,8

Tableau 10 : Répartition des minerais archéologiques mis au jour à Castel-Minier.

3.3.1. Prérequis pour l'étude du minerai

3.3.1.1. Notion de potentiel

Comment évaluer le potentiel des minerais archéologiques découverts dans des contextes d'exploitation minière et métallurgique ? Cette question s'est très rapidement posée devant la masse et la diversité des corpus de minerais non-ferreux mis au jour pendant les campagnes de fouilles. Minerais massifs exempts de gangue, minerais intimement mêlés à la gangue ou simples placages sur la roche stérile sont autant de faciès identifiés macroscopiquement au cours des fouilles archéologiques. Afin d'étudier le potentiel métallurgique et par conséquent économique de ces minerais, il convient d'élaborer des critères de discrimination fiables.

Le potentiel d'un minerai est défini par un ensemble de facteurs qui se distinguent selon leur caractère extrinsèque ou intrinsèque. L'évaluation du potentiel d'un minerai débute dès la phase d'extraction minière, lors de l'examen du gisement. Cette démarche implique l'intégration de plusieurs paramètres, notamment les

contraintes naturelles et matérielles qu'implique l'exploitation de la minéralisation. Il s'agit tout d'abord de la morphologie de la minéralisation, notamment la puissance des filons, la nature de la roche encaissante et l'insertion du minerai en son sein. Le potentiel du minerai dépend également des éventuels aménagements requis pour assurer son extraction dans de bonnes conditions : il s'agit principalement des ouvrages d'exhaure, d'aérage et de circulation. À ces installations qui grèvent notablement le budget de l'entreprise minière et réduisent le potentiel économique des minerais s'ajoute le coût d'une main d'œuvre qualifiée capable de gérer les chantiers souterrains et de mettre en œuvre des techniques d'abattage adaptées au gisement.

Une fois le minerai extrait du gisement, l'évaluation de son potentiel se poursuit à partir de deux critères intrinsèques : la proportion de gangue et la teneur du métal que l'on cherche à récupérer. Le premier paramètre est en réalité directement lié à la densité des morceaux de minerais qui est d'autant plus élevée qu'ils contiennent peu de gangue. Quant à la teneur en métal, elle recouvre des réalités diverses. Selon la nature du minerai considéré, les métaux convoités par les anciens métallurgistes peuvent être multiples qu'ils soient présents à l'état de traces ou constituants majeurs du minéral.

L'utilisation des propriétés intrinsèques est pertinente pour évaluer le potentiel des minerais archéologiques découverts dans les ateliers métallurgiques. En effet, ces minerais ont été tirés hors de terre et ont rejoint les installations de surface en vue d'être préparés et transformés ce qui signifie que l'ensemble des critères extrinsèques qui participent à l'appréciation de leur potentiel ont été satisfaits en amont, au moment de l'extraction. La teneur en métal et la densité sont dès lors les paramètres les plus pertinents pour aborder la notion de potentiel économique d'un minerai métallique. Pour autant, de quelle manière étaient-ils appréciés et quantifiés par les Anciens et quelle importance relative leur donnaient-ils ?

Nous avons déjà évoqué un moyen simple pour évaluer qualitativement la densité des minerais qui consiste à examiner l'aspect des fragments et à les soupeser. Cette méthode a été vraisemblablement mise en œuvre dans les ateliers médiévaux de

Castel-Minier comme le démontre l'étude du dépôt de minerais exempts de gangue du bâtiment 10 dont les individus présentent des densités élevées et très homogènes. L'évaluation de la densité est une étape fondamentale pour déterminer l'intérêt économique des ressources minérales traitées dans les ateliers métallurgiques. Néanmoins, ce critère ne doit pas en éluder un second, tout aussi important pour caractériser la qualité des minerais : le teneur du métal recherché. Ce paramètre ne peut pas être estimé aussi facilement que la densité et l'utilisation de méthodes analytiques quantitatives est incontournable. Durant la période médiévale, l'essai des minerais par voie sèche est la technique docimastique la plus répandue : il consiste à traiter selon une chaîne opératoire métallurgique à petite échelle une quantité de minerai réduite puis à comparer la masse de métal obtenue à la prise initiale. Dans le contexte minier et métallurgique, l'essai des minerais poursuit plusieurs objectifs non exclusifs⁴⁰⁹. L'essai peut être conduit dans une démarche prospective destinée à évaluer le potentiel de minéralisations nouvellement découvertes : c'est le cas par exemple des travaux de Paolo Girardi sur les gisements navarraïses⁴¹⁰. Les résultats des essais sont aussi des outils d'élaboration de la fiscalité minière en particulier pour fixer la proportion du prélèvement opéré par les tenants du *dominium*⁴¹¹. Enfin, les enseignements techniques tirés de l'essai des minerais permettent d'ajuster et d'optimiser les chaînes opératoires de manière à assurer efficacement l'extraction des métaux.

À Castel-Minier, plusieurs indices archéologiques tendent à prouver la pratique de l'essai de minerai. L'aménagement au début du XV^e siècle d'un bâtiment de facture soignée (bâtiment 6) marque la volonté de réserver un espace particulier à certaines étapes de la chaîne opératoire des métaux non-ferreux. Ces activités pourraient

⁴⁰⁹ Sur la place de l'essai dans les entreprises minières nous renvoyons une fois de plus aux travaux incontournables de Joseph Gauthier : *La fortune des entreprises minières...*, *op. cit.*

⁴¹⁰ Mugueta Moreno Í., « Política monetaria... », *op. cit.*, p. 104.

⁴¹¹ Voir à ce sujet les essais pratiqués sur les gisements du haut-Vallespir dans la seconde moitié du XV^e siècle, en particulier celui de Montbolo, dont les résultats conditionnent le démarrage des exploitations et la part du prélèvement de la couronne aragonaise : Verna C., *Entreprises des campagnes médiévales...*, *op. cit.*, à paraître.

concerner l'essai de minerai comme le suggère la découverte de mobilier métrologique destiné à contrôler la masse de faibles quantités de minerai ou de métal (godet d'une pile d'une demi-once)⁴¹². Le mobilier métrologique est également documenté pour les phases d'occupation plus anciennes, en particulier dans les niveaux du XIV^e siècle du Plat-du-Roi où il consiste en un poids marchand de la ville de Toulouse dont la masse correspond à une demi-once⁴¹³. La fréquence de l'essai des minerais à Castel-Minier et l'échelle à laquelle il était réalisé sont impossibles à évaluer à partir de ces quelques indices. Néanmoins, nous pensons que cette étape avait une importance secondaire au moment du tri des minerais par rapport à l'appréciation sensorielle de la densité, plus simple et plus rapide à mettre en œuvre. L'essai des minerais devait intervenir en complément et de manière occasionnelle dans les cycles d'extraction minière afin de caractériser par exemple des filons nouvellement découverts.

3.3.1.2. Densité des minerais et teneur en métal

Des mesures de densité ont été réalisées grâce à une balance hydrostatique pour tous les minerais du tableau 10. Néanmoins, l'établissement d'une classification fondée sur ce paramètre n'a de sens que pour la galène qui a été découverte en quantités importantes et pour laquelle l'étude diachronique de la qualité est possible et pertinente pour comprendre l'évolution technico-économique de l'entreprise de Castel-Minier. Les densités du corpus de galènes archéologiques ont été réparties en trois catégories : élevée, intermédiaire et faible, dont les domaines sont déterminés d'après des considérations archéologiques et archéométriques. Les sources prises en compte pour établir cette classification comprennent le dépôt de galène du bâtiment 10 et le contenu de la halde médiévale formée devant le TB21 de la mine de Castel-Minier.

⁴¹² Téreygeol F. et Gauthier J., « Le godet d'une pile du XIV^e siècle à Castel-Minier », *Instrumentum*, 38, 2013, p. 44-46.

⁴¹³ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport intermédiaire 2016*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2016, p. 42 et *Infra* p. 533.

Tout d'abord, la catégorie « élevée » regroupe les individus contenant peu de gangue. La limite supérieure correspond à de la galène pure dont la densité théorique est comprise entre 7,4 et 7,6. Quant à la limite inférieure que nous proposons, elle a été déterminée à partir du dépôt de galène remisé dans le bâtiment 10⁴¹⁴. Les densités particulièrement élevées des morceaux de minerai de cet ensemble et l'association avec une structure de chauffe nous ont conduit à l'identifier comme étant destiné à être introduit directement dans les structures de chauffe. La densité la plus faible au sein de ce dépôt, d'une valeur de 5,2, donne un ordre de grandeur de ce que pourrait être le seuil en-dessous duquel, selon les critères des métallurgistes médiévaux, la densité du minerai n'est plus suffisamment élevée pour qu'il soit transformé sans préparation.

Parmi les minerais ayant une densité inférieure à 5,2, il est possible de définir deux catégories supplémentaires. La catégorie « faible » tout d'abord qui englobe des individus peu denses constitués essentiellement de roche stérile dans laquelle la galène est concentrée en très faibles quantités. Cette ressource minérale n'a pas fait l'objet d'un traitement sur le site de Castel-Minier comme l'atteste la comparaison avec le contenu des haldes. Ces accumulations de roches stériles issues des travaux d'extraction minière sont des vestiges de première importance pour étudier la nature des matières premières qui alimentaient les ateliers métallurgiques. Elles recèlent les indices des stratégies de tri mises en place par les mineurs. En particulier, l'observation approfondie de leur contenu révèle fréquemment la présence de faibles quantités de galène accompagnant la roche stérile. Trop faiblement concentré ou disséminé dans celle-ci, le minerai était rejeté. Il est donc possible, en étudiant la densité de ces roches peu denses et pauvres en galène, de proposer un ordre de grandeur en dessous duquel elles n'intégraient pas la chaîne opératoire minéralurgique puis métallurgique.

Afin de définir numériquement le seuil de densité en-dessous duquel le minerai était jugé trop pauvre, nous nous sommes intéressé à une halde médiévale qui occupe l'espace devant le TB21 et s'étend au nord dans la pente en direction du Garbet. Cette

⁴¹⁴ Les densités des blocs de galène de ce dépôt sont discutées *supra* p. 276.

structure présente l'intérêt d'une part d'avoir fait l'objet de deux sondages en 2003 et d'une datation par radiocarbone⁴¹⁵ et d'autre part de refléter les activités d'extraction sur le Chantier du mur. La halde, étroitement liée à la découverte du filon du mur à la fin du XIII^e siècle, se constitue tout au long du XIV^e siècle. Après un décapage à la pelle mécanique en surface de manière à atteindre les niveaux de fonctionnement (qui se composent de dolomies et de schistes meubles), un sondage de 2×1×1 m a été implanté dans la halde. Dans cette emprise, la roche extraite a été systématiquement concassée afin de déterminer si les roches stériles contenaient de la galène. Dans l'affirmative, elles ont été systématiquement prélevées ce qui représente, sur l'ensemble du sondage, une masse d'environ 80 kg. Les mesures de densité réalisées sur ce corpus n'ont jamais excédé 4,2 (figure 82) ce qui permet de donner un ordre de grandeur à la limite supérieure du domaine des galènes de faible densité tel que l'ont définie, sur des critères sensoriels, les mineurs médiévaux. La mise au rebut du minerai pauvre répond à des contraintes économiques plus que techniques : ses propriétés intrinsèques n'ont pas permis d'atteindre le seuil de rentabilité économique de son traitement. En effet, les ouvriers auraient été capables d'enrichir le minerai pauvre comme l'on montré les expérimentations de broyage sur du minerai similaire. En revanche, l'investissement humain pour l'étape de concassage et de lavage paraît rédhitoire au regard des faibles quantités de métaux potentiellement récupérables.

⁴¹⁵ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique*, SRA Midi-Pyrénées, 2003, p. 83 et suivantes.

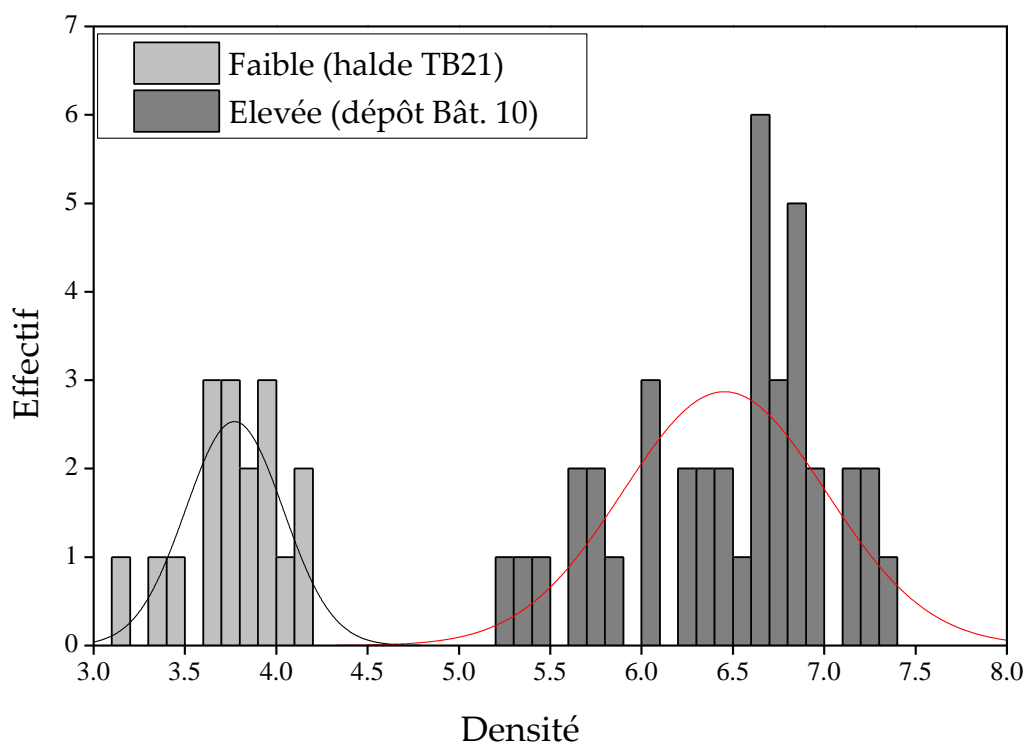


Figure 82 : Histogramme représentant la distribution de la densité des galènes provenant du dépôt du bâtiment 10 (densités élevées) et de la halde du TB21 (densités faibles).

Finalement le domaine des galènes intermédiaires regroupe les individus pour lesquels la densité du minerai est comprise entre 4,3 et 5,1 (figure 82). La proportion non négligeable de gangue dans ces minerais a dû nécessiter une préparation spécifique (tableau 11).

Catégorie	Densité			Volume de minerai (%)		
	Min.	Moy.	Max.	Min.	Moy.	Max.
Faible	3,2	3,8	4,2	9	23	31
Intermédiaire	4,3	-	5,1	32	-	51
Élevée	5,2	6,45	7,3	52	77	96

Tableau 11 : Caractéristiques des domaines de densité de la galène. Le domaine « intermédiaire » n'a pas de valeurs moyennes puisqu'il est défini par les *extrema* des domaines « faible » et « élevé ». Les volumes de gangue mêlée aux minerais de chaque catégorie ont été calculés en fixant la densité de la gangue à 2,7. Cette valeur est proche de celle du quartz et de la dolomie qui constituent l'essentiel des gangues des minerais archéologiques.

Le second paramètre utilisé pour étudier le potentiel des minerais archéologiques est la teneur en métal qui, selon leur nature, concerne le cuivre, l'argent, le plomb et l'antimoine. Les mesures quantitatives de ces éléments ont été

réalisées principalement par LA-ICP-MS et dans une moindre mesure par MEB-EDX. Pour la galène, l'argent est le métal qui permet de caractériser qualitativement le minerai. Les teneurs sont très variées d'un individu à l'autre mais restent cependant circonscrites au domaine des traces. Pour la chalcopryrite, seul le cuivre a suscité l'attention des anciens métallurgistes. Constituant majeur du minerai, les teneurs de ce métal présentent peu de variations au sein du corpus. Le cas des autres minerais polymétalliques est plus complexe puisque leur intérêt économique peut concerner plusieurs métaux. C'est le cas de la tétraédrite dont il faut considérer les teneurs en argent, mais également en cuivre dans l'optique d'une chaîne opératoire spécifique valorisant ces deux métaux. Il en va de même pour la bournonite qui concentre le cuivre, l'antimoine et le plomb.

3.3.1.3. Représentativité du minerai archéologique et limites

Les catégories de densité que nous avons définies pour la galène permettent de discuter le potentiel économique du minerai mis au jour au cours des fouilles archéologiques. Le minerai de faible densité représente 42 % de la masse du corpus contre 21 % pour le minerai de densité intermédiaire et 36 % pour le minerai dense. Néanmoins, la contribution de cette dernière catégorie est surévaluée par l'existence du dépôt de galène de 1,58 kg du bâtiment 10 dont le contexte très particulier a déjà été présenté. Ainsi, en écartant cet ensemble, le minerai dense ne représente plus que 33 % de la masse du corpus contre 25 % pour le minerai de densité intermédiaire et 42 % pour le minerai de faible densité. La découverte de cette dernière catégorie dans les espaces de travail peut être interprétée comme la conséquence d'un rejet par les métallurgistes au cours d'un ultime tri précédant l'extraction des métaux. En revanche, les minerais denses résultent plutôt d'une perte sur les aires de travail ou témoignent, dans le cas du bâtiment 10, du dernier état de fonctionnement des ateliers avant leur abandon. Enfin, le minerai de densité intermédiaire est le moins présent sur le site puisqu'il a vocation à subir une préparation dont nous avons mis en évidence la

spatialisation sur le site. Il n'est cependant pas exclu qu'il ait été traité tel quel comme le suggère la découverte de scories⁴¹⁶.

Les premiers résultats qui viennent d'être présentés illustrent le souci qu'avaient les métallurgistes de Castel-Minier d'éviter l'introduction de gangue dans les processus métallurgiques. Cette pratique technique est destinée à limiter la formation de scories afin de faciliter l'extraction du métal. La particularité de la roche dolomitique des gisements exploités semble avoir motivé ce choix qui ne va pas de soi. Ainsi, la roche stérile peut être conservée avec le minerai dans une certaine proportion de manière à favoriser sa transformation. C'est le cas par exemple de certains minerais non-ferreux exploités en Forêt-Noire durant la période médiévale et dont la gangue peut contenir de la fluorite qui réduit la viscosité et la température de fusion de la scorie⁴¹⁷. De même dans le massif des Vosges, la présence de sidérite dans les minerais de l'Altenberg (site de Pfaffenloch, district de Sainte-Marie-aux-Mines, actif aux XI^e et XII^e siècle et dans la première moitié du XIV^e siècles) a permis la formation de scories fayalitiques dans le cas d'une production de plomb par le procédé de précipitation⁴¹⁸.

Ainsi, le potentiel d'un minerai archéologique est une notion variable d'un espace minier à l'autre. Nous venons d'évoquer l'inadéquation du paramètre de densité pour décrire l'intérêt économique des minerais du district de Sainte-Marie-aux-Mines. Le problème se pose également avec la teneur en métal, en particulier pour la galène. Ce minerai peut contenir des teneurs variables en argent selon la nature du gisement dont il provient. Néanmoins, discuter l'intérêt économique de la galène uniquement en fonction de sa teneur en argent est une démarche trop réductrice qui occulte plusieurs paramètres. Ainsi, la définition d'un ordre de grandeur en-dessous duquel la teneur en argent n'est pas assez profitable n'a pas beaucoup de sens. Elle ne tient pas compte de la facilité d'accès au minerai, des aménagements miniers que

⁴¹⁶ *Infra* p. 376.

⁴¹⁷ Goldenberg G., « Archäometallurgische Untersuchungen zur Entwicklung des Metallhüttenwesens im Schwarzwald », In Goldenberg G., Otto J. et Steuer H. (éd.), *Archäometallurgische Untersuchungen zum Metallhüttenwesen im Schwarzwald*, Thorbecke, Sigmaringen, 1996, p. 38.

⁴¹⁸ Mahé-Le Carlier C., Ploquin A. et Fluck P., « Apport de la géochimie et de la pétrologie à la connaissance de la métallurgie du plomb argentifère au Moyen Âge », *ArchéoSciences*, (34), 2011, p. 175.

nécessitent l'extraction, mais également de la nature de la gangue et de son mélange avec le minerai. La teneur en argent doit donc être combinée au paramètre de densité pour proposer un classement relatif des minerais archéologiques. En outre, une galène contenant une faible quantité d'argent n'est pas forcément exclue de la chaîne opératoire. En effet, la production de plomb désargenté peut être recherchée dans le but d'accroître et de diversifier les revenus de l'entreprise : à Castel-Minier, le plomb est exporté et fait l'objet d'un prélèvement vicomtal⁴¹⁹. De plus, le plomb est une matière première nécessaire au traitement de minerais polymétalliques tel que les « cuivres gris » argentifères ; dans ce cas, l'autosuffisance peut être avantageuse.

Si la masse des roches minéralisées découvertes sur le site est considérable (11,45 kg) et permet de mener une étude diachronique des modalités technico-économiques de la production, elle n'en demeure pas moins anecdotique au regard des volumes de tout-venant extraits dans les principales mines de Castel-Minier et des Raspes (17 000 à 22 000 m³ au total⁴²⁰). Le problème de la représentativité des 2,28 dm³ de notre corpus se pose donc lorsqu'il s'agit de dresser des synthèses pour les différentes phases d'activité du site.

3.3.2. La galène : le minerai dominant

3.3.2.1. Description du minéral

3.3.2.1.1. Généralités et propriétés géochimiques

La galène est un sulfure de plomb (PbS) de couleur grise métallique qui contient environ 87 % de plomb. Son identification repose principalement sur sa couleur et son éclat, mais également sur le faciès « en escalier » de la cassure permise par les trois directions de clivages orthogonales entre elles suivant {001}. Différentes variétés de grains ont été reconnues allant des plus grossiers (qui dominent le corpus) aux plus

⁴¹⁹ Était-il produit à partir de galène non-argentifère, des produits intermédiaires issus de la chaîne opératoire de l'argent ou des deux à la fois ? Ces hypothèses sont discutées *infra* p. 522.

⁴²⁰ Estimations tirées de Dubois C., « Les mines de plomb argentifère..., *op. cit.*, p. 210.

fins. Dans le passé le caractère plus argentifère des galènes à grains fins a été fréquemment remarqué⁴²¹ sans qu'il s'agisse d'une règle absolue. La galène archéologique de Castel-Minier présente fréquemment en surface des encroûtements blanchâtres de carbonates de plomb formés au cours de l'enfouissement. La roche stérile qui accompagne le minerai est principalement dolomitique, mais on relève ponctuellement la présence de quartz et de calcite.

Les analyses élémentaires par LA-ICP-MS de la galène révèlent certaines particularités chimiques (tableau 12). Outre les constituants principaux que sont le plomb et le soufre, les galènes archéologiques contiennent à l'état de trace et par ordre d'importance : argent, antimoine, cuivre, cadmium, étain, thallium et bismuth. Ces éléments sont combinés au soufre (matildite, miargyrite, freibergite, tétraédrite, chalcocite, covellite etc.) et répartis de manière homogène dans le cristal ou au contraire ségrégués aux joints de grains. La galène archéologique de Castel-Minier présente une signature géochimique particulière qui se traduit par une corrélation entre l'argent et l'antimoine avec un ratio entre ces deux éléments proche de 1 (figure 83). Cette propriété indique la présence d'un porteur d'argent particulier : la miargyrite (AgSbS_2), minéral déjà mis en évidence dans les galènes prélevées dans la mine de Castel-Minier. L'homogénéité du ratio Ag/Sb au sein du corpus étudié masque en réalité de fortes disparités illustrées par l'amplitude du spectre de concentration en argent qui s'étend de quelques ppm à environ 4500 ppm. Néanmoins, on constate un groupement des teneurs sur l'intervalle [1000 ; 2000].

⁴²¹ Pour notre zone d'étude, voir les exemples donnés par Jean Mussy pour les travaux d'Escalatorre, de Peyronère, du Mont Béas etc. Mussy J., « Note sur les gîtes métalliques... », *op. cit.*, p. 260 et suivantes.

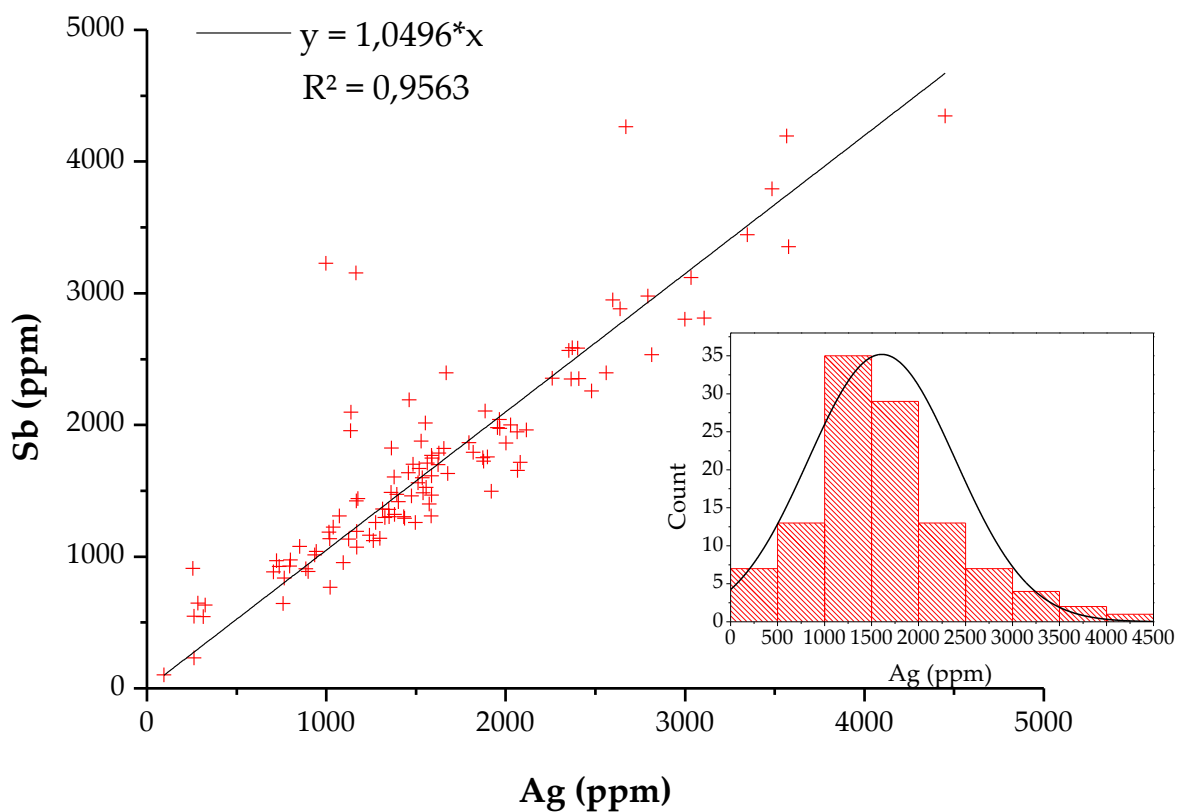


Figure 83 : Représentation des teneurs en argent et en antimoine pour les galènes archéologiques de Castel-Minier. En incrustation : Distribution des teneurs en argent.

Approvisionnement des ateliers : le minerai archéologique

CL	Structure	US (Fait)	S	Pb	Ag	Sb	Cu	Sn	Tl	Bi	Cd	Zn	As	Au	Co	Ni
12497	Bas-foyer 1550-1600	2146 (occupation)	13,8 %	85,8 %	1462	2191	1,8	2,8	2,2	8,0	7,0	-	-	0,1	-	-
11199	Canal 1450-1600	2063 (fondation)	13,7 %	86,0 %	1402	1418	6,3	1,7	2,6	5,9	20	-	-	-	-	-
11323b	Bât. 1	2335 (démolition)	13,9 %	85,6 %	1965	2041	4,8	1,9	2,0	101	23	-	-	-	-	-
11559	Bât. 2	2340 (remblais)	10,9 %	88,8 %	1326	1298	1,5	11	2,2	5,3	14	7,1	-	0,9	-	-
11571	Bât. 2	2396 (fosse)	12,6 %	87,1 %	1587	1615	-	1,0	2,1	4,4	21	11	-	-	-	-
11653	Bât. 3	2421 (sol d'occupation)	13,2 %	86,6 %	800	977	15	3,2	2,6	8,7	18	57	-	-	-	-
12032	Bât. 3	2421 (sol d'occupation)	13,8 %	85,9 %	1556	1526	13	1,2	2,0	4,4	26	4	-	-	-	-
12749	Bât. 3	2509 (abandon)	16,1 %	83,3 %	2637	2882	46	30	2,0	95	12	-	-	-	-	-
12753	Bât. 3	2519 (sol d'occupation)	17,2 %	82,8 %	262	233	1,3	9,1	1,9	5,7	14	-	-	-	-	6,3
12731	Bât. 3	2420 (abandon)	16,1 %	83,7 %	1095	955	9,7	2	2,0	6,8	13	-	-	-	-	-
11576	Bât. 3	2421 (sol d'occupation)	12,1 %	87,6 %	1497	1260	2,7	1,2	2,2	6,9	13	-	-	2,7	-	-
11705	Bât. 3	2405 (démolition)	13,3 %	86,2 %	2815	2532	2,9	1,6	2,2	6,5	12	-	-	-	-	-
12755	Bât. 4	2522 (occupation)	14,7 %	85,0 %	2067	1656	49	8,9	2,1	6,7	8,6	-	-	-	-	-
12131	Bât. 5	2436 (foyer)	13,6 %	85,7 %	3567	4193	54	2,2	1,9	5,1	16	20	-	-	-	-
11731	Bât. 5	2327 (sol d'occupation)	14,2 %	85,5 %	1350	1304	5	12	2,0	6,8	19	4,6	-	-	-	-
12126	Bât. 5	2484 (foyer)	12,7 %	86,9 %	1818	1794	9,2	1,1	2,0	4,3	21	-	-	-	-	-
11684b	Bât. 6	2416 (construction)	13,2 %	86,3 %	2364	2350	3,1	1,8	1,9	7,2	9,8	-	-	-	-	-
10843	Bât. 6	2316 (démolition)	10,1 %	89,7 %	899	888	33	-	2,3	5,1	12	1,9	-	-	-	2
11188	Bât. 6	2329 (dallage)	9,6 %	90,1 %	1241	1162	8,9	0,9	2,2	4,6	26	-	-	-	-	-
11684	Bât. 6	2416 (construction)	13,4 %	86,1 %	2478	2259	4,1	1,6	2,3	7,5	12	-	-	-	-	-
11866	Bât. 7	2462 (remblais)	12,6 %	87,1 %	1585	1310	7,7	1,3	2,2	6,8	8,7	-	-	-	-	-
11515	Bât. 8	3032 (démolition)	13,5 %	84,9 %	1378	1605	579	3,7	2,0	7,2	16	1,2 %	18	0,1	1,6	2,5
12182	Bât. 10	3110 (trou d'enclume)	10,9 %	89,0 %	261	546	9,5	8,2	2,4	11	28	10	-	0,2	-	-
12142	Bât. 10	3085 (abandon)	23,0 %	76,3 %	3484	3793	69	4,1	1,6	4,5	12	-	-	-	-	-
11880	Bât. 10	3042 (démolition)	12,8 %	86,8 %	2027	2002	2,2	1,1	2,1	4,6	12	1,1	-	-	-	-
12106	Bât. 10	3115 (sol d'occupation)	15,0 %	84,9 %	284	649	2,7	3,6	2,2	10	26	2,4	-	0,4	-	-
12102	Bât. 10	3084 (démolition)	15,0 %	84,7 %	1678	1631	-	3,5	2,0	4,6	22	1,2	-	-	-	-
12776	Bât. 10	3151 (abandon)	17,3 %	82,5 %	852	1078	3,7	1,8	2,7	64	33	-	-	-	-	-
12778	Bât. 10	3151 (abandon)	15,7 %	84,1 %	766	839	13	14	2,0	90	12	-	73	-	7,6	9,7

Partie 3 : Les ressources minérales

CL	Structure	US (Fait)	S	Pb	Ag	Sb	Cu	Sn	Tl	Bi	Cd	Zn	As	Au	Co	Ni
12790	Bât. 10	3176 (sol d'occupation)	13,4 %	86,5 %	313	545	-	7,6	2,4	16	32	-	-	0,1	-	-
12806a	Bât. 10	3172 (amas de minerai)	16,0 %	83,7 %	1563	1709	-	9,9	2,0	4,7	21	-	-	-	-	-
12518	Bât. 10	3171 (couverture effondrée)	18,0 %	81,4 %	1165	3154	1659	6,4	2,1	6,4	13	1,2	-	-	-	-
12766	Bât. 10	3159 (abandon)	15,2 %	84,7 %	758	645	4,4	0,8	2,1	8,1	3,5	3	-	-	-	-
12769	Bât. 10	3082 (amas)	17,9 %	81,7 %	1873	1751	-	1,9	2,2	6,5	9,6	-	-	-	-	-
12785	Bât. 10	3160 (amas)	16,5 %	83,2 %	1379	1321	11	1,6	2,4	7,1	9,2	-	-	-	-	-
12806 1	Bât. 10	3172 (amas de minerai)	12,5 %	87,4 %	326	633	-	3,4	3,3	15	27	-	-	0,1	-	-
12783	Bât. 10	3159 (abandon)	13,9 %	85,8 %	1021	768	32	0,7	2,9	383	22	-	-	-	-	-
11258	Bât. 11	2325 (sablière)	12,6 %	87,1 %	1436	1293	65	1	2,1	4,7	10	8,2	-	-	-	-
11510	Bât. 11	2358 (terrassement)	10,9 %	88,8 %	1539	1486	6,5	0,8	2,3	3,5	12	14	-	-	-	-
11774	Bât. 11	2412 (terrassement)	16,5 %	83,2 %	1175	1441	53	1,1	1,8	4,1	7,1	-	-	-	-	-
11737	Bât. 11	2412 (terrassement)	16,3 %	83,3 %	1877	1725	33	29	2,0	6,7	21	31	-	-	-	-
11044a	Bât. 11	2336 (terrassement)	11,1 %	88,6 %	1899	1757	5,2	1,2	2,3	4,6	14	4,3	-	-	-	-
11044b	Bât. 11	2336 (terrassement)	12,7 %	86,9 %	1511	1563	103	-	2,1	4,7	12	4,9	-	0,1	-	-
us11702	Bât. 11	2358 (terrassement)	15,7 %	84,0 %	1626	1787	103	1,4	2,0	8,4	28	-	-	0,1	-	-
11633	Bât. 11	2352 (terrassement)	14,6 %	84,9 %	1955	1980	28	2,7	2,2	4,5	21	509	-	-	-	-
11523	Bât. 11	2358 (terrassement)	12,0 %	87,1 %	2081	1715	1,5	1,4	2,5	7,7	8,4	-	-	-	-	-
11729	Bât. 11	2412 (terrassement)	13,3 %	86,3 %	2064	1947	2,9	1,2	2,7	6,6	7,5	-	-	-	-	-
11823	Bât. 11	2407 (terrassement)	13,3 %	86,2 %	2998	2802	5,1	2,0	2,6	6,2	9,0	-	-	-	-	-
11638	Ferrier 2	3026 (amas de minerai)	15,8 %	83,6 %	3346	3445	1,5	4,8	1,8	4,9	12	6,1	-	-	-	1,9
11666	Ferrier 2	3021 (amas)	13,3 %	86,4 %	1529	1877	11,1	1,5	2,0	5,3	15	2,1	-	-	-	-
11905	Ferrier 2	3036 (amas de minerai)	13,0 %	86,9 %	705	885	28	1	3,0	5,2	9,9	9,3	-	-	-	-
12760	Ferrier 2	3015 (F2)	16,0 %	83,8 %	1019	1138	62	1,9	2,0	4,3	14	-	-	-	-	-
11260	Ferrier 3	2343 (occupation)	17,5 %	81,7 %	2669	4263	533	3,3	2,1	4,0	5,5	-	-	0,1	-	-
10939	P.-f. 1	2228 (niveau d'incendie)	13,7 %	86,0 %	1392	1475	34	1,4	1,9	3,3	21	-	-	-	-	-
10789	P.-f. 1	2292 (démolition)	15,2 %	84,3 %	2352	2567	2,9	18	1,9	4,6	31	-	-	-	-	-
11263a	P.-f. 1	2298 (démolition)	17,1 %	82,7 %	934	1014	8,5	1,2	1,8	4,3	13	-	-	-	-	-
11263b	P.-f. 1	2298 (démolition)	16,7 %	83,0 %	1623	1700	-	3,1	1,8	4,1	9,9	8,2	-	-	-	-
11230	P.-f. 1	2299 (sol d'occupation)	13,3 %	86,5 %	1274	1260	82	0,5	2,1	4,8	22	22	-	-	-	-

CL	Structure	US (Fait)	S	Pb	Ag	Sb	Cu	Sn	Tl	Bi	Cd	Zn	As	Au	Co	Ni
10846	P.-f. 1	2299 (sol d'occupation)	13,1 %	86,4 %	2401	2583	35	2,4	2,2	4,6	19	-	-	-	-	-
11159	P.-f. 3	2361 (sol d'occupation)	14,5 %	85,1 %	1886	2106	71	1,2	1,8	5,4	29	8,7	-	0,1	-	-
12019	P.-f. 3	2442 (sol d'occupation)	16,5 %	83,0 %	2259	2355	11	1,6	1,9	4,0	14	-	-	-	-	-
10272	P.-f. 3	2217 (remblais)	15,3 %	84,2 %	2409	2353	4,3	1,8	2,0	4,0	9,5	-	-	-	-	-
11591	P.-f. 3	2387 (remblais)	12,5 %	87,1 %	2002	1863	-	2,1	2,1	4,2	14	-	-	-	-	-
11682	P.-f. 3	2387 (remblais)	11,9 %	87,1 %	3577	3353	1021	42	2,1	28	24	2312	-	-	-	-
11814	P.-f. 3	2446 (glissement de terrain)	16,6 %	82,9 %	1919	1498	1,9	15,1	1,9	7,6	14	1172	-	-	-	-
12130	P.-f. 4	2434 (sol d'occupation)	13,0 %	86,9 %	255	912	1,8	5,2	2,1	8,2	36	2,3	-	0,3	-	-
10840	P.-f. 4	2084 (sol d'occupation)	13,5 %	86,0 %	1364	1826	938	1,7	2,1	4,5	62	8,9	-	-	-	-
11514	P.-f. 4	2391 (sol d'occupation)	16,1 %	83,6 %	1474	1461	14	1,3	1,8	4,1	31	2,3	-	-	-	-
11794	P.-f. 4	2338 (sol d'occupation)	15,7 %	83,0 %	4450	4347	451	36	2,1	5,1	20	3333	55	-	-	1,6
11672	P.-f. 4	2338 (sol d'occupation)	13,6 %	86,1 %	1347	1359	8,8	0,7	2,0	4,7	20	-	-	-	-	-
11573	P.-f. 4	2397 (sol d'occupation)	11,5 %	88,3 %	1261	1122	6,6	1	2,1	4,4	14	-	-	-	-	-
12738	P.-f. 4	2453 (démolition foyer)	17,1 %	82,6 %	1298	1140	3,5	2,7	2,1	6,6	8,9	-	-	-	-	-
12748	P.-f. 4	2504 (sol d'occupation)	16,7 %	82,7 %	3107	2813	22	1,3	2,1	6,6	11	-	-	-	-	-
12264a	P.-f. 4	2401 (fosse)	13,5 %	86,3 %	1431	1303	5,9	1,3	2,3	6,4	8,6	1,1	-	-	-	-
13192	P.-f. 4	2453 (démolition foyer)	13,0 %	86,7 %	1136	2098	3,9	2,7	2,2	25	6,3	1,2	-	6,4	-	-
13239_1	P.-f. 4	2397 (sol d'occupation)	10,6 %	89,0 %	1656	1823	8,6	4,3	2,2	5,8	5,9	-	-	-	-	-
13239_2	P.-f. 4	2397 (sol d'occupation)	11,0 %	88,5 %	2371	2585	37	1,2	2,1	5,7	4,9	-	-	-	-	-
12810a	P.-f. 4	2290 (M44)	17,5 %	82,2 %	1574	1401	-	1,4	2,1	6,7	5,2	-	-	-	-	-
12810b	P.-f. 4	2290 (M44)	17,9 %	81,8 %	1587	1467	4,7	1,2	2,1	11	29	-	-	-	-	-
11865b	P.-f. 5	3135 (abandon)	13,7 %	86,0 %	1795	1867	6,7	1,3	2,1	6,2	18	1,3	-	-	-	-
11999	P.-f. 5	3069 (remblais)	14,1 %	85,6 %	1073	1310	395	1,6	2,2	3,3	21	44	-	-	-	-
12757	P.-f. 5	3028 (M36)	13,1 %	86,7 %	1170	1192	36	1,1	2,1	4,4	17	-	-	-	-	-
12767	P.-f. 5	3075 (sol d'occupation)	17,1 %	82,5 %	1668	2395	195	2,9	2,1	5,2	8,9	-	-	-	-	-
12774	P.-f. 5	3148 (remblais)	15,9 %	83,8 %	1517	1668	3,3	1,7	2,1	4,4	42	-	-	-	-	-
12780	P.-f. 5	3156 (remblais)	13,2 %	86,6 %	945	1041	4,9	5,2	2,7	4,9	27	1,0	-	-	-	-
11983 1	P.-f. 5	3126 (amas)	13,7 %	86,1 %	1169	1073	-	3,5	2,5	7,5	8,6	-	-	-	-	-
11983 2	P.-f. 5	3126 (amas)	14,2 %	85,4 %	2115	1962	5,2	2	2,4	7,1	9,4	-	-	-	-	-

Partie 3 : Les ressources minérales

CL	Structure	US (Fait)	S	Pb	Ag	Sb	Cu	Sn	Tl	Bi	Cd	Zn	As	Au	Co	Ni
13252	P.-f. 7	6037 (occupation)	13,4 %	86,0 %	3033	3118	6,3	113	2,1	180	8,6	-	-	-	-	-
13252_2	P.-f. 7	6037 (occupation)	13,9 %	85,5 %	2596	2950	14	9,7	2,2	6,8	19	-	-	-	-	-
13180	P.-f. 8	3221 (occupation)	13,6 %	86,1 %	1168	1422	10	1,4	2,0	13	12	3,5	-	41,4	-	-
13216	P.-f. 8	3222 (amas occupation)	13,9 %	85,8 %	1484	1703	4,6	1,8	2,1	6,0	6,7	-	-	-	-	-
12154b	Plat-du-Roi enceinte castrale	3113 (construction)	13,1 %	86,5 %	1968	1976	2,2	3,9	2,2	7,8	9,3	3,2	-	-	-	-
12771	Plat-du-Roi enceinte castrale	3116 (sol d'occupation)	16,0 %	83,7 %	1588	1747	12	1,7	2,1	4,5	12	-	-	-	-	-
13248	Plat-du-Roi pente abandon	3212 (démolition)	13,5 %	86,3 %	723	969	1,9	1,1	2,1	6,2	13	4,6	-	-	5,8	7,3
13250	Plat-du-Roi pente abandon	3064 (démolition)	13,6 %	86,2 %	796	928	9,5	1,7	2,0	57	12	-	-	-	-	-
12679	Plat-du-Roi pente_1	3154 (remblais)	17,0 %	82,6 %	1586	1768	71	2,1	2,0	4,9	13	-	-	-	-	-
13240	Plat-du-Roi pente_1	3208 (halde)	13,6 %	86,0 %	1552	2016	40	1,9	2,2	6,1	20	-	-	14,3	-	-
13242_1	Plat-du-Roi pente_1	3213 (halde)	9,6 %	90,2 %	886	907	17	1,3	2,0	6,3	8,2	-	5,5	-	3,7	3,6
13244	Plat-du-Roi pente_1	3211 (halde)	13,0 %	86,7 %	1360	1489	37	3,9	2,0	5,8	12	2,3	-	3,5	-	-
13245	Plat-du-Roi pente_1	3214 (occupation)	13,1 %	86,5 %	1134	1958	6,4	4	2,1	6,0	13	-	-	-	-	-
13245_2	Plat-du-Roi pente_1	3214 (occupation)	13,9 %	85,8 %	1038	1223	6,1	12	2,0	6,2	6	5,0	-	-	-	-
13246	Plat-du-Roi pente_1	3154 (remblais)	14,0 %	85,8 %	738	926	226	-	3,1	178	9,0	1,3	-	0,4	-	-
13264	Plat-du-Roi pente_1	3218 (démolition)	12,3 %	87,4 %	1457	1638	25	1,4	2,0	5,9	14	3,3	-	12	-	-
12161b	Plat-du-Roi pente_2	3091 (démolition)	15,3 %	84,4 %	1536	1599	2,6	2,3	2,1	6,1	15	14	-	-	-	-
12816	Plat-du-Roi pente_2	3067/3091	16,7 %	82,8 %	2560	2396	20	2,5	2,1	6,4	10	-	-	-	-	-

Tableau 12 : Résultats des analyses par LA-ICP-MS des galènes archéologiques. Sauf mention contraire, les valeurs sont exprimées en ppm.

3.3.2.1.2. Nature de la gangue

La caractérisation des gangues est une étape fondamentale dans l'optique d'une étude des chaînes opératoire et notamment celle de la galène. En effet, cette roche stérile contribue de manière significative à la formation de la scorie au cours de la transformation du minerai. Les paramètres physico-chimiques de la scorie, qui influent grandement sur la conduite des procédés métallurgiques et leur efficacité, sont en effet gouvernés en partie par la nature de la gangue introduite avec le minerai dans les structures de chauffe.

La gangue de plusieurs galènes dont la densité correspond aux catégories intermédiaire et faible a été caractérisée de manière qualitative et quantitative. En premier lieu, l'analyse macroscopique de la couleur, de l'éclat et de la cassure de la roche a permis d'identifier la nature des minéraux mêlés au minerai. Dans un second temps, leur composition élémentaire a été déterminée par MEB-EDX. Les résultats figurent dans le tableau 13. Ils mettent en évidence la domination de la dolomie au sein du corpus analysé, ce qui est adéquation avec le faciès géologique du fossé d'Aulus. De manière plus ponctuelle, on observe également la présence de quartz et de calcite.

	Densité du minerai associé	Na ₂ O (%)	MgO (%)	Al ₂ O ₃ (%)	SiO ₂ (%)	K ₂ O (%)	CaO (%)	MnO (%)	FeO (%)
CL 10975	Intermédiaire	-	33,6	0,6	2,6	-	61,1	-	2,2
CL 11865	Faible	-	29,2	-	-	-	59,6	2,2	9,0
CL 12126	Intermédiaire	-	23,3	-	21,3	-	47,9	1,5	6,1
CL 12032	Faible	-	29,1	-	9,8	-	57,5	0,6	3,0
CL 11188	Faible	-	32,7	-	0,6	-	61,6	0,7	4,5
CL 11515	Intermédiaire	2,7	-	-	0,5	-	93,7	1,5	1,6
CL 12154	Faible	-	-	1,2	2,7	0,4	92,5	1,6	1,7
CL 11675	Faible	-	24,1	-	25,6	-	48,0	-	2,4
CL 12102	Faible	-	32,4	-	2,8	-	59,1	1,0	4,7
CL 11731	Faible	-	22,8	0,8	14,6	-	59,3	1,1	1,4
CL 12161a	Faible	-	30,5	-	3,7	0,4	57,0	1,5	6,9

	Densité du minerai associé	Na ₂ O (%)	MgO (%)	Al ₂ O ₃ (%)	SiO ₂ (%)	K ₂ O (%)	CaO (%)	MnO (%)	FeO (%)
CL 12161b	Faible	-	27,4	0,6	3,5	-	60,4	1,5	6,5
CL 12263b	Faible	-	30,2	-	4,3	0,5	60,6	-	4,4
CL 11737	Faible	-	30,9	1,1	3,2	-	57,7	1,6	5,6
CL 11576	Intermédiaire	-	20,6	3,3	19,0	0,8	46,9	3,9	5,6
CL 11044b	Faible	-	18,8	-	3,5	-	70,6	1,1	6,0
CL 11684a	Faible	-	27,9	0,9	7,8	-	55,2	1,2	7,0
CL 11684b	Faible	-	22,9	1,0	20,9	0,2	48,9	1,1	5,0
CL 10789	Faible	0,9	32,6	-	0,8	1,1	60,1	0,9	3,7
CL 11510	Intermédiaire	-	-	-	99,8	-	0,2	-	-
CL 11705	Faible	-	33,5	0,8	1,5	-	57,7	0,7	5,8
CL 11523a	Faible	-	1,4	-	12,8	-	83,2	1,1	1,5
CL 11523b	Faible	-	1,7	-	1,9	-	93,0	1,4	2,0

Tableau 13 : Analyses MEB-EDX des gangues de galènes de densité intermédiaire et faible de Castel-Minier.

3.3.2.1.3. Place de la galène de Castel-Minier dans le contexte minier européen

La gamme de teneurs en argent des galènes traitées à Castel-Minier appelle des comparaisons avec d'autres districts miniers contemporains afin d'évaluer le potentiel économique de la matière première. Ce travail de confrontation se heurte à la rareté des analyses physico-chimiques de minerais archéologiques qui, lorsqu'elles existent, concernent des corpus très réduits voire des individus isolés. Par conséquent, les problèmes de représentativité qui résultent de la faiblesse des populations étudiées limitent les interprétations. Parmi les données disponibles sur la teneur en argent des galènes, nous avons volontairement écarté les sources écrites, en particulier les rapports d'essai pas voie sèche. Outre les ambiguïtés sur la nature des prises de départ qu'ils font émerger, les problèmes de conversion des résultats, l'imprécision des pesées et la pratique de l'arrondi⁴²² réduisent fortement les possibilités de comparaison. Les

⁴²² Essais de Jean Yseman sur des minerais issus de gisements du comté de Foix (14 mars 1544, ADA, 1J281). Sur ce texte voir Gauthier J., *La fortune des entreprises minières...*, op. cit., p. 164-165.

teneurs en argent de plusieurs sites miniers ou métallurgiques médiévaux dont les minerais ont fait l'objet d'analyses archéométriques sont consignées dans le tableau 14.

District	Site	Datation	Nature du minerai	Teneur en argent	Référence
Harz Sainte-Marie-aux-mines	Huneberg	XII ^e -XIII ^e	Galène	100 ppm	Asmus B., 2012
	Pfaffenloch	XI ^e -XII ^e	Galène	600 ppm	Goldenberg G., 1996
Siegerland	Altenberg	XIII ^e	Galène-sphalérite	1000 ppm	Rehren T. <i>et al.</i> , 1999
Brandes	Chantier miniers orientaux	XIII ^e	Galène	485 à 1233 ppm (859)	Malý K. et Hrubý P., 2014
	Haldes			367 à 4171 ppm (2016)	
Bohême centrale	Cvilínek	XIII ^e	Galène	1,4 %	Hrubý P. <i>et al.</i> , 2014
Erzgebirge	Niederpöbel	XII ^e -XIII ^e	Galène	107 à 203 ppm (155)	Schröder F., 2015
Collines Métallifères (Pistraio)	Cugnano	IX ^e -XIV ^e		2800 à 4500 ppm (3933)	
	Rocchette Pannocchieschi	XII ^e -XIV ^e	Galène-tétraédrite	4200 ppm	Bruttini J., 2014
Collines Métallifères (Montieri)	Santa Croce	XIII ^e		3000 ppm	
	Montieri	XI ^e -XIII ^e		3800 ppm	
	Gerfalco	XII ^e -XIII ^e		2000 à 3700 ppm (2625)	

Tableau 14 : Teneur en argent des galènes issues de sites miniers et/ou métallurgiques médiévaux. Lorsque plusieurs analyses sont disponibles, la valeur moyenne est indiquée entre parenthèses. La teneur en argent élevée de l'échantillon de Cvilínek traduit certainement la nature mixte du minerai qui associe de la galène et, en quantité moindre, un cuivre argentifère.

Parmi les analyses publiées, celles du district toscan des Collines Métallifères illustrent la singularité des gisements qui contenaient des minerais composites formés d'une matrice de galène dans laquelle était incorporée de la tétraédrite argentifère. La teneur globale en argent de ces minerais est donc plus élevée que pour la galène seule. Hormis le cas toscan et à l'exception de la galène particulièrement riche en métal blanc du site de Cvilínek, les analyses publiées mettent en évidence des teneurs en argent moindres, très variables d'un site à l'autre, qui atteignent au mieux les 4200 ppm. Le domaine des concentrations en argent des galènes de Castel-Minier s'insère dans ce panorama européen et ne se démarque pas de ceux des autres districts miniers. À la

lumière de ces résultats, la production considérable d'argent métallique des premières décennies du XIV^e siècle que rapporte Girardi, s'il faut lui donner du crédit, n'est pas liée à la teneur en argent de la galène mais plutôt aux volumes de minerai transformés. Ainsi, les tonnes de métal qui sont sorties de l'atelier résultent du traitement massif d'une galène de qualité ordinaire auquel il faut ajouter la contribution ponctuelle de minerais autrement plus rentable tels que la tétraédrite.

3.3.2.2. Distribution spatiale de la galène : identification et évolution des espaces de travail

L'étude de la distribution de la galène dans les niveaux archéologiques de Castel-Minier est un travail indispensable à la compréhension de l'organisation des espaces de travail. L'analyse spatiale du mobilier est en effet une étape préliminaire, nécessaire mais non-suffisante, à l'interprétation fonctionnelle. La position de chaque fragment de minerai est reportée précisément dans un système d'information géographique tandis qu'une donnée supplémentaire concernant leur densité est représentée au moyen d'une sémiologie spécifique. En outre, les faits associés aux contextes archéologiques dans lesquels la galène a été mise au jour, qu'il s'agisse de la construction, de l'occupation, de l'abandon et de la démolition, sont également reportés sur les plans. En revanche, la teneur en argent et la masse des fragments de galène n'y figurent pas pour ne pas nuire à la lisibilité des documents. Ces données sont discutées à part pour les contextes de construction et d'occupation des espaces étudiés : elles permettent d'affiner les interprétations fonctionnelles.

Les différentes structures mises au jour (bâtiments ou plates-formes) ont parfois livré un mobilier abondant constitué de plusieurs fragments de galène dont la teneur en argent a été déterminée par LA-ICP-MS. Afin de faciliter la compréhension des espaces de travail et dégager les évolutions chrono-spatiales de la ressource minérale traitée à Castel-Minier, nous avons fait le choix d'introduire, pour chaque structure fouillée, une teneur moyenne en argent pondérée par la masse de chaque fragment

analysé. De cette manière, l'influence des petits fragments, peu représentatifs du minerai réellement disponible, est limitée et la teneur globale calculée rend compte plus fidèlement de la qualité du minerai approvisionnant les ateliers.

Dans un premier temps, une approche globale a été privilégiée de manière à appréhender la distribution de la galène sur l'ensemble du site et dégager les espaces structurants (figure 84). Le premier enseignement tiré de l'analyse spatiale porte sur le statut privilégié de la galène à Castel-Minier, minerai que l'on retrouve dans la quasi-totalité des espaces fouillés qui représentent une période d'activité de près de deux siècles (figure 84). Néanmoins, quelques particularismes se dégagent de ce schéma d'ensemble. Ainsi, les installations destinées à la métallurgie du fer, qu'elles soient édifiées à la fin du XIII^e siècle (foyers de forge de la partie orientale de la plate-forme 5, figure 84) ou au XV^e siècle (stalles, forge et canal, figure 84), sont exemptes de fragments de galène. Cette particularité dénote une spatialisation des métallurgies selon qu'elles concernent les métaux ferreux ou non-ferreux. Bien que ces activités soient contemporaines, la dissociation des espaces de travail semble indiquer une relative imperméabilité du monde du fer aux autres métallurgies et une individualisation forte des chaînes opératoires.

Le cas de la rive droite du canal XV^e (figure 84) est quelque peu différent ; l'absence de galène dans cet espace est à mettre en lien avec le profond réaménagement qu'il a subi au début du XVI^e siècle préalablement à l'installation d'une mouline. Cet appareil sidérurgique a nécessité d'importants travaux de nivellement et de fondation qui ont oblitéré les ateliers plus anciens vraisemblablement consacrés à la production des métaux non-ferreux. En revanche, l'absence de galène dans le bâtiment 8 (figure 84) illustre le statut différent de ce lieu dont la fonction semble être domestique. Cette hypothèse est renforcée par l'analyse archéométrique du foyer quadrangulaire inscrit dans cet espace⁴²³.

⁴²³ *Infra* p. 395

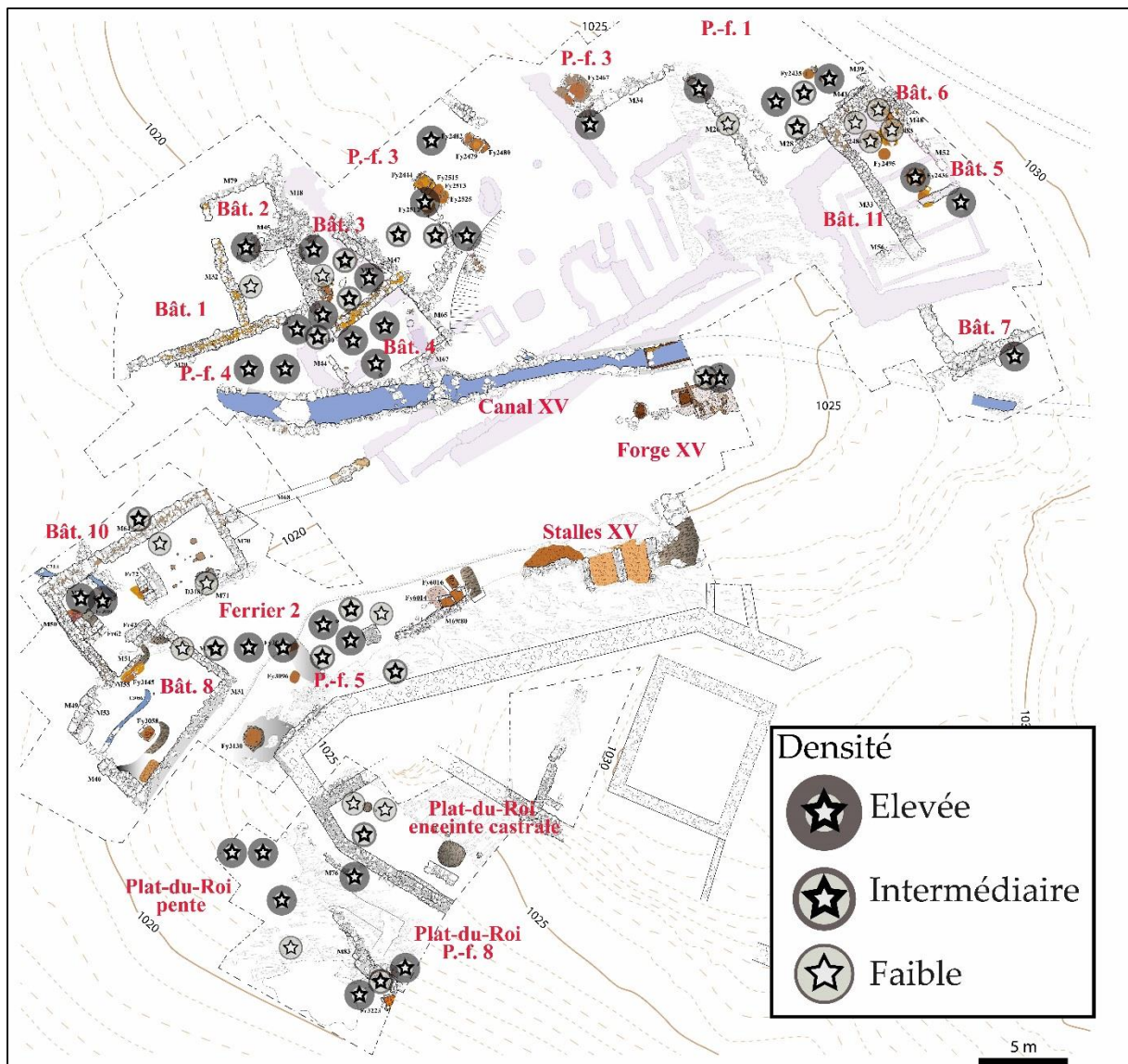


Figure 84 : Distribution des galènes mises au jour dans des contextes de construction et d'occupation sur le site de Castel-Minier. En transparence, l'implantation de la mouline du XVI^e siècle.

3.3.2.2.1. Phase 1 : Les premiers temps de l'exploitation (fin XIII^e - début XIV^e siècles), Plats-formes 1, 5, 8 et bâtiment 3

Le démarrage de l'activité métallurgique à Castel-Minier intervient à la fin du XIII^e siècle avec l'aménagement de plusieurs espaces de travail qui se répartissent en deux pôles : le premier autour du bourrelet morainique selon un système de plates-formes ; le second plus au nord comprenant un bâtiment et une plate-forme (figure 85). Le corpus de galène est significatif avec une masse totale de 2,8 kg répartie de

manière très inégale selon les espaces puisque 75 % proviennent d'un dépôt de la plate-forme 5. La contribution de la plate-forme 8 du Plat-du-Roi est anecdotique avec seulement 26,9 g. Toutefois, cette structure est en cours de fouille et seule une portion réduite de l'emprise totale, qui se développe vers l'est, est connue pour le moment ce qui peut expliquer le déséquilibre observé. Il convient également de distinguer les contextes de découverte des minerais (figure 85). Pour le bâtiment 3 et la plate-forme 8, la présence de galène est liée au fonctionnement de ces structures destinées à la chaîne opératoire du plomb argentifère. Le cas de la plate-forme 1 est différent puisque les découvertes de galène se partagent entre des contextes d'occupation et de démolition, ces derniers précédant l'installation du réservoir de la mouline à la fin du XV^e siècle (figure 85).

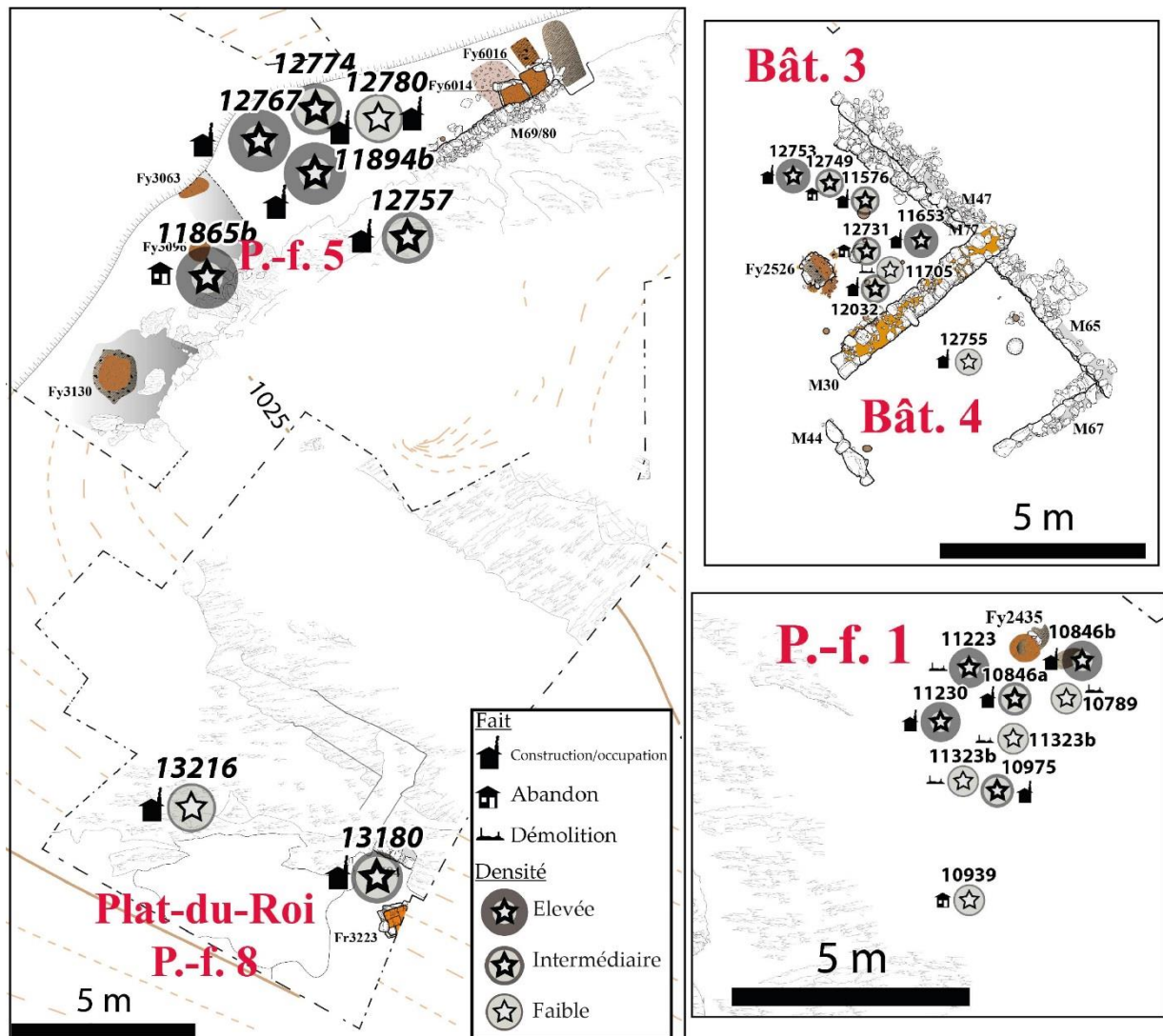


Figure 85 : Distribution de la galène dans les espaces fouillés appartenant à la première phase.

Sur la figure 85, les galènes sont dissociées selon le domaine de densité auquel elles appartiennent. Avec la teneur en argent, ce critère permet de caractériser le potentiel économique de la galène découverte dans les espaces de travail, mais également d'apprécier son évolution chronologique. Durant la première phase d'occupation de Castel-Minier, la galène se distingue par une teneur en argent qui oscille entre 1100 et 2750 ppm selon les espaces de travail (figure 86). Sa densité élevée sur les plates-formes 1 et 8 indique qu'elle contient très peu de gangue et qu'elle peut donc être traitée sans enrichissement préalable. L'existence de foyers circulaires et quadrangulaires dans ces espaces soutient l'hypothèse d'une fonction métallurgique en lien avec le traitement de minerais de densité élevée.

La coexistence de minerais de densité élevée et intermédiaire dans le bâtiment 3 et sur la plate-forme 5 témoigne de pratiques différentes que l'on peut attribuer soit au déroulement d'une activité de tri du minerai dans ces espaces, soit à la réalisation d'un mélange. En l'absence de mobilier et de structure liés au concassage, il est difficile d'accorder du crédit à la première hypothèse. Néanmoins, un remisage du minerai dans le bâtiment 3 préalablement à son traitement reste possible. En revanche, plusieurs raisons permettent d'envisager la pratique d'un mélange de minerais au cours de la période considérée. D'une part, l'ensemble du procédé minéralurgique n'est peut-être pas encore opérationnel dans les premiers temps de l'exploitation ce qui ne permet pas une préparation optimale du minerai. On peut penser que les investissements coûteux qu'il nécessite, notamment pour le broyage hydraulique, n'ont été engagés qu'une fois l'extraction du minerai pérennisée et sa rentabilité démontrée. De plus, l'incorporation de gangue dans la charge de minerai destinée à être réduite peut résulter de modalités propres à la chaîne opératoire de Castel-Minier visant à produire de la scorie au plomb. Outre la valorisation possible d'un tel sous-produit⁴²⁴, sa formation au cours des étapes de réduction du minerai entraîne une diminution du plomb métallique recouvré à l'issue de l'opération et un enrichissement en argent⁴²⁵. Ce phénomène est profitable dans le cadre d'un affinage ultérieur puisque la quantité de plomb à séparer du métal blanc est réduite : la durée de l'opération et la consommation de combustible sont donc moindres.

⁴²⁴ *Infra* p. 441.

⁴²⁵ Contrairement au plomb, l'argent n'est pas incorporé dans la scorie au cours de la réduction. En outre, la gangue de la galène de la période 1 n'est pas différente de ses homologues des périodes suivantes dont la nature dolomitique exclut une utilisation comme fondant.

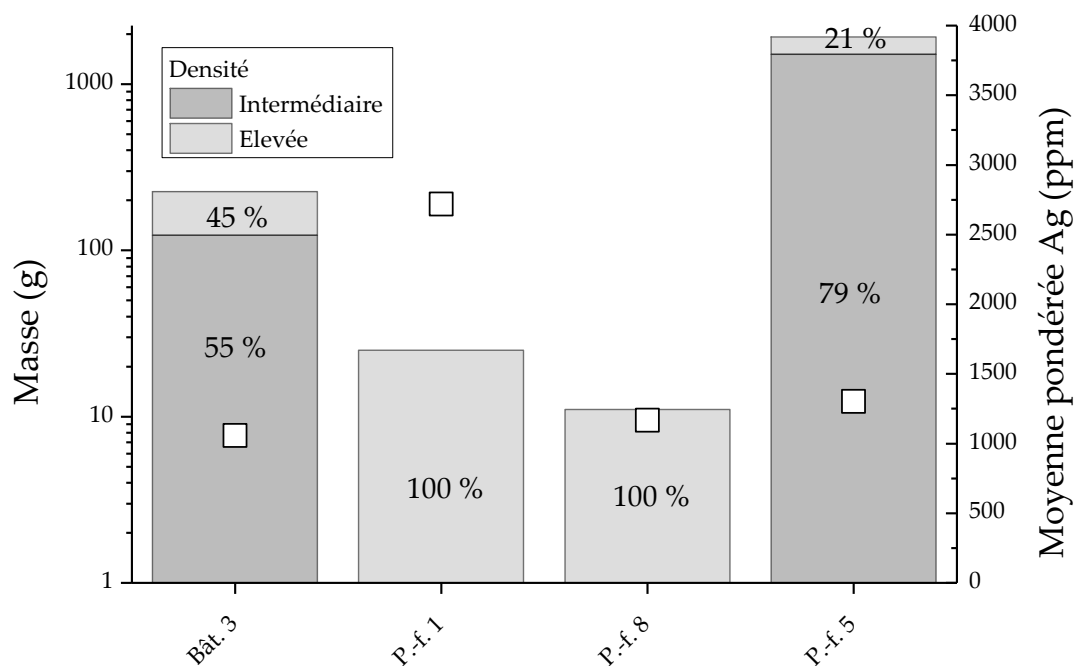


Figure 86 : Masses de galène dans les contextes archéologiques de construction et d'occupation des structures de la fin du XIII^e-début du XIV^e siècle. Pour chacune d'entre elles, la proportion de chaque catégorie de densité est indiquée dans les colonnes ainsi que la moyenne pondérée en argent (symbole □ et échelle logarithmique).

3.3.2.2.2. Phase 2 : XIV^e siècle : bâtiments 1, 2, 5, 10 et 11, plate-forme 3, Plat-du-Roi et ferrier 2.

La deuxième phase d'activité du site de Castel-Minier couvre tout le XIV^e siècle. Elle se distingue de la période précédente par la nature des espaces de travail qui évolue vers les bâtiments au détriment des plates-formes. Le corpus de galène représente 5,0 kg dont la plus grande partie provient d'une part des aménagements qui encadrent le bourrelet morainique (Plat-du-Roi : 996 g ; bâtiments 10 : 2,4 kg ; ferrier 2 : 195 g) et d'autre part de la partie septentrionale du site (plate-forme 4 : 1,3 kg ; voir figure 87). Dans le bâtiment 10, le dépôt de minerai de densité élevée que nous avons déjà évoqué⁴²⁶ est le principal contributeur. Les autres structures ayant livré de la galène sont les bâtiments 1, 2, 5 et 11 ainsi que la plate-forme 3 avec toutefois des quantités plus réduites qui s'élèvent respectivement à 30, 12, 124, 132 et 100 g de

⁴²⁶ *Supra* p. 274.

minerai. Les contextes de découverte se rattachent en majorité à des faits d'occupation à l'exception du bâtiment 10 – dont les contextes d'abandon recelaient une part non négligeable de galène – et du bâtiment 11 dont les niveaux d'occupation ont été remobilisés au XV^e siècle pour remblayer l'espace avant l'installation du réservoir de la mouline.

Les niveaux d'abandon du bâtiment 10 sont à mettre en relation avec le ferrier 2 qui commence à se constituer dans la première moitié du XIV^e et marque le démarrage de la métallurgie du fer à Castel-Minier. Cette structure est venue sceller dans un premier temps la plate-forme 5 et le bâtiment domestique n° 8 avant de déborder vers le bâtiment 10 dans sa phase d'extension maximale (figure 87). En effet, les fragments de galène trouvés dans les couches stratigraphiques supérieures du bâtiment 10 étaient associés à des scories de fer : une partie des déchets de fer épandus dans le ferrier 2 a débordé vers ce bâtiment alors à l'abandon à la fin du XIV^e siècle.

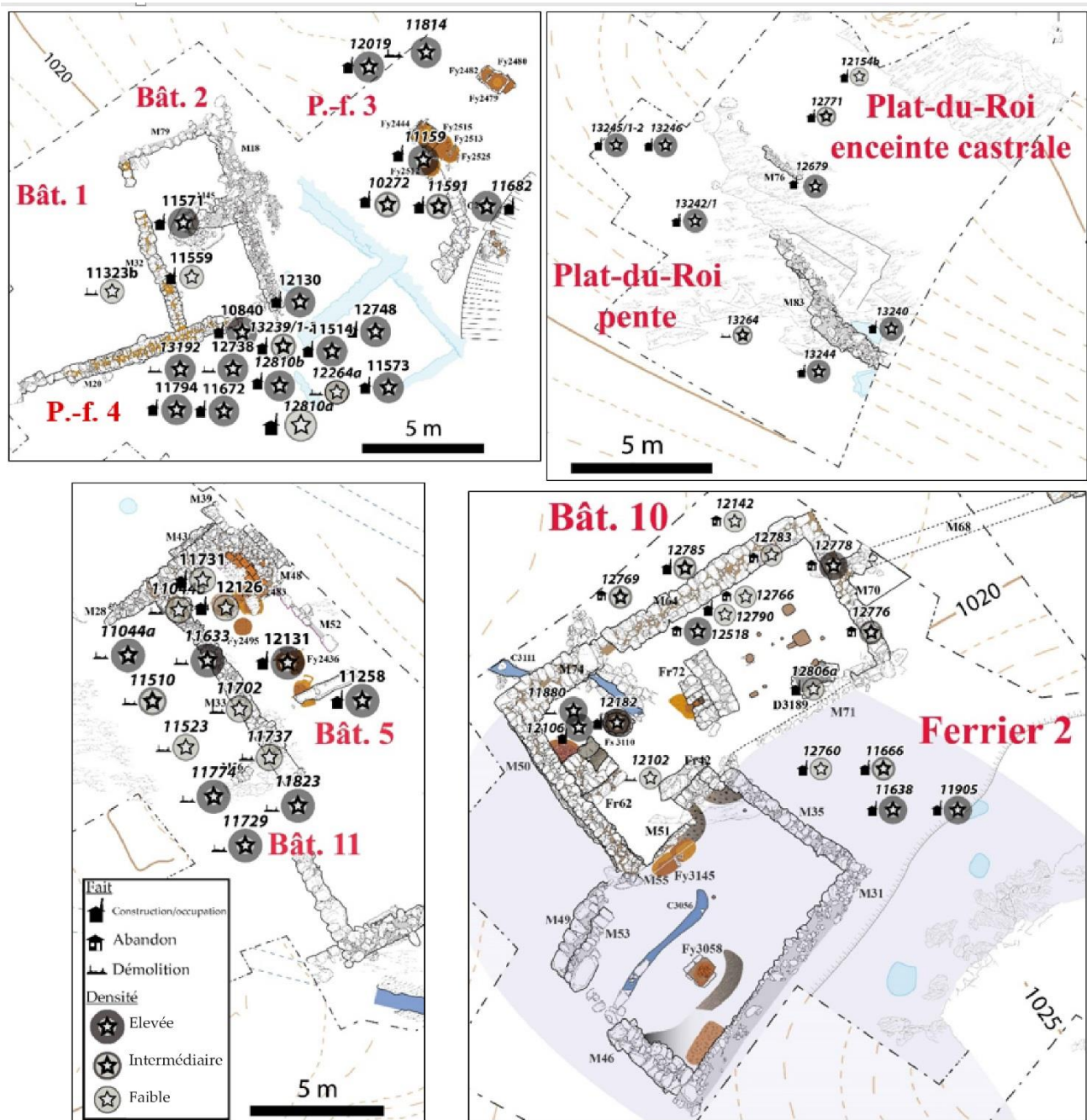


Figure 87 : Distribution de la galène dans les espaces fouillés appartenant à la seconde phase. En transparence, l'emprise du ferrier 2 (violet) et les structures de la phase 1 (bleu).

L'étude de la qualité des galènes archéologiques issues des contextes d'occupation de la seconde phase d'activité de Castel-Minier est particulièrement intéressante. Elle révèle une évolution des propriétés des ressources minières approvisionnant les ateliers concomitamment à une mutation de la chaîne opératoire. Tout d'abord, la qualité de la galène évolue au cours de la période sur le plan de sa

teneur en argent. La moyenne pondérée s'élève respectivement à 1050, 2300, 2013, 1587, 1526 et 1794 ppm sur le Plat-du-Roi, sur les plates-formes 3 et 4 et dans les bâtiments 2, 10 et 11. Dans le bâtiment 5, la galène est particulièrement riche en argent avec une teneur de 3567 ppm (figure 88). Par rapport à la période précédente, les galènes approvisionnant les ateliers métallurgiques au cours du XIV^e siècle sont plus argentifères. Ce constat peut témoigner d'une variation de la minéralisation exploitée, notamment la découverte d'une veine enrichie en argent, voire d'un changement de la source d'approvisionnement.

L'évolution de la galène archéologique au cours de la phase 2 ne concerne pas uniquement sa teneur en argent, mais également sa densité. En effet, à l'exception de la médiocre quantité de galène issue du Plat-du-Roi (enceinte castrale) et du ferrier 2, le minerai mis au jour appartient au domaine des densités élevées. Ce constat est particulièrement frappant dans les espaces de travail qui associent des structures de chauffe notamment les bâtiments 5 et 10 et la plate-forme 3 (figure 88). Ainsi, et contrairement à la période précédente, la formation de scories au cours de la réduction du minerai n'est pas recherchée pour des raisons que nous supposons liées à la nature des structures de chauffe employées, notamment celle des fours en granite du bâtiment 10⁴²⁷. La gestion de la scorie semble difficile dans ces réacteurs et un chargement de minerais denses a été préféré par les métallurgistes⁴²⁸. Cette particularité de la chaîne opératoire implique une préparation poussée du minerai, notamment un tri soigneux pour isoler les individus denses comme le démontre la constitution d'un dépôt homogène de galène dense dans le bâtiment 10⁴²⁹. Si comme nous l'avons vu, la scorie peut permettre d'enrichir le plomb métallique en argent, sa séparation du métal et son évacuation de la structure de chauffe n'en demeurent pas moins délicates. Ainsi, la teneur plus élevée en argent de la galène traitée durant la deuxième phase a rendu facultatif un enrichissement en argent consécutif à la formation de scories riches en

⁴²⁷ *Infra* p. 399.

⁴²⁸ Sur ces aspects techniques et les apports des expérimentations : *infra* p. 415.

⁴²⁹ *Supra* p. 274.

plomb. En outre, la disponibilité de la galène dense, qu'elle soit issue directement de la mine ou d'une phase de préparation minéralurgique légère, a permis d'alimenter les structures de chauffe avec des charges de minerai exemptes de gangue.

La présence de galène de densité intermédiaire sur les plates-formes 3 et 4 pourrait s'expliquer par le déroulement d'une étape de préparation des minerais dans ces espaces. Sur la plate-forme 4, aucune structure de chauffe n'est associée à la masse importante de galène mise au jour. La coexistence de galènes de densité élevée et intermédiaire suggère donc une activité de tri manuel voire de concassage préalablement au traitement du minerai. Cette fonction minéralurgique peut également être proposée pour la plate-forme 3 d'autant plus qu'elle contient une structure d'enrichissement des minerais⁴³⁰.

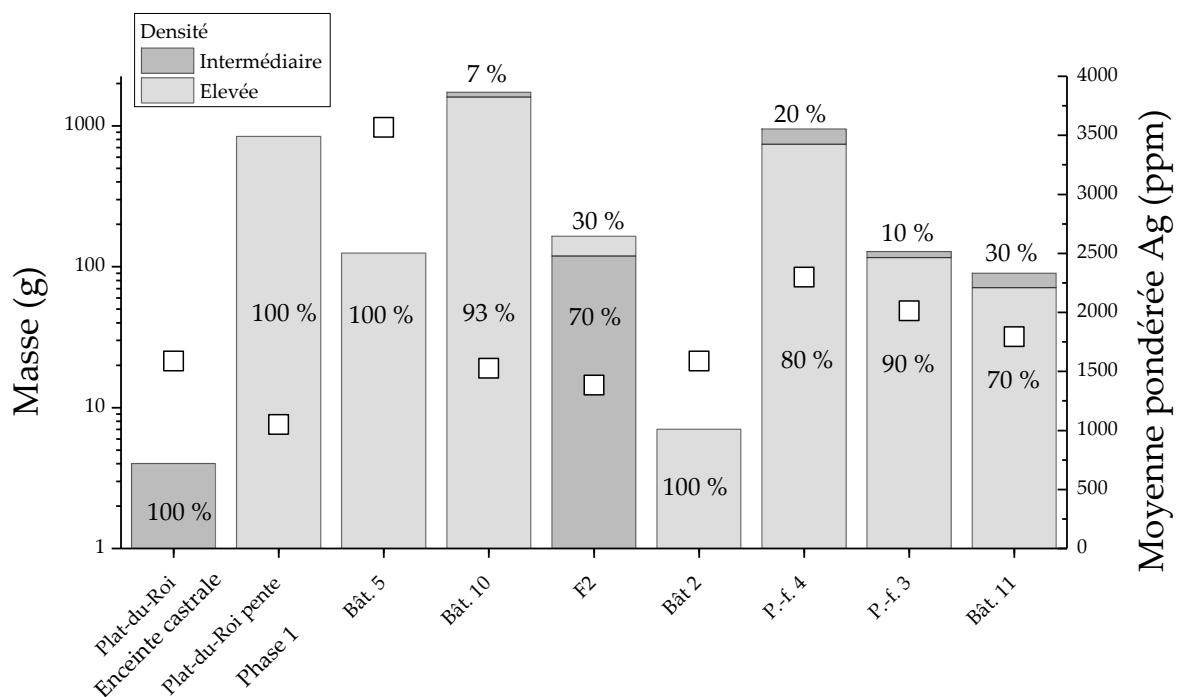


Figure 88 : Masses de galène dans les contextes archéologiques de construction et d'occupation des structures du XIV^e siècle. Pour chacune d'entre elles, la proportion de chaque catégorie de densité est indiquée dans les colonnes ainsi que la moyenne pondérée en argent (symbole □ et échelle logarithmique).

⁴³⁰ *Supra* p. 288.

3.3.2.2.3. Phase 3 : première moitié du XV^e siècle : bâtiments 6 et 7, Forge XV et Plat-du-Roi

La troisième phase d'activité de Castel-Minier couvre la première moitié du XV^e siècle. Durant cette période, la métallurgie du fer connaît un essor qui se concrétise par l'installation d'un appareil hydraulique vraisemblablement destiné au martelage. Les découvertes de galène sont plus éparses sur le site et concernent sa partie méridionale (bâtiment 6 et 7) et les niveaux les plus récents du Plat-du-Roi. Parmi les 560 g de galène collectés dans le bâtiment 6, la majorité des échantillons ont une densité faible. Dans le bâtiment 7, un fragment de 83 g constitue le seul témoin d'une activité liée aux métaux non-ferreux tandis que sur le Plat-du-Roi, le corpus de 138 g se compose en majorité de minerais épandus dans la pente après l'abandon du lieu. Le Plat-du-Roi subit d'ailleurs un réaménagement profond au cours de la période considérée qui consiste en l'érection d'une enceinte castrale individualisant ainsi cet espace du reste du site.

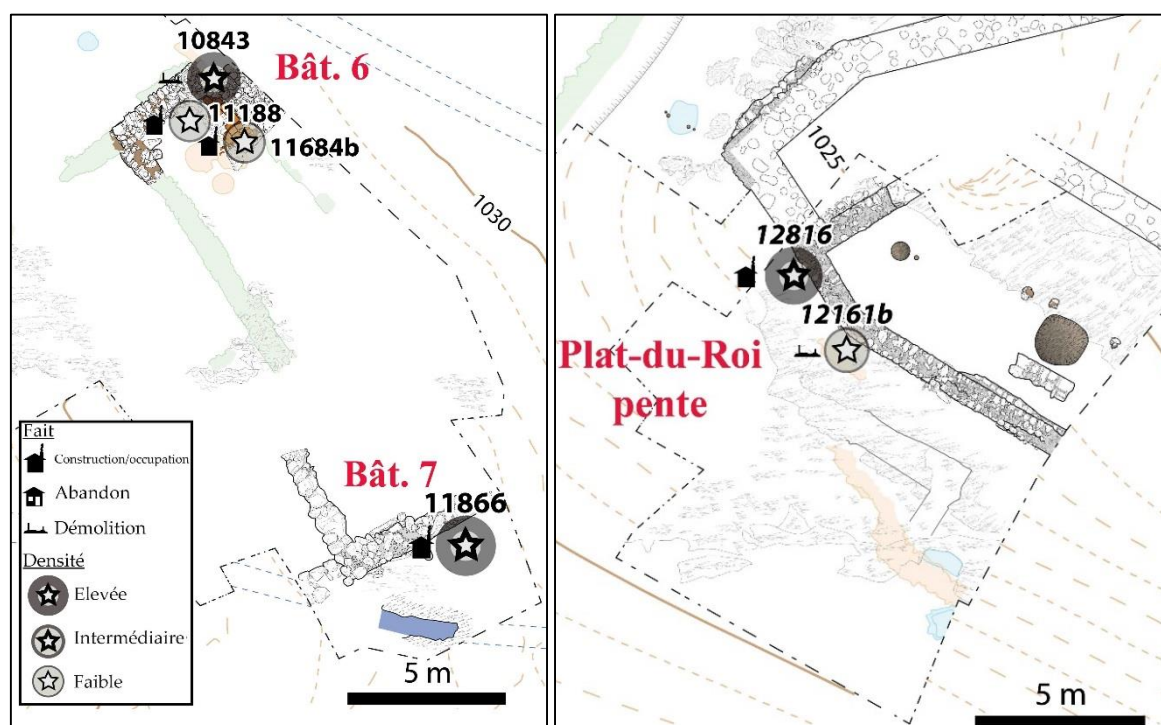


Figure 89 : Distribution de la galène dans les espaces fouillés appartenant à la phase 3. En transparence les structures de la phase 1 (bleu) et 2 (vert et orange).

Les niveaux d'occupation du bâtiment 7 et du Plat-du-Roi contiennent exclusivement des minerais denses dont la moyenne pondérée en argent reste intéressante avec respectivement 1585 et 2560 ppm (figure 90). Néanmoins, la faible masse du corpus et l'absence de structures de chauffe pourraient suggérer un ralentissement des activités relatives à la chaîne opératoire du plomb argentifère.

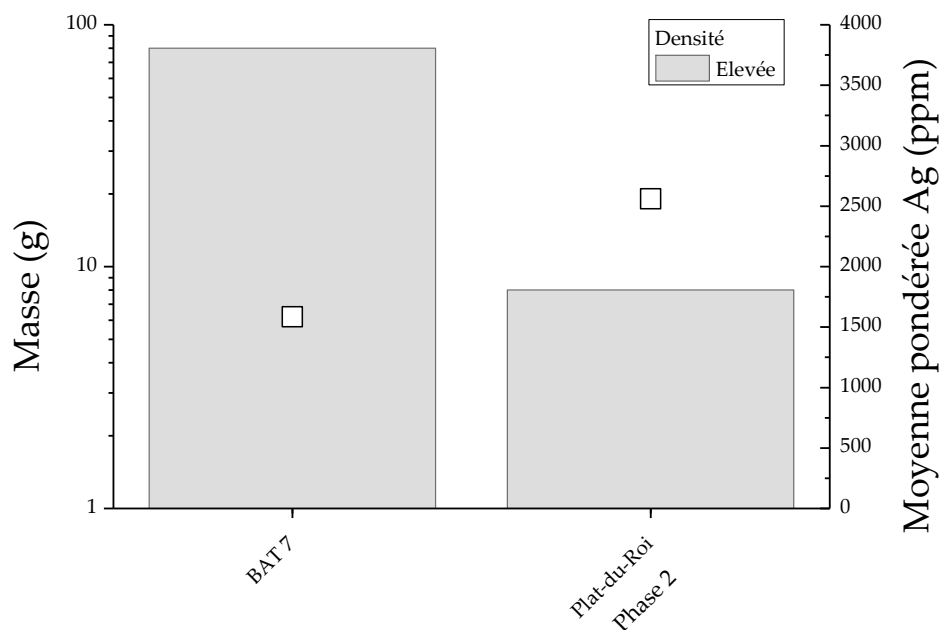


Figure 90 : Masses de galène dans les contextes archéologiques de construction et d'occupation des structures de la première moitié du XV^e siècle. Pour chacune d'entre elles, la moyenne en argent est indiquée (symbole □ et échelle logarithmique).

3.3.2.2.4. Phase 4 : Seconde moitié du XV^e siècle : la mouline

Malgré une activité caractérisée par la production exclusive de fer selon le procédé direct et au moyen d'une mouline⁴³¹, la phase 4 – qui s'ouvre dans la seconde moitié du XV^e siècle – est intégrée à notre étude puisque certaines structures ont livré de la galène. Il s'agit du ferrier 3 et de deux éléments du système hydraulique alimentant en énergie les roues d'une soufflerie et d'un marteau : le réservoir et le canal

⁴³¹ Téreygeol F. et Heckes J., « El vent de les manxes i el poder del mall... », *op. cit.*

(figure 91). Les quantités de galène découvertes sont anecdotiques pour le ferrier 3 et le canal avec respectivement 26 et 47 g. Elles correspondent à des fragments de minéral issus des phases d'activité précédentes et remobilisés lors de la mise en place des structures de la mouline.

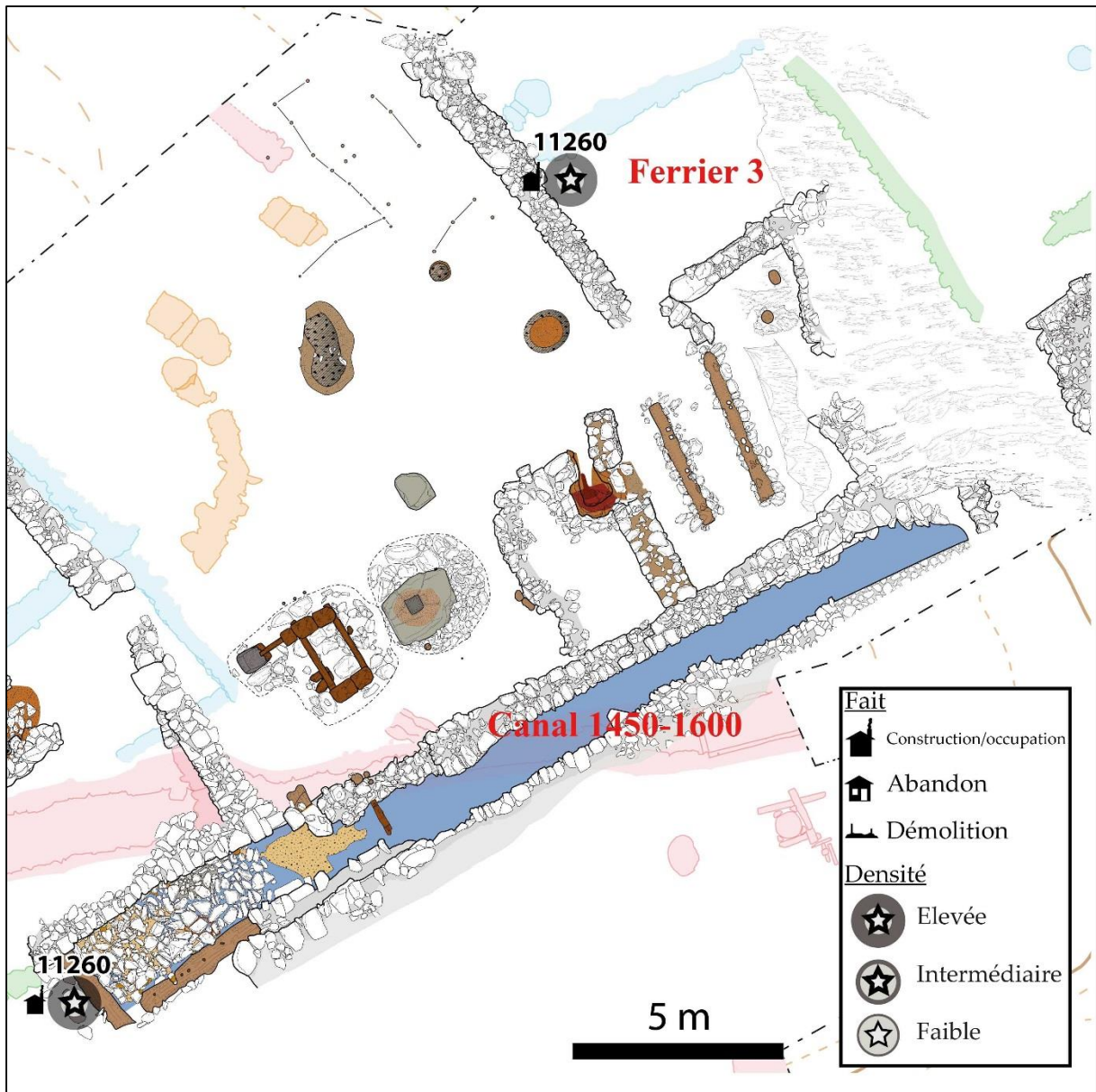


Figure 91 : Distribution de la galène dans les espaces fouillés appartenant à la phase 4. En transparence les structures de la phase 1 (bleu), 2 (vert et orange) et 3 (rouge).

3.3.2.3. Origine de la galène : esquisse d'une parenté par les méthodes statistiques

En première approximation, il est tentant de rapprocher le minerai archéologique découvert dans les ateliers de Castel-Minier du gisement éponyme exploité sur l'autre rive du Garbet et dont la galène contient des minéraux porteurs d'argent similaires. Cependant, cette particularité n'est pas propre à Castel-Minier et a pu être mise en évidence pour certains gisements du Couserans échantillonnés aux cours de nos campagnes de prospection⁴³². Aussi il est nécessaire de considérer l'existence de minerais dont l'origine est distincte de la mine de Castel-Minier voire extérieure à la vallée. En confrontant les propriétés géochimiques des galènes archéologiques aux référentiels établis lors des prospections, grâce à des outils statistiques appropriés, il est possible d'apporter des éléments de réponse à la problématique de l'approvisionnement des ateliers métallurgiques de Castel-Minier.

La démarche méthodologique à laquelle nous avons eu recours s'appuie sur l'analyse statistique multivariée des éléments-traces contenus dans les galènes. Elle s'inspire d'outils mathématiques destinés spécifiquement aux problématiques archéométriques, en particulier ceux développés par les équipes du LAPA et de l'IRAMAT-LMC dans le cadre de thématiques de recherche consacrées à la filiation fer-minerai⁴³³. Le principe repose sur l'utilisation de traceurs élémentaires dont les caractéristiques dans les objets métalliques sont comparées à des référentiels géochimiques. Préalablement, le comportement physico-chimique des éléments-traces du minerai au cours des opérations métallurgiques doit être pleinement compris, en particulier leur partitionnement entre le métal et la scorie, de manière à identifier des

⁴³² *Supra* p. 231.

⁴³³ En dernier lieu, et parmi les nombreuses publications disponibles : Dissler A., Dillmann P., Leroy M., L'Héritier M., Bauvais S. et Fluzin P., « Iron Supply for the Building of Metz Cathedral: New Methodological Development for Provenance Studies and Historical Considerations », *Archaeometry*, 59(3), 2017, p. 493-510 ; Leroy S., Dillmann P., Dissler A., L'Héritier M., Bauvais S. et Fluzin P., « Provenance et circulation des alliages ferreux », *In* Dillmann P. et Bellot-Gurlet L. (éd.), *Circulation des matériaux et des objets dans les sociétés anciennes*, Éditions des archives contemporaines, Paris, 2014, p. 73-101.

traceurs fiables. Ainsi, la conservation de plusieurs rapports élémentaires au sein des inclusions de scories présentes dans le mobilier ferreux a été démontrée : c'est cette propriété qui est exploitée pour établir des liens entre des échantillons et un espace géochimique. A priori, la problématique paraît plus simple à Castel-Minier puisque le mobilier dont on cherche à identifier la provenance est de la même nature que celui qui constitue le référentiel géochimique : dans les deux cas il s'agit de galène qui n'a pas subi de transformation.

Le corpus étudié comprend les galènes issues des fouilles de Castel-Minier ainsi que celles collectées durant les prospections dans la mine éponyme et dans les anciens travaux miniers du Haut-Couserans. Les analyses par LA-ICP-MS de ces minerais ont permis de quantifier plusieurs éléments-traces⁴³⁴ parmi lesquels certains ont été retenus pour l'étude de provenance. Il s'agit tout d'abord de l'antimoine, de l'argent et du bismuth, éléments associés sous la forme de sulfures (miargyrite ou matildite) dans les galènes analysées. Viennent ensuite le cuivre et le zinc qui accompagnent fréquemment (et en faibles quantités) la galène sous la forme d'inclusions de chalcopryrite et de sphalérite (voire de tétraédrite) ou à la suite de substitutions des cations à Pb^{2+} . Enfin, l'étain et le cadmium sont deux métaux présents également à l'état de traces dans les cristaux de galène. Leur incorporation dans le minerai est gouvernée par des mécanismes⁴³⁵ de substitution simples des cations Cd^{2+} et Sn^{2+} (ou Sn^{4+}) à Pb^{2+} . Le thallium n'est pas inclus dans notre étude car son intérêt comme traceur élémentaire est très limité. En effet, sa variance au sein du corpus considéré est quasiment nulle (0,08) ce qui limite fortement l'intérêt de cet élément pour discriminer les minerais. Finalement, les données produites sont considérables tant par le nombre de galènes que par les variables étudiées. Ainsi, la comparaison des teneurs en éléments-traces du mobilier archéologique et du référentiel constitue un défi méthodologique important.

⁴³⁴ Tableau 12 p. 305.

⁴³⁵ George L., Cook N. J., Ciobanu C. L. et Wade B. P., « Trace and Minor Elements in Galena: A Reconnaissance LA-ICP-MS study », *American Mineralogist*, 100, 2015, p. 561 et suivantes.

La normalisation des données est une étape préalable à l'analyse statistique multivariée. En effet, les propriétés de certaines mesures telles que les ordres de grandeur et les variances peuvent influencer les interprétations alors qu'elles ne sont pas significatives au regard des problématiques de provenance⁴³⁶. Parmi les méthodes de normalisation existantes, celle du *logratio* s'avère la mieux adaptée aux données reflétant la composition chimique. En outre, elle permet de conserver les corrélations entre éléments⁴³⁷. Les teneurs normalisées de chaque élément ont été calculées suivant la formule :

$$[X]_{norm} = \log_{10}([X]) - \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \log_{10}([E_k])$$

Où [X] représente la teneur de l'élément à normaliser tandis que les [E_k] représentent les teneurs des éléments retenus pour l'étude (antimoine, argent, bismuth, cuivre, zinc, étain et cadmium).

Une analyse en composante principale (ACP) est d'abord réalisée au moyen du logiciel XLSTAT sur le référentiel géochimique de manière à déterminer si les sources peuvent être distinguées à partir des données géochimiques dont nous disposons (figure 92). L'intérêt de l'ACP réside dans la possibilité de représenter les informations d'un jeu de données multivariées sur un nombre limité de plans constitués de composantes principales. Ce mode de visualisation permet d'évaluer plus facilement la ressemblance entre les individus.

Un premier niveau d'analyse concerne la discrimination du gisement de Castel-Minier et des autres travaux miniers du Haut-Couserans. On constate tout d'abord

⁴³⁶ Disser A., *Production et circulation du fer en Lorraine (VI^e s. av. J.-C. - XV^e s. ap. J.-C.)*, thèse de 3^e cycle, Université de technologie de Belfort-Montbéliard, 2014, p. 114. C'est le cas dans notre étude, par exemple, des teneurs en zinc. L'amplitude des mesures est élevée ce qui ne signifie pas nécessairement des provenances différentes, mais plutôt la présence d'inclusions de sphalérite dans la galène.

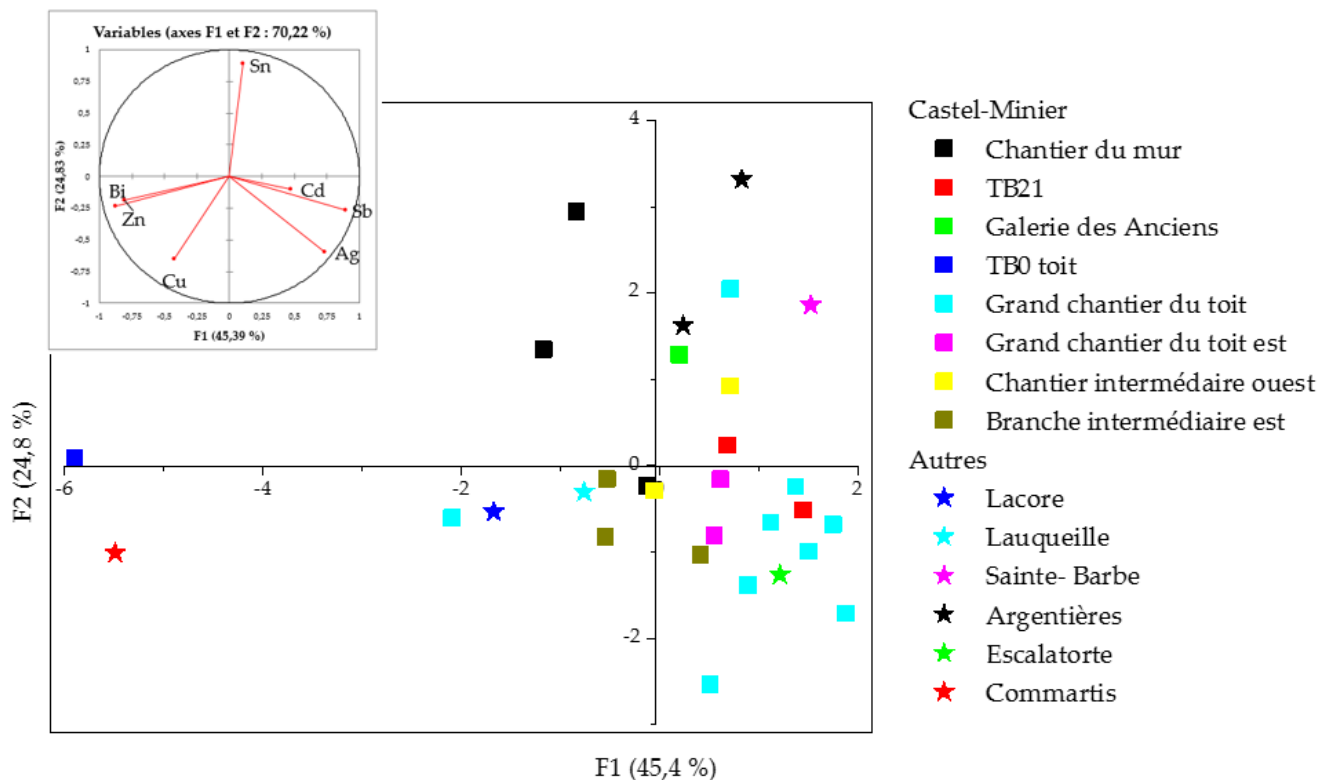
⁴³⁷ Disser A., Dillmann P., Leroy M., L'Héritier M., Bauvais S. et Fluzin P., « Iron Supply for the Building... », *op. cit.*, p. 499.

l'individualisation très nette de la galène de Commartis (figure 92), gisement situé dans la vallée de l'Ars, qui contient des teneurs en bismuth et en zinc très élevées par rapport aux autres individus du corpus. Dans une moindre mesure, cette particularité s'applique également au minerai provenant de la mine de Lacore (figure 92). La mine de Sainte-Barbe située sur le Pouech de Gouaff qui domine la rive gauche du Garbet a fourni une galène qui se distingue des autres membres du corpus par l'absence de cuivre et une teneur en étain significative. Le même comportement est constaté pour un des deux échantillons de galène provenant de la mine des Argentières. En revanche, il n'est pas possible de distinguer les galènes des travaux miniers de Lauqueille et d'Escalortte de celles de la mine de Castel-Minier (figure 92). La proximité des gisements de Lauqueille et de Castel-Minier permet d'envisager un épisode minéralisateur similaire voire synchrone qui a conduit à la formation de galènes aux propriétés géochimiques proches. En revanche, cette explication s'applique mal au cas de la mine d'Escalortte. Ce gisement se trouve dans le district minier de Seix qui diffère de celui de Castel-Minier sur le plan métallogénique⁴³⁸. La similitude entre les deux galènes n'est donc pas aisée à interpréter.

Le second niveau d'analyse s'intéresse exclusivement aux galènes issues des prospections dans la mine de Castel-Minier dans l'espoir de distinguer géochimiquement les différents secteurs d'abattage. Les galènes des Grands chantiers du toit se distinguent par une corrélation entre l'argent, l'antimoine et le cadmium (figure 92). Quant au Chantier du mur et à la galerie des Anciens, c'est essentiellement la présence d'étain dans les galènes qui les distingue des autres secteurs. La portion du TB0 ayant recoupé le filon du toit a rencontré une galène particulière avec une teneur en bismuth très élevée traduisant la présence de matildite. Il est difficile d'affiner davantage la discrimination pour les autres secteurs. Nous approchons ici les limites de la méthode qui, rappelons-le, est appliquée à l'échelle d'un gisement et non à celle d'un district minier comme c'est habituellement le cas dans les études de

⁴³⁸ Gramont X. de, « Les mines d'Aulus... », p. 483.

provenance. La résolution pourrait être améliorée utilisant des traceurs élémentaires supplémentaires⁴³⁹.



Une fois les possibilités de discrimination de notre référentiel connues, les galènes archéologiques de Castel-Minier peuvent être intégrées à l'analyse statistique dans le but de tester leur compatibilité avec les sources identifiées. Les enseignements tirés de l'ACP permettent de dégager quelques grandes tendances de l'approvisionnement du site au cours de la période médiévale. Ainsi, la plupart des galènes archéologiques présentent des caractéristiques géochimiques similaires aux minerais issus de la mine de Castel-Minier (figure 93). Quelques individus s'écartent néanmoins de ce schéma général : ils se différencient par une corrélation entre le

⁴³⁹ Nous pensons en particulier au sélénium et au mercure qui peuvent être de bons traceurs élémentaires de la galène. Les matériaux de référence dont nous disposons ne nous ont pas permis de les quantifier.

bismuth et l'étain et entre le cadmium et le zinc. En outre, certains gisements peuvent d'ores et déjà être exclus de la liste des sources d'approvisionnement des ateliers. C'est le cas des travaux de Commartis et de la partie inférieure du filon du toit au niveau 0 (TB0 toit, figure 93). La minéralisation de Commartis est de faible envergure et les volumes extraits sont limités. En outre, les sources textuelles suggèrent que l'exploitation n'est pas antérieure au XIX^e siècle⁴⁴⁰. Quant au minerai provenant du TB0, il est issu de la base du filon du toit atteinte lors de l'extension moderne de cet ouvrage qui a également recoupé des travaux plus anciens. Les problèmes posés par l'exhaure à ce niveau d'exploitation durant la période médiévale ont compliqué l'extraction d'une galène aux propriétés géochimiques particulières dont la contribution à l'approvisionnement des ateliers de Castel-Minier n'a pas été mise en évidence.

⁴⁴⁰ *Infra* p. 206.

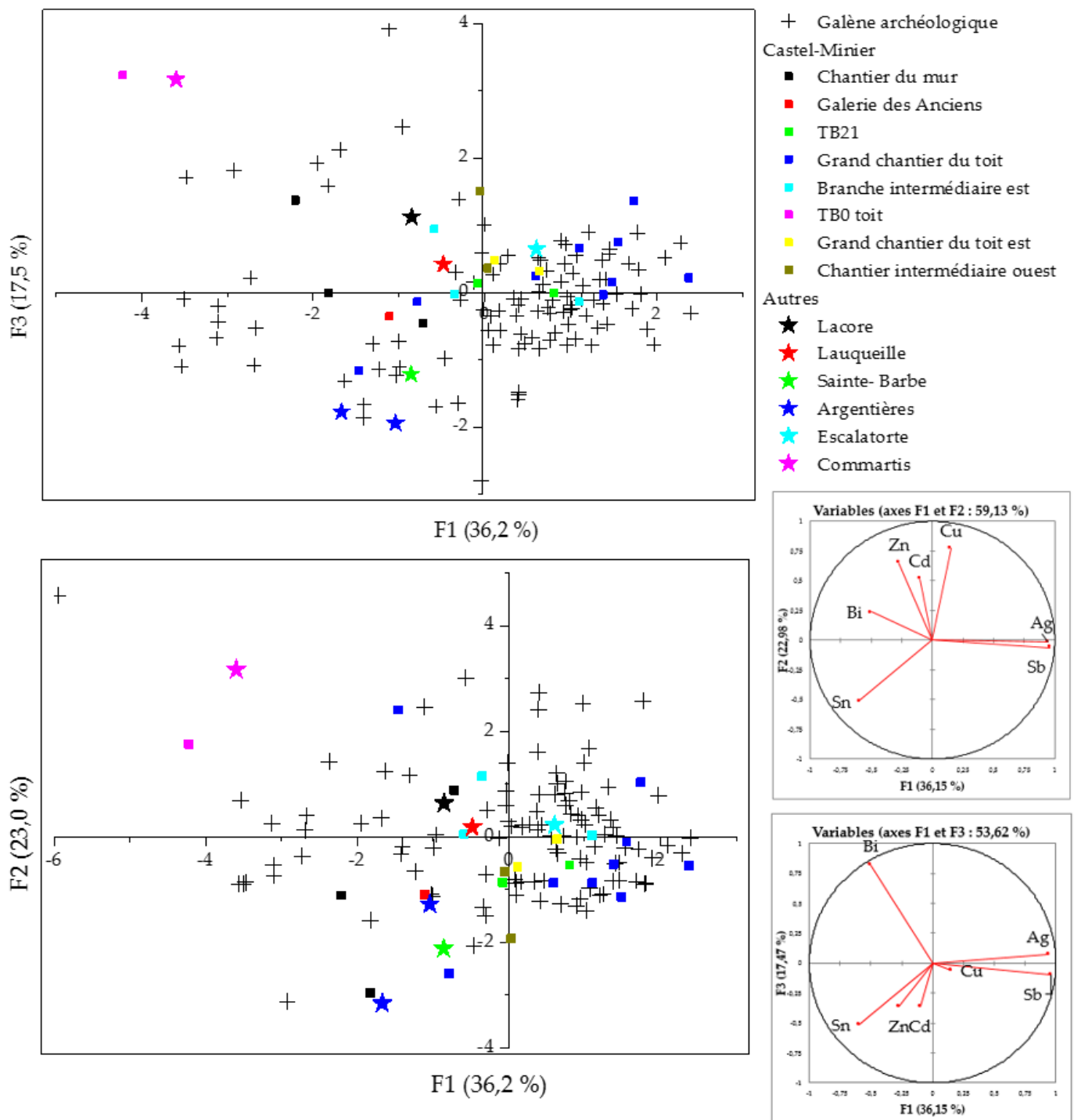


Figure 93 : Premiers plans de l'ACP réalisée sur les galènes de référence et les galènes archéologiques définies par sept éléments-traces normalisés avec la méthode du *logratio*. F1 + F2 = 56,2 % de la variabilité, F1 + F3 = 53,6 % de variabilité.

Les résultats présentés sur la figure 93 ne permettent pas d'effectuer aisément des rapprochements entre les gisements et la galène issue des zones de fouille. Afin de construire un schéma d'approvisionnement des ateliers plus précis, nous avons eu

recours à la méthode de classification ascendante hiérarchique (CAH) avec pour objectif la création de groupes de galènes présentant des propriétés géochimiques communes. Cet outil de classification itérative consiste à calculer la dissimilarité (sur un critère de distance) entre toutes les observations puis de regrouper les deux individus les plus semblables pour former une classe. À nouveau, la dissimilarité entre cette classe et les individus restants est calculée puis un regroupement supplémentaire est effectué pour former une nouvelle classe. L'itération est répétée jusqu'à ce que tous les individus soient regroupés dans une unique classe. L'algorithme de classification utilisé est fondé sur la méthode du saut de Ward qui permet de maximiser la variance interclasse et de minimiser la variance intraclasse. Il est préférable de réaliser la CAH sur les composantes principales de l'ACP plutôt que sur les variables normalisées⁴⁴¹. En suivant les recommandations de Dissier *et al.*⁴⁴², les composantes retenues doivent représenter 90 % de la variabilité cumulée ce qui dans notre cas nécessite de considérer les quatre premières. Finalement, on obtient un dendrogramme qui retrace le processus de formation des classes (figure 94). Le choix du nombre de classes retenues est arrêté lorsque la perte d'inertie ne varie plus de manière significative entre deux itérations.

⁴⁴¹ Husson F., Josse J. et Pagès J., *Principal component methods - hierarchical clustering - partitional clustering: why would we need to choose for visualizing data?*, document en ligne, consulté le 6 juin 2017, [http://factominer.free.fr/more/HCPC_husson_josse.pdf].

⁴⁴² Dissier A., Dillmann P., Leroy M., L'Héritier M., Bauvais S. et Fluzin P., « Iron Supply for the Building... », *op. cit.*, p. 499.

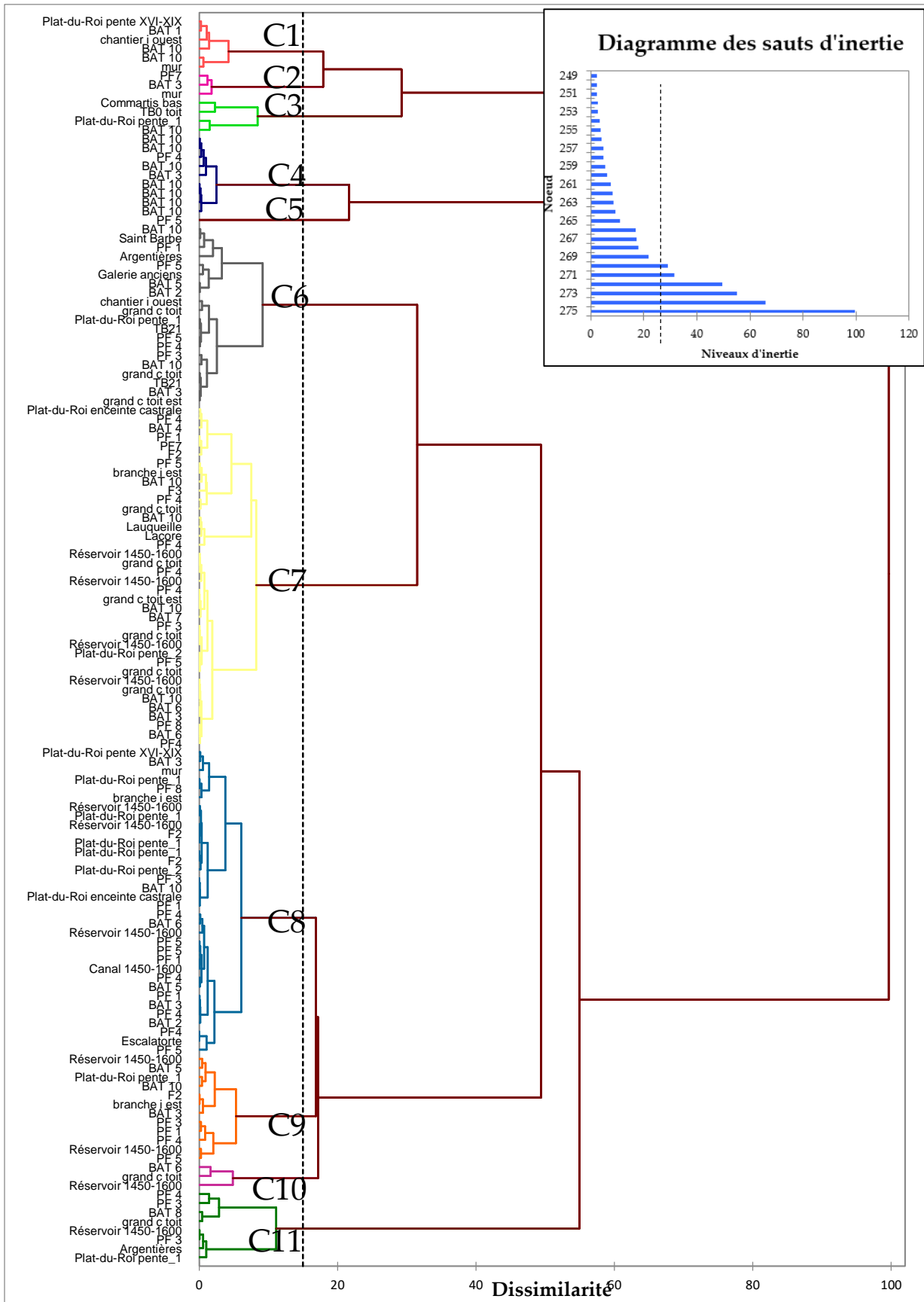


Figure 94 : Dendrogramme montrant les résultats de la classification ascendante hiérarchique réalisée sur les quatre premières composantes principales de l'ACP. En incrustation, représentation des sauts d'inertie du jeu de données à chaque création de groupe.

Les résultats de la CAH permettent de constituer onze classes d'importances inégales (figure 94). Les deux classes principales (C7 et C8) concentrent la majorité du minerai archéologique. La classe C7 regroupe plusieurs minerais issus de la mine de Castel-Minier. Ils proviennent des Grands chantiers du toit et de ses extensions orientales. On y trouve également les galènes de Lacore et de Lauqueille. Quant aux minerais archéologiques, ils ont été découverts principalement dans le bâtiment 10, la plate-forme 4 et les niveaux anciens du réservoir (bâtiment 11).

La situation est différente pour la classe C8 dans laquelle le minerai issu du référentiel est représenté uniquement par le Chantier du mur de la mine de Castel-Minier et les travaux d'Escalatorte⁴⁴³. Cette faible compatibilité avec les galènes archéologiques (issues principalement du Plat-du-Roi, du bâtiment 3 et des plates-formes 1, 4 et 5) peut suggérer une source d'approvisionnement différente absente de notre référentiel, comme par exemple l'important gisement des Raspes.

La classe C1 rassemble une galène du Chantier du mur, une autre du Chantier intermédiaire ouest ainsi que quelques galènes archéologiques provenant des bâtiments 1 et 10. Ces résultats attestent de l'exploitation du Chantier du mur dans le courant du XIV^e siècle et confirment les interprétations fondées sur les données de l'archéologie minière. À la même période, le minerai du Chantier intermédiaire ouest approvisionne également les ateliers de Castel-Minier.

La classe C2 contient à nouveau de la galène issue du Chantier du mur qui présente peu de similitudes avec le minerai archéologique à l'exception de deux individus. La composition de la classe 3 est intéressante : la galène de Commartis et du TB0 y est accompagnée seulement par deux individus archéologiques. L'analyse statistique confirme donc la particularité de ces travaux miniers que l'on peut exclure des sources potentielles de minerai pour la période médiévale.

La classe C4 est atypique puisqu'elle regroupe en majorité des galènes issues

⁴⁴³ Rappelons que l'analyse statistique ne permet pas de différencier ce gisement de celui de Castel-Minier.

du bâtiment 10 qui ne partagent pas de similitudes avec le référentiel. Il faut donc envisager une fois encore l'existence d'une source inconnue ou pour laquelle nous ne disposons pas de données géochimiques (par exemple la mine des Raspes). Nous mettons donc en évidence pour le XIV^e siècle, période d'apogée de Castel-Minier si l'on en croît les sources écrites, un système d'approvisionnement combinant des gisements divers.

La classe C6 est plus hétérogène avec d'une part des minerais provenant de gisements de la vallée du Garbet (Sainte-Barbe et les Argentières), mais également de la mine de Castel-Minier (Chantier du mur, Chantier intermédiaire ouest) et d'autre part des galènes archéologiques découvertes dans diverses structures sans qu'une tendance se dessine. Les limites de la discrimination sont atteintes ici, notamment l'impossibilité d'affiner la dissociation des galènes du référentiel.

Les galènes archéologiques de la classe C9 sont uniquement compatibles avec le minerai issu de la Branche intermédiaire est de la mine de Castel-Minier. Il est intéressant de constater qu'une partie d'entre elles ont été découvertes dans des contextes de la fin du XIII^e siècle (plates-formes 1 et 5 et bâtiment 5) ce qui témoigne de l'exploitation précoce de la ramification orientale du filon du toit.

Enfin, la classe C10 ne regroupe que trois individus dont l'un provient du Chantier du toit tandis que la classes C11 est constituée de galènes archéologiques découvertes dans des structures de la première moitié du XIV^e siècle (plates-formes 3 et 4 et Plat-du-Roi phase 1) dont les propriétés géochimiques sont similaires à celles du minerai du Grand chantier du toit et des Argentières. La présence de ce dernier gisement parmi les sources d'approvisionnement des ateliers de Castel-Minier peut étonner puisque nous avons évoqué une exploitation antique qui ne semble pas s'être poursuivie à la période médiévale⁴⁴⁴. Néanmoins, nous disposons d'analyses élémentaires pour deux fragments de galène issus de ce gisement ce qui ne permet pas de le distinguer complètement de la mine de Castel-Minier après analyse statistique.

⁴⁴⁴ *Supra* p. 206.

Il faut donc considérer avec prudence un approvisionnement des ateliers métallurgiques médiévaux à partir du gisement des Argentières⁴⁴⁵.

En résumé, les sources d'approvisionnement en galène du site de Castel-Minier sont diverses. La majeure partie du minerai provient de la mine éponyme dont l'ampleur des travaux d'extraction illustre le statut privilégié de ce gisement exploité de la fin du XIII^e siècle au milieu du XV^e siècle. Néanmoins, des minéralisations plus modestes de la vallée du Garbet, notamment les travaux de Sainte-Barbe, Lauquille et Lacore ont ponctuellement alimenté les ateliers métallurgiques. Enfin, la provenance d'une partie de la galène archéologique n'a pas pu être déterminée. Il faut donc envisager l'existence de gisements supplémentaires qui ne sont pas intégrés à notre référentiel. C'est le cas de la mine des Raspes dont l'ampleur et l'origine médiévale présumée d'une partie des travaux d'extraction en font un acteur probable du réseau d'approvisionnement de Castel-Minier. Les sources écrites relatives au procès entre les exploitants de la mine d'Aulus et le vicomte de Couserans font d'ailleurs référence à un toponyme, « le passio », qui pourrait désigner un site d'extraction sur le Pouech de Gouaff et donc le gisement des Raspes⁴⁴⁶. Rappelons-le, l'état de délabrement du réseau souterrain des Raspes interdit son accès. Malgré plusieurs tentatives d'exploration par des spéléologues équipés de matériel adéquat, le projet d'échantillonnage de cette mine a dû être abandonné pour des raisons de sécurité. Enfin, les minerais des anciens gisements peuvent présenter des variations géochimiques importantes comme cela a été démontré pour les filons de la mine de Castel-Minier. Ainsi, la représentativité de notre référentiel doit être questionnée puisque plusieurs gisements n'ont pas pu être échantillonnés exhaustivement. Il est donc possible que certains minerais archéologiques dont l'origine n'a pas pu être déterminée proviennent tout de même de ces gisements.

⁴⁴⁵ Approvisionnement minime de surcroît vu le faible nombre de minerais archéologiques présents dans la classe C11.

⁴⁴⁶ *Supra* p. 218.

3.3.3. La chalcoppyrite

3.3.3.1. Description du minéral et analyse élémentaire

La chalcoppyrite, sulfure de fer et de cuivre (CuFeS_2), fait partie des sources de cuivre potentiellement exploitées durant la période médiévale. Le traitement de ce sulfure polymétallique est plus complexe que celui des minerais de cuivre monométalliques tels que les oxydes, les hydroxydes et les carbonates. Le soufre, nuisible aux opérations pyrométallurgiques, doit être éliminé de même que le fer. À Castel-Minier, la présence archéologique de chalcoppyrite est discrète avec seulement quatre fragments représentant une masse de 77 g. L'identification du minéral se fonde sur des critères visuels, notamment la présence de produits d'altération (oxydes de cuivre et de fer) entourant les fragments mis au jour (figure 95). La cassure conchoïdale de la chalcoppyrite fait apparaître une couleur jaune à l'éclat métallique caractéristique. La densité de ce minéral, comprise entre 4,1 et 4,3, est beaucoup plus faible que celle de la galène.



Figure 95 : Échantillon de la chalcoppyrite CL 11809. La couleur rouille indique la présence d'oxydes et d'hydroxydes de fer.

Des analyses par LA-ICP-MS ont été conduites sur deux individus de chalcoppyrite. L'impossibilité d'analyser la totalité du corpus tient à la faible masse de certains fragments, mais également à leur nature composite qui découle d'un mélange intime entre la galène et la sphalérite. L'analyse de tels minerais fournit des résultats hétérogènes et difficilement exploitables. Les principaux éléments-traces qui composent les chalcoppyrites archéologiques sont le zinc, le plomb, l'antimoine et l'argent (tableau 15).

Élément	CL 12783	CI 12809
S	36,0 %	33,8 %
Fe	30,9 %	35,4 %
Cu	33,1 %	30,4 %
Ni	-	21
Zn	305	654
As	-	-
Ag	30	42
Sn	-	7,9
Sb	4,7	22
Au	1,5	-
Pb	22	2254
Bi	-	-

Tableau 15 : Composition élémentaire des chalcoppyrites archéologiques déterminée par LA-ICP-MS.
Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm.

3.3.3.2. Spatialisation de la ressource

La distribution des fragments de chalcoppyrite sur le site permet d'identifier des espaces de travail dans lesquels la métallurgie extractive du cuivre semble avoir été privilégiée (figure 96). Si la taille réduite du corpus suggère une activité ponctuelle, elle n'en fut pas moins pérenne puisque la chalcoppyrite archéologique se répartit dans des contextes qui s'échelonnent de la fin du XIII^e siècle au milieu du XV^e siècle. Sur la plate-forme 5 tout d'abord, elle se trouve associée à des foyers circulaires utilisés à la fin du XIII^e siècle. Dans le bâtiment 10 qui renferme les fours en granite, un fragment

de chalcopryrite a été identifié parmi les blocs de galène de densité élevée. Deux hypothèses peuvent être avancées pour expliquer la présence de chalcopryrite au sein de ce dépôt. Premièrement, l'incorporation peut être involontaire : associée étroitement à la galène au sein de la minéralisation exploitée, la chalcopryrite a pu échapper au tri manuel et une certaine proportion s'est retrouvée mêlée à la galène. La seconde hypothèse considère la chalcopryrite comme le reliquat d'une charge de minerai introduite dans les fours lors d'une précédente réduction. Elle implique donc l'extraction en alternance du plomb argentifère et du cuivre selon les opportunités livrées par l'extraction minière.

Dans le bâtiment 6, occupé dans la première moitié du XV^e siècle, les niveaux d'abandon contenaient un corpus de galènes au sein duquel se trouvait un fragment de chalcopryrite. Comme nous l'avons déjà exposé, La fonction du bâtiment 6 peut vraisemblablement être rapprochée des opérations d'essai des minerais ou d'affinage des métaux⁴⁴⁷. Dans cette optique, la présence de chalcopryrite témoigne de la volonté de tester le comportement au feu de ce minerai et d'apprécier le rendement d'extraction du cuivre.

Enfin, au milieu du XV^e siècle, la chalcopryrite se trouve à nouveau associée aux opérations métallurgiques, plus précisément aux structures de chauffe de la plateforme 3. La teneur en plomb particulièrement élevée du minerai (CL 11809, tableau 15) est imputable aux inclusions de galène disséminées dans le cristal. De même, les inclusions microscopiques de sphalérite sont à l'origine de la concentration significative en zinc.

La présence de chalcopryrite dans les espaces présentés ci-dessous n'est pas suffisante pour affirmer que des opérations métallurgiques s'y sont effectivement déroulées. Ces lieux peuvent être par exemple destinés au remisage du minerai ou à sa préparation. Néanmoins, ils permettent d'esquisser une première spatialisation de potentielles activités métallurgiques intéressant le cuivre et dont la réalité devra être

⁴⁴⁷ *Supra* p. 293.

éprouvée par l'étude des structures de chauffe, des produits métalliques et des sous-produits scoriacés.

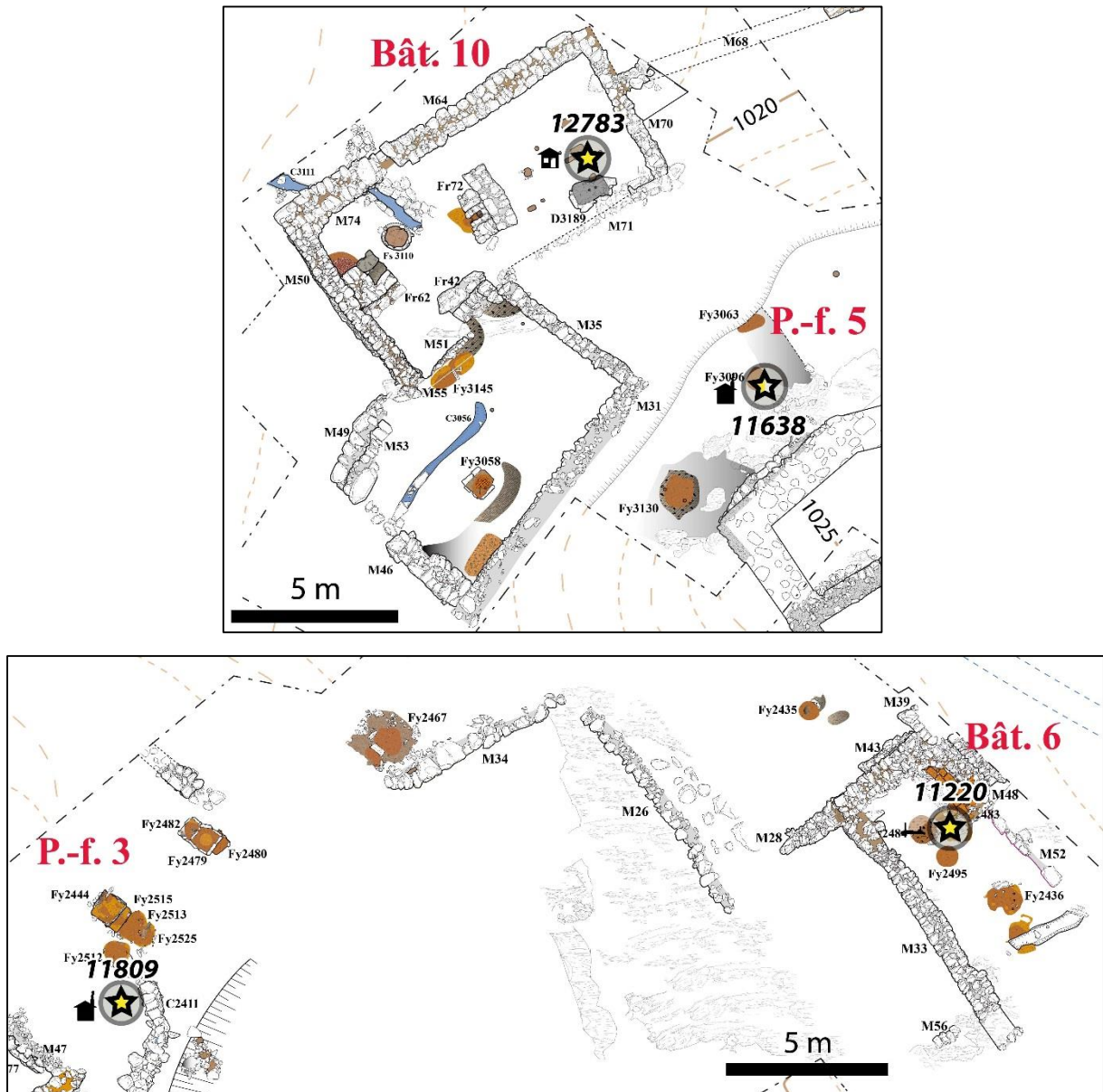


Figure 96 : Distribution de la chalcopyrite sur le site de Castel-Minier.

3.3.3.3. Provenance de la chalcopyrite

Nous avons déjà montré que la chalcopyrite se rencontre fréquemment dans les gisements du Couserans, la plupart du temps en association avec d'autres sulfures métalliques. C'est le cas dans la vallée du Garbet, mais également dans le secteur de

Seix. La confrontation des teneurs en éléments-traces des chalcopyrites archéologiques et de celles issues des prospections dans le Haut-Couserans permet de dégager quelques hypothèses de provenance et de discuter les logiques d'approvisionnement des ateliers de Castel-Minier. Les résultats des analyses élémentaires ont été exploités avec une méthode de statistique multivariée, l'analyse en composantes principales (ACP) déjà présentée (figure 97). Les éléments-traces retenus pour l'ACP sont l'argent, l'antimoine, le plomb, le nickel, le zinc et l'étain. Les autres éléments-traces tels que l'or ou l'arsenic ont été exclus car leurs teneurs sont généralement inférieures aux limites de détection de la méthode LA-ICP-MS.

Les résultats de l'ACP mettent en évidence la singularité de la chalcopyrite issue du filon du mur de la mine de Castel-Minier qui se distingue du minerai provenant des autres gisements par une teneur en plomb élevée. De la même manière, la teneur élevée en argent du minerai provenant de la mine d'Escalatorde, dans le district de Seix, permet de le démarquer des autres individus du corpus.

La chalcopyrite archéologique CL 12809 se caractérise par des teneurs en zinc et en nickel élevées par rapport aux autres minerais du corpus (figure 97). Cette particularité provient de l'incorporation de sphalérite dans le minéral. L'individu CL 11089 ne présente pas de similarité avec les chalcopyrites de la mine de Castel-Minier et des autres gisements prospectés. Aussi, avec les données dont nous disposons, il n'est pas possible d'identifier la source de ce minerai.

La situation est différente pour la chalcopyrite CL 12783 et les interprétations plus abouties puisque plusieurs hypothèses de provenances peuvent être discutées. La première se fonde sur la similarité avec le minerai du gisement de la Chassotte qui pourrait suggérer une origine commune. Néanmoins cette hypothèse est affaiblie par les données historiques : les travaux de faible envergure conduits à la Chassotte ne sont pas antérieurs à la période 1856-1863⁴⁴⁸. Un raisonnement similaire permet d'exclure l'hypothèse d'un approvisionnement depuis le gisement Fanny, dans le

⁴⁴⁸ *Supra* p. 206.

district de Seix⁴⁴⁹. Les sources potentielles restantes sont le puits 1136, qui surplombe la pâture d'Agneserre, et le filon du toit de la mine de de Castel-Minier (figure 97). S'il est une source d'approvisionnement potentielle pour les mineurs médiévaux, le puits 1136 n'a pas fait l'objet de recherches archéologiques et se trouve aujourd'hui comblé. De surcroît sa datation pose problème puisque le qualificatif « ancien » qui lui est apposé en 1913 n'indique pas nécessairement une origine médiévale. Dans l'attente de travaux d'archéologie minière, il faut donc considérer ce gisement avec prudence.

Le cas du filon du toit de la mine de Castel-Minier est différent. Les travaux d'extraction qui concernent cette minéralisation se composent de plusieurs chantiers d'abattage de grande ampleur ayant livré des minerais sulfurés variés. Parmi ceux-ci figure la chalcopryrite que nous avons rencontrée en deux endroits lors de nos prospections, dans les Grands chantiers du toit et dans sa ramification orientale. Dans les Grands chantiers du toit, la chalcopryrite a été atteinte par les mineurs médiévaux au prix d'un approfondissement considérable de l'extraction atteignant le niveau +16. Le filon du toit présente vers l'est de nombreuses ramifications de faible puissance. Le minerai, en particulier la chalcopryrite, y a été extrait avec plus de difficultés en recourant à l'abattage au feu.

La chalcopryrite archéologique CL 12783 provient du bâtiment 10, actif au cours du XIV^e siècle. Donc, en suivant l'hypothèse d'une filiation de ce minerai avec le filon du toit, il est possible d'affirmer que les niveaux d'extraction de la mine de Castel-Minier que nous avons décrits (Grands chantiers du toit et Grands chantiers du toit est) sont atteints dès cette période. Ce résultat démontre la pertinence d'une approche spatiale, chronologique et archéométrique du minerai pour comprendre l'évolution de l'exploitation minière tant sur le plan de la nature des ressources qu'elle fournit que sur les dynamiques d'extraction.

⁴⁴⁹ *Supra* p. 226.

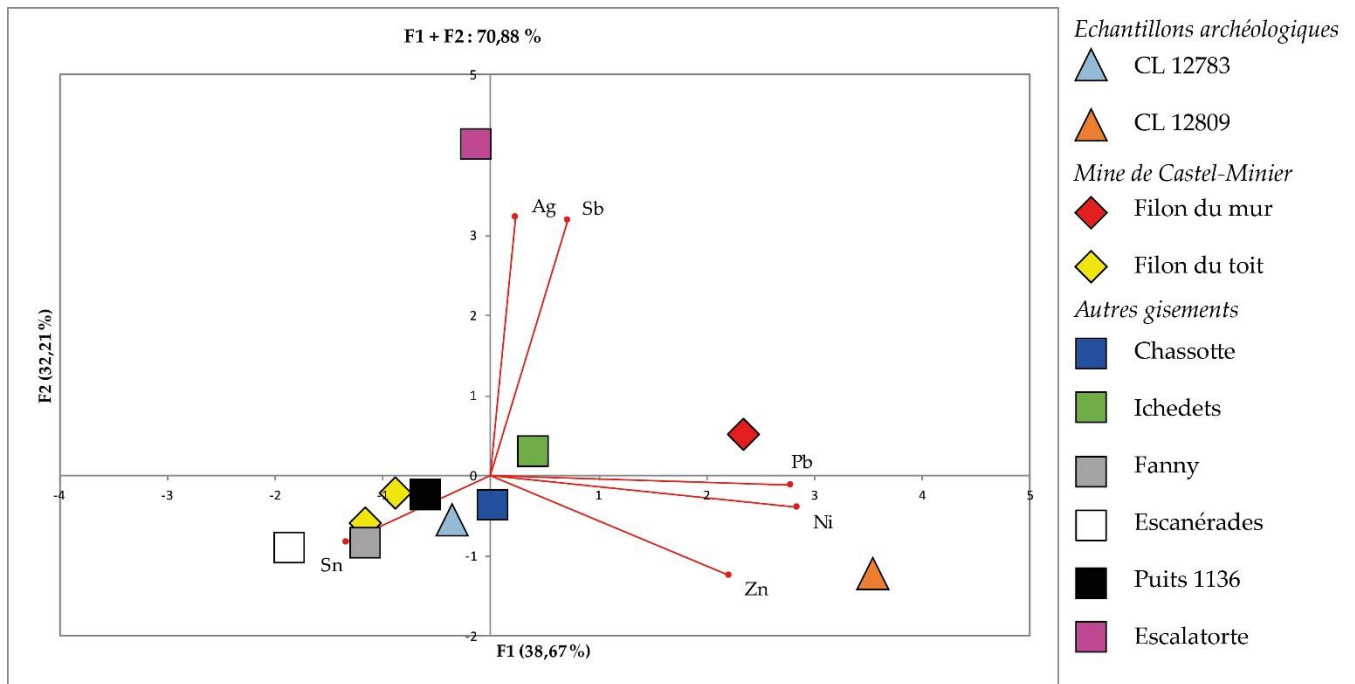


Figure 97 : Premier plan de l'ACP réalisée sur le référentiel (défini par six éléments-traces) de chalcopyrites et sur les exemplaires découverts en contexte archéologique.

3.3.4. La bournonite

3.3.4.1. Description du minéral et analyse élémentaire

La bournonite est un minéral polymétallique dont les éléments majeurs sont le soufre, le cuivre, l'antimoine et le plomb (CuPbSbS_3). L'aspect macroscopique du minéral est similaire à celui des minerais de type « cuivre gris », en particulier la tétraédrite dont il partage la couleur (figure 98). La confusion peut être levée en observant la géométrie des cristaux avec une loupe binoculaire ou en réalisant une analyse par spectrométrie Raman. La bournonite archéologique est représentée par quatre fragments formant un corpus de 115,4 g. Trois d'entre eux sont des fragments exempts de gangue avec une densité moyenne de $4,9 \pm 0,1$. Quant au quatrième individu, il contient une fraction de gangue quartzeuse (figure 98).

Durant la période médiévale, l'exploitation de la bournonite est peu documentée. Absent des sources textuelles, ce minéral a pu être identifié sur quelques sites d'extraction grâce à des travaux d'archéologie minière pluridisciplinaires. C'est

le cas du district minier du Siegerland (sud de la Rhénanie-du-Nord-Westphalie) et plus particulièrement du secteur de l'Altenberg. Ce site d'extraction minière actif au XIII^e siècle concentre également un habitat. La fouille d'un bâtiment en pierre élevé à proximité d'un puits donnant accès au réseau minier a livré un fragment de bournonite mêlé à de la galène⁴⁵⁰. Faute d'analyse archéométrique, il n'est pas possible de conclure quant à la composition élémentaire de ce minerai, notamment la présence d'argent.

Les données sont plus précises dans le district minier de Brandes où la bournonite existe à l'état de mouches disséminées dans une gangue de baryte et/ou de quartz dans le secteur du lac Blanc d'Huez⁴⁵¹. Marie-Christine Bailly-Maître avance l'hypothèse d'un broyage du minerai au moulin hydraulique pour récupérer la bournonite dont la nature argentifère aurait justifié l'extraction. Dans le Gard, l'important district minier d'Hierle, actif entre le XI^e et le début du XV^e siècle, a également livré de la bournonite argentifère aux métallurgistes médiévaux⁴⁵². À Castel-Minier, la situation est bien différente. En effet, l'analyse élémentaire par LA-ICP-MS de la bournonite révèle la relative pureté des cristaux dont le principal élément-trace est l'arsenic (tableau 16). Les teneurs anecdotiques en argent permettent donc d'écarter l'hypothèse d'une exploitation de la bournonite pour le métal blanc. En revanche les constituants majeurs de ce minerai polymétallique ont pu faire l'objet d'une valorisation par les métallurgistes médiévaux.

⁴⁵⁰ Dahm C., Lobbedey U. et Weisgerber G., *Der Altenberg. Bergwerk und Siedlung aus dem 13. Jahrhundert im Siegerland. Band 1: Die Befunde*, Habelt, Bonn, 1998, p. 94.

⁴⁵¹ Bailly-Maître M.-C., « Extraction et traitement d'un minerai... », *op. cit.*, p. 230-231.

⁴⁵² Bailly-Maître M.-C. et Ancel B., « Au carrefour des sources et de la pratique. Le district minier médiéval d'Hierle, Saint-Laurent-le-Minier (Gard, France) », *I codici minerari nell'europa preindustriale: archeologia e storia, Iglesias - Massa Marittima, 4-8 décembre 2008*, Farinelli R. et Santinucci G. (éd.), All'Insegna del Giglio, Sesto Fiorentino, 2014, p. 23.

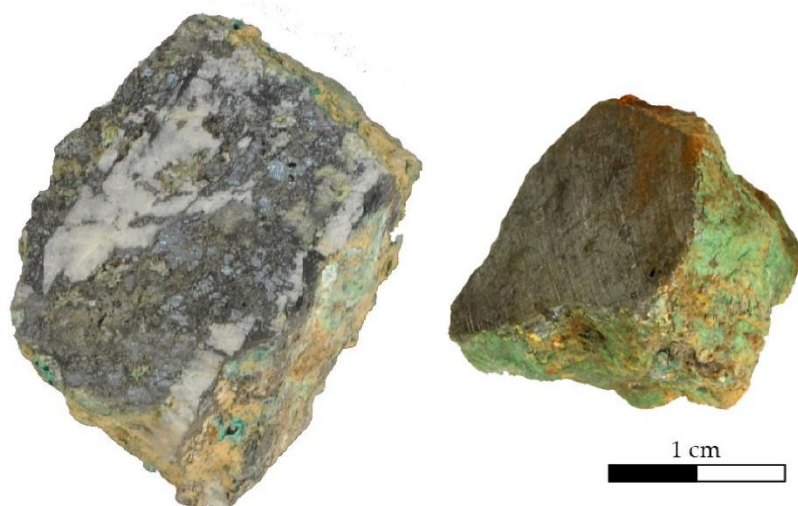


Figure 98 : Observation sur cassure fraîche de deux échantillons de bournonite découverts en contexte archéologique, CL 10977 (gauche) et CL 11413 (droite).

Élément	CL 10977	CL 11413
S	7,0 %	18,4 %
Cu	18,6 %	17,5 %
Sb	29,0 %	23,2 %
Pb	45,3 %	40,8 %
Ni	2,3	1,9
Zn	89	54
As	515	346
Pd	24	16
Ag	97	26
Sn	-	-
Au	-	-
Tl	2,6	3,2
Bi	2,9	1,7

Tableau 16 : Analyse LA-ICP-MS des bournonites archéologiques.
Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm.

3.3.4.2. Spatialisation de la ressource

Malgré la modestie du corpus de bournonite, la distribution spatiale de ce minerai est riche d'enseignements pour la compréhension fonctionnelle du site de Castel-Minier. Ainsi, la bournonite n'existe que dans la partie sud-est du site, dans une zone restreinte circonscrite au ferrier 2 et au Plat-du-Roi (figure 99). Dans ce dernier

espace, les occurrences concernent aussi bien la zone intra-muraille que la pente qui s'ouvre à son pied vers le sud et le Garbet.

Les contextes de découverte sont datés du XV^e siècle. Les échantillons CL 11413 et CL 12174 sont associés à un fait d'occupation tandis que l'échantillon CL 12295 fait partie d'une unité stratigraphique contenant des scories cuivreuses et des soles de réacteur et qui s'apparente à un épandage marquant l'abandon des activités métallurgiques non-ferreuses sur le Plat-du-Roi. En outre, un fragment de bournonite a été mis au jour dans le ferrier 2. Cet amas de scories de fer qui témoigne d'une activité sidérurgique ayant pris place au sommet du bourrelet morainique s'est constitué tout au long d'une période qui s'étend du début du XIV^e siècle à la première moitié du XV^e siècle. Cependant, la bournonite incluse dans les niveaux archéologiques les plus récents est contemporaine de ses homologues du Plat-du-Roi. Les métallurgies du cuivre et du fer ont donc coexisté jusqu'au milieu du XV^e siècle dans l'enceinte castrale.

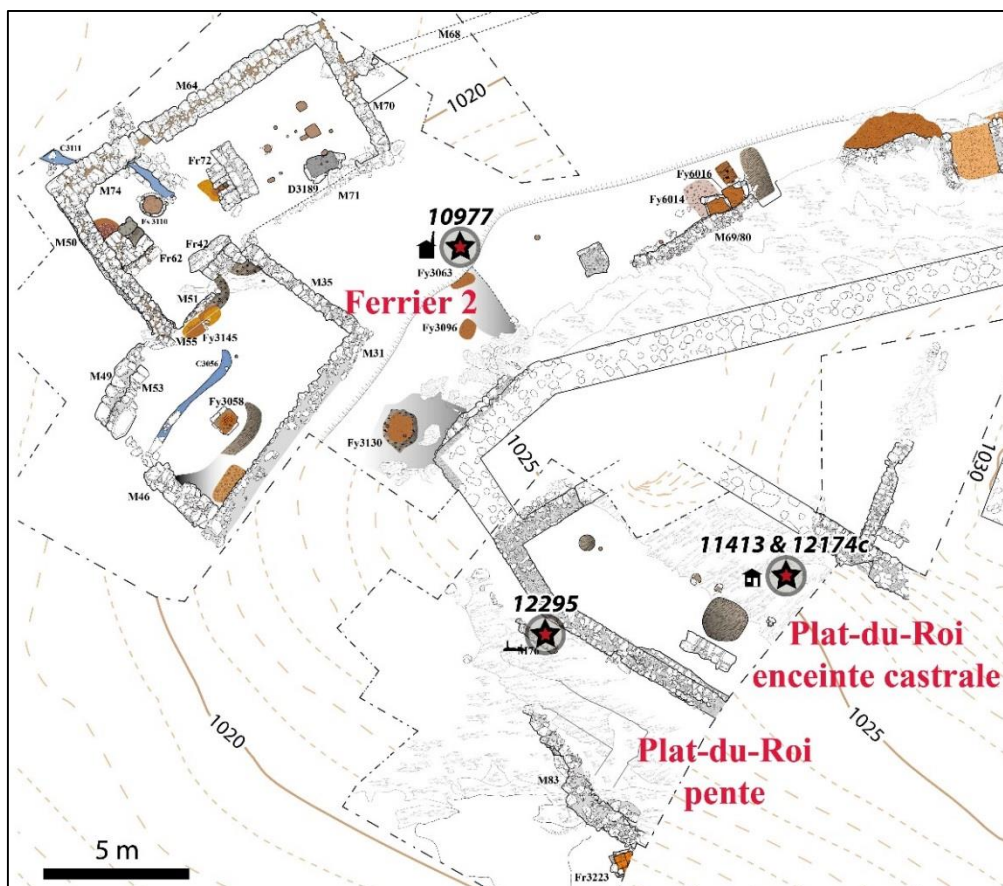


Figure 99 : Distribution spatiale des bournonites archéologiques.

3.3.4.3. Provenance de la bournonite

L'origine de la bournonite identifiée dans les ateliers métallurgiques de Castel-Minier pose question. En effet, ce minéral est peu courant dans les gisements des Pyrénées centrales, en tout cas sous une forme massive. Il s'agit plutôt d'un minéral accessoire associé à d'autres minerais sulfurés principalement dans les filons mésothermaux à épithermaux de paragenèse sphalérite, galène, pyrite, chalcopyrite⁴⁵³. Nous avons rencontré la bournonite à une seule reprise au cours de nos prospections, plus précisément à l'extrémité nord-est du Couserans dans l'ancienne mine d'Alzen-Lina sous la forme de petits cristaux mêlés à la tétraédrite argentifère⁴⁵⁴. Afin de préciser l'origine de la bournonite, une mesure des rapports isotopiques du plomb a été réalisée. Les résultats sont présentés sur la figure 100 qui regroupe les données issues des galènes prélevées dans les haldes médiévales et modernes de Castel-Minier⁴⁵⁵ ainsi que celles provenant de la littérature, en particulier pour les gîtes de type sédimentaire exhalatif de Lacore et des Argentières et pour le gîte filonien de Coum-Arty.

La comparaison des signatures isotopiques du plomb de la bournonite et des galènes prélevées dans les haldes médiévales met en évidence une similitude entre leurs domaines géochimiques. Cependant, ils ne coïncident pas puisque les bournonites sont moins radiogéniques que les galènes médiévales. Ce caractère géochimique a été également observé pour la bournonite issue des recherches

⁴⁵³ Bariand P., Cesbron F. et Geffroy J., *Les minéraux : leurs gisements, leurs associations. Tome 3 : minéraux de concentration d'éléments communs et d'éléments rares*, BRGM, Orléans, 1978, p. 351.

⁴⁵⁴ Prélèvements réalisés dans la zone « des puits et montages » décrite dans Dubois C., *Recherche, prospection et observation des indices à minerais métalliques des secteurs nord-Arize, Montferrier et Vicdessos*, Rapport de mission BRGM, Orléans, 1980, p. 19 et carte n° 23.

⁴⁵⁵ Les données sur les galènes prélevées dans les haldes de Castel-Minier sont inédites. Elles nous ont été aimablement communiquées par Sandrine Baron. Quant à nos résultats, ils sont issus de mesures réalisées au BRGM par Catherine Guerrot à qui nous exprimons notre gratitude pour son accueil au sein du laboratoire, sa disponibilité et ses conseils avisés. Le protocole analytique et les valeurs des rapports isotopiques du plomb utilisés dans le cadre de notre thèse figurent dans l'annexe 5.

archéologiques de l'Altenberg⁴⁵⁶. Dans les deux cas, les causes sont liées à l'histoire métallogénique complexe et polyphasée de ces gisements. Elle se compose de plusieurs épisodes auxquels correspond une paragenèse particulière⁴⁵⁷. La signature isotopique peut donc être variable lorsque des phénomènes de remobilisation des sulfures de plomb sont en jeu. Ainsi, les rapports isotopiques du plomb des minéraux nouvellement formés ont pu bénéficier d'une contribution des espèces préexistantes. Ce schéma pourrait s'appliquer à Castel-Minier où une paragenèse dominée par la galène a succédé à une paragenèse contenant de la bournonite.

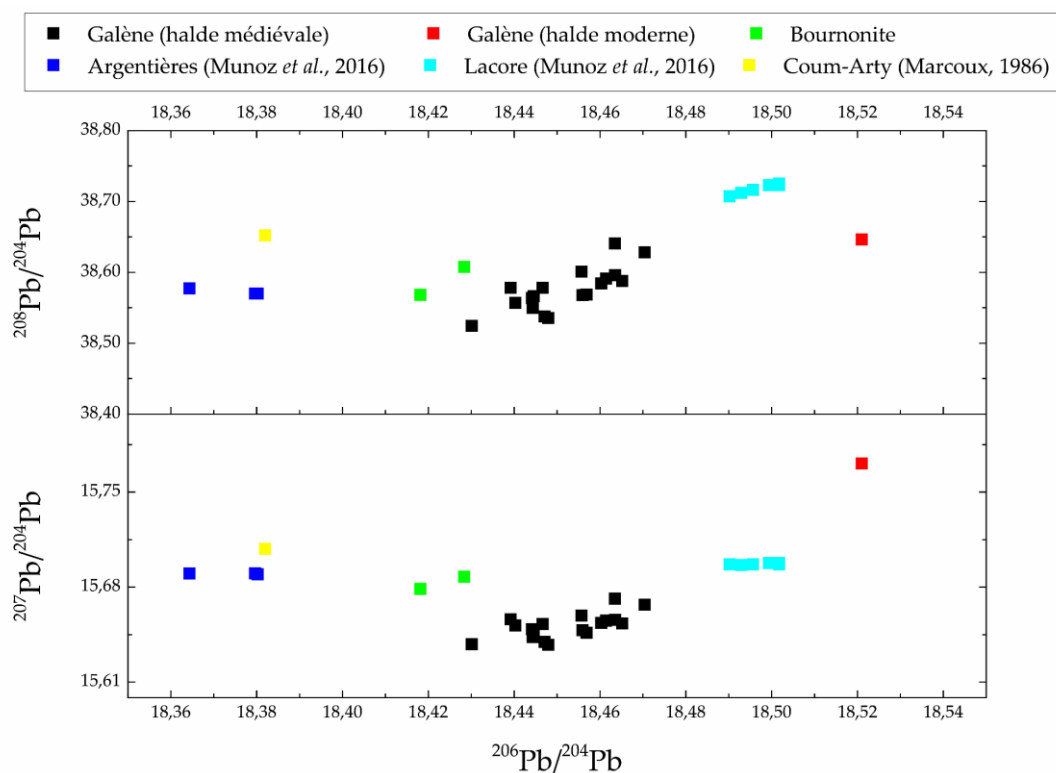


Figure 100 : Représentation graphique des rapports isotopiques $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ et $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ en fonction du rapport $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ pour les bournonites archéologiques et différents gisements de la vallée du Garbet.

⁴⁵⁶ Schneider J., « Die Herkunft des Siegerländer Münzsilbers », In Dahm C., Lobbedey U. et Weisgerber G. (éd.), *Der Altenberg. Bergwerk und Siedlung aus dem 13. Jahrhundert im Siegerland. Band 2: Die Befunde*, Habelt, Bonn, 1998, p. 212.

⁴⁵⁷ Marcoux E. et Moelo Y., « Lead Isotope Geochemistry and Paragenetic Study of Inheritance Phenomena in Metallogenesis: Examples from Base Metal Sulfide Deposits in France », *Economic Geology*, 86, 1991, p. 106-120.

3.3.5. La tétraédrite

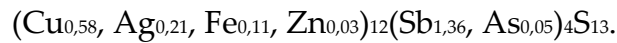
3.3.5.1. Description du minéral et analyse élémentaire

La tétraédrite ($\text{Cu}_{12}\text{Sb}_4\text{S}_{13}$) est un sulfure polymétallique de la série des « cuivres gris » qui tire son nom de la géométrie de sa structure composée de tétraèdres CuS_4 . Les nombreuses variétés de ce minéral découlent de substitutions et concernent notamment l'argent, le zinc, le mercure, le fer et le cobalt qui peuvent remplacer le cuivre dans la structure cristalline. D'abord source de cuivre, la tétraédrite peut devenir une source d'argent profitable lorsque ce métal y est concentré en quantités significatives. C'est le cas notamment des variétés exploitées dans la seconde moitié du XVI^e siècle dans les mines saxonnes de Freiberg dont la teneur en argent peut dépasser les 30 %⁴⁵⁸. Outre la géométrie des cristaux, la cassure conchoïdale et la couleur gris acier de la tétraédrite permettent de l'identifier.

Bien que présente dans la mine de Castel-Minier, la tétraédrite est rare dans les ateliers métallurgiques avec seulement deux occurrences dont l'une se trouve hors stratigraphie. Il s'agit de petits fragments massifs (densité moyenne de $5,0 \pm 0,1$) représentant une masse totale de 4,8 g. En surface, les altérations caractéristiques formées de carbonates de cuivre sont décelables à l'œil nu tandis que l'observation des sections polies révèle la présence de plages de galène. L'analyse LA-ICP-MS des tétraédrites archéologiques met en évidence deux particularités du corpus (tableau 17). Il s'agit d'une part des teneurs particulièrement élevées en argent qui confèrent au minerai un caractère argentifère. À titre de comparaison, le métal blanc est cent fois plus concentré dans la tétraédrite que dans la galène. D'autre part, l'homogénéité des teneurs en éléments majeurs et mineurs est notable au sein du corpus étudié. Outre l'argent, le fer et le zinc ont été substitués au cuivre. Les traces de plomb et d'arsenic proviennent respectivement d'inclusions de galène (figure 101) et d'une substitution à

⁴⁵⁸ Les mines de Freiberg ont donné leur nom à une variété de tétraédrite très argentifère : la freibergite.

l'antimoine. Finalement, la formule structurale moyenne suivante peut être proposée :



Élément	CL 10604	CL 12698
S	20,6 %	22,6 %
Cu	23,6 %	22,4 %
Sb	33,8 %	34,6 %
Ag	13,2 %	14,7 %
Fe	3,49 %	4,02 %
Zn	1,35 %	1,11 %
Pb	7864	1309
As	6868	824

Tableau 17 : Analyse LA-ICP-MS des tétraédrites archéologiques.
Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm.

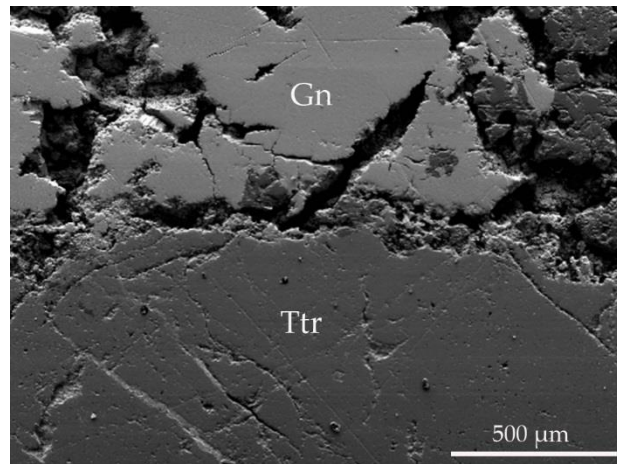


Figure 101 : Image MEB de la tétraédrite (Ttr) CL 12698 montrant une inclusion de galène (Gn).

3.3.5.2. Spatialisation de la ressource

Des deux fragments de tétraédrite mis au jour sur le site de Castel-Minier, seul l'individu CL 12698 provient d'un contexte archéologique bien établi. Le second est issu d'un décapage du substrat qui scellait les vestiges médiévaux. Le minerai CL 12698 se trouvait dans le bâtiment 3 dans lequel est aménagé le foyer circulaire Fy 2526 (figure 102). La période d'activité de ce bâtiment débute à la fin du XIII^e siècle et se poursuit durant la première moitié du XIV^e siècle. Du point de vue stratigraphique, la tétraédrite n'est pas directement associée au fonctionnement du

foyer circulaire : elle se trouvait dans un niveau d'abandon qui marque l'état terminal d'utilisation de cet espace avant un profond réaménagement. La découverte de tétraédrite dans le bâtiment 3 indique donc que les métallurgistes ont disposé de cette ressource minérale dans la première moitié du XIV^e siècle.

La faible quantité de minerai exhumée peut être interprétée de deux manières. Il est tout d'abord possible de conjecturer qu'elle découle des volumes traités dans les ateliers qui furent vraisemblablement réduits. Si la faible disponibilité de la ressource peut expliquer la rareté de la tétraédrite sur le site, un argument d'ordre économique peut également être avancé. La teneur en argent particulièrement élevée du minerai, pour peu que les métallurgistes aient su en tirer profit, lui confère une forte rentabilité. Ainsi, la teneur en argent de 1 g de tétraédrite correspond à celle de 30 g à 650 g de galène. Il est donc plausible que les métallurgistes accordaient une attention particulière à ce minerai hautement profitable en prenant soin d'éviter les pertes lors de son parcours dans les différents ateliers. Cette disposition expliquerait en partie l'effet de rareté constaté au cours des fouilles.

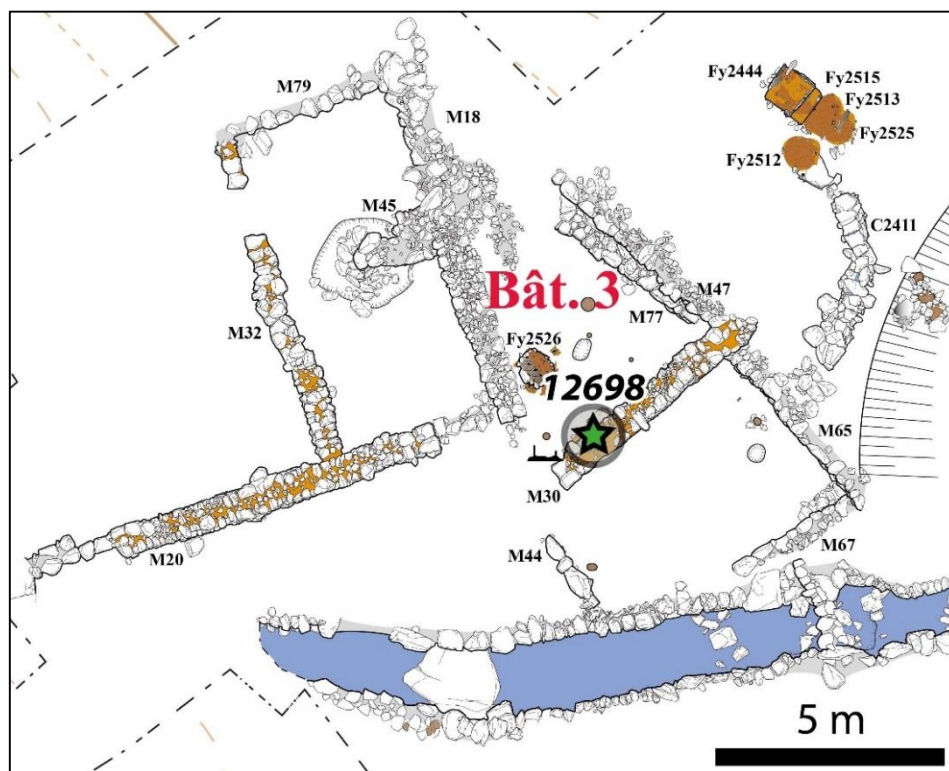


Figure 102 : Distribution spatiale de la tétraédrite archéologique.

3.3.5.3. Provenance de la tétraédrite

L'étude des minéralisations de la mine de Castel-Minier a permis de démontrer la présence de tétraédrite au sein du gisement⁴⁵⁹. Néanmoins, cette mine n'est pas l'unique pourvoyeur de ce sulfure polymétallique et il convient d'inclure les travaux des Argentières et de Lacore parmi les sources potentielles⁴⁶⁰.

Dans un premier temps, l'analyse des compositions élémentaires des tétraédrites permet d'avancer une première hypothèse de provenance (figure 103). Ainsi, les teneurs en cuivre, argent et antimoine des tétraédrites archéologiques et issues de la mine de Castel-Minier sont très proches et forment une signature géochimique homogène. En revanche, les minerais des gisements de Lacore et des Argentières se distinguent de cet ensemble par des teneurs en antimoine moins élevées, mais également par la présence d'arsenic en quantités supérieures au pour cent. Ces observations préliminaires sont corroborées par l'étude des rapports isotopiques du plomb des tétraédrites archéologiques. La signature qu'ils définissent est quasiment confondue avec celle du gisement de Castel-Minier ce qui présume d'une origine commune (figure 104).

⁴⁵⁹ *Supra* p. 248.

⁴⁶⁰ *Supra* p. 206 pour la présentation de ces gisements.

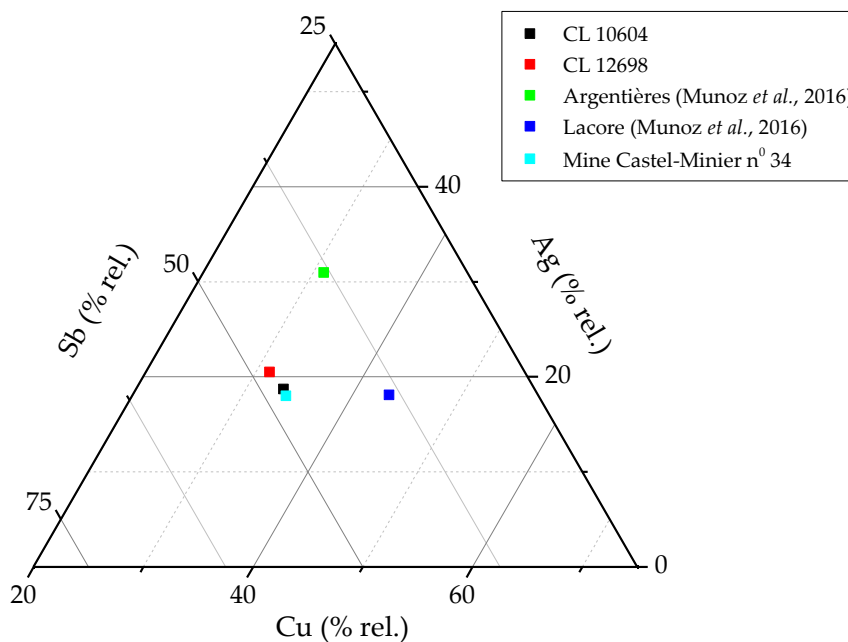


Figure 103 : Graphique ternaire représentant les teneurs relatives en cuivre, argent et antimoine des tétraédrites de Castel-Minier (issues de contextes archéologiques et prélevées dans la mine) et des mines de Lacore et des Argentières (pour ces deux gisements, les données sont tirées de Munoz M., Baron S., Boucher A., Béziat D. et Salvi S., « Mésozoïque vein-type... », *op. cit.*, p. 326).

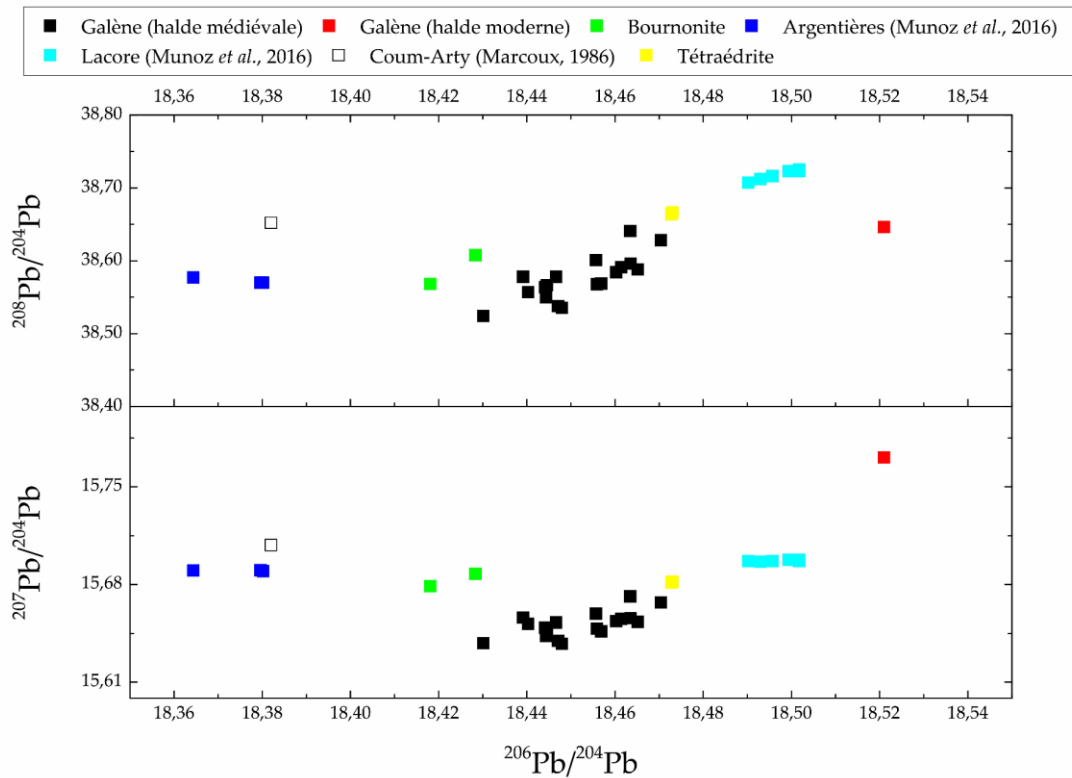


Figure 104 : Représentation graphique des rapports isotopiques $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ et $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ en fonction du rapport $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ pour les tétraédrites archéologiques et différents gisements de la vallée du Garbet.

Les prospections que nous avons menées dans la mine de Castel-Minier ont montré que la tétraédrite se localise dans la partie supérieure des grands travaux du filon du toit, à proximité du jour. Facilement accessible, cette portion de la minéralisation a été travaillée dans une phase précoce de l'exploitation de la mine, peu après la découverte du filon du toit à la fin du XIII^e siècle. Cette première phase de l'extraction est contemporaine de l'atelier installé dans le bâtiment 3 en rive droite du Garbet qui a livré de la tétraédrite. Il semble donc que les mineurs aient découverts un minerai argentifère exceptionnel, accessible à moindre peine et qui a permis l'essor rapide de l'exploitation comme le rapporte Girardi. Cette conclusion renforce l'hypothèse que nous avons proposée selon laquelle la découverte d'un minerai particulièrement rentable est à l'origine du différend entre les exploitants de la mine et le vicomte de Couserans. Ce dernier a vraisemblablement cherché à tirer profit de cette opportunité non prévue par le contrat de bail en modifiant la fiscalité à son avantage voire en cherchant à casser le bail pour exploiter le gisement en propre.

3.3.5.4. Les minerais mixtes galène-tétraédrite

L'analyse archéométrique, en particulier la caractérisation par spectrométrie Raman, du corpus de minerais archéologiques de Castel-Minier a révélé la présence d'individus composites constitués d'un mélange de galène et de tétraédrite (figure 105). L'analyse microscopique de sections polies permet de décrire plus précisément ce minerai mixte en quantifiant les proportions des constituants. La matrice se compose de galène dans laquelle la tétraédrite est disséminée sous la forme d'inclusions de tailles variées dont il est possible de calculer la surface grâce à un processus informatique d'analyse d'image qui se fonde sur le contraste colorimétrique entre les minéraux (figure 105). En multipliant les analyses, il est permis de proposer une estimation de la masse totale de tétraédrite contenue dans le minerai mixte. Ce

paramètre est assez hétérogène au sein de notre corpus, il s'échelonne de 2,0 à 16,2 % (tableau 18).

Sur le plan macroscopique, la ressemblance du minerai mixte avec la galène est telle qu'il est impossible de les discriminer. Nul doute que pour les Anciens, ce minerai était a priori tout à fait comparable à la galène qu'ils traitaient dans les ateliers métallurgiques de Castel-Minier. Néanmoins, l'analyse élémentaire par MEB-EDX des inclusions de tétraédrite met en évidence des teneurs en argent comprises entre 12,0 et 15,5 % qui invitent à reconsidérer l'intérêt économique des minerais composites. En effet, leur teneur globale en argent est d'autant plus élevée que la proportion de tétraédrite est importante (tableau 18). Ainsi, la concentration en argent de l'individu CL 11868, composé à 16,1 % de tétraédrite, atteint 2,8 % soit vingt fois la teneur d'une galène de qualité intermédiaire de Castel-Minier. Ces minerais représentent donc une source de métal blanc de choix pour les mineurs médiévaux. S'ils n'en ont pas eu conscience au moment de l'extraction, on peut affirmer que l'expérience des techniciens en charge de l'affinage de l'argent leur a permis de découvrir la rentabilité supérieure des minerais composites par rapport à la galène. Ce constat a-t-il conduit à l'élaboration d'une chaîne opératoire spécifique consacrée exclusivement à ces minerais ? Il est permis d'en douter puisque d'une part, sauf à réaliser un essai systématique, les mineurs ne disposaient pas de moyen pour distinguer les minerais mixtes de la galène avant les traitements métallurgiques et d'autre part, l'étude archéométrique des déchets d'affinage de l'argent suggère la coupellation indifférenciée de plombs d'œuvre issus de galène argentifère et de minerais mixtes galène-tétraédrite⁴⁶¹.

⁴⁶¹ *Infra* p. 484.

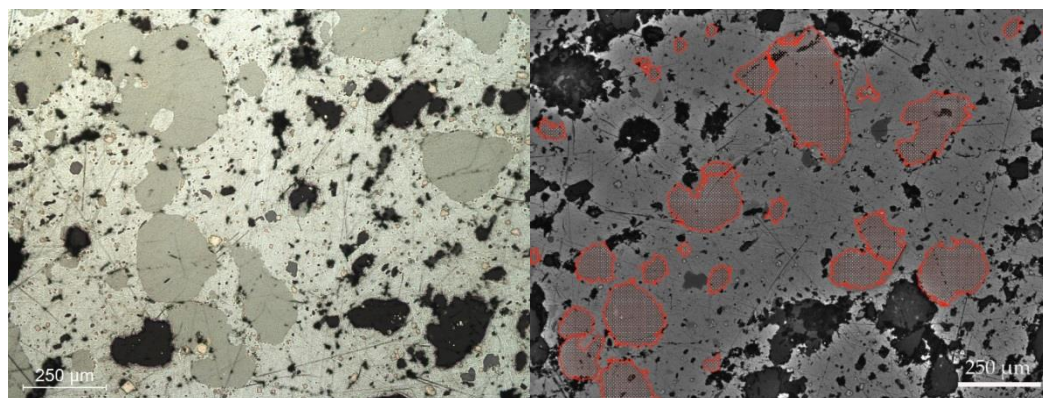


Figure 105 : Observation au microscope optique du minerais mixte galène-tétraédrite CL11868 et analyse d'image. À gauche : inclusions de tétraédrite (gris foncé), de pyrite (jaune) et de gangue (noir) dans une matrice de galène (gris). À droite : détection informatisée des plages de tétraédrite (rouge) afin de quantifier leur surface.

	CL 11894	CL 11223	CL 10975	CL 11868
Structure	P.-f. 5	P.-f. 1	P.-f. 1	Bât. 7
S	10,3 %	12,5 %	11,7 %	16,6 %
Ni	3,0	-	-	10
Cu	1021	377	68	5,1 %
Zn	1,4	4,4	31	1,8 %
As	31	-	-	175
Pd	-	-	-	5
Ag	1080	1831	2792	2,8 %
Cd	190	4,2	6,6	57
Sn	1,8	3,7	1,0	13
Sb	1398	2794	2979	41128
Au	-	-	-	-
Pb	89,3 %	87,0 %	87,7 %	69,6 %
Tl	2,0	2,1	2,0	1,8
Bi	5,4	5,3	5,3	8,9
% tétraédrite	2,0	3,3	4,5	16,0

Tableau 18 : Résultats des analyses élémentaires globales par LA-ICP-MS des minerais mixtes galène-tétraédrite et quantification de la proportion (en masse) de tétraédrite.

Le minerais mixte de Castel-Minier forme un corpus relativement modeste avec seulement quatre individus représentant une masse totale de 63 g. Néanmoins la distribution spatiale des quelques fragments mis au jour est particulièrement intéressante (figure 106) : elle révèle une particularité de la première phase d'activité des ateliers métallurgiques (fin du XIII^e-début du XIV^e siècle) qui se caractérise par un approvisionnement avec des minerais relativement riches en argent qui ont

certainement contribué à un premier essor dont l'ampleur est entraperçue dans les sources écrites. En effet, les minerais mixtes galène-tétraédrite proviennent des espaces de travail les plus anciens, plus précisément des plates-formes 1 et 5 et du bâtiment 7, qui sont actifs entre la fin du XIII^e siècle et la première moitié du XIV^e siècle. Rappelons à nouveau que le procès entre les exploitants de la mine et le vicomte de Couserans débute au plus tard en 1319, c'est-à-dire au cœur d'une période d'intense activité caractérisée par un approvisionnement majoritairement composé de galène et complété par de la tétraédrite et des minerais mixtes aux teneurs en argent très profitables.

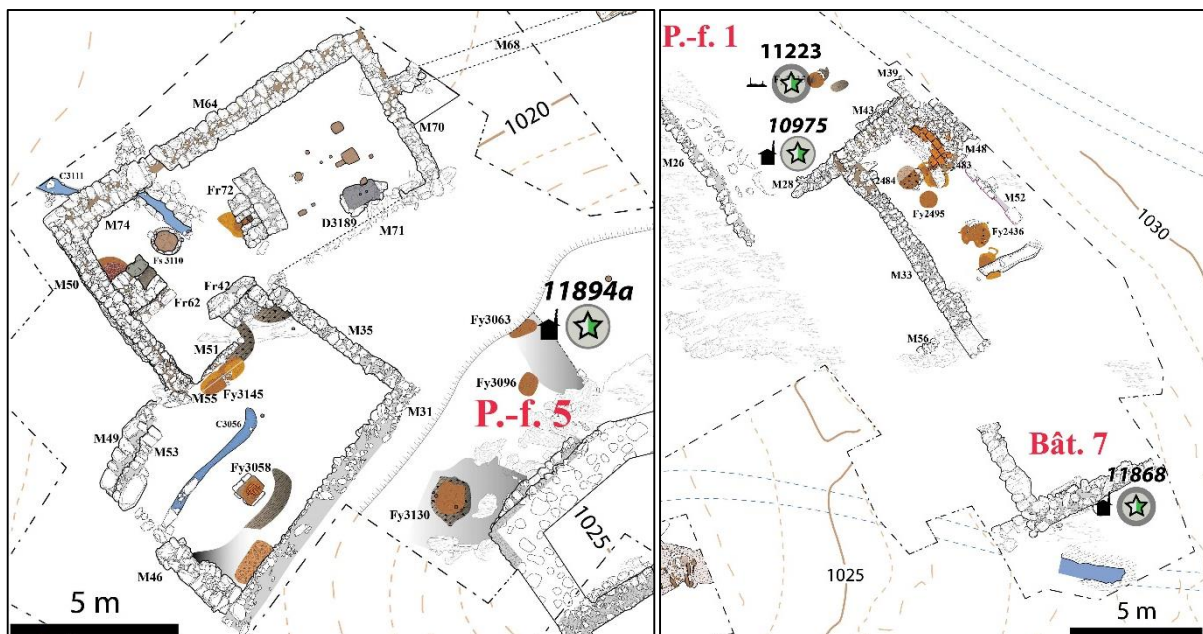


Figure 106: Distribution des minerais mixtes galène-tétraédrite sur le site de Castel-Minier.

La provenance des minerais mixtes est une donnée importante pour comprendre les interactions entre les ateliers multi-métaux de Castel-Minier et les districts miniers environnants et discuter de l'existence de gisements particuliers ayant fourni cette ressource. S'il est à peu près assuré que les Anciens n'établissaient pas de distinction entre la galène et les minerais mixtes, la valorisation de ces derniers n'en demeure pas moins une opportunité considérable avec des conséquences réelles sur les dynamiques d'exploitation minière et la production d'argent. Ainsi, la nature

particulière du minerai mixte et notamment sa rentabilité supérieure à celle de la galène est un critère qui a pu justifier des investissements considérables en moyens humains et mécaniques pour permettre l'approfondissement des travaux d'extraction voire l'exploitation de minéralisations complexes dont le profit escompté compensait les dépenses. Par un heureux hasard métallogénique, les Anciens n'ont pas eu à se donner cette peine puisque plusieurs indices tendent à montrer que le minerai mixte se trouvait à proximité immédiate des ateliers, au sein des minéralisations de Castel-Minier dont nous avons déjà souligné la richesse et la diversité. Cette hypothèse repose sur des arguments minéralogiques, géochimiques et archéologiques. Tout d'abord, nos prospections dans la mine de Castel-Minier ont permis de mettre en évidence la présence de minerais mixtes galène-tétraédrite au sein des minéralisations, plus précisément dans le filon du toit au niveau des Grands chantiers du toit et de la Branche intermédiaire est⁴⁶² : la tétraédrite est disséminée en de multiples inclusions de tailles variées dans une matrice de galène. Ensuite, les compositions des inclusions de tétraédrite des minerais archéologiques et des individus prélevés en mine sont similaires : elles se caractérisent par des teneurs en antimoine élevées et l'absence d'arsenic. Enfin la contemporanéité entre les chantiers miniers ayant livré des minerais mixtes et les espaces de travail dans lesquels ils ont été découverts suggère une filiation. En effet, les Grands chantier du toit et celui de la Branche intermédiaire est sont engagés à la fin du XIII^e siècle au moment où sont édifiées les plates-formes 1 et 5. En l'état des connaissances sur le mine et les installations de surface, il semble que l'exploitation des minerais mixtes soit une activité ponctuelle qui tire profit d'une ressource particulière de la mine de Castel-Minier à la fin du XIII^e siècle et jusqu'au milieu du XIV^e siècle. Les aménagements postérieurs, qu'ils soient miniers ou métallurgiques, n'ont pas livré ce type de minerai.

⁴⁶² *Supra* p. 248.

Au terme de cet examen des ressources minérales de la vicomté de Couserans, le constat est celui de la grande diversité des gisements qui ont offert aux hommes du Moyen Âge des minerais métalliques variés. Parmi ceux-ci, la galène occupe une place de choix au sein du district minier étudié. Les minerais de cuivre font également partie des ressources exploitées par les Anciens, notamment la chalcopryrite et la bournonite et dans une moindre mesure la tétraédrite. L'approvisionnement des ateliers de Castel-Minier est assuré par des sources multiples. Si le gisement installé à proximité du site métallurgique fouillé a fourni des quantités importantes de minerais, d'autres gisements de la vallée d'Aulus et des vallées environnantes ont également contribué aux stratégies d'approvisionnement. Dès les premiers temps de l'occupation de Castel-Minier, le polymétallisme est observable avec la disponibilité de la galène, de la tétraédrite et des minerais mixtes puis, à partir du XV^e siècle, de la bournonite. Les minerais livrés aux ateliers sont très variés tant en ce qui concerne la proportion de roche stérile qui les accompagne qu'en ce qui regarde les teneurs en métaux. La combinaison de ces deux paramètres a permis d'étudier de manière diachronique l'évolution du potentiel économique des minerais sur près de deux siècles d'activité. Le particularisme de la première phase d'occupation se manifeste par la disponibilité de minerais aux teneurs en argent élevées, qui sont parfois associés à de la tétraédrite. Ces résultats ont éclairé d'un jour nouveau le différend entre les exploitants de la mine d'Aulus et le vicomte de Couserans dont l'origine est peut-être liée à la découverte de riches minéralisations. Une partie des minerais apportés aux ateliers était soumise à des étapes de préparation mécanique dont le broyage hydraulique est la plus discernable. En revanche, la mise en évidence dans les ateliers de galènes contenant des quantités significatives de roches stériles amène à s'interroger sur les raisons techniques et économiques de cette pratique. Des éléments de réponse sont apportés dans la partie suivante relative aux activités métallurgiques.

Partie 4 : La production de plomb et d'argent à partir de la galène argentifère

La galène est le minerai le plus abondant dans les contextes archéologiques de Castel-Minier. Sa nature argentifère a été mise en évidence précédemment grâce aux analyses élémentaires par LA-ICP-MS. Ce résultat démontre donc que la galène a vocation à être transformée selon une chaîne opératoire longue et complexe de manière à isoler le métal blanc. Les différentes opérations métallurgiques que subit le métal sont documentées archéologiquement par du mobilier et des structures de chauffe. Leur étude archéométrique, ainsi que les expérimentations permettent de préciser le déroulement de la chaîne opératoire et de comprendre le fonctionnement des fours, mais également d'apprécier l'évolution des propriétés chimiques des matériaux au cours des transformations. La première étape de la chaîne opératoire est consacrée à la production de plomb métallique, dans lequel se concentre l'argent, à partir du sulfure de plomb. Ce produit intermédiaire est appelé plomb d'œuvre. Il a pu être identifié à plusieurs reprises à Castel-Minier grâce aux analyses élémentaires. La manière dont il est obtenu, ainsi que sa teneur en argent, reposent sur des critères techniques et économiques que nous allons présenter.

4.1 Caractérisation du traitement de la galène : le mobilier métallurgique

4.1.1. Vers une identification du plomb d'œuvre

4.1.1.1. Le corpus archéologique

Le plomb, qu'accompagnent plusieurs éléments-traces parmi lesquels l'argent est le plus convoité, est extrait de la galène au cours d'une opération métallurgique conduite à haute température désignée par le terme générique de réduction. Séparé du

soufre avec lequel il était associé, le plomb métallique obtenu à l'issue de l'opération peut avoir plusieurs destinations. S'il contient une teneur en argent significative, que nous explicitons ci-après, il est qualifié de plomb d'œuvre. Il n'a alors pas vocation à rester sous cette forme ; il s'agit en effet d'un produit intermédiaire qui est affiné ultérieurement afin de récupérer l'argent qu'il contient. Si la teneur en argent du plomb issu de la réduction du minerai est faible voire inexsistante, alors il s'agit de plomb désargenté qui peut être exporté sous la forme de demi-produits ou utilisé pour d'autres opérations métallurgiques.

Il convient donc de préciser l'origine et la destination du corpus de mobilier archéologique en plomb provenant de Castel-Minier et qui comporte 74 individus représentant une masse de 6,5 kg. En premier lieu, une telle découverte semble contradictoire avec la finalité des activités métallurgiques qui est résolument tournée vers la production d'argent. Ce serait négliger les multiples fonctions des individus du corpus qui sont illustrées tout d'abord par la diversité des morphologies⁴⁶³ (tableau 19).

⁴⁶³ Le corpus étudié est présenté dans l'annexe 6.

Morphologie	Individus	Masse (g)
Lingot/masselotte	9	2345
Empreinte	9	2066
Plaque	15	1194
Informe	11	391
Coulure	13	208
Plaque recourbée	4	80
Tige	2	73
Rondelle et flan	3 + 1	25 + 19
Plaque avec traces de découpe	3	37
Bille	3	52
Fusaïole	1	7

Tableau 19 : Catégories morphologiques du corpus des plombs de Castel-Minier.

On distingue tout d'abord les objets qui se rattachent à une catégorie typofonctionnelle bien définie tels que les rondelles ou les flans, une probable fusaïole ainsi que deux tiges en plomb. La morphologie de ces objets, si elle n'est pas compatible avec une production de plomb d'œuvre, n'indique toutefois pas obligatoirement une origine exogène. Ce petit mobilier a très bien pu être produit sur place, à partir de plomb désargenté par exemple, pour les besoins des métallurgistes. Ces objets mis à part, la masse du corpus se compose à plus d'un tiers de lingots et de masselottes plus ou moins parallélépipédiques (figure 107).

La catégorie suivante regroupe les individus dotés d'une ou plusieurs empreintes dont la géométrie est principalement convexe. Il s'agit du négatif de la surface qui a reçu le plomb liquide et sur laquelle il s'est solidifié. La morphologie de ces objets témoigne donc de la manipulation du plomb à l'état liquide sur le site de Castel-Minier sans qu'un lien avec la métallurgie extractive ne puisse être établi pour le moment. Le plomb a également été découvert sous la forme de plaques dont certaines faces présentent une régularité et un bon état de surface qui suggèrent une

mise en forme dans un moule (figure 107). Au sein de cette catégorie, il est possible de distinguer les plaques recourbées et celles présentant des traces de découpe : ces deux sous-ensembles comprennent quelques individus de faible masse. De même, les coulures et les billes sont nombreuses mais ne représentent que 208 et 52 g. Elles résultent vraisemblablement d'une perte de métal au cours de sa manipulation à l'état liquide tel que le débordement d'un moule ou d'un creuset ou encore l'apparition de petites coulées accidentelles à la base des structures de chauffe. Enfin, la catégorie des objets informes regroupe de petits fragments de plomb amorphes.

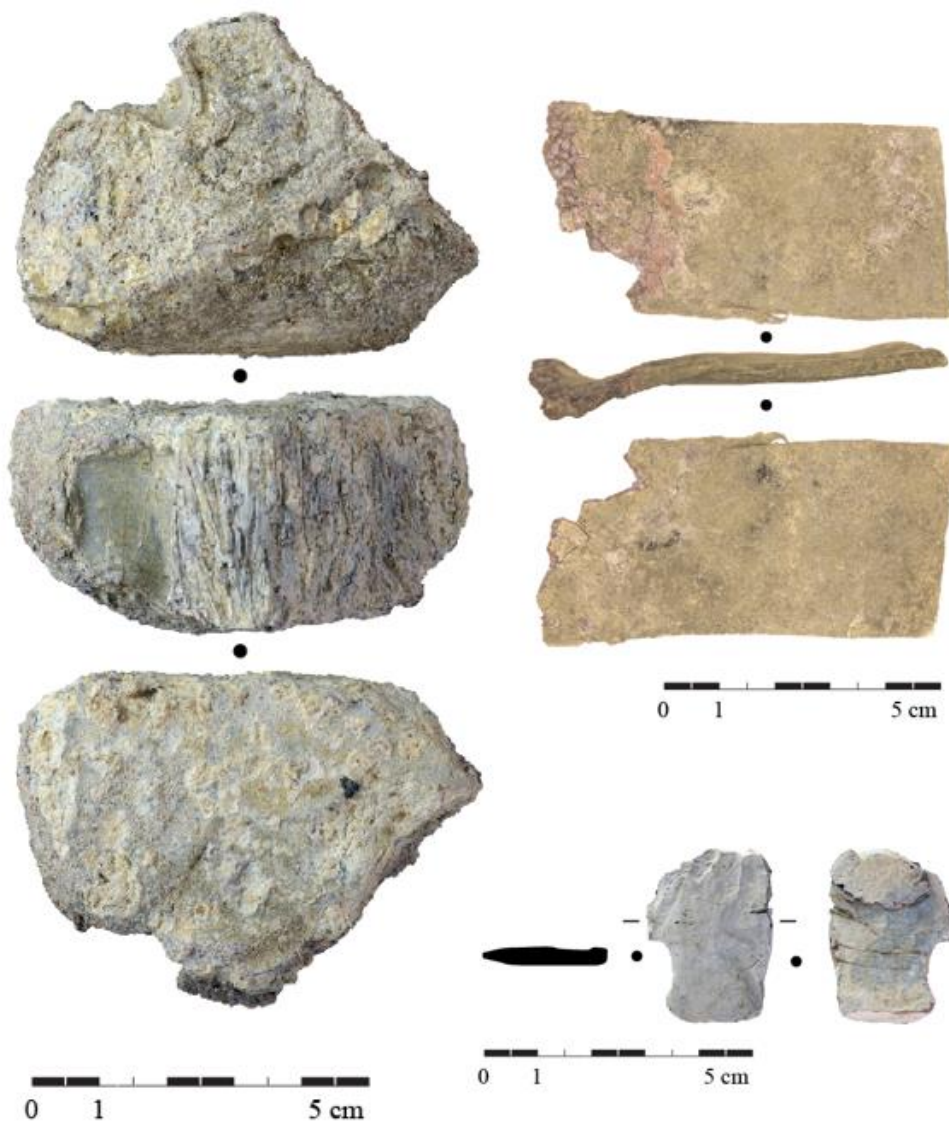


Figure 107 : Mobilier en plomb de Castel-Minier. À gauche : lingot plano-convexe. En haut à droite : plaque de plomb. En bas à droite : plaque de plomb avec traces de martelage.

4.1.1.2. Analyses élémentaires par LA-ICP-MS des plombs et essai de classement

L'ensemble du corpus de mobilier en plomb a fait l'objet d'analyses archéométriques par LA-ICP-MS afin de déterminer la composition élémentaire des individus, en particulier les teneurs en éléments-traces⁴⁶⁴. La valeur ajoutée de ces analyses est considérable pour identifier la fonction de chaque objet et sa relation avec la métallurgie extractive du plomb argentifère. Les résultats des analyses figurent dans le tableau 20⁴⁶⁵. Les teneurs en plomb sont très homogènes : elles sont comprises entre 98,11 % et 99,96 % (moyenne : 99,22 % écart-type : 1,7 %) ce qui dénote des niveaux d'impuretés similaires entre les individus du corpus. Les principaux éléments-traces sont l'argent, l'antimoine et le cuivre.

⁴⁶⁴ 5 individus ont fait l'objet d'analyses LA-ICP-MS en 2011 par Adrien Arles.

⁴⁶⁵ Pour des raisons de clarté, le tableau consigne uniquement les éléments chimiques utiles à la démonstration. L'ensemble des résultats figure dans l'annexe 21.

CL	Masse (g)	Structure	Fait	Pb	Ag	Sb	Cu	Bi	Tl	Ni	Zn	As	Sn	Description
10022	910,4	Abandon Mouline	Abandon	99,8 %	225	951	757	19	2,3	5,5	421	-	75	Lingot
10156	4,9	Aire de grillage 1500-1600	Sol d'occupation	99,8 %	206	506	896	10	3,0	9,1	-	11	-	Flan
12494	7,8	Bas-foyer 1550-1600	Construction	99,7 %	181	2963	292	7,6	2,7	-	4,0	15	18	Plaque recourbée
12516	17,0	Bât. 10	Couverture effondrée	99,6 %	125	2701	642	9,5	2,4	-	13,8	-	-	Plaque traces découpe
11869	8,6	Bât. 10	Démolition	99,9 %	151	1094	211	18	2,8	5,1	2,1	6,9	8,5	Bille
11967	75,0	Bât. 10	Démolition	99,7 %	178	1308	1648	7,2	2,2	46	-	14	-	Coulure
11833	11,5	Bât. 10	Sol d'occupation	99,4 %	284	4086	1137	10	2,4	-	-	-	-	Coulure
12097	9,0	Bât. 10	Abandon	99,5 %	384	4340	561	9,4	2,8	-	-	59	20	Bille
12517	17,9	Bât. 10	Couverture effondrée	99,7 %	400	1524	1384	9,3	2,5	64	2,9	23	43	Masselotte
11965	5,3	Bât. 10	Trou d'enclume	99,8 %	560	-	1794	9,0	2,3	-	-	-	-	Coulure
11877	8,2	Bât. 10	Démolition	99,4 %	592	4327	1453	9,6	2,5	11	-	8,8	0,7	Rondelle
12641	7,7	Bât. 10	Amas de minerai	99,9 %	732	-	619	11	2,9	6,3	-	-	-	Coulure
12714/2	2,0	Bât. 10	Four	99,0 %	1778	4053	1136	12	2,9	5,2	-	21	0,8	Coulure
12714/3	2,0	Bât. 10	Four	98,9 %	2060	4933	3475	13	2,9	33	-	21	3,0	Coulure
12714/1	2,0	Bât. 10	Four	98,4 %	2525	5495	4995	18	3,1	64	1,6	8,1	2,7	Coulure
11504	11,0	Bât. 11	Terrassement	99,7 %	173	2112	671	11	3,0	2,6	-	5,5	-	Plaque
11772	8,5	Bât. 11	Terrassement	99,8 %	183	1386	671	12	2,3	1,9	-	16	-	Plaque
11679	33,9	Bât. 11	Terrassement	99,8 %	246	1372	-	31	2,5	-	-	-	-	Bille
11555	431,0	Bât. 11	Terrassement	99,8 %	280	1026	537	12	3,0	1,6	-	20	1,3	Empreinte
11228	5,8	Bât. 11	Terrassement	99,9 %	341	-	1064	20	2,5	3,6	-	-	-	Coulure
11570	8,5	Bât. 2	Fosse	99,9 %	233	2,9	932	12	2,4	3,7	-	-	-	Plaque traces découpe
11683	30,0	Bât. 3	Sol d'occupation	99,9 %	273	-	813	12	2,5	-	-	-	-	Empreinte
12704/3	1017,1	Bât. 3	Sol d'occupation	99,7 %	385	1217	1145	8,1	2,8	6,8	-	-	-	Empreinte
12704/2	205,6	Bât. 3	Sol d'occupation	99,7 %	474	1356	1177	8,3	2,8	11	-	-	-	Empreinte
12704/1	55,3	Bât. 3	Sol d'occupation	99,7 %	479	1271	1100	9,0	2,8	8,5	-	-	-	Informe

CL	Masse (g)	Structure	Fait	Pb	Ag	Sb	Cu	Bi	Tl	Ni	Zn	As	Sn	Description
11771	22,9	Bât. 5	Sol d'occupation	99,7 %	1367	1683	7,7	11	2,4	-	1,8	-	1,4	Coulure
11254	13,1	Bât. 5	Sol d'occupation	99,4 %	4084	2,6	1930	12	2,9	-	3,8	-	-	Informe
11603	4,4	Bât. 5	Sol d'occupation	99,4 %	5418	-	770	245	3,0	-	-	-	-	Coulure
11551	16,1	Bât. 8	M31	99,6 %	453	2088	1034	11	2,5	-	3,4	5,7	0,6	Plaque
10116	91,1	Bâtiment 9	Castrum	99,6 %	267	3020	505	21	2,4	-	-	11	1277	Plaque
11199	47,6	Canal 1450-1600	Fondation	99,6 %	262	2588	1003	11	2,9	14	-	-	-	Tige
11691	127,0	Canal 1450-1600	Fondation	99,7 %	421	2516	500	8,8	2,9	-	-	7,3	-	Empreinte
11612	60,0	Canal 1450-1600	M2	99,6 %	2210	-	1939	14	2,3	-	-	-	0,9	Lingot
11226	42,8	Canal 1450-1600	Abandon	99,1 %	8650	-	541	8,0	2,7	1,7	-	-	-	Coulure
11530	22,0	Ferrier 2	Amas	99,9 %	106	598	180	12	2,6	-	4,6	9,1	-	Plaque
11549	83,9	Ferrier 2	Amas	98,1 %	312	2019	103	65	2,9	6,3	-	12	1,7 %	Plaque
11964	11,5	Marteau 1550-1600	Sol d'atelier	99,0 %	1114	8000	657	9,4	2,7	-	9,1	25	-	Plaque traces découpe
10924a	699,0	P.-f. 1	Démolition	99,7 %	324	2493	375	14	2,3	-	-	50	1,3	Plaque
11002	37,5	P.-f. 1	Démolition	99,7 %	372	1458	1225	15	3,0	3,5	-	6,1	-	Masselotte
11184	172,9	P.-f. 1	Démolition	99,4 %	469	4833	616	8,9	2,9	-	-	47	-	Plaque
12361	32,0	P.-f. 1	Démolition	98,5 %	1,1 %	3261	615	8,3	2,7	-	10	15	-	Informe
12002	40,7	P.-f. 2		99,7 %	533	1356	827	11	2,8	5,7	-	-	-	Empreinte
11642	5,3	P.-f. 3	Sol d'occupation	99,5 %	467	3127	918	36	2,4	4,0	-	22	-	Plaque
11722	12,2	P.-f. 3	Sol d'occupation	99,8 %	638	687	561	14	2,3	3,2	4,9	-	2,4	Flan
11719	19,1	P.-f. 3	Sol d'occupation	87,5 %	129	29	12,4 %	6,3	1,9	1,8	129	11	6,5	Masselotte
12822	7,0	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,9 %	151	76	834	9,1	2,9	6,8	-	-	24	Fusaïole
11955	662,0	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,8 %	240	975	630	11	2,9	3,4	-	5,8	-	Lingot
11867	470,0	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,7 %	263	2033	814	9,0	2,9	2,4	-	21	4,6	Masselotte
11073	37,6	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,8 %	309	1336	577	9,7	2,9	-	-	32	0,4	Plaque recourbée
11775_1	120,0	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,8 %	361	1187	635	13	2,7	4,4	-	17	-	Empreinte

CL	Masse (g)	Structure	Fait	Pb	Ag	Sb	Cu	Bi	Tl	Ni	Zn	As	Sn	Description
12648	20,2	P.-f. 4	M 44	99,6 %	386	3572	334	7,0	2,8	-	-	21	-	Informe
11694	15,7	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,5 %	600	3109	1411	9,5	2,3	5,6	9,6	21	-	Plaque
11935	12,8	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,2 %	751	6048	1132	7,9	2,3	20	8,8	39	1,5	Coulure
12537	12,1	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,6 %	1250	2588	424	9,9	2,5	-	1,1	20	-	Masselotte
10915	65,1	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,4 %	4043	175	1693	25	2,4	2,6	-	-	2,6	Informe
11777	13,6	P.-f. 4	Sol d'occupation	98,4 %	9709	5,4	6267	14	3,2	2,7	1,1	-	-	Coulure
11775_2	120,0	P.-f. 4	Sol d'occupation	98,0 %	444	3799	1,4 %	16	2,7	751	3,1	541	0,5	Informe
12496	14,0	P.-f. 5	remblais	99,7 %	504	1701	744	10	2,4	2,7	-	-	-	Plaque recourbée
10791	21,0	P.-f. 5	abandon	99,5 %	554	2513	1880	6,9	2,8	5,8	-	-	-	Plaque recourbée
12492	4,6	P.-f. 5	Pelouse	99,5 %	3237	1138	428	6,7	2,6	-	91	-	19	Plaque
11842	19,2	P.-f. 5	remblais	92,0 %	588	6851	7,0 %	0,7	2,0	11	931	46	3,0	Informe
11899	9,3	P.-f. 5	Foyer	98,1 %	216	1437	1,7 %	7,4	2,7	-	26	139	2,1	Informe
12153	17,0	Plat du Roi enceinte castrale_1	M59	99,8 %	1280	7,2	830	31	2,7	-	1,00	-	-	Informe
12359	22,9	Plat du Roi enceinte castrale_2	Sol d'occupation	99,7 %	523	1594	712	8,9	2,7	3	37	7,7	-	Empreinte
12177	156,0	Plat du Roi enceinte castrale_2	Sol d'occupation	99,3 %	566	5557	624	11	2,8	2,4	-	47	-	Masselotte
13158	14,6	Plat du Roi Pente_1	remblais	99,9 %	190	700	495	6,1	2,2	-	-	-	-	Plaque
13131	72,0	Plat du Roi Pente_1	occupation	99,7 %	193	2075	548	7,0	2,3	1,9	-	-	-	Empreinte
13191	30,4	Plat du Roi Pente_1	occupation	99,7 %	336	1462	883	4,0	2,2	12,9	1,1	-	-	Plaque
13148	12,1	Plat du Roi Pente_1	halde/occupation	99,7 %	351	1790	741	4,6	2,2	4,5	46	-	-	Informe
13115	8,9	Plat du Roi Pente_1	remblais	99,6 %	370	2891	418	4,5	2,3	-	28,6	-	-	Plaque

CL	Masse (g)	Structure	Fait	Pb	Ag	Sb	Cu	Bi	Tl	Ni	Zn	As	Sn	Description
13139	27,4	Plat du Roi Pente_1	halde/occupation	99,7 %	1530	-	1074	12,7	2,2	-	-	-	-	Informe
12706	9,8	Plat-du-Roi pente	remblais	98,7 %	554	1241	223	71	2,4	-	0,1	9,2	1,0 %	Plaque
11840	25,2	Plat-du-Roi enceinte castrale_2	occupation	98,2 %	478	2277	255	84	2,5	-	1,3	11	1,5 %	Tige
12640	19,3	TB21	US6	99,9 %	53	732	174	8,9	2,4	14	-	14	128	Rondelle

Tableau 20 : Résultats des analyses LA-ICP-MS réalisées sur le corpus de plombs de Castel-Minier. Sauf mention contraire, toutes les teneurs sont en ppm.

Mobilier exogène : les alliages plomb-étain

Au sein du corpus, trois objets se singularisent par des teneurs en étain supérieures au pour cent (CL 11549, CL 12706 et CL 11840, tableau 20). Il s'agit de deux plaques respectivement triangulaire et trapézoïdale d'une épaisseur de 5 mm et d'une tige recourbée. Deux des trois objets confectionnés à partir d'un alliage plomb-étain proviennent du Plat-du-Roi tandis que le troisième est issu du ferrier 2. La présence d'étain en quantités si importantes ne peut pas s'expliquer par la nature des minerais traités à Castel-Minier compte tenu des données géochimiques que nous avons présentées⁴⁶⁶. Plus sûrement, l'étain provient de soudures plomb-étain qui existaient sur le métal qui a été recyclé pour confectionner les objets découverts en fouille⁴⁶⁷. Lors de la refonte, la soudure est diluée dans le bain liquide et l'on retrouve sa trace lors de l'analyse globale du métal recyclé. Ce type de réemploi a été constaté dans les plombs médiévaux notamment dans les scellements d'éléments architecturaux en pierre des cathédrales de Metz et de Chartres⁴⁶⁸. À Castel-Minier, la fonction des plombs riches en étain est probablement en lien avec la construction des espaces de travail ou domestiques voire avec l'outillage métallurgique. La composition atypique de ces métaux au regard du reste du corpus plaide en faveur d'une origine exogène⁴⁶⁹.

Les alliages plomb-cuivre

Les analyses LA-ICP-MS ont également permis de révéler la présence d'alliages cuivre-plomb. Il s'agit de cinq individus pour lesquels les concentrations en cuivre

⁴⁶⁶ *Supra* p. 300.

⁴⁶⁷ La pratique de la soudure plomb-étain est attestée au Moyen Âge, notamment pour l'assemblage des tuyaux en plomb : L'Héritier M. et Arles A., *Rapport d'analyse des tuyaux en plomb de la fouille du « Carreau du Temple »*, IRAMAT-CEB, Orléans, 2013 ; L'Héritier M. et Flament J., *Rapport d'analyse des tuyaux en plomb de la fouille de Vanves « rue d'Issy-rue de Pruvot »*, IRAMAT-CEB, Orléans, 2017.

⁴⁶⁸ L'Héritier M., Arles A., Dissier A. et Gratuze B., « Lead it be!... », *op. cit.*, p. 258 et suivantes.

⁴⁶⁹ On ne peut totalement exclure la pratique *in situ* de soudures sur des plombs désargentés produits avec des minerais de Castel-Minier et qui auraient été recyclés dans un second temps. Néanmoins, les teneurs élevées en bismuth des alliages plomb-étain renforcent l'hypothèse d'une origine exogène.

s'élèvent à 1,4 ; 1,7 ; 7,0 et 12,4 % (respectivement CL 11775_2, CL 11899, CL 11842 et CL 11719; tableau 20), soit bien au-delà des teneurs habituellement observées pour le reste du corpus archéologique. Par ailleurs, ces alliages ne sont pas particulièrement argentifères avec des teneurs en métal blanc intermédiaires comprises entre 130 et 872 ppm. L'obtention de ce type de produit résulte plus sûrement du traitement d'un minéral mixte, associant de la galène et de la chalcoppyrite, ou d'un minerai polymétallique particulier tel que la bournonite⁴⁷⁰.

Le plomb d'œuvre

Hormis les catégories très particulières que constituent les alliages plomb-étain et plomb-cuivre, l'identification du plomb reflétant les activités de traitement de la galène argentifère pratiquées à Castel-Minier n'est pas aisée. La difficulté concerne la distinction des étapes de la chaîne opératoire avec d'une part le plomb d'œuvre provenant du traitement de la galène et d'autre part le plomb désargenté issu d'un recyclage des sous-produits de l'affinage de l'argent. En outre, certains plombs de notre corpus peuvent également provenir de galènes peu argentifères qui, à défaut de représenter une source d'argent profitable, demeurent utiles dans le cadre d'une production de plomb. Ce métal est d'ailleurs exporté de Castel-Minier selon Girardi⁴⁷¹. La production concomitante d'argent et de plomb à partir de galènes aux propriétés différentes est également documentée au cours du XIII^e siècle dans le Siegerland sur le site de l'Altenberg⁴⁷². La production de plomb désargenté peut également être recherchée dans le cadre du traitement de minerais de cuivre argentifères dont la transformation nécessite une cofusion plumbeuse.

Des teneurs en argent de quelques centaines de ppm ne sont pas rares dans les

⁴⁷⁰ Cette dernière hypothèse est discutée plus loin : *Infra* p. 522.

⁴⁷¹ *Supra* p. 105.

⁴⁷² Rehren T., Schneider J. et Bartels C., « Medieval lead-silver smelting in the Siegerland West Germany », *Journal of Historical Metallurgy*, 1999, p. 81 et suivantes.

plombs médiévaux utilisés en architecture⁴⁷³ ou dans le cadre de pratiques halieutiques⁴⁷⁴. Elles peuvent témoigner de l'utilisation de plombs issus du recyclage des sous-produits de l'affinage de l'argent et dans lesquels une petite quantité de métal blanc peut subsister. Les plombs architecturaux légèrement argentifères peuvent également résulter d'un choix délibéré des métallurgistes d'écarter les plombs pour lequel la récupération de l'argent n'est pas économiquement intéressante. Cette hypothèse pose la question de la concentration limite en métal blanc en-dessous de laquelle la séparation du plomb et de l'argent n'est plus pratiquée. Elle n'est certainement pas figée, ni dans le temps ni dans l'espace, mais dépend d'une part du contexte économique (évolution du cours des métaux et de la demande) et d'autre part de contraintes techniques, notamment la maîtrise des procédés d'affinage et l'accès au combustible. Pour les périodes anciennes, des seuils ont été avancés. Ainsi, Tylecote considère que la limite économique d'une coupellation s'établit à 600 ppm pour la « période romaine » contre 400 ppm pour l'Âge du Bronze moyen et final de la civilisation égéenne⁴⁷⁵. Ces valeurs sont reprises par Rehren et Prange qui les appuient par des données non-publiées⁴⁷⁶. Pour la période médiévale, citons la découverte sur le site de Brandes d'un lingot de plomb contenant 3,2 % de cuivre, 1,1 % d'antimoine et 800 ppm d'argent⁴⁷⁷. Marie-Christine Bailly-Maître interprète cet artefact comme du plomb d'œuvre résultant d'un essai pratiqué sur le site minier et minéralurgique afin de tester sa qualité. L'analyse récente d'un petit corpus de minerais archéologiques renforce cette hypothèse : l'association fréquente de bournonite avec la galène permet

⁴⁷³ L'Héritier M., Arles A., Dissier A. et Gratuze B., « Lead it be!... », *op. cit.*, p. 258 et suivantes ; Arles A., *rapport d'analyse des tables...*, *op. cit.*, p. 28 et suivantes. Des teneurs en argent dépassant la centaine de ppm ne sont pas rares dans les plombs de vitraux : Cuzange L. et Texier A., « Caractérisation des plombs anciens de vitraux », *Corpus vitrearum newsletter*, 47, 2000, p. 43-51.

⁴⁷⁴ Téreygeol F. et Arles A., « Mise en forme et provenance des plombs halieutiques », *In* Dumont A. et Mariotti J.-F. (éd.), *Archéologie et Histoire du fleuve Charente, Taillebourg-Port d'Envaux : une zone portuaire du haut Moyen Age sur le fleuve Charente*, Éditions universitaires de Dijon, Dijon, 2013, p. 211.

⁴⁷⁵ Tylecote R.F., *The early history of metallurgy in Europe*, Londres et New-York, 1976.

⁴⁷⁶ Rehren T. et Prange M., « Lead metal and patina: a comparison », *Der Anschnitt* 8, 1998, p. 189.

⁴⁷⁷ Bailly-Maître M.-C., « Extraction et traitement d'un minerai ... », *op. cit.*, p. 232.

en effet d'expliquer de telles teneurs en cuivre et en antimoine⁴⁷⁸. Dans sa synthèse sur le site métallurgique de Huneberg située dans le district du Harz et actif à la fin du XII^e siècle, Bastian Asmus donne trois analyses de plombs d'œuvre dont les teneurs en argent s'élèvent à 900, 1100 et 1500 ppm⁴⁷⁹. Malgré ces quelques exemples, le plomb d'œuvre demeure un produit métallurgique difficile à appréhender faute d'études d'ensemble. Il recouvre des réalités diverses et mouvantes qui dépendent tant de critères techniques qu'économiques.

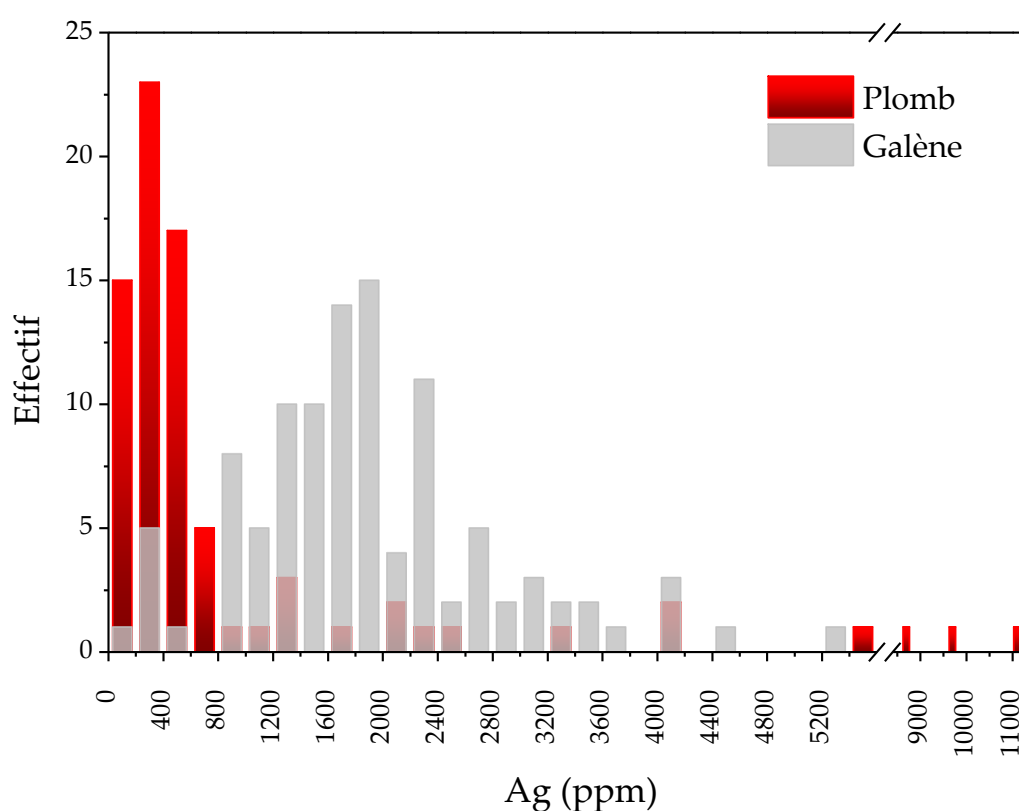


Figure 108 : Histogramme représentant la répartition des teneurs en argent du corpus de plombs et de galènes archéologiques. Pour ces dernières, la teneur en argent est donnée pour un plomb métallique équivalent.

⁴⁷⁸ Malý K., Hrubý P. « Medieval Mines of Brandes en Oisans Polymetallic ores, technogenic sediments, slags (mineralogy and geochemistry) », In Bailly-Maître N. et Minvielle Larousse N., *Brandes-en-Oisans. Rapport final 2012-2014*, SRA Rhône-Alpes, Lyon, 2014, p. 51-68.

⁴⁷⁹ Asmus B., *Medieval Copper Smelting in the Harz Mountains, Germany*, Deutsches Bergbau-Museum, Bochum, 2012, p. 352. L'auteur cite des analyses anciennes réalisées selon une méthodologie non précisée.

Le site de Castel-Minier offre l'occasion de caractériser plus précisément le plomb d'œuvre et les modalités d'obtention de ce métal entre la fin du XIII^e siècle et le milieu du XV^e siècle. L'identification de ce produit intermédiaire est permise par les résultats des analyses archéométriques et notamment le dosage des éléments-traces par LA-ICP-MS. L'étude des teneurs en argent révèle tout d'abord une forte amplitude avec des valeurs qui n'atteignent que quelques dizaines de ppm dans certains artefacts, alors qu'elles dépassent le pour cent dans d'autres (figure 108). Néanmoins, la majorité des échantillons du corpus se trouve dans l'intervalle [0 ; 800 ppm]. Ce premier constat met en lumière un décalage entre le minerai et le métal. Ainsi, les teneurs en argent des plombs analysés sont plutôt faibles si on les compare à celles des plombs que l'on peut obtenir à partir des galènes archéologiques⁴⁸⁰ (figure 108). En effet, la galène qui approvisionne les ateliers de Castel-Minier conduit à l'obtention de plombs dont la teneur en argent est comprise entre 800 et 5400 ppm. La majeure partie du corpus de mobilier en plomb étudié est donc en dehors du domaine défini par le minerai. Ce constat peut découler de trois schémas de production : le traitement d'un minerai peu argentifère, le recyclage de sous-produits de l'extraction de l'argent ou une production exogène. Le premier est plausible puisqu'une proportion des galènes, certes limitée, présente des concentrations en argent compatibles avec celles des plombs faiblement argentés (figure 108). Cette qualité de métal est bien représentée dans notre corpus alors que paradoxalement la proportion de galène pauvre en argent est faible parmi le corpus de minerais archéologiques. Cette dichotomie suggère donc la contribution d'autres mécanismes à la production de plomb désargenté tels que des pratiques de recyclage

⁴⁸⁰ À partir de l'analyse des galènes archéologiques, il est possible de calculer les teneurs en argent que l'on obtiendrait en réduisant ces minerais. Dans ce cas, on suppose que tout le soufre a été éliminé et que l'argent s'est conservé. Cette dernière hypothèse est validée expérimentalement comme nous le verrons par la suite : *infra* p. 436.

voire l'importation de métal⁴⁸¹.

Qu'en est-il des plombs d'œuvre archéologiques plus riches en argent ? Dans ce cas de figure une filiation avec la galène de Castel-Minier peut être envisagée puisqu'un phénomène d'enrichissement en argent du bain de plomb métallique se produit fréquemment au cours de la réduction du minerai⁴⁸². Si une partie des individus relève de ce mécanisme physico-chimique, il faut également envisager une production à partir d'un minéral différent, plus argentifère, tel qu'un minerai mixte galène-tétraédrite voire la tétraédrite seule.

En définitive, les individus contenant plus de 800 ppm d'argent peuvent donc être considérés comme des plombs d'œuvre issus du traitement de la galène argentifère disponible à Castel-Minier. Logiquement, cette catégorie est peu représentée au sein de notre corpus, qu'il s'agisse de ses effectifs et de sa masse totale (figure 108 et figure 109), puisque le plomb d'œuvre n'est qu'un produit intermédiaire de la chaîne opératoire de l'argent : il a vocation à subir des transformations ultérieures pour en extraire le métal blanc. Les huit structures qui ont livré du plomb d'œuvre couvrent une période qui s'étend de la fin du XIII^e au milieu du XV^e siècle ce qui démontre une fois de plus la pérennité des activités métallurgiques et de la production d'argent en particulier. Il est intéressant de constater la coexistence au sein des plateformes et des bâtiments du plomb d'œuvre et du plomb désargenté (figure 109) qui peut indiquer d'une part le traitement en alternance de minerais de différentes qualités et d'autre part le recyclage des sous-produits dans un même espace voire dans les mêmes structures de chauffe.

⁴⁸¹ Le recyclage des sous-produits de l'affinage de l'argent est discuté plus loin (*infra* p. 522) tandis que l'hypothèse d'une origine exogène est nuancée par l'analyse des rapports isotopiques du plomb : *infra* p. 374.

⁴⁸² *Infra* p. 427.

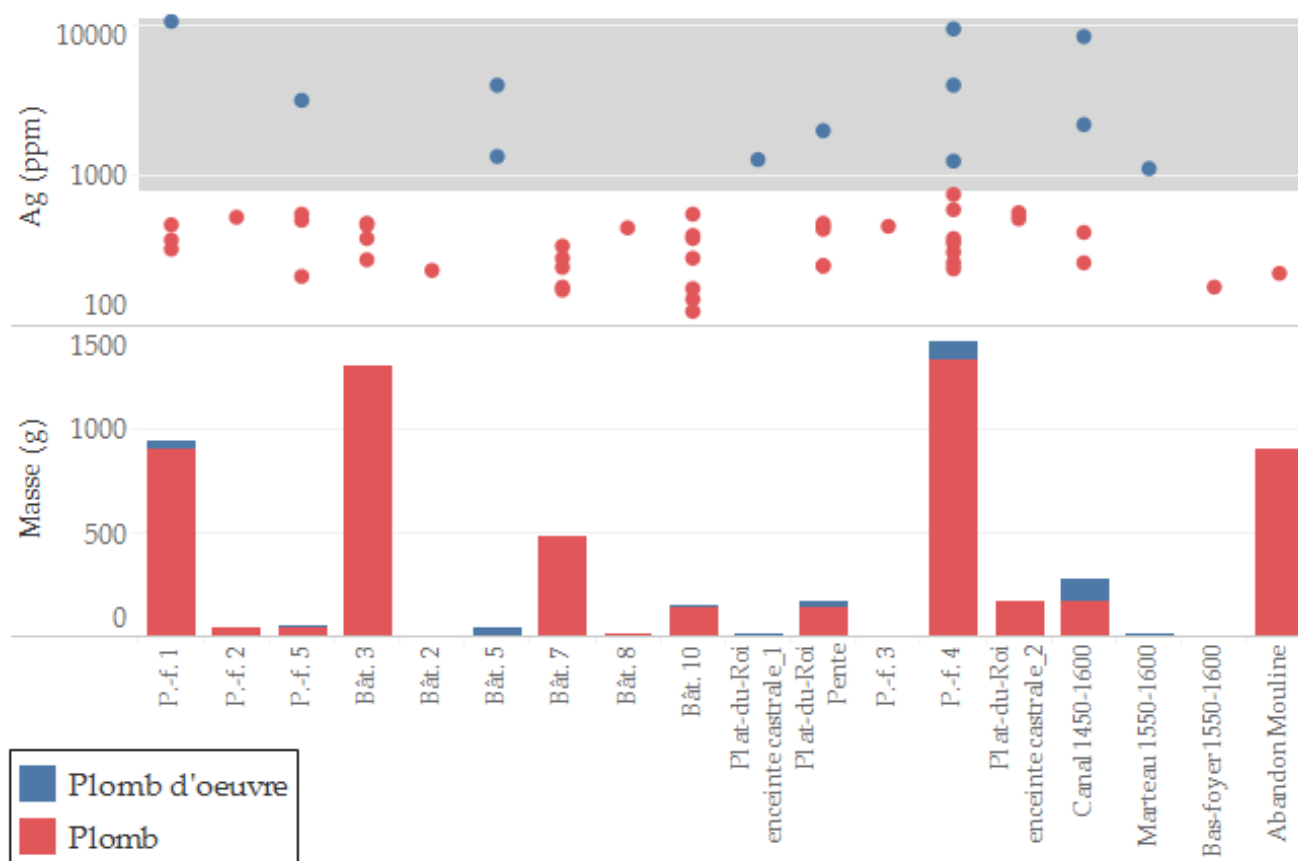


Figure 109 : Teneurs en argent des échantillons de plomb du corpus et proportion de plomb d'oeuvre dans chaque structure. La zone grisée représente le domaine des plombs d'oeuvre.

4.1.1.3. Provenance du plomb : apport de la géochimie isotopique

Quelques artefacts en plomb ont fait l'objet d'analyses géochimiques de manière à déterminer les rapports isotopiques du plomb⁴⁸³. La sélection opérée se fonde sur les teneurs en argent de manière à couvrir une grande partie du domaine de concentration mis en évidence par les analyses LA-ICP-MS (tableau 21). L'objectif de cette étude est de déterminer s'il existe une filiation entre les plombs et les espaces géochimiques de la vallée du Garbet susceptibles d'avoir fourni de la galène⁴⁸⁴.

⁴⁸³ Ces mesures ont été réalisées au BRGM par Catherine Guerrot. Les rapports isotopiques du plomb sont donnés dans l'annexe 5.

⁴⁸⁴ Rappelons au préalable que les rapports isotopiques du plomb ne sont pas modifiés de manière significative pendant les opérations de métallurgie extractive que subit la galène : Baron S., Mahé Le-Carlier C., Carignan J. et Ploquin A., « Archaeological reconstruction of medieval lead production: Implications for ancient metal provenance studies and paleopollution tracing by Pb isotopes », *Applied Geochemistry*, 24(11), 2009, p. 2093-2101.

CL	11683	11965	12641	11842	12153	11612	10915
Ag (ppm)	273	560	732	872	1280	2210	4043

Tableau 21 : Teneur en argent des plombs sélectionnés pour l'analyse isotopique.

À l'exception de l'individu CL 12641, la signature isotopique des plombs est proche de celle des galènes prélevées dans les haldes médiévales de Castel-Minier (figure 110). Les plombs d'œuvre analysés proviennent bien des minerais disponibles dans les ateliers qui ont été extraits dans la mine de Castel-Minier. En outre, les résultats démontrent la possibilité d'une origine locale des plombs faiblement argentifères, notamment CL 11683 et CL 11965, qui ont pu être produits avec des galènes pauvres en argent ou à partir du recyclage de sous-produits issus de la désargentation des plombs d'œuvre. Il faut donc envisager la coexistence sur le site de plusieurs chaînes opératoires consacrées à la production de plomb d'œuvre et de plomb désargenté ainsi qu'aux activités de recyclage. Enfin, l'étude des rapports isotopiques du plomb suggère que l'alliage plomb-cuivre CL 11842 pourrait également provenir du traitement d'un minerai issu de la mine de Castel-Minier.

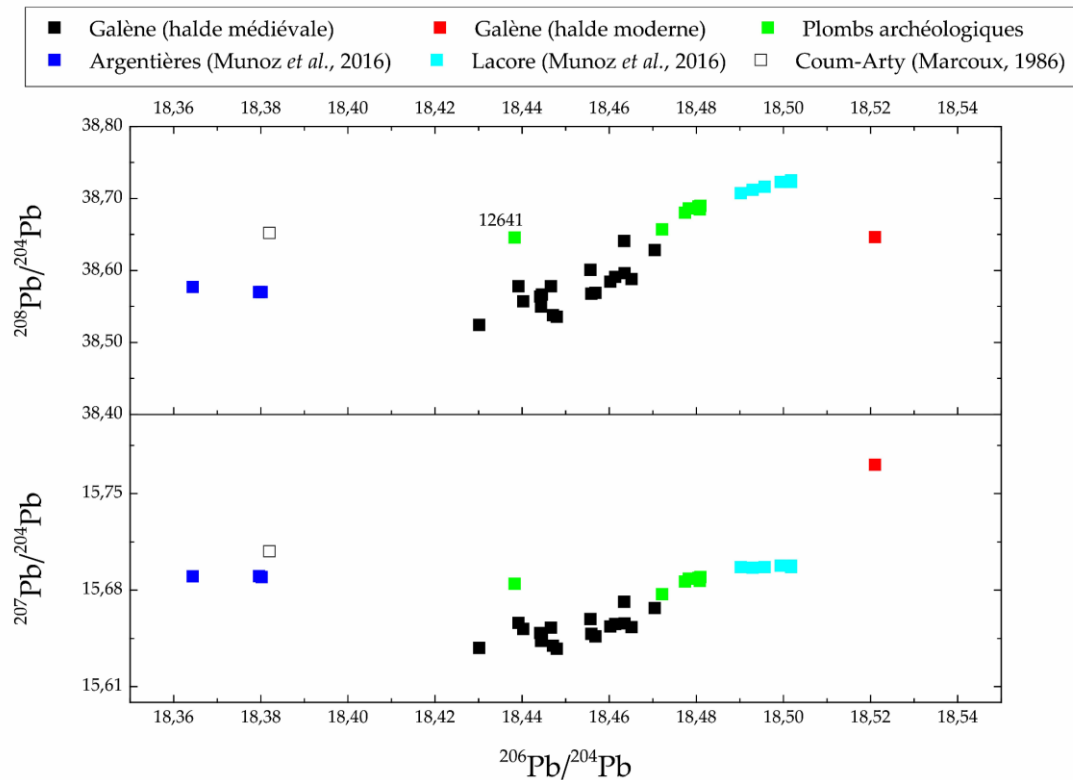


Figure 110 : Représentation graphique des rapports isotopiques $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ et $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ en fonction du rapport $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ pour sept plombs archéologiques et différents gisements de la vallée du Garbet.

4.1.2. Les scories plumbeuses : marqueurs techniques de la transformation de la galène

Les scories sont des sous-produits de la transformation de minerais contenant une certaine proportion de roche stérile. Elles se composent généralement de silicates et d'oxydes métalliques. Leur formation résulte de contributions multiples dont les principales sont la gangue du minerai et les matériaux de la structure de chauffe qui a accueilli les opérations métallurgiques, tels que l'argile ou la roche granitique. L'identification des scories issues de la réduction de la galène repose essentiellement sur des critères visuels et physiques avec respectivement la présence de billes de plomb altérées en carbonates en surface et une densité élevée qui traduit la présence de plomb. L'étude morphologique et l'analyse élémentaire des scories apportent des précisions techniques sur le processus de transformation du minerai, notamment la conduite des structures de chauffe, la durée des opérations ou encore les températures

atteintes. La composition élémentaire des scories permet également d'aborder la métallurgie extractive sous l'angle économique en s'intéressant aux rendements des opérations, à l'efficacité de la récupération des métaux, mais également à la valorisation des sous-produits. Les scories issues de la transformation de la galène représentent un ensemble de plusieurs kilogrammes. Contrairement au corpus des plombs métalliques, analysé exhaustivement par LA-ICP-MS, celui des scories a dû être échantillonné en raison des contraintes de temps. En effet, l'étude de ces artéfacts par MEB-EDX requiert une préparation longue (tronçonnage, mise en résine, polissage) qui n'autorise pas l'examen de la totalité des individus découverts en contexte archéologique. La stratégie d'échantillonnage mise en place s'est attachée à couvrir toutes les structures (bâtiments et plates-formes) ayant livré des scories et, au sein de celles-ci, les différentes unités stratigraphiques liées au fonctionnement. Finalement, l'échantillon sélectionné pour l'étude comprend 28 individus (soit 23 % du corpus archéologique) couvrant toute la période d'activité des ateliers de Castel-Minier⁴⁸⁵. Nous laissons de côté pour le moment les divers éléments scoriacés qui ne correspondent pas rigoureusement à des scories tels que les parois de four fondues.

4.1.2.1. Morphologie des scories

Au niveau macroscopique, les scories étudiées se caractérisent par des dimensions variées avec des individus de masse élevée atteignant plusieurs dizaines de grammes et d'autres plus modestes de quelques grammes. Les scories ont une couleur qui varie du gris au noir avec pour certaines un éclat vitreux en surface. Elles sont principalement informes, anguleuses et bulleuses avec parfois de petites empreintes de charbon. Seuls deux individus présentent une morphologie plano-convexe et une surface libre relativement lisse, ce qui indique un refroidissement de la scorie dans une structure creuse telle qu'une sole ou un avant-creuset (figure 111).

⁴⁸⁵ La couverture photographique du corpus étudié fait l'objet de l'annexe 7.

Hormis ces cas particuliers, la morphologie des scories de Castel-Minier n'est pas compatible avec un soutirage hors des structures de chauffe. L'hypothèse la plus plausible est celle d'une extraction lors de leur curage une fois la solidification achevée.

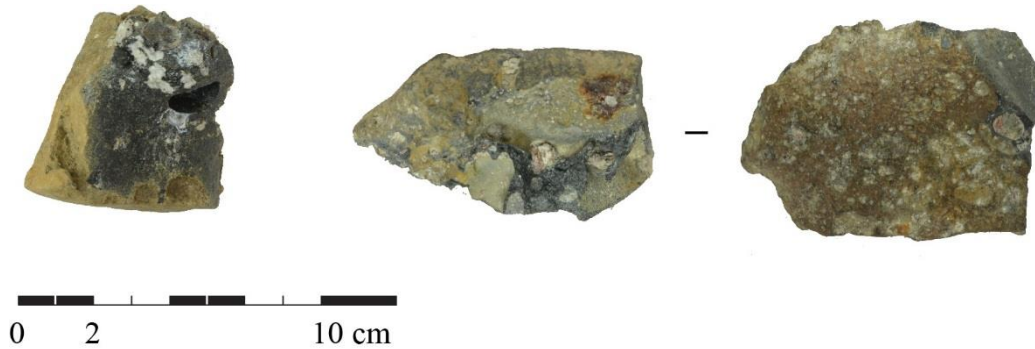


Figure 111 : scories plano-convexes CL 11261 (gauche) et CL 11515 (droite).

L'observation macroscopique des sections polies met en évidence deux types de scories (figure 112). Le premier comprend des individus très hétérogènes dont la structure mêle des parties vitreuses et cristallines ainsi que des fragments de roches non transformées, notamment des grains de quartz. Ces scories sont peu denses ($2,4\pm 0,2$), ce qui indique qu'elles ont incorporé une quantité limitée de plomb. Celles du second type se caractérisent par une couleur noire, une densité supérieure ($2,97\pm 0,2$) et présentent principalement une structure cristallisée. Cette dernière propriété témoigne d'un refroidissement modéré qui a permis la dissociation des phases et la croissance des cristaux. On observe fréquemment des porosités occupées par les gaz qui ont été piégés au cours du refroidissement. Ces scories présentent quelques fois des inclusions de plomb métallique qui traduisent une mauvaise séparation de la scorie et du métal au cours de la transformation du minerai. Une différence de densité trop faible entre ces deux matériaux, causée par l'incorporation importante de plomb dans la scorie, est une des causes de ce phénomène. La viscosité de la scorie peut également être incriminée : une valeur trop élevée nuit en effet à la séparation du métal et de la scorie. Enfin, des ségrégations sont décelables à l'œil nu sur certaines scories : elles se caractérisent par des directions et des tailles de cristaux

différentes (figure 112). Leur présence indique un refroidissement différentiel de la masse scoriacée qui résulte de l'hétérogénéité des températures au sein des structures de chauffe.

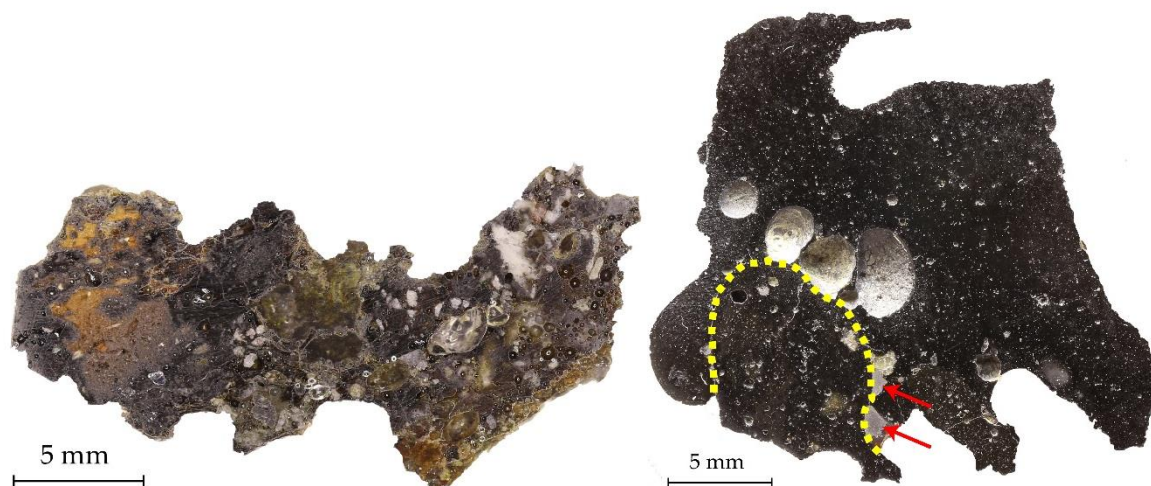


Figure 112 : CL 12700_4 (gauche) : exemple de scorie du premier type. Structure hétérogène contenant des zones scoriacées cristallisées, des plages vitreuses et des grains de quartz partiellement fondus. CL 12100 (droite) : exemple de scorie du second type. Scorie noire, dense et cristallisée avec présence de billes de plomb (flèches rouges), porosités et ségrégation de la structure cristalline (ligne jaune en pointillés).

4.1.2.2. Composition élémentaire des scories : analyses MEB-EDX

Les scories du corpus ont fait l'objet d'analyses élémentaires par MEB-EDX. Il s'agit de mesures semi-quantitatives qui permettent de déterminer la teneur des éléments majeurs et de quelques éléments mineurs (tableau 22). En outre, les capacités d'imagerie de la méthode analytique permettent d'étudier la structure des scories. L'observation microscopique révèle ainsi la présence de faciès presque exclusivement cristallins à l'exception des individus CL 11262-2, 11838, 11265 et 12198. Les constituants majeurs de la scorie sont la silice, la chaux, l'alumine et les oxydes de plomb et de fer. La chaux et l'oxyde de fer sont issus principalement de la gangue du minerai tandis que l'alumine et la silice proviennent des matériaux de la structure de chauffe. Le plomb quant à lui est apporté par la galène avec un pourcentage d'oxyde variable allant de 2,2 % à 74,3 %. Il est disséminé dans la matrice silicatée et/ou présent

à l'état métallique sous la forme de petits globules (figure 113). Les teneurs en plomb observées sont habituelles dans le cadre du traitement de la galène. Ainsi, dans le Harz, les scories du site de Huneberg, actif à la fin du XII^e siècle, contiennent entre 0,7 et 8 % d'oxyde de plomb⁴⁸⁶. Dans le Siegerland, le site du XIII^e siècle de l'Altenberg a livré des scories fayalitiques dont les teneurs en oxyde de plomb varient entre 3,5 et 25 %⁴⁸⁷. Sur le Mont-Lozère, les activités de transformation de la galène qui s'y sont déroulées entre le début du XI^e et le début du XIV^e siècle ont produit des scories dans lesquelles les teneurs en oxydes de plomb s'échelonnent entre 1,3 et 58 %⁴⁸⁸. Enfin, les multiples phases d'activité des ateliers métallurgiques des Vosges centrales, qui couvrent une longue période qui s'étend du X^e au XVIII^e siècle, ont permis de mettre en place une classification chrono-typologique des scories. Ces dernières partagent néanmoins un caractère commun : la présence de plomb dont les teneurs varient de 2 à 27 %⁴⁸⁹.

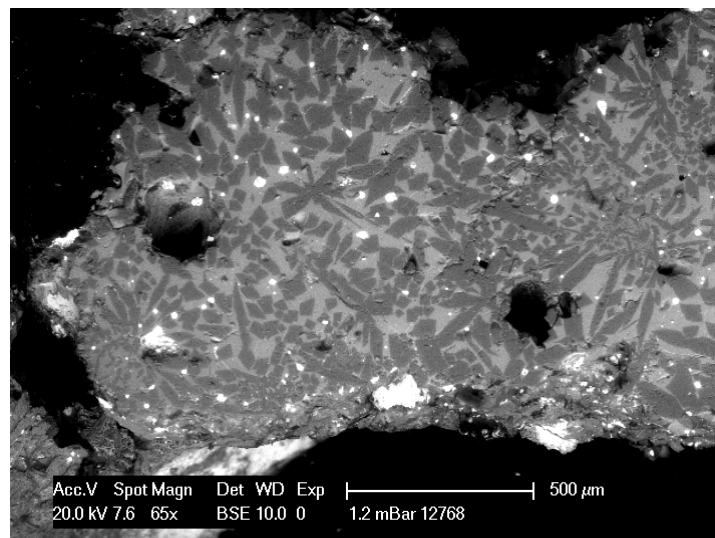


Figure 113 : Section polie de la scorie CL 12768 observée au MEB. Les billes de plomb métallique (blanc) sont disséminées dans une matrice cristallisée formée d'augite.

⁴⁸⁶ Asmus B., *Medieval Copper Smelting in the Harz ...*, *op. cit.*, p. 346 et suivantes.

⁴⁸⁷ Rehren T., Schneider J. et Bartels C., « Medieval lead-silver smelting ... », *op. cit.*, p. 76.

⁴⁸⁸ Mahé-Le Carlier C., Ploquin A. et Fluck P., « Apport de la géochimie et de la pétrologie à la connaissance de la métallurgie du plomb argentifère au Moyen Âge », *ArchéoSciences*, (34), 2011, p. 169.

⁴⁸⁹ Fluck P., Florsch N. et Goldenberg G., « La métallurgie du cuivre et du plomb argentifère dans les Vosges centrales (X^e-XVIII^e s.). Approche archéologique et archéométrique », *Mines et métallurgie, Brussieu-Lyon, 1991*, Benoit P. (éd.), PPHS, Les chemins de la recherche n° 26, Lyon, 1994, p. 148 et suivantes.

Les teneurs en oxydes de zinc sont notables (de 0,6 à près de 8 %) et résultent des particularismes des minéralisations exploitées dans lesquelles la galène peut contenir des inclusions de sphalérite. Malgré une préparation poussée des minerais, il peut subsister une fraction de sphalérite dans la galène livrée aux ateliers métallurgiques. En effet, la séparation hydrogravimétrique des sulfures de plomb et de zinc intimement mêlés est difficile : elle nécessite de réduire la granulométrie à une finesse telle que la densité des deux sulfures est trop proche pour assurer un tri optimal.

Le zinc a une bonne affinité avec l'oxygène⁴⁹⁰. Par conséquent, la formation d'oxydes voire de sulfates est aisée pendant la phase de grillage du minerai. Ces composés ne sont pas réduits facilement puisque le carbone et le monoxyde de carbone fournis par le combustible réagissent plus facilement avec l'oxyde de plomb. En outre, le zinc métallique n'a pas été détecté en quantités significatives dans les plombs d'œuvre analysés⁴⁹¹. Le zinc subsiste donc à l'état d'oxyde et passe dans la scorie. De surcroît, il peut se combiner avec les oxydes de fer pour former des ferrites de zinc (franklinite).

Les faibles teneurs en potasse (K_2O) peuvent résulter d'une contamination par la cendre du combustible, mais également par le granite ou l'argile des structures de chauffe. En revanche, la chaux et la magnésie sont héritées de la gangue des minerais, dont nous avons déjà évoqué la nature dolomitique, comme le démontre la corrélation observée entre ces deux oxydes (figure 114). L'alumine et la silice présentent également une corrélation qui suggère une origine commune (figure 114). L'incorporation de ces oxydes dans la scorie résulte d'une part d'une contamination par les matériaux des structures de chauffe (granite et argile) – il s'agit de la contribution majoritaire – et par la gangue des minerais d'autre part. Enfin, l'oxyde de fer provient essentiellement de

⁴⁹⁰ À 700 °C, température à partir de laquelle le grillage de la galène débute, le potentiel de Gibbs de la réaction d'oxydation du zinc vaut $-500 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ contre $-250 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ pour l'oxydation du plomb.

⁴⁹¹ *Supra* p. 362.

l'argile présente dans les structures de chauffe. Comme nous l'avons vu, il favorise l'incorporation de zinc dans la scorie.

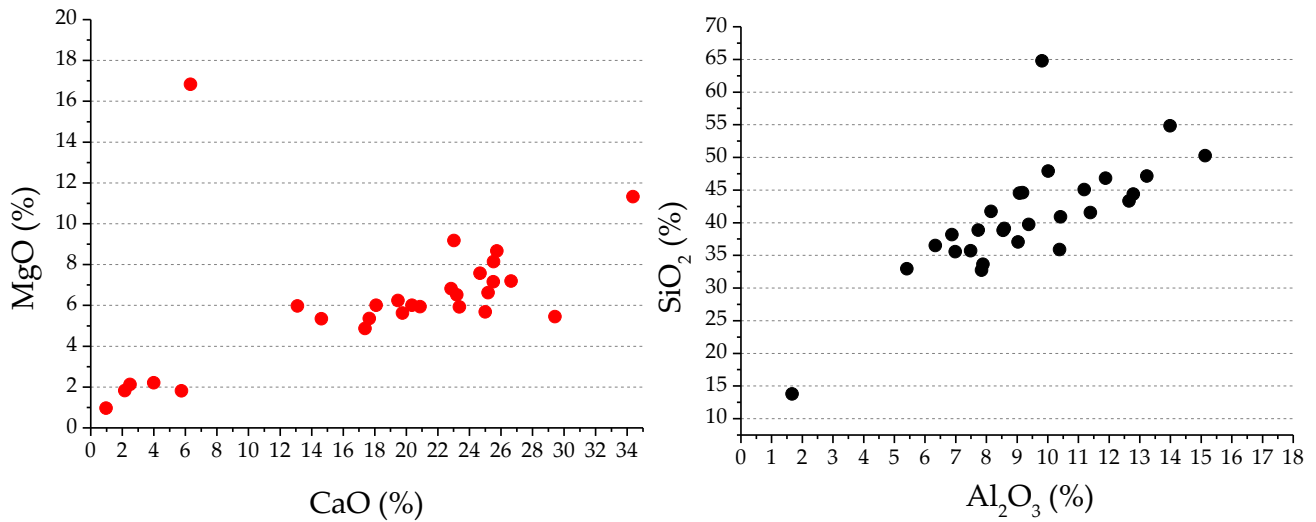


Figure 114 : Représentation des teneurs en magnésie en fonction des teneurs en chaux (gauche) et des teneurs en silice en fonction des teneurs en alumine (droite) pour les scories de réduction de la galène (analyses MEB-EDX).

CL	Structure	MgO (%)	Al ₂ O ₃ (%)	SiO ₂ (%)	K ₂ O (%)	CaO (%)	FeO (%)	ZnO (%)	PbO (%)
11838	Bât. 10	6,2	9,2	44,6	2,3	19,5	10,6	0,7	7,0
12097	Bât. 10	6,6	6,9	38,2	1,6	25,2	10,3	0,8	10,4
12100	Bât. 10	2,3	15,6	51,7	3,1	4,1	5,2	2,2	15,8
12198	Bât. 10	8,1	7,7	38,9	1,9	25,5	10,1	-	7,8
12768	Bât. 10	1,8	1,7	13,8	-	5,8	2,7	-	74,3
12777	Bât. 10	1,8	12,1	47,5	2,0	2,2	5,6	-	28,9
12700	Bât. 10	5,9	9,1	44,5	2,5	20,9	11,3	-	5,7
12700/1	Bât. 10	2,1	14,0	54,8	2,7	2,5	5,1	-	18,7
12700/2	Bât. 10	1,0	6,4	36,7	1,0	1,0	3,7	-	50,3
12700/3	Bât. 10	6,0	10,0	47,9	2,5	20,4	9,9	-	3,3
13062	Bât. 2	11,3	7,0	35,5	-	34,4	5,4	0,6	5,8
11185	Bât. 5	16,8	9,8	64,8	-	6,3	-	-	2,2
10863	Bât. 7	8,7	10,4	35,9	5,6	25,7	7,3	-	6,4
11265	Canal 1400-1450	6,0	13,2	47,1	4,2	13,1	8,7	0,8	6,8

CL	Structure	MgO (%)	Al ₂ O ₃ (%)	SiO ₂ (%)	K ₂ O (%)	CaO (%)	FeO (%)	ZnO (%)	PbO (%)
12111	Plat-du-Roi Enceinte castrale	5,4	12,7	43,3	3,4	17,7	8,5	0,9	8,1
12152	Plat-du-Roi Enceinte castrale	7,6	10,4	40,9	3,2	24,7	6,7	1,3	5,2
12168	Plat-du-Roi Enceinte castrale	6,0	12,8	44,4	3,4	18,1	8,1	1,4	5,8
12160/1	Plat-du-Roi Enceinte castrale	6,1	11,7	42,5	4,2	23,9	6,6	0,6	4,3
12160/2	Plat-du-Roi Enceinte castrale	5,5	8,6	38,8	5,5	29,4	5,8	3,3	3,2
11261	P.-f. 1	5,6	7,9	33,6	2,9	19,8	5,2	1,2	23,9
11262/1	P.-f. 1	6,5	8,6	39,1	-	23,2	6,8	-	15,8
11262/2	P.-f. 1	9,2	11,2	45,1	2,3	23,0	5,8	-	3,3
11671	P.-f. 4	4,9	5,4	32,9	2,1	17,4	6,5	1,7	29,1
11415	P.-f. 5	5,8	7,6	36,4	3,8	25,5	7,0	1,2	12,6
11993	P.-f. 5	6,8	9,0	37,0	3,2	22,8	6,0	1,3	13,8
11902	P.-f. 5	7,2	8,1	41,7	3,7	26,6	6,3	2,4	3,9
11876	P.-f. 5	5,3	7,8	32,7	2,9	14,6	5,7	8,0	23,0

Tableau 22 : Compositions semi-quantitatives des scories de réduction de la galène déterminées par MEB-EDX.

4.1.2.3. Analyse structurale

L'identification des structures cristallines en microscopie optique n'est pas une tâche aisée. Il est souvent préférable de coupler cette approche avec des analyses élémentaires et structurales. Dans notre étude, un premier diagnostic par MEB-EDX du corpus de scories a permis de sélectionner dix individus particulièrement bien cristallisés pour lesquels une analyse structurale par diffraction des rayons X sur poudre a été menée. Le principe de cette technique de caractérisation repose sur l'interaction entre un faisceau de rayons X et la matière cristalline. Au contact de celle-ci, le faisceau est diffracté dans des directions et avec des intensités qui sont propres au réseau cristallin étudié. La représentation de l'intensité du faisceau diffracté en

fonction du double de l'angle d'incidence forme un diffractogramme qui peut être comparé à des référentiels pour identifier la matière cristallisée⁴⁹².

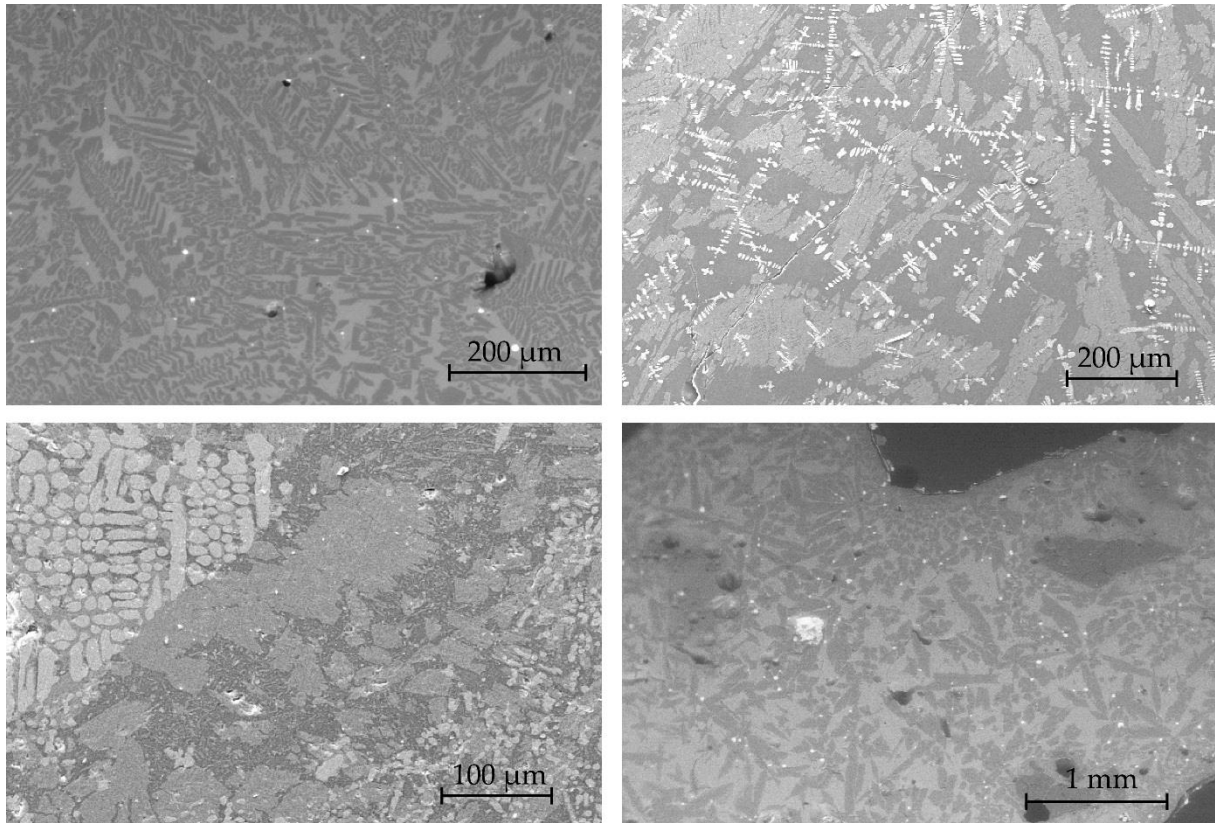


Figure 115 : En haut à gauche : CL 12111, akermanite à tendance squelettique et billes de plomb métallique (blanc) ; En haut à droite : CL 12097, fines dendrites de wüstite dans une matrice formée de cristaux anguleux d'akermanite ; En bas à gauche : CL 12117, dendrites trapues de wüstite et cristaux anguleux d'akermanite. En bas à droite : CL12777, billes de plomb (blanc) dans une matrice d'augite.

Les résultats des analyses en DRX sont présentés dans le tableau 23. Les structures cristallines identifiées dans les scories issues du traitement de la galène correspondent à deux silicates : l'akermanite ($\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7$) et l'augite ($((\text{Si,Al})_2\text{O}_6)(\text{Ca,Mg,Fe,Ti,Al})_2$) (figure 115). L'akermanite est un minéral de la classe des sorosilicates qui se forme naturellement par le métamorphisme des roches calcaires et dolomitiques ou à partir de magmas alcalins riches en calcium⁴⁹³. L'augite appartient

⁴⁹² Les analyses par DRX ont été réalisées au LAPA du CEA de Saclay par Eddy Foy à qui nous exprimons notre gratitude.

⁴⁹³ Deer W. A., Howie R. A. et Zussman J., *An Introduction to the Rock-forming Minerals*, Mineralogical Society, Londres, 2013, p. 72 et suivantes.

à la classe des inosilicates qui se forme à l'état naturel à partir de roches magmatiques ou par métamorphisme⁴⁹⁴.

Les autres structures cristallines identifiées concernent tout d'abord les oxydes de fer. Au sein des scories, ils peuvent exister dans les silicates, notamment dans l'augite, mais également sous la forme de dendrites de wüstite (FeO) (figure 115) ou de magnétite (Fe₃O₄). Des expérimentations ont montré que la présence de magnétite au détriment de la wüstite favorise l'incorporation de plomb dans la scorie⁴⁹⁵. Le type d'oxyde formé dépend des conditions oxydo-réductrices qui règnent dans le réacteur au moment de la transformation de la scorie. Si l'atmosphère est suffisamment réductrice les cations Fe³⁺ sont convertis en Fe²⁺ empêchant ainsi la formation de magnétite. L'analyse en DRX montre que cette condition n'est pas pleinement réunie ce qui témoigne de conditions modérément réductrices dans les structures de chauffe de Castel-Minier. Enfin, dans certaines scories, la silice ne contribue pas uniquement à la formation de silicates mais se trouve aussi individualisée sous la forme de grains de quartz non-transformés et de cristobalite. Théoriquement, la transition vers la cristobalite se produit à 1470 °C. En pratique, les cristaux peuvent se former à des températures plus basses⁴⁹⁶.

L'estimation de la température de fin de cristallisation des scories est une question épineuse. En effet, les données publiées dans la littérature scientifique s'intéressent à des stœchiométries assez éloignées de celles rencontrées dans les scories de Castel-Minier. En particulier, le plomb ne fait jamais partie des constituants ce qui rend peu pertinente l'utilisation des diagrammes de phases disponibles. Ce biais important de l'étude des scories archéologiques a déjà été pointé dans plusieurs études

⁴⁹⁴ Deer W. A., Howie R. A. et Zussman J., *An Introduction to the Rock-forming Minerals*, Mineralogical Society, Londres, 2013, p. 116 et suivantes.

⁴⁹⁵ Calvo F.A. et Ballester A., « Lead losses in the slag of a reduction melting furnace », *Erzmetall*, (39), 1986, p. 285.

⁴⁹⁶ Pagliari L., Dapiaggi M., Pavese A. et Francescon F., « A kinetic study of the quartz–cristobalite phase transition », *Journal of the European Ceramic Society*, 33(15), 2013, p. 3403-3410.

archéométriques sans que des alternatives crédibles soient proposées⁴⁹⁷. Les principaux silicates identifiés à Castel-Minier ont une température de fin de cristallisation qui s'établit théoriquement autour de 1200 °C pour l'augite⁴⁹⁸ contre 1460 °C pour l'akermanite⁴⁹⁹. Ces valeurs particulièrement élevées sont significativement plus basses dans le cas des scories de Castel-Minier puisque les silicates contiennent une proportion importante d'oxyde de plomb. Nous avons choisi d'estimer expérimentalement la température de fin de cristallisation d'un échantillon de scories de Castel-Minier. Les individus, déposés sur un scorificateur, ont été placés dans un four électrique doté d'un thermocouple. La température a été fixée initialement à 1000 °C puis augmentée progressivement avec un incrément de 20 °C. Pour chaque palier de température, une pression a été appliquée avec une tige de fer sur les scories pour déterminer si elles avaient fondu. Finalement, les valeurs des températures de fin de cristallisation s'échelonnent entre 1100 °C et 1200 °C et sont d'autant plus faibles que la teneur en oxyde de plomb est élevée. Ces résultats sont importants puisqu'ils mettent en évidence l'écart entre les modèles théoriques établis à partir de scories modernes et les artefacts archéologiques. Ces derniers présentent fréquemment des teneurs en oxydes métalliques, notamment de plomb, qui permettent d'atteindre l'état fondu à des températures modérées. Ces enseignements sont à prendre en considération dans le cadre de notre réflexion technique sur les procédés de transformation des minerais, en particulier pour ce qui concerne les paramètres thermodynamiques et la nature de la ventilation.

⁴⁹⁷ Les systèmes de diagrammes ternaires mis au point par H.-G. Bachmann ne tiennent pas compte des teneurs en plomb : Bachmann H.-G., *The Identification of Slags...*, *op. cit.*, p. 11 et suivantes. Même problème dans l'étude de G. Goldenberg sur les scories des sites métallurgiques médiévaux de la Forêt Noire : Goldenberg G., « Archäometallurgische Untersuchungen zur Entwicklung des Metallhüttenwesens im Schwarzwald », In Goldenberg G., Otto J. et Steuer H. (éd.), *Archäometallurgische Untersuchungen zum Metallhüttenwesen im Schwarzwald*, Thorbecke, Sigmaringen, 1996, p. 161 et suivantes.

⁴⁹⁸ Ross M. et Huebner S. J., « Temperature-composition relationships between naturally occurring augite, pigeonite, and orthopyroxene at one bar pressure », *American Mineralogist*, 64, 1979, p. 1135.

⁴⁹⁹ Mendybaev R. A., Richter F. M. et Davis A. M., « Reevaluation of the äkermanite-gehlenite binary system », *Lunar Planet. Sci.*, 37, 2006, p. 2268.

CL	Structure cristalline	MgO (%)	Al ₂ O ₃ (%)	SiO ₂ (%)	K ₂ O (%)	CaO (%)	FeO (%)	ZnO (%)	PbO (%)	Autres structures présentes
11261		8,8	6,2	41,1	-	36,2	1,6	1,3	4,8	-
11671		9,2	4,5	35,8	0,6	34,2	5,5	1,9	7,9	-
11902		7,2	8,2	41,7	3,8	26,6	6,3	2,4	3,9	-
12097	Akermanite									Wüstite
12100										Magnétite
12111										-
12160_2										Magnétite
12168		5,4	12,7	43,3	3,4	17,7	8,5	0,9	8,1	Magnétite
12768	Augite	6,2	9,1	44,2	2,2	19,3	10,5	0,7	6,9	Quartz Cristobalite
12777		5,9	9,1	44,5	2,5	20,9	11,3	-	5,7	Quartz Cristobalite

Tableau 23 : Phases cristallines identifiées par DRX et analyses MEB-EDX correspondante.

4.1.2.4. Viscosité des scories

L'étude de la viscosité des scories a fait l'objet de plusieurs publications dans le but d'optimiser les procédés modernes de métallurgie extractive. Dans l'industrie, l'emploi d'un indice de viscosité fondé sur le rapport entre les pourcentages massiques de chaux et de silice est généralisé⁵⁰⁰. Ce paramètre adimensionnel recouvre plusieurs propriétés de la scorie telles que sa basicité, sa fluidité et sa température de transition vitreuse. Il est particulièrement adapté à l'étude des scories industrielles modernes pour lesquelles la composition est maîtrisée grâce à une bonne connaissance de la nature des charges traitées et à l'ajout de fondants appropriés⁵⁰¹ (principalement la silice, la chaux et les oxydes de fer). Ainsi, la transposition de cette méthodologie à l'étude des scories archéologiques pose problèmes puisque ces dernières sont fréquemment composées d'oxydes supplémentaires issus de contaminations avec la paroi du four ou le combustible.

⁵⁰⁰ Calvo, F .A. et Ballester, A., « Lead losses in the slag... », *op. cit.*, p. 286 ; Verein Deutscher Eisenhüttenleute, *Slag atlas...*, *op. cit.*, en particulier le chapitre 9 : « Viscosities of melting slags ».

⁵⁰¹ Blazy P. et Jdid E.-A., « Métallurgie du Plomb. Procédés classiques et ressources primaires », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : m2264, 2011, p. 8.

Nous avons déjà présenté les travaux de Hans-Gert Bachmann consacrés à l'étude des scories archéologiques. Dans plusieurs publications, il s'est également intéressé aux problèmes de viscosité des scories anciennes pour lesquelles il a développé une méthodologie adaptée à la particularité de leurs compositions élémentaires⁵⁰². Pour ce faire, il a introduit un indice de viscosité K_v fondé sur le rapport entre les pourcentages massiques des oxydes basiques et des oxydes acides mis en jeu lors de la formation de la scorie :

$$K_v = \frac{\text{CaO} + \text{MgO} + \text{FeO} + \text{MnO} + \text{TiO}_2 + \text{ZnO} + \text{PbO} + \text{K}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{SO}_2}{\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{P}_2\text{O}_5}$$

Plus l'indice K_v est faible, plus la viscosité est élevée. Les scories de Castel-Minier ont un indice K_v compris entre 0,34 et 1,61 (moyenne : $1,03 \pm 0,30$). Les teneurs élevées en silice des scories sont ainsi compensées par la présence de chaux, de magnésie et d'oxyde de plomb.

Le calcul de l'indice K_v est un prérequis qui permet dans un second temps de déterminer la viscosité η de la scorie en fonction de la température. Bachmann *et al.* ont proposé un modèle de viscosité faisant intervenir ces deux paramètres⁵⁰³ :

$$\ln(\eta) = 26,46 - 23,67 \times 0,001T - 3,12 \times K_v + 0,59 \times K_v^2 + 3,84 \times (0,001T)^3$$

Ce modèle, valable pour des indices K_v variant entre 0,5 et 2,5 dans le domaine de température 1100-1450 °C⁵⁰⁴, comprend néanmoins des limitations puisqu'il a été

⁵⁰² Les travaux de Bachmann sur la viscosité sont disséminés dans plusieurs publications : Bachmann H.-G., « Early copper smelting techniques in Sinai and in the Negev as deduced from slag investigations », *In Craddock P. T. (éd.), Scientific studies in early mining and extractive metallurgy* British museum Occasional paper, London, 1980, p. 103-134 ; Bachmann H.-G., *The Identification of Slags from Archaeological Sites*, London, Institute of Archaeology, Londres, 1982 ; Bachmann H.-G., Lutz C. et Thiemann U., « Schlackenviskositäten », *Archäometallurgie der Alten Welt, Der Anschnitt, Beiheft 7*, 1989, p. 137-140.

⁵⁰³ Bachmann H.-G., Lutz C. et Thiemann U., « Schlackenviskositäten... », *op. cit.*, p. 138.

⁵⁰⁴ Cette contrainte nous a obligé à écarter l'individu CL 12198 dont le K_v vaut 5,47.

établi à partir d'un faible corpus de scories modernes issues des métallurgies extractives du cuivre et du plomb⁵⁰⁵. Les autres modèles de viscosité disponibles dans la littérature – fondés sur l'équation de Vogel-Fulcher-Tammann – n'ont pas pu être utilisés car leurs domaines de validité, trop limités, ne couvrent pas l'amplitude des teneurs en plomb des scories archéologiques découvertes à Castel-Minier⁵⁰⁶.

La viscosité de la scorie est un des paramètres qui conditionnent la séparation de ce sous-produit et du métal à l'intérieur des structures de chauffe. La dissociation est d'autant plus facile que sa valeur est faible : la coulée du plomb métallique voire de la scorie est alors possible. En pratique, la viscosité ne doit pas excéder 15 à 25 Pa.s pour assurer une dissociation optimale des produits et la coulée de la scorie⁵⁰⁷. Dans la gamme de températures considérée (1100-1250 °C), la viscosité moyenne des scories de Castel-Minier est comprise entre 3,55 (à 1250 °C) et 19,21 Pa.s (à 1100 °C) (figure 116 et tableau 24). La condition énoncée ci-dessous n'est donc que partiellement remplie et la coulée de la scorie peut s'avérer difficile dans certains cas d'autant plus que la température de travail est faible⁵⁰⁸. La viscosité des scories de Castel-Minier peut expliquer les faciès observés et notamment l'absence de cordons de coulée et la rareté des morphologies plano-convexe. Trop visqueuse, la scorie a conservé un aspect informe au cours du refroidissement.

CL	Structure	Kv	$\eta_{1150^{\circ}\text{C}}$	$\eta_{1200^{\circ}\text{C}}$	$\eta_{1400^{\circ}\text{C}}$
11838	Bât. 10	0,73	22,71	15,41	6,70
12097	Bât. 10	1,15	9,76	6,62	2,88
12100	Bât. 10	1,22	8,61	5,84	2,54
12198	Bât. 10	5,47	287,42	194,96	84,80

⁵⁰⁵ Bachmann H.-G., « Early copper smelting techniques in Sinai... », *op. cit.*, p. 131.

⁵⁰⁶ Ströbele F., Wenzel T., Kronz A., Hildebrandt L. et Markl G., « Mineralogical and geochemical characterization of high-medieval lead-silver smelting slags from Wiesloch near Heidelberg (Germany)—an approach to process reconstruction », *Archaeological and Anthropological Sciences*, 2(3), 2010, p. 206 et suivantes ; Fluegel A., « Glass viscosity calculation based on a global statistical modelling approach », *Glass Technol.: Eur. J. Glass Sci. Technol. A*, 48(1), 2007, p. 13-30.

⁵⁰⁷ Kondratiev A., Jak E. et Hayes P. C., « Predicting slag viscosities in metallurgical systems », *Journal of Metals*, 54(11), 2002, p. 41-45.

⁵⁰⁸ Nos expérimentations en ventilation naturelle dans un four restitué d'après les vestiges de la structure Fr72, *infra* p. 399, n'ont pas permis d'atteindre des températures supérieures à 1200 °C.

CL	Structure	K _v	η _{1150°C}	η _{1200°C}	η _{1400°C}
12700	Bât. 10	1,33	7,14	4,85	2,11
12768	Bât. 10	0,86	17,00	11,53	5,02
12777	Bât. 10	0,87	16,80	11,39	4,96
12700_1	Bât. 10	0,70	23,97	16,26	7,07
12700_2	Bât. 10	0,45	44,09	29,91	13,01
12700_3	Bât. 10	0,53	36,36	24,67	10,73
13062	Bât. 2	1,35	6,97	4,72	2,06
11185	Bât. 5	0,34	59,49	40,35	17,55
10863	Bât. 7	1,16	9,51	6,45	2,80
11265	Canal 1400-1450	0,66	26,74	18,14	7,89
12111	Plat-du-Roi	1,01	12,48	8,46	3,68
	Enceinte castrale				
12152	Plat-du-Roi	1,11	10,41	7,06	3,07
	Enceinte castrale				
12168	Plat-du-Roi	0,79	19,91	13,51	5,88
	Enceinte castrale				
12160/1	Plat-du-Roi	0,86	16,94	11,49	5,00
	Enceinte castrale				
12160/2	Plat-du-Roi	0,95	14,16	9,61	4,18
	Enceinte castrale				
11671	P.-f. 4	1,61	4,90	3,32	1,44
11261	P.-f. 1	1,41	6,39	4,34	1,89
11262_1	P.-f. 1	1,10	10,69	7,25	3,15
11262_2	P.-f. 1	0,78	20,31	13,77	5,99
11415	P.-f. 5	1,25	8,16	5,53	2,41
11993	P.-f. 5	1,17	9,35	6,34	2,76
11902	P.-f. 5	1,00	12,69	8,61	3,74
11876	P.-f. 5	1,46	5,91	4,01	1,74

Tableau 24 : Indice de viscosité K_v des scories archéologiques et calcul de la viscosité pour différentes températures.

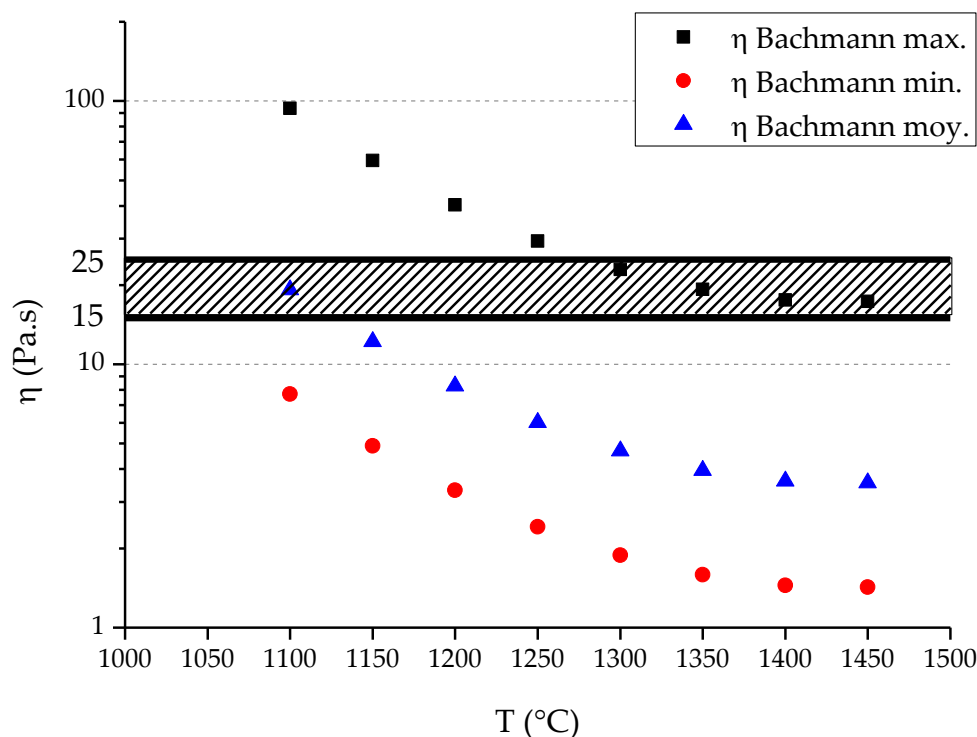


Figure 116 : Évolution des viscosités extrêmes et moyennes du corpus de scories en fonction de la température. Calculs établis d'après le modèle de Bachmann. À partir de la zone hachurée, la séparation du métal et de la scorie devient difficile.

4.1.3. Les ateliers de transformation de la galène

4.1.3.1. Les premiers temps de l'exploitation : fin du XIII^e siècle

La production de plomb d'œuvre à partir de la galène argentifère débute dès la fin du XIII^e siècle sur le site de Castel-Minier. L'analyse spatiale du mobilier en plomb permet a priori de distinguer trois espaces privilégiés ayant accueilli cette activité : les plates-formes 1 et 5 et le bâtiment 3. La découverte de quantités significatives de galène en ces lieux suggérait déjà une fonction métallurgique qui se trouve renforcée par l'association avec du plomb d'œuvre et des scories issues de la transformation de la galène (figure 117). À l'exception des individus du bâtiment 3, les plombs ont été mis au jour dans des contextes de démolition et d'abandon. Les analyses archéométriques permettent d'écarter les plombs du bâtiment 3 de la chaîne opératoire de la galène argentifère. Ils ne peuvent pas être considérés comme des plombs d'œuvre compte tenu de leurs faibles teneurs en argent (273 et 474 ppm). En outre, l'absence de scories

de réduction dans cet espace réduit la probabilité d'une activité métallurgique dans le bâtiment 3. Le cas des plates-formes est différent puisqu'elles recèlent du plomb d'œuvre et des scories. Sur la plate-forme 1, un petit fragment informe de 32 g contient une quantité d'argent exceptionnellement élevée qui atteint 1,1 % tandis que sur la plate-forme 5, les analyses archéométriques ont permis d'identifier par deux fois le plomb d'œuvre sous la forme d'un morceau de plaque de 4,6 g contenant 3237 ppm d'argent et d'un fragment informe de 19,2 g dont la teneur en argent est plus modeste (872 ppm). Sur la plate-forme 1, le traitement d'un minerai mixte galène-tétraédrite, dont deux fragments ont été mis au jour dans cet espace⁵⁰⁹, est vraisemblablement à l'origine des teneurs élevées en argent. La première phase d'occupation de Castel-Minier s'est donc avérée en certaines occasions particulièrement rentable.

⁵⁰⁹ *Supra* p. 352.

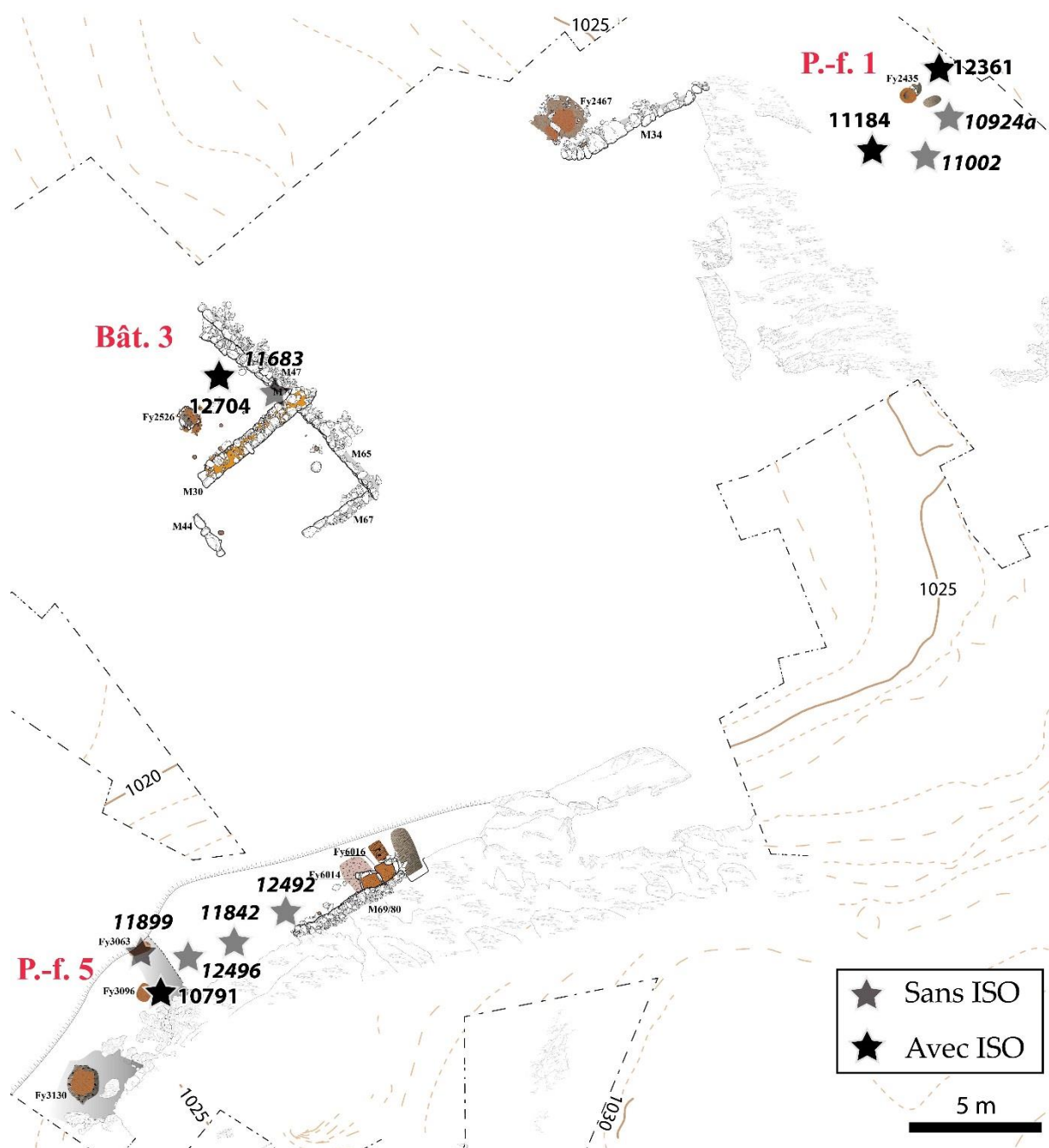


Figure 117 : Distribution spatiale du plomb mis au jour dans les structures archéologiques de la fin du XIII^e siècle.

La présence de foyers circulaires sur ces plates-formes pourrait indiquer une transformation de la galène en ces lieux. L'analyse élémentaire des argiles rubéfiées, vestiges de ces structures de chauffe, permet de déterminer l'ampleur de la contamination métallique qui les affecte. Ces données livrent ainsi quelques éléments de réflexion qui font progresser l'interprétation fonctionnelle. Sur la plate-forme 1, le foyer Fy2435 présente des teneurs en plomb très élevées qui indiquent que ce métal y

a été travaillé (tableau 25). En outre, la présence de zinc en quantité importante plaide en faveur d'une activité d'extraction à partir de la galène. En effet, ce métal est présent dans le sulfure de plomb sous la forme de sphalérite et dans la scorie sous la forme d'oxydes. Très volatil, il a pu également se sublimer lors des opérations métallurgiques dès que la température a dépassé 907 °C. Il s'est ensuite condensé à la sortie du foyer et s'est redéposé dans le voisinage. Enfin, l'argile contient des teneurs significatives en argent proches de celles mesurées dans la galène. Il est donc probable que la contamination se soit produite à partir de plomb d'œuvre. Un raisonnement similaire peut être construit pour le foyer Fy3096 de la plate-forme 5. L'argile présente également des teneurs significatives en plomb et en zinc (tableau 25). En revanche, la concentration réduite en argent peut indiquer la transformation de galènes moins argentifères comme le suggèrent les analyses du plomb d'œuvre découvert sur la plate-forme.

Élément	Fy2435 (P.-f. 1)	Fy3096_1 (P.-f. 5)	Fy3096_2 (P.-f. 5)
Cu	2133	507	227
Zn	9191	1,1 %	7293
As	140	80	62
Ag	1446	403	34
Sb	857	151	44
Pb	14,1 %	4,7 %	1,8 %

Tableau 25 : Teneurs de six métaux dans l'argile des foyers de la fin du XIII^e siècle. Analyses LA-ICP-MS. Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm.

4.1.3.2. L'essor du XIV^e siècle

Dans la première moitié du XIV^e siècle, l'organisation des ateliers métallurgiques destinés au traitement de la galène argentifère subit une transformation technique qui se manifeste par l'évolution des structures de chauffe. L'introduction d'un four bâti en granite dans le bâtiment 10 témoigne d'une volonté de pérenniser les activités métallurgiques alors que la période précédente était marquée par l'emploi de structures plus légères. Néanmoins, la mutation observée

n'est pas totale puisque les foyers continuent à être utilisés tout au long de la période. Les modifications de l'organisation fonctionnelle de Castel-Minier interviennent dans une période d'essor économique de l'exploitation qui se traduit par une production considérable d'argent dont témoignent les quelques sources écrites qui nous sont parvenues.

4.1.3.2.1. Rationalisation de l'espace de travail : le bâtiment 10

Le bâtiment 10 tient une place particulière dans la chaîne opératoire du plomb argentifère puisqu'il concentre à la fois du minerai, des scories et du plomb métallique. À ce mobilier métallurgique s'ajoute la présence du four en granite Fr72 destiné à la transformation de la galène selon le procédé de « grillage et réaction ». Le bâtiment 10 est l'espace qui a fourni le plus grand nombre d'échantillons de plomb métallique avec douze individus (figure 118). Pour autant, il convient d'examiner leurs teneurs élémentaires avant de les rattacher éventuellement à la chaîne opératoire du plomb argentifère. Le corpus se compose principalement de billes prélevées dans l'argile du four Fr72, de coulures et de petits lingots. Seules les billes correspondent à la catégorie du plomb d'œuvre avec des teneurs variant de 1778 à 2525 ppm d'argent. Les autres objets en sont exclus car leurs teneurs en argent sont trop faibles. Cette discrimination élémentaire est renforcée par l'étude morphologique : les lingots présentent des traces de martelage et de découpe tandis qu'un individu peut être identifié à une rondelle qui devait prendre place dans un système mécanique.

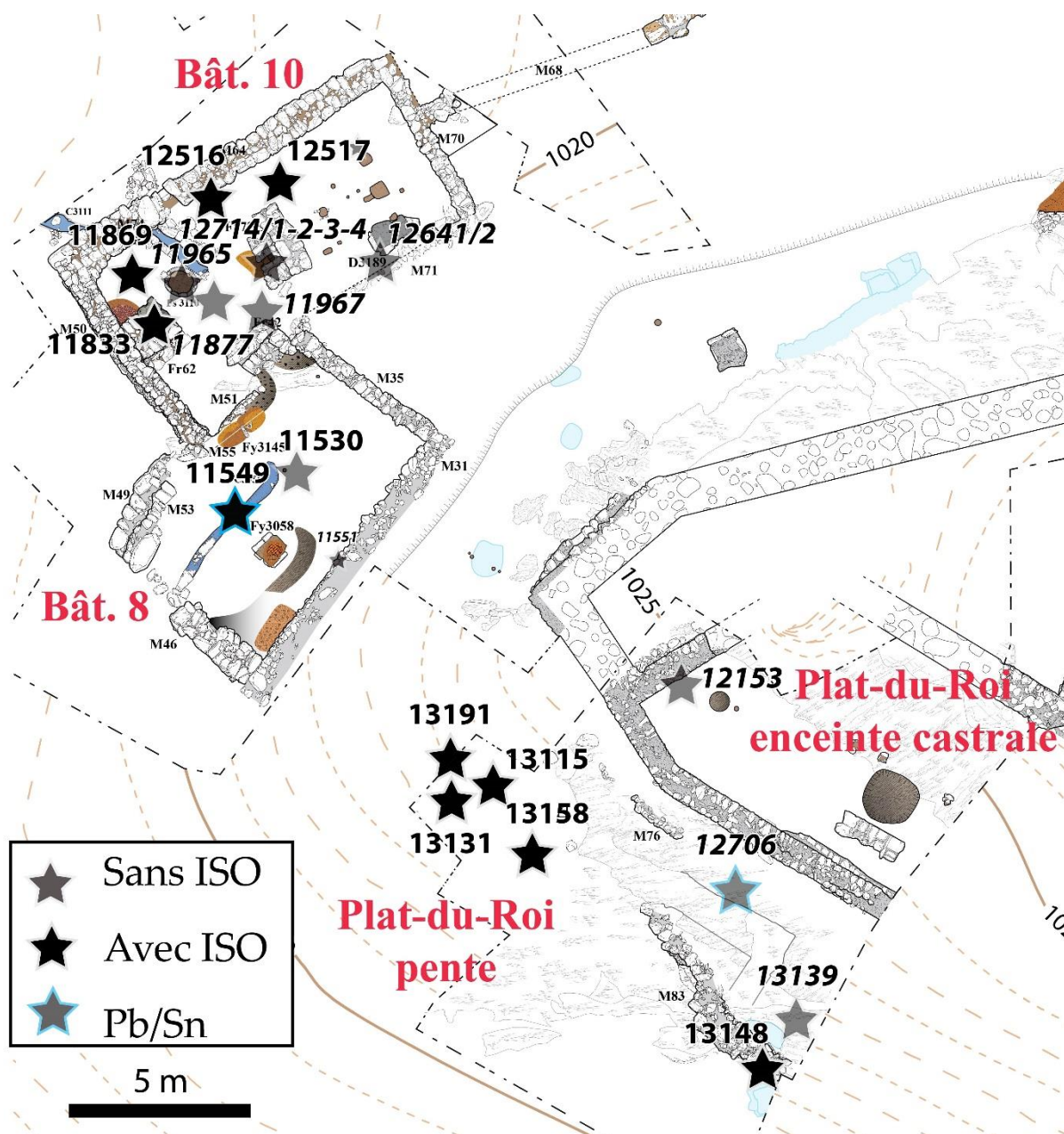


Figure 118 : Distribution du plomb et des alliages plomb-étain dans les espaces du XIV^e siècle.

Contigu au bâtiment 10, le bâtiment 8 s'élève plus au sud et s'appuie contre la moraine (figure 118). Il contient un foyer quadrangulaire Fy3058 fermé sur trois côtés par des pierres posées de chant délimitant une sole en briques. Le mobilier en lien avec la métallurgie est inexistant hormis une plaque de plomb très peu argentifère qui ne peut pas être considérée comme du plomb d'œuvre. Ces observations invitent à donner une fonction domestique au bâtiment 8. Cette interprétation est renforcée par l'étude archéométrique du foyer. L'étude spatiale par la méthode du krigeage des

résultats de dosages⁵¹⁰ XRF met en évidence l'absence de contaminations en plomb, cuivre et zinc dans le foyer Fy3058 (figure 119). Cette structure de chauffe n'a donc pas été en contact direct avec le minerai ou le métal si tant est qu'elle ait accueilli des opérations métallurgiques. Dans ce cas, il faudrait envisager un travail à petite échelle dans des contenants tels que des creusets. Le foyer se trouve à proximité de l'US 3059 qui se compose d'une lentille charbonneuse contenant des carbonates de plomb et qui présente des pollutions importantes en plomb, cuivre et zinc (figure 119). L'absence d'une continuité des contaminations avec le foyer nous incite à identifier l'US 3059 à une zone de remisage du minerai en attente de traitement plutôt qu'à une zone de défournement. La fonction du foyer Fy3058 est donc principalement domestique. Quant au bâtiment 8, il a pu servir à loger du personnel qualifié à proximité des ateliers (bâtiment 10), pratique attestée par ailleurs au milieu du XV^e siècle sur le site minier et métallurgique de Pampailly⁵¹¹, mais également à remiser des matériaux.

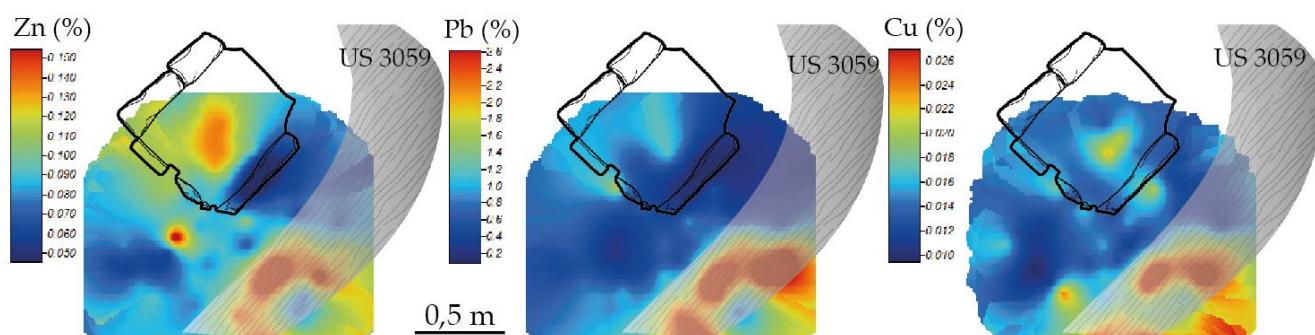


Figure 119 : Résultats des analyses spatiales par krigeage effectuées à partir des teneurs XRF en zinc, plomb et cuivre obtenues sur le foyer Fy3058.

La fouille du bâtiment 10 a livré un dépôt de galène exempte de gangue qui contenait une casse de coupellation, c'est à dire une sole usagée, gorgée d'oxydes de

⁵¹⁰ Ceux-ci ne couvrent pas l'ensemble du foyer car ils sont centrés sur le sol du travail qui se développe au sud ce qui explique l'absence de données pour certaines zones.

⁵¹¹ Article 18 des statuts miniers du 19 avril 1455 : « rebatir et edifier la petite maison qui est au dessus dudit martinet demolie pour logier le fondeur et affineur ». D'après Fagniez G., *Documents relatifs à l'histoire de l'industrie et du commerce en France*, tome 2, Picard, Paris, 1900, p. 246.

plomb, issue de l'affinage de l'argent⁵¹². La présence de ce matériau dans le dépôt de minerai caractérise une pratique de recyclage. L'adjonction de casses de coupellation à la charge de minerai introduite dans le four présente plusieurs avantages. L'oxyde de plomb agit comme un fondant qui permet d'abaisser le point de fusion du minerai. Sa réduction en plomb métallique est facile et sa concentration dans le creuset forme une masse significative qui permet de collecter plus efficacement le reste du métal. En outre, les oxydes de plomb permettent d'amorcer les réactions de transformation dans le cadre d'un procédé par « grillage et réaction » : l'oxyde de plomb réagit avec la galène pour former du plomb métallique et du sulfure de plomb⁵¹³.

Le bâtiment 10 a livré plusieurs scories issues de la transformation de la galène. Ces sous-produits contiennent des teneurs en oxyde de plomb variées allant de 1 à 74 % avec toutefois une concentration des individus dans le domaine 5-20 % (figure 120). L'incorporation particulièrement poussée du plomb dans la seconde catégorie entraîne la diminution de la quantité de plomb d'œuvre obtenue à l'issue de la réduction du minerai. Ce phénomène peut être volontaire dans l'optique d'un enrichissement en argent du plomb d'œuvre. En effet, et contrairement au plomb, le métal blanc ne s'oxyde pas et ne migre pas dans la scorie⁵¹⁴.

⁵¹² *Infra* p. 463.

⁵¹³ $\text{PbS} + 2 \text{PbO} \rightarrow 3 \text{Pb} + \text{SO}_2$.

⁵¹⁴ *Infra* p. 427.

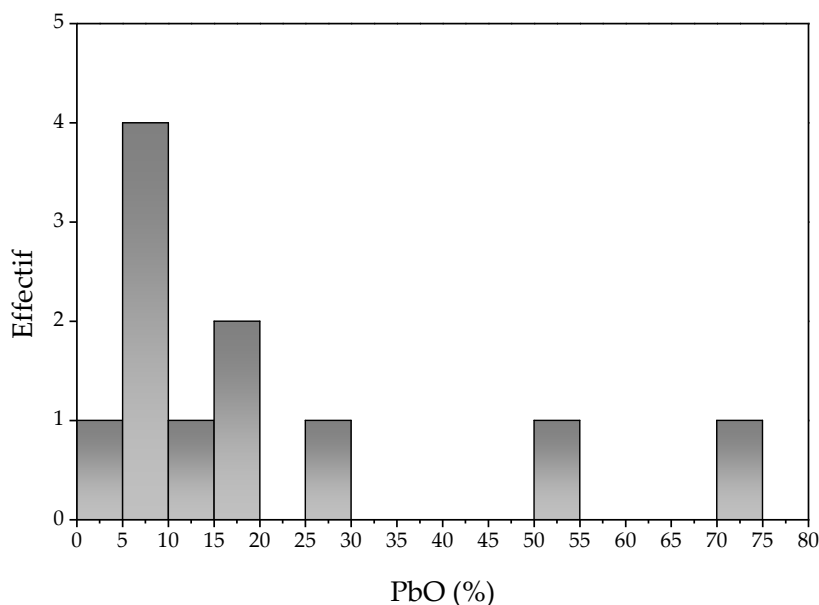


Figure 120 : Distribution des teneurs en oxydes de plomb des scories issues du bâtiment 10.

4.1.3.2.2. Le four Fr72

4.1.3.2.2.1. Présentation de la structure

Le four Fr72 est situé dans le bâtiment 10 édifié dans la première moitié du XIV^e siècle à la base de la moraine. La structure se trouve au centre du bâtiment dans un espace qui n'était pas couvert⁵¹⁵. Le four Fr72 adopte une géométrie en « U » avec toutefois une excroissance à son extrémité nord. Il est bâti à partir de blocs de granite erratiques provenant du massif de Bassières et charriés par les glaciers⁵¹⁶. Certains blocs sont taillés, en particulier ceux employés pour construire le creuset (figure 121). L'élévation conservée sur 80 cm était originellement supérieure comme le suggèrent les nombreux blocs de granite découverts dans les contextes de démolition. Le centre du four est relativement étroit : il présente une réduction en « U » formée de blocs de granite taillés. Cette structure délimite un espace de 18×51 cm qui forme le creuset dont l'élévation a été préservée sur trois lits (figure 121 et figure 122). Dans sa partie

⁵¹⁵ La moitié sud-ouest du bâtiment était à ciel ouvert tandis que la moitié nord-est recevait une couverture en dalles de schistes qui s'est effondrée après l'abandon du bâtiment.

⁵¹⁶ L'analyse du granite par MEB-EDX révèle la composition moyenne suivante : Na₂O : 2,0 % ; MgO : 0,6 % ; Al₂O₃ : 8,5 % ; SiO₂ : 82,3 % ; K₂O : 1,4 % ; CaO : 2,2 % ; TiO₂ : 0,3 % ; FeO : 2,7 %

antérieure, le creuset présente un décrochement sur l'ensemble de l'élévation. Cette géométrie particulière constitue une préforme qui a reçu une couche d'argile dont des vestiges rubéfiés étaient encore en place. Il en résulte un pendage d'environ 30 ° entre le fond du creuset et le sommet du massif granitique conservé (figure 122). La découverte, dans les niveaux de démolition du four, de gros blocs de granite partiellement scorifiés et sur lesquels se distinguent des vestiges de l'argile suggère que le revêtement argileux n'était pas circonscrit au creuset (figure 122).



Figure 121 : À gauche, le four Fr72 en cours de fouille. À droite, la réduction matérialisant le creuset.

Dans le voisinage du four, aucun élément ne nous renseigne sur la manière dont il fonctionnait, notamment sur le type de ventilation employé. Dans le massif granitique, aucun aménagement ne permet le passage d'une tuyère tandis qu'à l'arrière du four, aucune trace ne peut être interprétée comme le vestige d'un système de soufflerie. La partie avant du four était probablement construite en matériaux plus légers qui n'ont pas été conservés. Cette disposition facilitait certainement le contrôle des opérations métallurgiques. C'est vraisemblablement à cet endroit qu'était récupéré le métal puis que le four était curé comme en témoigne la couche d'argile épandue devant le creuset (figure 122).

La présence de trois tenons en fer dans la structure du four (l'un dans la réduction centrale, les deux autres dans le piédroit sud) suggère l'existence d'un aménagement qui pourrait s'apparenter soit à un dispositif d'ajustement de la

ventilation, soit à un élément d'un système amovible donnant accès à l'intérieur du four.

La question du combustible utilisé dans le four Fr72 n'est pas tranchée. La découverte de petits fragments de charbon piégés dans l'argile du four n'est pas significative et ne permet pas d'exclure l'usage de bois. En effet, le bois aurait pu être charbonné durant la chauffe. Faute d'études spécifiques, il est par ailleurs hasardeux de conclure quant à l'essence employée. Les études archéo-anthracologiques menées sur les charbonnières⁵¹⁷ incitent toutefois à privilégier le hêtre qui est l'essence la plus représentée dans les structures médiévales. Dans la vallée du Couserans, l'accès au combustible était relativement aisé au point de permettre son export vers la vallée du Vicdessos au moins depuis le milieu du XIV^e siècle⁵¹⁸.



⁵¹⁷ *Supra* p. 96.

⁵¹⁸ Traité d'échange avec le Vicdessos de 1347-1348.

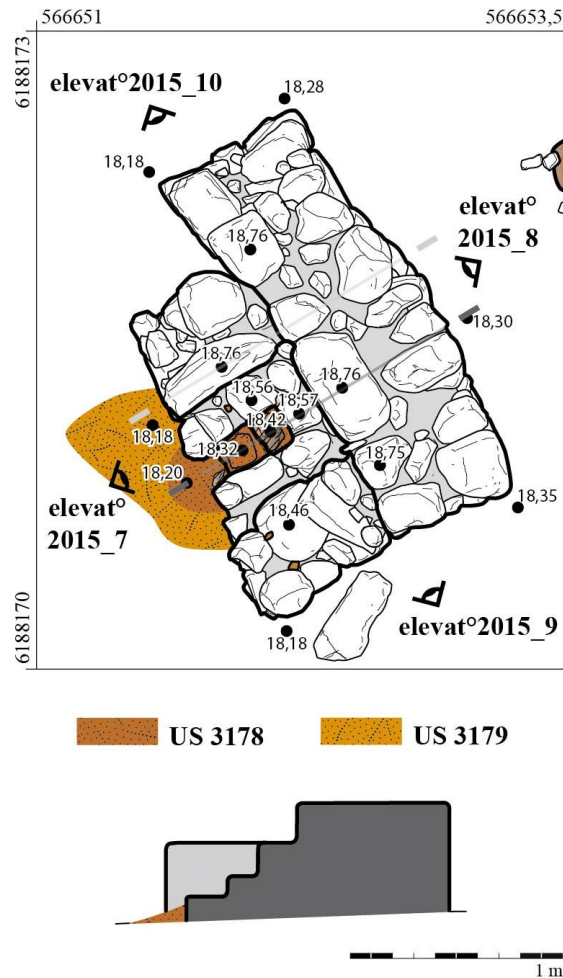


Figure 122 : En haut, bloc de granite présentant une zone scoriacée adhérant à de l'argile rubéfiée. En bas, plan et coupe du four FR72.

Le four en granite de Castel-Minier permet d'établir des comparaisons avec des structures de chauffe découvertes dans des contextes similaires relatifs à la production d'argent à partir de galène argentifère. Les recherches archéologiques conduites sur le Mont Lozère dans le cadre du PCR *Le plomb argentifère ancien du Mont Lozère*⁵¹⁹ ont permis la fouille d'un atelier métallurgique actif entre le milieu du XI^e siècle et le milieu du XII^e siècle. Il se compose de trois structures de chauffe présentant des similitudes avec le four de Castel-Minier⁵²⁰. Elles sont édifiées avec des blocs de grès et adoptent

⁵¹⁹ Plusieurs articles sont consacrés aux résultats de ce PCR dans la revue *ArchéoSciences* : dossier thématique *Mines et métallurgies anciennes du plomb dans leurs environnements. Apports des méthodes contribuant à leur étude*, Ploquin A., Bailly-Maître M.-C. et Allée Ph. (éd.), *ArchéoSciences*, 34, p. 94-306.

⁵²⁰ Bailly-Maître M.-C., « Le plomb et l'argent dans le Gévaudan médiéval », *ArchéoSciences*, 34, 2010, p. 137-148.

une structure en « U » (figure 123). Leurs dimensions sont toutefois plus élevées notamment en ce qui concerne la surface interne (1,0×0,80 m). Cette zone contenait une couche charbonneuse dans laquelle se sont trouvées emprisonnées des scories que les études archéométriques ont permis d'attribuer à la chaîne opératoire de traitement de la galène. Les fours ont été aménagés dans des aires ouvertes. En outre, ils sont tous dirigés nord-sud ce qui pourrait traduire la volonté de profiter de vents dominants dans le cas d'un fonctionnement en ventilation naturelle.

Les résultats de la fouille du site bohémien de Cvilínek ont déjà été mentionnés, notamment les structures de préparation des minerais exceptionnellement bien conservées datées du XIII^e siècle. Les découvertes concernent également la métallurgie puisque le site abrite plusieurs structures de chauffe dont l'une se rapproche du four Fr72 de Castel-Minier (figure 123). Elle mesure 2×1,5 m avec un espace interne d'environ 1×0,6 m. Cette structure est interprétée comme une stalle de grillage du minerai sur la base de comparaisons avec l'iconographie (notamment avec le retable d'Annaberg) et malgré l'absence de minerais grillés sur le terrain⁵²¹. L'hypothèse d'une structure de réduction n'est pas discutée.

Les fours qui viennent d'être présentés partagent des points communs avec celui de Castel-Minier. Ils sont construits avec des blocs de pierre liés à la terre et très peu travaillés. L'absence d'aménagements s'apparentant à une soufflerie et leur installation dans des espaces non couverts suggèrent un fonctionnement en ventilation naturelle. Malgré des dimensions différentes, la section du creuset est rectangulaire et présente dans certains cas des rubéfections importantes. Néanmoins, les comparaisons s'arrêtent là puisqu'un paramètre morphologique du four de Castel-Minier est absent sur les autres structures : le pendage du creuset.

⁵²¹ Hrubý P., Hejhal P., Hoch A., Kočár P., Malý K., Macháňová L., Petr L. et Štelcl J., « Středověký úpravnický a hornický... », *op. cit.*, p. 405-406.

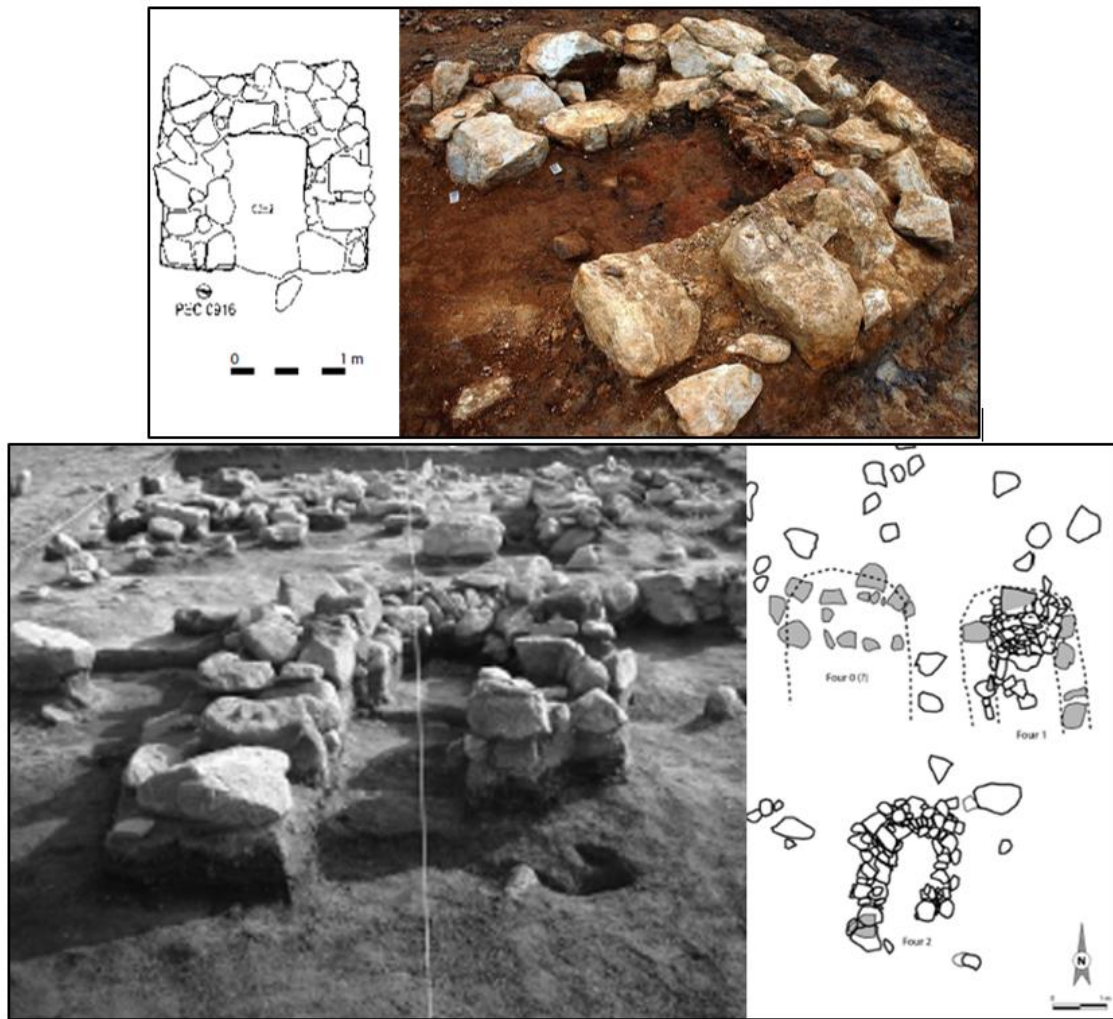


Figure 123 : Plans et photographies du four de Cvilínek (haut) et du Mont Lozère (bas). D'après : Hrubý P., Hejhal P., Hoch A., Kočár P., Malý K., Macháňová L., Petr L. et Štelcl J., « Středověký úpravnický a hornický... », *op. cit.*, p. 366 et suivantes ; Bailly-Maître M.-C., « Le plomb et l'argent dans le Gévaudan ... », *op. cit.*, 34, 2010, p. 142.

4.1.3.2.2.2. Interprétation fonctionnelle

Les données archéologiques qui viennent d'être présentées permettent de proposer une première interprétation fonctionnelle du four de Castel-Minier. Tout d'abord, celui-ci semble avoir fonctionné en ventilation naturelle avec une prise d'air sur sa face avant. En outre, le four se trouve dans la partie du bâtiment 10 qui n'a pas reçu de couverture ce qui permet d'exploiter les courants éoliens qui remontent le talweg depuis le Garbet. Ensuite, la surface réduite du creuset et son pendage sont des éléments structuraux fondamentaux qui conditionnent la réussite des opérations métallurgiques. En limitant la zone de travail, l'homogénéité des températures est

maintenue plus facilement dans le four. C'est d'ailleurs dans cette zone, située au-dessus de la prise d'air, que les températures les plus élevées sont atteintes. Quant au pendage de la partie basse du four, il permet de diriger les produits vers le fond du creuset dans lequel ils se rassemblent avant d'être finalement coulés.

On retrouve ce dispositif dans la littérature technique de l'époque moderne, en particulier dans le traité de métallurgie du siennois Vannoccio Biringuccio, *De la pirotechnia*, publié en 1540. Dans cet ouvrage, Biringuccio expose plusieurs techniques de métallurgie extractive et secondaire qu'il a lui-même pratiquées ou qu'il a découvertes au cours de ses nombreux voyages. Dans le livre 3, il présente trois fours de réduction dont deux adoptent une géométrie qui se fonde sur une pyramide inversée tronquée tandis que le troisième s'apparente à une structure en manchon avec une colonne cylindrique et une base horizontale en demi-cylindre (figure 124). À la base, la section de la pyramide est réduite. Celle-ci s'appuie sur un creuset présentant un pendage vers l'avant : *per darle la forma del suo vacuo, prima per fondamento di tal manica si fa un piano alquanto pendente innanzi, alto da terra mezzo braccio*⁵²². La comparaison avec Castel-Minier, qui confirme l'importance de la géométrie du creuset pour la concentration du métal, ne peut être poussée plus loin puisque d'une part les contextes historique et technique du milieu du XVI^e siècle italien sont différents de ceux du Couserans médiéval et d'autre part, les fours de Biringuccio fonctionnent en ventilation forcée avec une soufflerie actionnée par un système hydraulique dont on distingue la roue sur la figure 124.

⁵²² Biringuccio V., *De la pirotechnia*, P. Gironimo Giglio, Venise, 1559, fol. 115r.

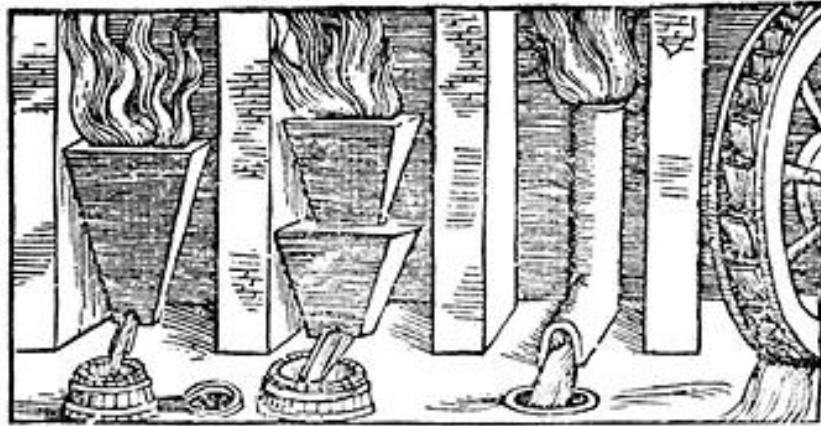


Figure 124 : Différents fours de réduction présentés par Biringuccio dans le chapitre 3 du livre 3 de *La pirotechnia*.

En se fondant sur des arguments archéologiques et archéométriques, il est possible d'affirmer que le four Fr72 est destiné au traitement de la galène. Tout d'abord, la présence d'un dépôt conséquent de minerai de densité élevée dans le bâtiment 10 suggère son utilisation dans l'une des structures de chauffe de cet espace. En outre, la fouille fine du four a permis de découvrir des billes de plomb prises dans l'argile du creuset (figure 125). La teneur en argent des billes métalliques s'élève en moyenne à 1786 ppm : il s'agit de plomb d'œuvre issu du traitement de la galène. Cette interprétation est renforcée par la présence de scories dans l'argile du creuset. Il s'agit de petits fragments vitreux de couleur grise et de densité élevée (figure 125).

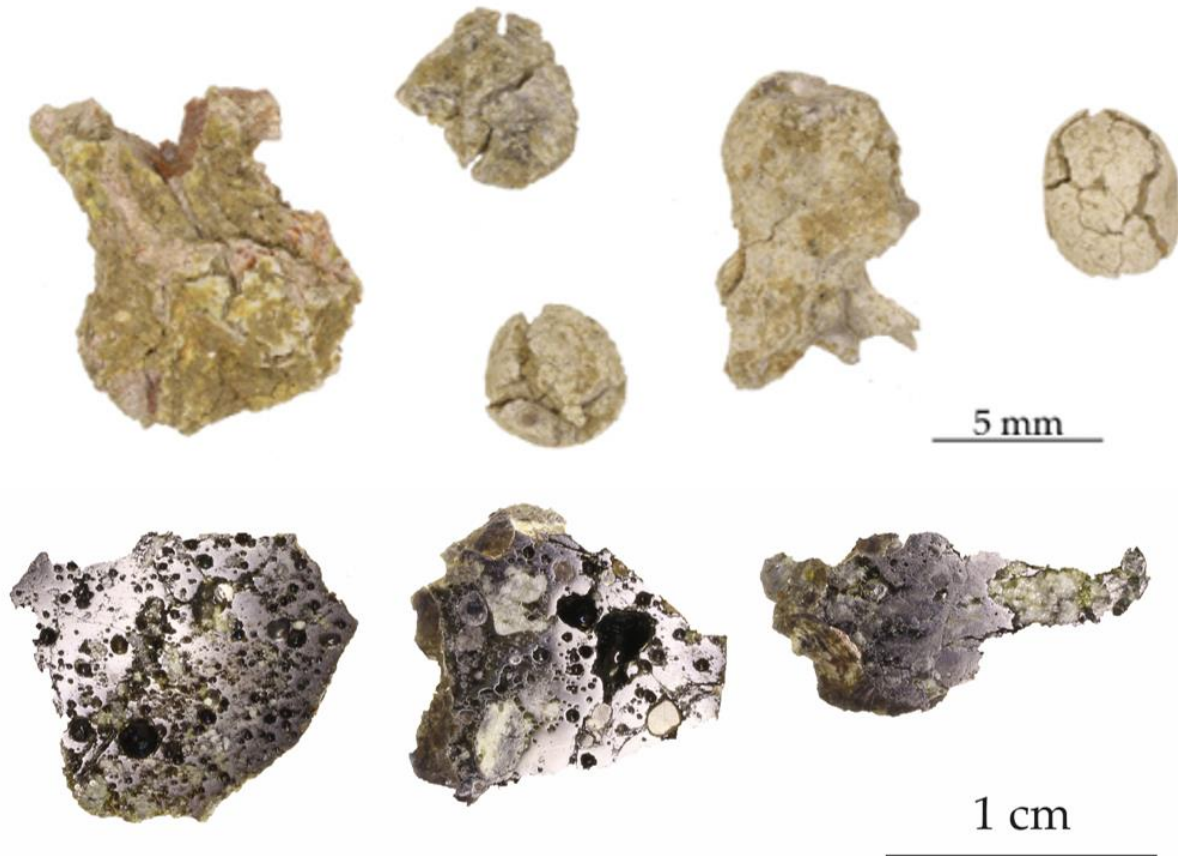


Figure 125 : Billes de plomb (haut) et sections polies des scories (bas) piégées dans l'argile du creuset du four Fr72.

Des arguments archéométriques viennent corroborer les interprétations archéologiques du four Fr72. En premier lieu, l'analyse élémentaire par MEB-EDX révèle que les scories sont composées essentiellement de silicates de plomb. Par ailleurs, des fragments de galène en cours de transformation ont été mis en évidence à la surface d'une petite scorie (CL 12700, figure 126). Leur observation en microscopie optique permet de préciser le type de réaction chimique qui se déroulait dans le four. Les cristaux de galène sont intacts par endroits : on perçoit les plans de clivage et des inclusions de gangue quartzeuse. La préservation des cristaux de minerai et de leur gangue indique que la galène n'a pas subi de traitement métallurgique de type grillage⁵²³ préalablement à son introduction dans le four.

⁵²³ Le grillage est une étape de désulfuration qui se déroule généralement sous atmosphère oxydante. En se combinant avec l'oxygène, le soufre présent dans le minerai forme un gaz : le dioxyde de soufre (SO₂) qui se dissipe dans l'atmosphère. L'oxygène se combine également avec le plomb pour former un

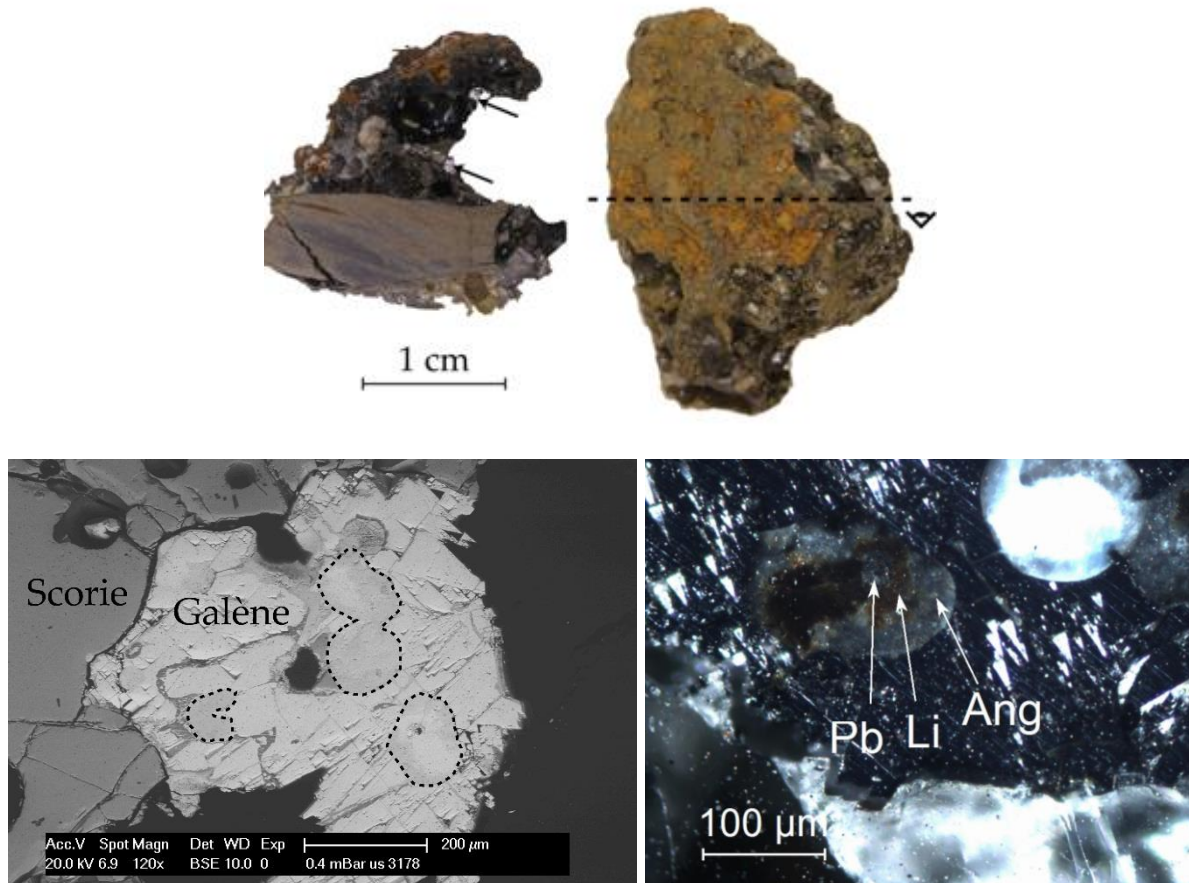


Figure 126 : Haut : Section polie de la scorie CL12700 et identification des cristaux de galène (flèches noires). En bas à gauche : Image MEB d'un fragment de galène dans une scorie ; les pointillés délimitent les zones en cours de transformation. En bas à droite : identification au microscope optique des produits en cours de formation : anglésite (Ang), litharge (Li) et plomb métallique (Pb).

La transformation du minerai est en cours ; elle est illustrée par la formation de plusieurs composés plombifères : il s'agit de l'anglésite et de la litharge, respectivement un sulfate de plomb (PbSO_4) et un oxyde de plomb (PbO) (figure 126). L'anglésite entoure la litharge qui elle-même enveloppe une bille de plomb. L'association de ces composés n'est pas anodine ; elle indique précisément le type de procédé qui s'est déroulé dans le four. Il s'agit d'une opération en une seule étape selon la méthode par « grillage et réaction ». La transformation du minerai a lieu sous une atmosphère oxydante et selon les réactions chimiques suivantes :

oxyde (PbO) qui demeure à l'état solide. L'oxyde de plomb est ensuite réduit dans une structure distincte. Sur le plan archéologique, l'observation des minerais peut permettre d'identifier les stigmates du grillage qui résultent du choc thermique : la gangue présente des fractures et les cristaux de galène sont partiellement désagrégés.



L'opération débute par un grillage partiel de la galène qui permet d'obtenir des oxydes et des sulfates de plomb (équations 1 et 2). Les réactions sont exothermiques et ont lieu en phase solide : elles sont amorcées aux alentours de 400 °C. Les oxydes et les sulfates de plomb réagissent ensuite avec la galène pour former du plomb métallique, obtenu à l'état liquide, ainsi que du dioxyde de soufre (équations 3 et 4).

L'atmosphère oxydante requise pour mener à bien la transformation de la galène est compatible avec un fonctionnement du four en ventilation naturelle. Sous certaines conditions, l'utilisation de soufflets, qu'ils soient actionnés manuellement ou grâce à l'énergie hydraulique n'est donc pas indispensable pour produire du plomb d'œuvre à partir de la galène. La ventilation naturelle est une alternative viable bien qu'elle soit souvent éludée dans les recherches récentes sous l'influence des traités métallurgiques de l'époque moderne. Ainsi, Biringuccio a connaissance de fours n'utilisant pas de soufflerie (*forni di fusione a vento*⁵²⁴), mais il ne les a jamais vus. Selon lui, ils ne permettent pas de réduire des minerais de plomb ou d'étain et sont plutôt destinés au grillage. De toute évidence, Biringuccio n'a pas connaissance de certains procédés utilisés dans les pays germaniques décrits par Georgius Agricola dans son *De re metallica* publié en 1556⁵²⁵. Ce traité encyclopédique est consacré à la production des métaux dont il couvre toutes les étapes depuis la prospection minière jusqu'à

⁵²⁴ Biringuccio V., *De la pirotechnia...*, op. cit., fol. 117r.

⁵²⁵ Hoover H. C. et Hoover L. H., *Georgius Agricola De re Metallica...*, op. cit., p. 390-393.

l'affinage en passant par l'essai⁵²⁶. Dans le livre 9, après avoir présenté quatre méthodes de réduction du plomb utilisant des fours rectangulaires dotés d'une ventilation forcée⁵²⁷, Agricola décrit successivement les procédés carniolien, saxon, westphalien et polonais. Chacun d'entre eux utilise une ventilation naturelle. En Carniole et en Saxe, le minerai est placé sur un foyer ouvert formé d'un mélange de bois vert et sec : le plomb s'écoule au travers dans un creuset. En Westphalie, le minerai est placé sur un tas de charbon dont le sommet présente un replat (figure 127). Enfin, les Polonais utilisent un foyer surélevé présentant un plan incliné à deux extrémités qui permet de diriger le plomb métallique vers des creusets (figure 127).

La pluralité des procédés de transformation des minerais de plomb présentés par Agricola traduit des particularités régionales caractérisées par des héritages techniques différents. En particulier, les structures de chauffe utilisant la ventilation naturelle s'apparentent à des foyers plutôt qu'à des fours. Elles témoignent d'une transformation sous atmosphère oxydante et par conséquent d'une méthode par « grillage et réaction ». Agricola ne porte pas de jugement de valeur sur ces procédés et les structures de chauffe associées. Il s'agit assurément de choix murement réfléchis par les Anciens – selon leurs connaissances et leur savoir-faire techniques – qui intègrent plusieurs contraintes telles que la nature du minerai (et de la gangue) et son degré de préparation, mais également l'accès au combustible et à l'énergie hydraulique.

⁵²⁶ La littérature sur le *De re metallica* est abondante. En dernier lieu : Gauthier J., *La fortune...*, *op. cit.*, p. 239 et suivantes ; Garçon A.-F., « Pratique, technique, technologie ? Gros plan sur le projet intellectuel des *De re metallica*, 1530-1556 », *Archéosciences*, 34, 2010, p. 121-126.

⁵²⁷ Ces procédés diffèrent par la taille du four, du creuset et de l'avant-creuset ainsi que par l'obstruction ou non du trou de coulée (fonctionnement en coulée continue) et la nature des minerais qu'ils permettent de traiter.



Figure 127 : Tas de charbon sur lequel est placé le minerai dans la procédé westphalien (gauche) ; foyer surélevé doté de plans inclinés du procédé polonais (droite). D'après Hoover H. C. et Hoover L. H., *Georgius Agricola De re Metallica...*, *op. cit.*, p. 393.

Sur le plan archéologique, outre les fours du Mont Lozère et de Cvilínek dont le fonctionnement en ventilation naturelle est probable, il convient d'évoquer les *bole hearths*⁵²⁸. Ces structures de chauffe sont documentées en Grande-Bretagne dès l'Antiquité puis durant la période médiévale. Elles consistent en une colonne cylindrique d'environ 1 m de diamètre dans laquelle est ménagée une arche d'une quinzaine de centimètre pour permettre la ventilation naturelle (figure 128). La structure est parfois dotée d'un avant-creuset. Les analyses archéométriques et les expérimentations ont démontré la mise en œuvre du procédé de « grillage et réaction » dans les *boles hearths*. Elles ont en outre permis de produire des scories vitreuses dont les concentrations en oxydes de plomb sont très élevées (supérieures à 70 %) ⁵²⁹.

⁵²⁸ La littérature sur ces structures est abondante : Anguilano L., Timberlake S. et Rehren T., « An early medieval lead-smelting bole from Banc Tynddol, Cwmystwyth, Ceredigion », *Journal of Historical Metallurgy*, 44(2), 2010, p. 85-103 ; Tylecote R. F., *The Early history of metallurgy in Europe*, Institute of Materials, Londres, 1992 (2^e édition), p. 89. Voir tout particulièrement les actes du colloque *the History and Archaeology of lead Smelting : Boles and Smeltingmills*, Actes du colloque *the History and Archaeology of lead Smelting*, Reeth, 15-17 mai 1992, Willies L. et Cranstone D. (éd.), Historical Metallurgy Society, 1992.

⁵²⁹ Anguilano L., Timberlake S. et Rehren T., « An early medieval lead-smelting bole... », *op. cit.*, p. 92.

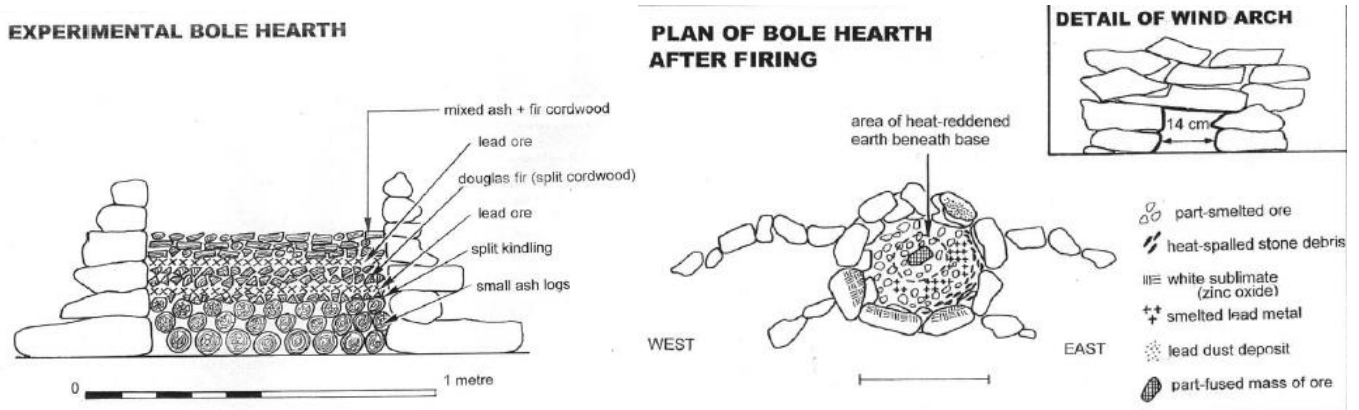


Figure 128 : Plan et coupe d'un *bole hearth* expérimental construit d'après les exemplaires archéologiques découverts à Cwmystwyth. D'après Anguilano L., Timberlake S. et Rehren T., « An early medieval lead-smelting bole... », *op. cit.*, p. 99.

4.1.3.2.2.3. La formation des scories dans le four Fr72

La bonne conservation du four Fr72 permet d'aller plus loin dans l'étude de la formation des scories et notamment dans l'identification de l'origine des différents matériaux qui la composent. Les contributeurs sont d'une part la gangue dolomitique du minerai et d'autre part les matériaux architecturaux de la structure de chauffe (granite et/ou argile). Le granite qui forme le Fr72 a été affecté durant la chauffe comme l'atteste l'observation de certains blocs partiellement fondus découverts dans le creuset (haut, figure 129). Ils présentent des zones scoriacées et bulleuses – formées par la fusion des micas et des feldspaths – entourant des grains de quartz. Dans la partie basse du four ce comportement est exacerbé puisque la paroi argileuse et le granite ont réagi avec les produits de la réduction (bas, figure 129). On observe ainsi des faciès composites présentant une ségrégation marquée selon leur proximité avec le cœur du four et leur degré d'altération. Au plus proche de la zone chaude (zone 1, figure 129), le granite et l'argile ont fondu et ont réagi avec une quantité importante de plomb pour former une scorie grise dense contenant 48 % d'oxyde de plomb et dans laquelle on distingue quelques grains de quartz. Dans la partie intermédiaire (zone 2, figure 129), le granite est partiellement fondu, d'aspect bulleux et présente quelques plages scoriacées. Il contient une quantité plus réduite d'oxyde de plomb (10 %)

incorporée par diffusion depuis la zone 1. Enfin, la partie la plus éloignée du cœur du four contient du granite partiellement fondu et exempt d'oxydes de plomb (zone 3, figure 129).

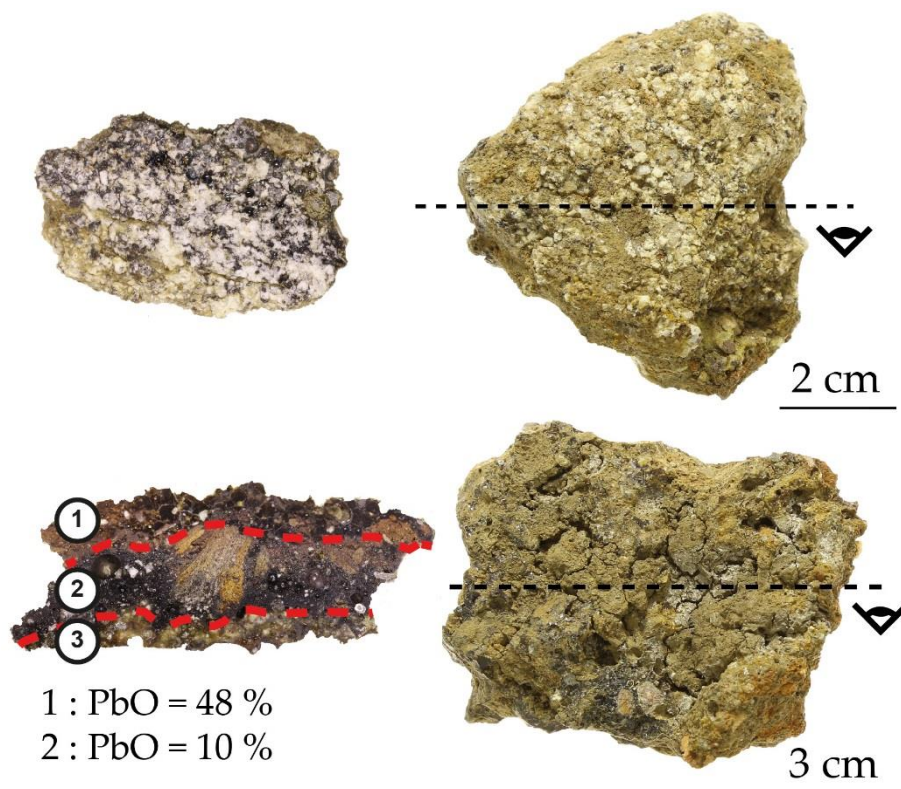


Figure 129 : Granite partiellement fondu (haut) et paroi de four (bas) provenant de la structure Fr72 avec identification des phases. Phase 1 : scorie (silicate de plomb) ; phase 2 : granite partiellement fondu et scoriacé incorporant de l'oxyde de plomb ; phase 3 : granite partiellement fondu.

L'analyse élémentaire des matériaux architecturaux du four Fr72, des matières premières avec lesquelles il a été chargé et des produits qu'il a livrés permet d'évaluer précisément la contribution de chacun. La représentation des pourcentages d'oxydes sur un diagramme ternaire a été privilégiée ; elle facilite l'appréciation des différents acteurs qui participent à la formation de la scorie (figure 130). La chaux et la magnésie ont été regroupées puisque ces oxydes proviennent essentiellement de la gangue dolomitique des minerais traités dans le four. L'incorporation du plomb dans la scorie résulte d'une interaction avec le métal qui s'est formé dans le four, aussi cet élément n'a pas été pris en compte dans notre schéma. Finalement, deux groupes de scories se

dégagent. Le premier se caractérise par des compositions majoritairement à base de silice qui sont complétées par l'alumine. Elles se sont donc formées à partir de l'argile disposée dans le creuset du four : c'est d'ailleurs à cet endroit qu'elles ont été prélevées. La seconde catégorie de scories se caractérise par des origines diverses : une filiation avec la gangue du minerai, mais également avec le granite et l'argile du four, peut être établie. Plus précisément, la contribution de la gangue du minerai s'élève à environ 42 % contre 56 % pour l'ensemble granite-argile. Le rôle des matériaux architecturaux dans la formation de la scorie est donc non négligeable.

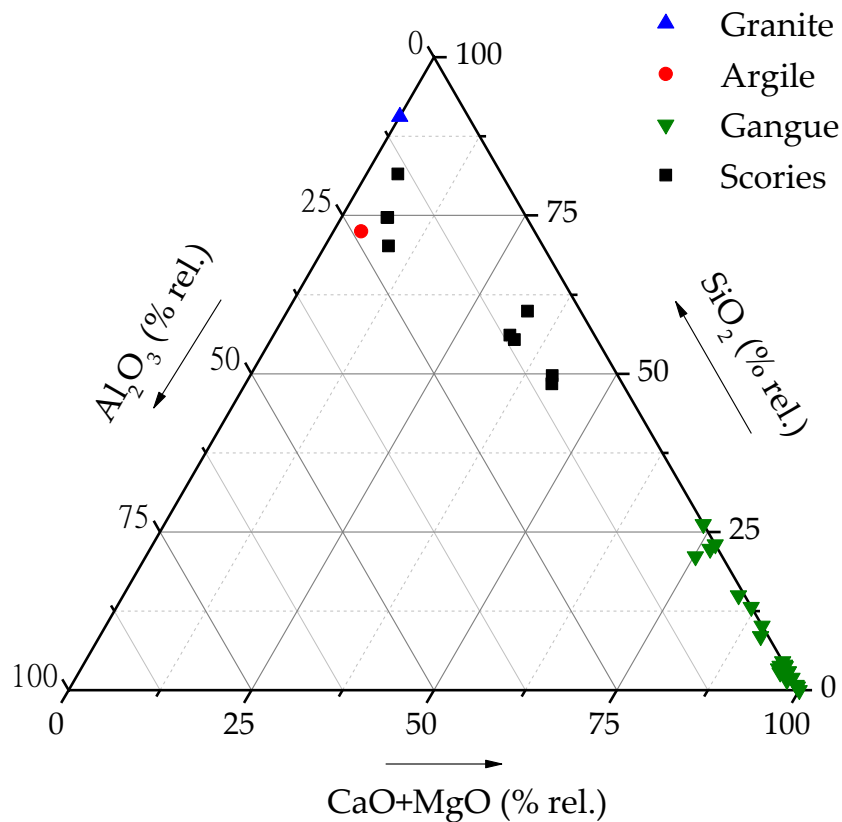


Figure 130 : Diagramme ternaire représentant la teneur relatives des principaux oxydes des matériaux du four Fr72, de la gangue du minerai et des scories produites.

4.1.3.2.2.4. La conduite du four Fr72 : apports des expérimentations

Les données archéométriques et archéologiques permettent de proposer une interprétation fonctionnelle du four Fr72 qui demeure néanmoins partielle et n'épuise pas tous les questionnements suscités par une telle structure. Ainsi, plusieurs aspects techniques méritent d'être précisés, notamment les températures de travail atteintes dans le four au moyen d'une ventilation naturelle ou encore la validité du procédé de « grillage et réaction » et les rendements atteints. Nos recherches intègrent également des considérations économiques qui concernent tant le volume des charges de minerai que la consommation de combustible ou encore la durée des opérations.

Une démarche expérimentale a été engagée afin d'apporter des éléments de réponse à ces problématiques⁵³⁰. Les opérations métallurgiques se sont déroulées sur la plate-forme d'archéologie des arts du feu de Melle (Deux-Sèvres) qui bénéficie des équipements adaptés grâce aux nombreuses expérimentations qu'elle a accueillies depuis 2002 dans le cadre de plusieurs PCR dirigés par Florian Téreygeol.

Une restitution du four Fr72 a pu être envisagée à partir des données archéologiques et des conclusions tirées des analyses archéométriques. La structure granitique a été reproduite à l'échelle 1 et le creuset, aménagé dans la réduction interne de celle-ci, a reçu une couche d'argile selon le modèle archéologique (figure 131). L'élévation donnée au four expérimental constitue la partie interprétative de la restitution. Elle a été réalisée au moyen de briques réfractaires et d'une colonne amovible en terre. Le choix de ces éléments architecturaux confère un caractère modulable à l'ensemble qui permet de tester rapidement plusieurs élévations de manière à déterminer la valeur optimale. Le tirage maximal est assuré avec une

⁵³⁰ Pour ces expérimentations, une équipe pluridisciplinaire composée de Guillaume Sarah, François Peyrat, Jean-Charles Méaudre et Florian Téreygeol a été réunie. Les résultats ont fait l'objet d'un rapport détaillé : Flament J., Sarah G., Méaudre J.-C. et Téreygeol F., « La métallurgie extractive à Castel-Minier au XIV^e siècle », In Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes. Rapport intermédiaire 2016*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2016, p. 37-47.

hauteur de colonne de 70 cm ; au-delà, le four a tendance à « s'étouffer » et la température ne s'élève plus voire décroît.

La morphologie de la face avant du four relève également de l'interprétation puisqu'elle n'est pas conservée sur le modèle archéologique. En particulier, la position et la géométrie de l'évent résultent d'un compromis entre le tirage, la température et le volume du creuset. Tout d'abord, l'évent ne doit pas être trop bas afin de ménager un volume suffisamment grand dans la partie basse du four pour permettre au métal de se rassembler sans s'oxyder. Ensuite, l'ouverture doit être assez large pour assurer le tirage et maintenir une température adaptée et homogène dans le four pour permettre la transformation du minerai. Un évent rectangulaire de 5 cm de largeur disposé à mi-hauteur du creuset et ouvert sur toute sa largeur constitue le meilleur compromis. Un trou de coulée a été ménagé à la base du creuset de manière à collecter le plomb liquide une fois l'opération terminée. Nous avons choisi de l'obstruer durant toute l'opération afin d'atteindre une masse critique pouvant être aisément coulée.

La surface interne du creuset a été enduite de brasque (mélange d'argile et de poussier) afin de faciliter la récupération du métal. En effet, ce matériau réfractaire ne réagit pas avec le plomb. Son usage dans le four Fr72 est difficile à identifier car la brasque se détériore au cours des chauffes et doit être renouvelée régulièrement. En outre, le matériau est pulvérulent et rarement conservé. La brasque est attestée dans la première moitié du XVI^e siècle, notamment dans le traité technique de Biringuccio qui la décrit sans la nommer dans le chapitre 4 du livre 3⁵³¹.

⁵³¹ La brasque est composée de poudre de charbon, d'argile et d'un peu de cendre : Biringuccio V., *De la pirotechnia*, P. Gironimo Giglio, Venise, 1559, fol. 116. Sur l'usage de la brasque, voir Téreygeol F., Arles A., Sarah G. et Méaudre J.-C. « La réduction de la galène : l'exemple de Melle », *In* Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes. Rapport intermédiaire 2012*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2012, p. 40 et suivantes.

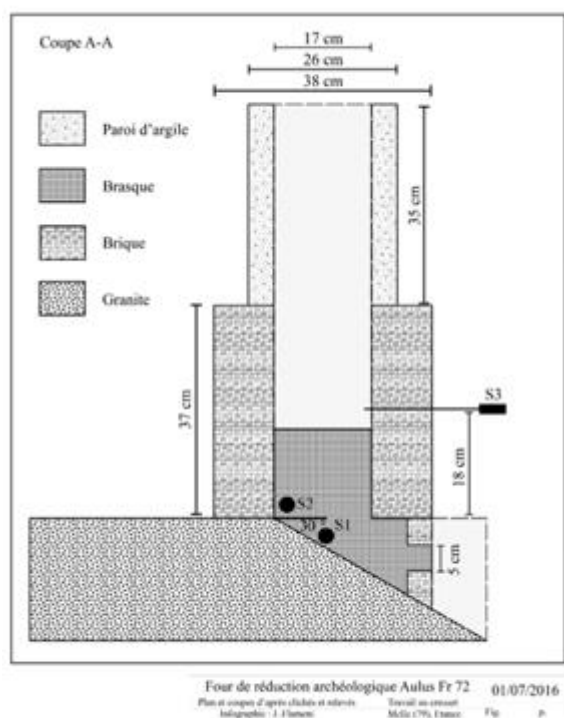


Figure 131 : À gauche, coupe du four expérimental et emplacement des thermocouples S1, S2 et S3. À droite, construction du four expérimental : restitution du massif granitique et application de l'argile (haut) ; aspect final de la structure (bas).

Pour les expérimentations, trois thermocouples permettent de suivre l'évolution des températures dans le four (figure 131). Le combustible utilisé est le charbon de bois qui doit subir une calibration minutieuse afin d'éviter la formation de vides tout en assurant la bonne circulation de l'air et des gaz⁵³². Nous avons rapidement constaté la formation de sulfates de plomb dans le haut de la colonne du four puis son départ dans les fumées. Ce phénomène est nuisible s'il intervient dans cette zone car la température est trop faible pour que le sulfate puisse réagir avec la galène pour former du plomb métallique. Pour y remédier, du crottin d'âne a été

⁵³² Sur cet aspect : Téreygeol F. et Méaudre J.-C., « Le bas fourneau carolingien », In Téreygeol F. (dir.), *PCR paléométallurgies et expérimentations. Rapport intermédiaire*, Téreygeol F. (dir.), 2010, p. 19 et suivantes.

employé comme combustible secondaire de manière à conférer un caractère plus réducteur à l'atmosphère du haut de la colonne⁵³³.

Nous avons mené quatre expérimentations, dont trois avec de la galène exempte de gangue⁵³⁴, et une quatrième avec un mélange constitué de galène, de casses de coupellation et de minerai partiellement transformé lors des premiers essais. La masse totale des charges s'élève à 4,8 kg. Chaque expérimentation dure huit heures et débute par une phase de montée en température d'une heure à l'issue de laquelle le four reçoit une charge de 600 g toutes les trente minutes. Durant l'opération, les températures atteignent un peu plus de 300 °C dans le creuset (sonde 1) et environ 650 °C dans la partie supérieure du four (sonde 3). Néanmoins, les thermocouples ne débouchent pas dans le réacteur pour éviter leur détérioration. Les températures sont donc légèrement sous-estimées. Par ailleurs, à l'aplomb de l'évent, les températures relevées ponctuellement oscillent entre 1100 et 1200 °C.



Figure 132 : Coulée de plomb à l'issue d'une expérimentation.

Toutes les expérimentations se sont achevées par la coulée d'une masse de

⁵³³ Cette solution nous a été suggérée par notre collègue archéométallurgiste Georges Verly que nous souhaitons remercier ici.

⁵³⁴ L'épuisement des mines de la vallée du Garbet nous a contraint à nous tourner vers de la galène du commerce provenant du Maroc. Il s'agit néanmoins de morceaux exempts de gangue que nous avons préparés de manière à obtenir une granulométrie similaire à celle des fragments découverts dans le bâtiment 10 de Castel-Minier.

plomb (figure 132 et tableau 26). La ventilation naturelle a donc permis d'atteindre des températures de travail suffisantes pour permettre la transformation de la galène selon le procédé de « grillage et réaction ». Après curage du four, des scories, du minerai non transformé et des éléments de paroi ont également été récupérés. Les rendements de ces expérimentations varient entre 9,5 et 24,1 % (tableau 26). Une proportion importante de minerai partiellement transformé a subi un frittage dans le four. Afin d'éviter ce phénomène, plusieurs ajustements doivent être apportés à la conduite du four notamment la régulation de la vitesse de descente de la galène – pour que sa transformation soit totale – et l'étalement dans le temps des charges. Néanmoins, le minerai fritté n'est pas perdu ; il peut être réintroduit dans le four lors des expérimentations suivantes comme nous l'avons montré lors de la quatrième expérimentation (XP 4, tableau 26).

		XP 1	XP 2	XP 3	XP 4
Charge (kg)	Galène	4,80	4,80	4,80	2,70
	Minerai fritté	-	-	-	1,13
	Casse de coupellation	-	-	-	0,97
Produits (kg)	Plomb	0,67	0,38	0,97	0,62
	Minerai fritté + scorie	1,67	1,95	1,36	1,88
	Rendement (%)	16,6	9,5	24,1	16,8

Tableau 26 : Nature des charges et des produits des expérimentations et calcul des rendements.

Les enseignements de ces expérimentations sont multiples. Ils permettent tout d'abord de valider le procédé de transformation en une étape de type « grillage et réaction », identifié grâce aux analyses archéométriques. Ensuite, la très faible quantité de scorie (quelques grammes) produite avec un minerai de densité élevée, exempt de gangue, permet d'envisager un fonctionnement du four en continu (sans curage) avec des coulées de plomb successives voire une coulée ininterrompue. La consommation de charbon est relativement modeste : elle s'élève à 11,5 kg pour une charge de 4,8 kg soit un ratio combustible/minerai de 2,2.

Avec une durée de huit heures, la production de plomb d'œuvre est une activité particulièrement longue qui couvre une journée de travail complète. Pour le moment, l'expérimentation la plus réussie a fourni environ un kilogramme de plomb par jour, soit une production faible est très éloignée des chiffres rapportés par Girardi en 1340⁵³⁵. Toutefois, dans l'état des recherches archéologiques, nous ne pouvons exclure l'existence d'ateliers supplémentaires produisant également du plomb d'œuvre dans la première moitié du XIV^e siècle. Il convient néanmoins d'être prudent et modeste quant aux résultats de la réduction expérimentale de galène. Nous n'avons ni le savoir-faire, ni l'expérience des métallurgistes médiévaux rompus à la conduite des fours et dotés d'une connaissance aigüe du comportement des minerais soumis au feu. Les expérimentations doivent être poursuivies et améliorées afin d'une part d'ajuster les charges et déterminer la masse maximale de minerai pouvant être transformée en une journée et d'autre part mieux appréhender le comportement du four pour tenter d'augmenter les rendements. De plus, différents types de combustible devront être éprouvés, notamment le recours au bois vert ou sec.

La conduite du four expérimental nécessite le concours de deux personnes pour effectuer les différents contrôles visuels et olfactifs, assurer la calibration du combustible et introduire les différentes charges. Cette équipe réduite fait écho aux dispositions prises par Girardi pour l'exploitation de la mine d'Urrobi. Le Florentin prévoit « 4 mestres pour affiner l'argent et cuivre⁵³⁶ », c'est-à-dire pour l'ensemble des étapes des chaînes opératoires de la métallurgie de l'argent et du cuivre. Un siècle plus tard, en 1455, les statuts des mines du Lyonnais de Pampailly mentionnent « le fondeur et affineur qui besongnera audit martinet [du Vernay] et ses gens⁵³⁷ ». Une fois encore, la conduite des opérations de réduction et d'affinage requiert uniquement deux spécialistes assistés éventuellement de quelques manœuvres. Ces comparaisons

⁵³⁵ La production annuelle est estimée à 1,2 tonnes d'argent selon la conversion proposée par Catherine Verna : « Une nouvelle page... », *op. cit.*, p. 217.

⁵³⁶ Mugueta Moreno Í., « Política monetaria en Navarra... », *op. cit.*, p. 103.

⁵³⁷ Fagniez G., *Documents relatifs à l'histoire de l'industrie...*, *op. cit.*, p. 246.

régionales, confirment l'hypothèse formulée pour Castel-Minier selon laquelle la conduite du four Fr72 nécessite un personnel réduit aux compétences recherchées qui justifient un salaire élevé⁵³⁸.

4.1.3.2.3. Les autres espaces de travail : Le Plat-du-Roi, les bâtiments 5 et 11 et les plates-formes 3 et 4

Bien que la production de plomb d'œuvre à partir de la galène argentifère ait été mise en évidence dans le bâtiment 10, cet espace n'est pas exclusif et il convient d'examiner les structures contemporaines pour évaluer leur potentiel métallurgique. Sur le Plat-du-Roi et dans le bâtiment 11, l'association de plusieurs types de mobiliers suggère un lien privilégié avec la chaîne opératoire de la galène argentifère. Les niveaux d'occupation de la pente qui s'ouvre au sud du Plat-du-Roi ont livré sept objets en plomb qui se répartissent entre plaques et fragments informes (figure 133).

Les analyses par LA-ICP-MS révèlent des teneurs très faibles en argent qui ne caractérisent pas le plomb d'œuvre. En outre, un individu présente une teneur élevée en étain (1,0 %) qui témoigne du recyclage de métaux contenant des soudures plomb-étain (figure 133). Sa morphologie et son état de surface (petit fragment de plaque triangulaire aux faces parfaitement lisses) plaident en faveur d'une fonction architecturale ou mécanique. Le plomb d'œuvre n'est finalement représenté que par un fragment informe de 26 g partiellement fondu dont la teneur en argent s'élève à 1530 ppm. Un second plomb d'œuvre a été découvert dans le mur de l'enceinte castrale. À nouveau, il s'agit d'un petit fragment informe de 17 g contenant 1280 ppm d'argent. La particularité du plomb d'œuvre du Plat-du-Roi est marquée par l'absence d'antimoine alors que ce métal est présent dans les mêmes quantités que l'argent dans la galène et dans plusieurs autres plombs d'œuvre. Cette originalité est à mettre en

⁵³⁸ Girardi rémunère les maîtres affineurs 18 sous la semaine. C'est le salaire le plus élevé devant les mineurs (10 à 12 sous) et les charbonniers (10 sous). Les laveuses les moins qualifiées touchent quant à elle 2 sous 6 deniers.

relation avec le procédé de transformation utilisé dans cet espace plutôt qu'avec la composition de la galène puisque le minerai découvert sur le Plat-du-Roi ne présente pas de variations géochimiques notables par rapport au reste du corpus.

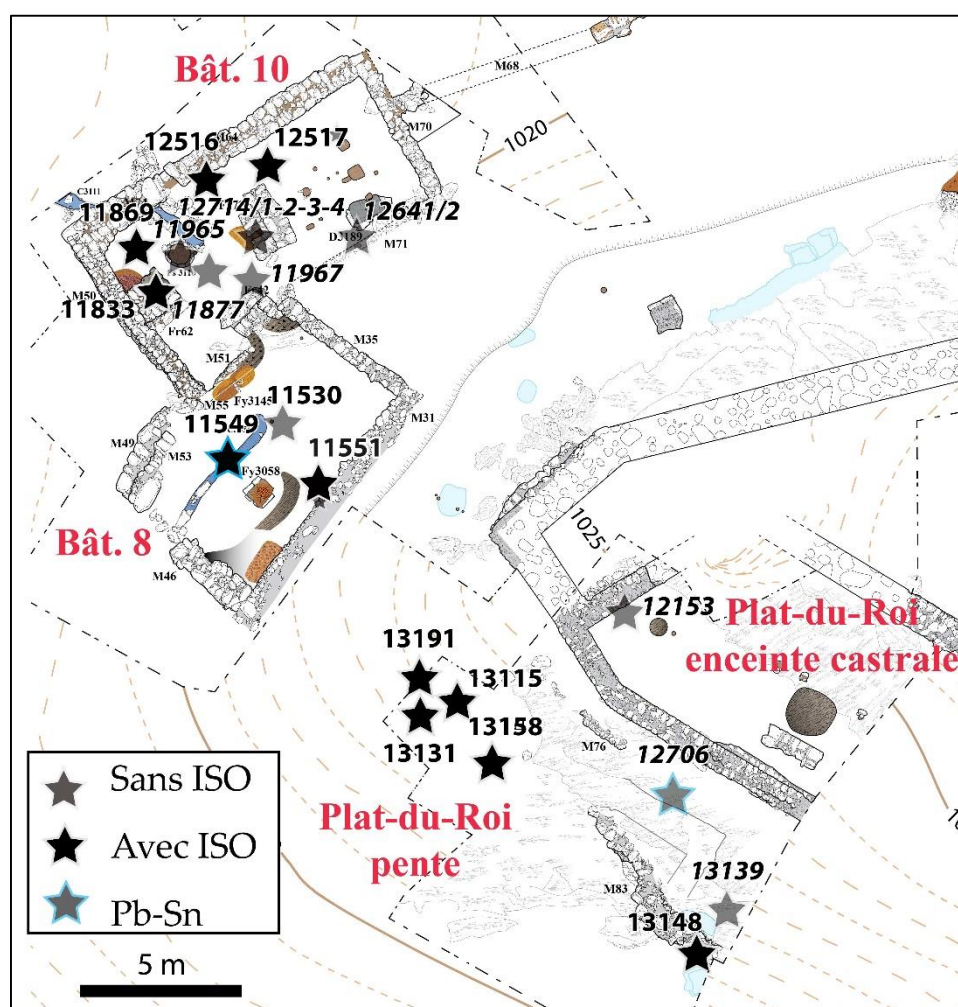
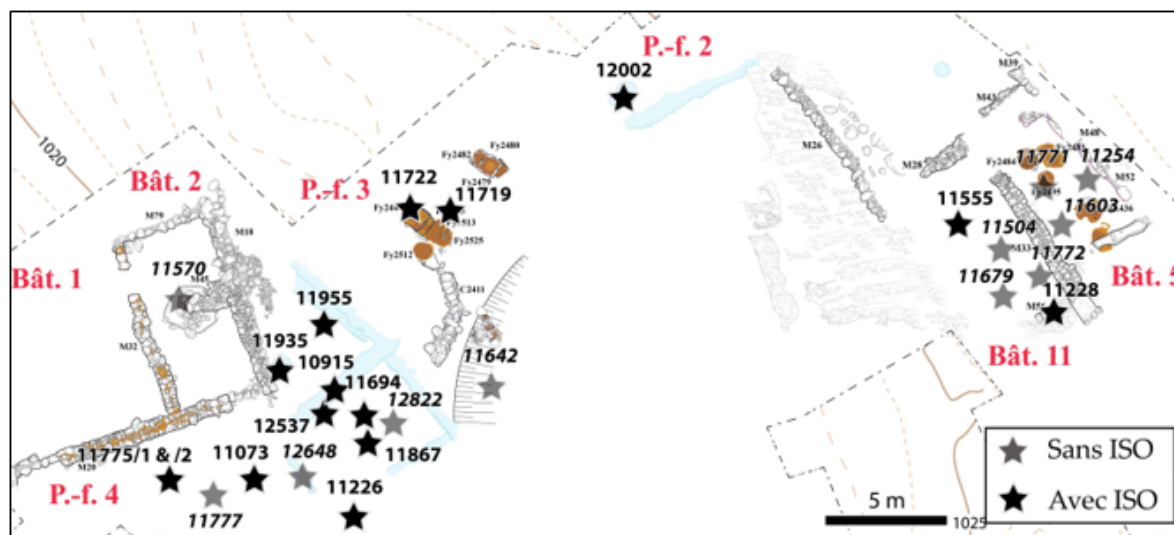


Figure 133 : Distribution du plomb et des alliages plomb-étain dans les structures du XIV^e siècle. Les structures de la phase antérieure figurent en transparence.

Le mobilier plombifère du Plat-du-Roi est associé à un corpus de scories localisées exclusivement dans les niveaux de construction et d'occupation de l'enceinte castrale. Une spatialisation des étapes de la chaîne opératoire du plomb argentifère

semble donc se dessiner avec la pratique de la métallurgie extractive dans un espace circonscrit par la muraille et la moraine alors que la pente qui se développe au sud est réservée au retraitement des sous-produits et/ou à la métallurgie secondaire. En revanche, les structures de chauffe associées ne sont pour le moment pas connues. L'extension de la fouille au sud-est pourrait permettre de les découvrir.

Le corpus des plombs exhumés dans les niveaux d'occupation du bâtiment 5 (figure 133) est atypique puisque les trois individus qui le composent peuvent être considérés comme des plombs d'œuvre aux teneurs en argent particulièrement élevées (1367, 4084 et 5418 ppm). Ce sont des coulures de faible masse (4, 13 et 30 g) mises au jour dans les niveaux d'occupation. Il s'agit vraisemblablement de pertes au cours de la manipulation du plomb d'œuvre liquide. S'il contient un foyer circulaire peut-être destiné au traitement de la galène argentifère, le bâtiment 5 n'a pas livré de scories. Cette lacune est à mettre en relation avec la nature du corpus de galène découvert dans cet espace, qui comprend uniquement du minerai dense avec une teneur moyenne en argent de 2500 ppm. La qualité de la galène peut donc expliquer l'absence de scorie et la richesse en argent du plomb d'œuvre. De la même manière que sur le Plat-du-Roi, ces derniers se caractérisent, dans deux cas sur trois, par l'absence d'antimoine.

La sole en argile rubéfiée du foyer circulaire Fy2436 aménagé dans le bâtiment 5 a fait l'objet d'une analyse élémentaire par LA-ICP-MS (tableau 27). La teneur en plomb indique le travail de ce métal dans cette structure de chauffe tandis que la teneur en argent suggère la production de plomb d'œuvre. L'interprétation demeure fragile compte tenu de l'état de conservation du foyer. Quoiqu'il en soit, les conditions oxydo-réductrices qui y régnaient étaient différentes de celles du four Fr72 avec en particulier une atmosphère plus oxydante⁵³⁹.

⁵³⁹ Dans ces conditions, l'antimoine peut être oxydé. En effet, quelle que soit la température, le potentiel de Gibbs de la réaction $4\text{Sb} + 3\text{O}_2 \rightarrow 2\text{Sb}_2\text{O}_3$ est toujours inférieur d'environ $100 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ à celui de la réaction $2\text{Pb} + \text{O}_2 \rightarrow 2\text{PbO}$. Ces énergies sont données pour des métaux purs (dans l'état standard). Rappelons que dans le cas d'alliages, l'activité des métaux est réduite ce qui entraîne l'augmentation du

Élément	Fy2436 (Bât. 5)
Cu	1177
Zn	4859
As	120
Ag	819
Sb	356
Pb	17,8 %

Tableau 27 : Teneurs de six métaux dans l'argile du foyer Fy2436. Analyses LA-ICP-MS.
Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm.

Parmi l'important corpus de plombs de la plate-forme 4, composé de onze individus (figure 133), deux objets se distinguent par des teneurs en argent élevées qui atteignent 4043 et 9709 ppm. Il s'agit respectivement d'une masse informe partiellement fondue et d'une coulure découvertes dans le sol d'occupation. En revanche, l'absence de structures de chauffe dans cet espace et la découverte d'une seule scorie ne permettent pas de rattacher formellement la plate-forme 4 à un atelier de production de plomb d'œuvre.

Enfin, le bâtiment 11 a livré un corpus important de plombs (figure 133). Cependant, cet espace a été largement perturbé lors de l'installation au milieu du XV^e siècle d'un réservoir destiné à fournir l'énergie hydraulique à un second appareil sidérurgique. Au niveau archéologique, cela se traduit par l'existence d'une stratigraphie inversée qui contient du mobilier non-ferreux daté de la première moitié du XIV^e siècle grâce à une trouvaille monétaire⁵⁴⁰. L'analyse des plombs révèle des teneurs très faibles en argent qui sont caractéristiques de plombs recyclés ou produits à partir de minerais pauvres en argent.

potentiel de Gibbs qui vaut alors $\Delta G = \Delta G_0 - RT \ln(a_M)$ avec a_M l'activité du métal M dans l'alliage considéré.

⁵⁴⁰ Obole émise en 1322 et décriée en 1329 : Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Document final de synthèse*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2014, p. 30.

4.1.3.3. Arrêt de l'activité : XV^e-XVI^e siècles

La première moitié du XV^e siècle se caractérise par une relative rareté du mobilier à base de plomb par rapport aux phases précédentes. Seulement trois individus non argentifères sont connus sur le Plat-du-Roi et un petit corpus de cinq morceaux de plomb a été découvert dans le canal hydraulique destiné au fonctionnement de la mouline (figure 135). Deux individus correspondent à du plomb d'œuvre : il s'agit d'un lingot de 60 g et d'une masse é coulée de 43 g avec des teneurs respectives en argent de 2210 et 8650 ppm. Ils ont été découverts dans les niveaux de fondation et de construction de l'ouvrage hydraulique. Ces produits intermédiaires sont les derniers témoins de la métallurgie extractive du plomb argentifère qui a perduré jusqu'au milieu du XV^e siècle à la faveur d'une ultime tentative de reprise dans la mine de Castel-Minier. À nouveau, l'absence d'antimoine dans le plomb d'œuvre est notable. Parmi les plombs désargentés découverts dans le canal figure un lingot de 910 g (figure 134). Il est probablement issu du recyclage de sous-produits de l'affinage de l'argent et voué à l'exportation comme le suggère sa morphologie parallélépipédique.



Figure 134 : Lingot CL 10022 découvert dans le canal des XV^e et XVI^e siècles.

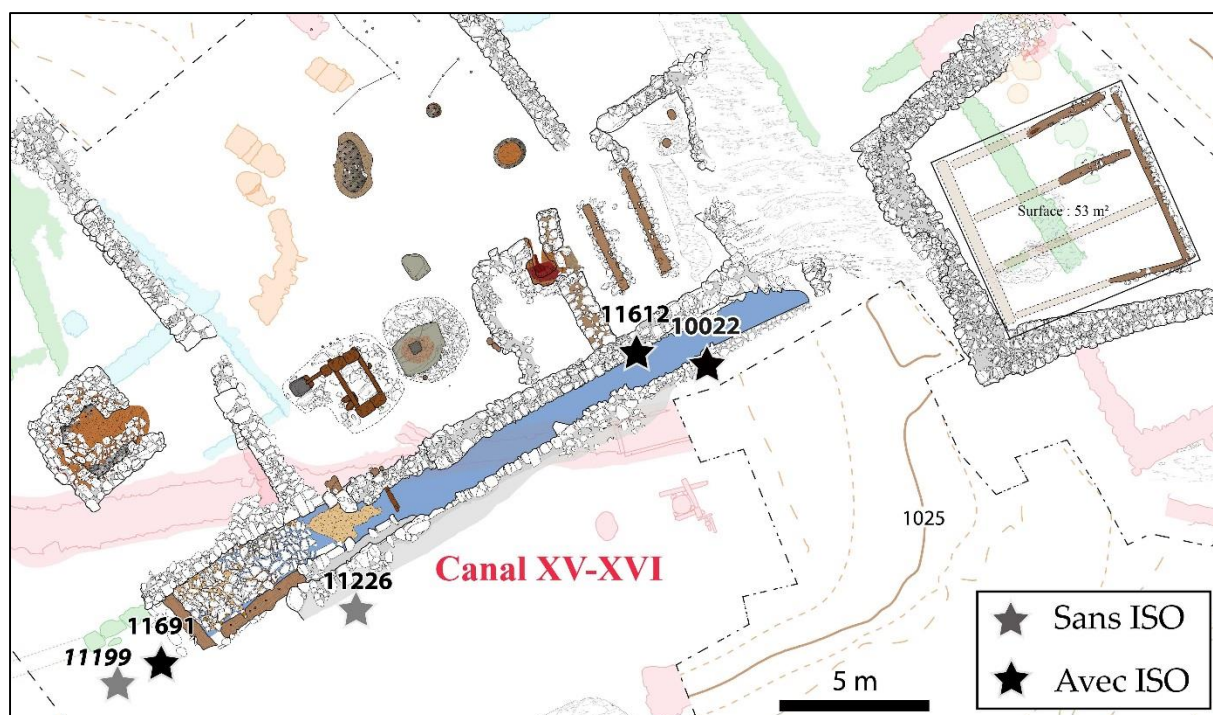


Figure 135: Distribution du mobilier en plomb dans les niveaux des XV^e et XVI^e siècles.
Les structures des phases antérieures figurent en transparence.

4.1.4. Le comportement des éléments chimiques au cours de la réduction

L'étude du comportement des éléments chimiques au cours de la transformation de la galène, et particulièrement des éléments-traces, est une étape préliminaire fondamentale qui vise à identifier des marqueurs géochimiques pertinents pouvant être utilisés ultérieurement pour les études de provenance. Ce thème de recherche dépasse le cadre des ateliers de Castel-Minier et rejoint les problématiques de filiation des métaux non-ferreux en circulation durant la période médiévale. Notre cas pyrénéen est néanmoins particulièrement intéressant puisqu'il concentre tous les acteurs de la production de plomb d'œuvre depuis le minerai argentifère jusqu'au métal et à la scorie en passant par les structures de chauffe qui ont accueilli les transformations de la matière. Castel-Minier offre donc une chance unique d'examiner précisément le partitionnement des éléments-traces entre les produits et les sous-produits de la réduction.

4.1.4.1. Apports des analyses archéométriques

4.1.4.1.1. Les teneurs en éléments-traces

L'analyse élémentaire du corpus de plomb d'œuvre met en évidence plusieurs particularités. Les individus se partagent en trois groupes selon leurs teneurs en antimoine et en argent (figure 136). Les plombs d'œuvre du premier groupe se caractérisent par l'absence d'antimoine tandis que leurs teneurs en argent sont très variables. Les espaces de travail dans lesquels ils ont été découverts sont datés du XIV^e siècle (bâtiment 5, plate-forme 4 et Plat-du-Roi) et du milieu du XV^e siècle (canal hydraulique). Le second groupe est composé de deux plombs d'œuvre issus des ateliers métallurgiques les plus anciens, actifs dès la fin du XIII^e siècle. Les teneurs en argent sont supérieures à celles de l'antimoine et on relève une corrélation entre ces deux éléments avec un ratio argent/antimoine environ égal à 3. A contrario, les plombs d'œuvre du troisième groupe se différencient par des teneurs en antimoine supérieures à celles de l'argent. On note également une corrélation entre ces éléments avec un ratio argent-antimoine proche de 0,5. Le groupe 3 se compose également de mobilier issu des structures du XIV^e siècle parmi lesquelles le bâtiment 10 est le contributeur principal suivi dans les mêmes proportions par la plate-forme 4 et le bâtiment 5.

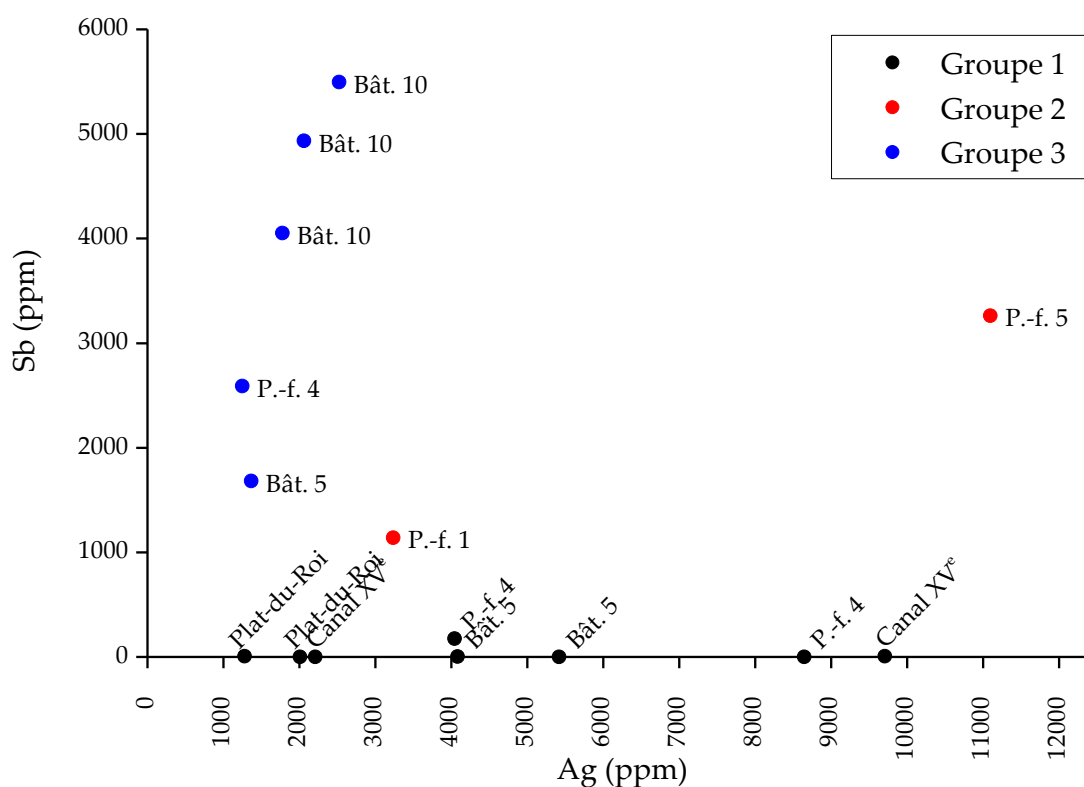


Figure 136 : Représentation des teneurs en argent et en antimoine des plombs d'œuvre et identification des groupes.

La discrimination des plombs d'œuvre en fonction de leur composition en argent et en antimoine soulève plusieurs questions d'ordre technique. En effet, nous avons montré précédemment l'homogénéité des compositions élémentaires des galènes argentifères découvertes dans les ateliers de Castel-Minier. Or, force est de constater que leur traitement peut conduire à l'obtention de plombs d'œuvre avec des teneurs en éléments-traces variées. L'hypothèse la plus simple serait donc d'envisager une production de certains plombs d'œuvre à partir de minerais qui ne sont pas représentés dans notre corpus archéologique. Les plombs du groupe 1, qui ne contiennent pas d'antimoine contrairement aux galènes archéologiques, seraient ainsi de bons candidats. Cependant, cette explication fondée sur une variation de la source d'approvisionnement des ateliers est infirmée par les résultats des analyses isotopiques qui montrent que les plombs d'œuvre du groupe 3 proviennent bien de

minerais extraits dans la mine des Ouels⁵⁴¹. Il faut donc envisager une explication technique telle qu'une variation des paramètres d'oxydo-réduction, du type de structure de chauffe employé ou encore de la nature de la charge.

Hormis l'argent et l'antimoine, les principaux éléments-traces contenus dans le plomb d'œuvre sont le cuivre et le bismuth. Les teneurs en cuivre sont très variables ; elles s'échelonnent de quelques ppm à plus de 6000 ppm. Une partie de ce domaine de concentration est couverte par les galènes archéologiques (figure 137). En revanche, les plombs d'œuvre contenant des teneurs en cuivre supérieures à 1600 ppm, soit quatre individus, ne trouvent pas d'équivalent parmi les galènes archéologiques. Deux hypothèses peuvent alors être avancées pour expliquer cette situation. Tout d'abord, le traitement de minerais mixtes galène-tétraédrite peut entraîner l'incorporation de teneurs importantes en cuivre dans le plomb d'œuvre. Cette hypothèse se vérifie pour deux individus qui présentent une corrélation de leurs teneurs en cuivre et en antimoine, mais également en argent : ils sont probablement issus d'un minerai mixte (figure 137). Pour les autres plombs riches en cuivre, deux hypothèses sont envisageables : la présence d'inclusions de chalcopryrite dans le minerai ou un phénomène d'enrichissement en cuivre lors des opérations métallurgiques. La première hypothèse est plausible⁵⁴² ; quant à la seconde, elle est examinée dans la suite.

⁵⁴¹ *Supra* p. 374.

⁵⁴² Des inclusions de chalcopryrite ont été décelées dans certaines galènes issues de contextes archéologiques.

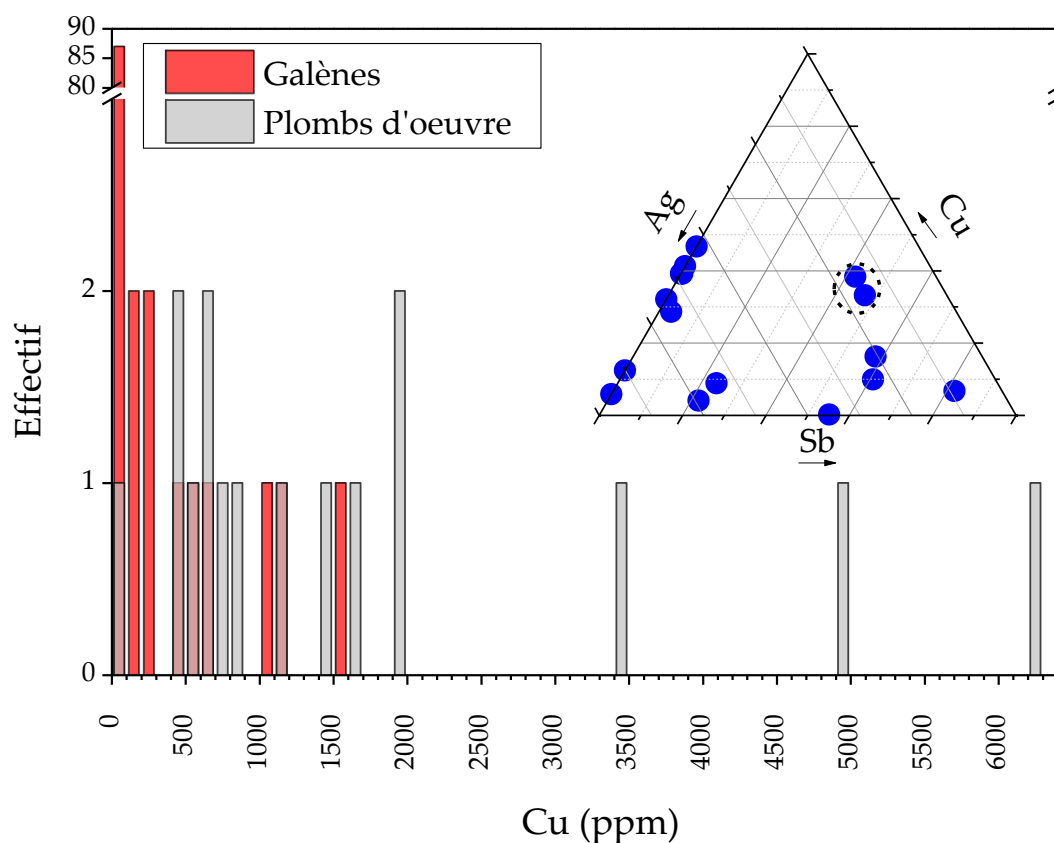


Figure 137 : Histogramme représentant la distribution des teneurs en cuivre des plombs d'œuvre et des galènes. Pour ces dernières, la teneur en argent est donnée pour un plomb métallique équivalent. En incrustation : diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en argent, cuivre et antimoine des plombs d'œuvre. L'ellipse indique les plombs issus du traitement d'un minerai mixte galène-tétraédrite.

Les plombs d'œuvre contiennent également du bismuth en quantités modérées qui, hormis un cas, ne dépassent pas les quelques ppm (figure 138). Ces teneurs sont en accord avec les caractéristiques géochimiques de la galène archéologique, y compris pour les plus élevées. La filiation entre la ressource minérale et le plomb d'œuvre peut donc être esquissée à partir de cet élément.

Les autres éléments-traces ponctuellement détectés dans les plombs d'œuvre sont le nickel, le zinc, l'arsenic et l'étain. Ils existent également dans les galènes archéologiques sans qu'aucune corrélation ne se dégage. Le zinc et l'arsenic sont des métaux particulièrement volatils qui se subliment facilement au cours des opérations métallurgiques ou, comme pour le zinc, sont incorporés dans la scorie. Ils peuvent néanmoins subsister en petites quantités dans le plomb métallique.

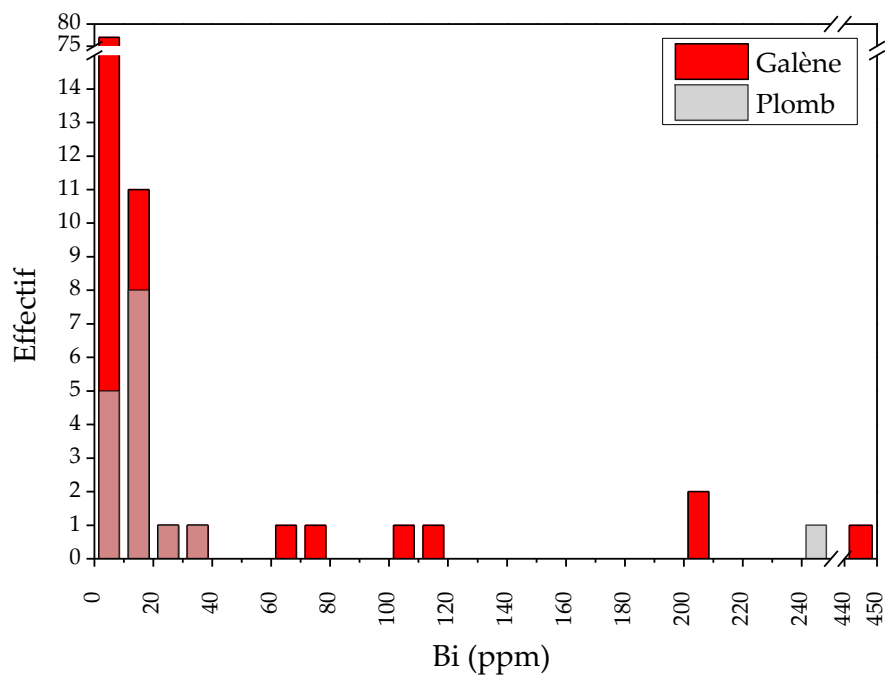


Figure 138 : Histogramme représentant la distribution des teneurs en bismuth des plombs d'œuvre et des galènes. Pour ces dernières, la teneur en argent est donnée pour un plomb métallique équivalent.

4.1.4.1.2. Incorporation du plomb dans la scorie : incidence sur les éléments-traces

Nous avons souligné la nature particulière des scories issues du traitement de la galène argentifère qui se caractérise par une concentration élevée en oxydes de plomb. L'incorporation de plomb dans la scorie à partir du bain métallique est un phénomène courant en paléoméallurgie⁵⁴³ dont les conséquences sont importantes. En effet, sous certaines conditions de pression et de température, les métaux contenus dans le bain métallique à l'état de traces peuvent s'oxyder et accompagner le plomb (qui passe dans la scorie) ou au contraire demeurer à l'état métallique dans le plomb d'œuvre finalement produit. Le comportement des éléments chimiques dépend donc du type de procédé mis en œuvre pour transformer la galène argentifère en plomb d'œuvre et de l'atmosphère qui règne dans la structure de chauffe. Une fois encore, le four Fr72 s'avère être un lieu d'observation privilégié de ces phénomènes : les petites

⁵⁴³ *Supra* p. 379 pour les comparaisons régionales.

scories vitreuses (CL 12700) découvertes dans l'argile du creuset, une fois coupées et polies, livrent de précieuses informations (figure 139). Elles contiennent des billes de plomb métallique piégées au cours du refroidissement. Leur composition marque l'état d'avancement de l'incorporation du plomb dans la scorie. Le silicate de plomb est en cours de formation à la périphérie de la bille. En revanche, l'argent et l'antimoine demeurent à l'état métallique. À mesure que la quantité de plomb diminue, le métal subsistant se trouve enrichi progressivement en antimoine et en argent. Ces teneurs sont en effet particulièrement élevées si on les compare à celles du minerai chargé dans le four Fr72 qui contient en moyenne 1183 ppm d'argent et 1404 ppm d'antimoine. Le plomb d'œuvre produit dans cette structure de chauffe est donc enrichi en argent et en antimoine comme nous l'avons constaté sur le mobilier archéologique⁵⁴⁴.

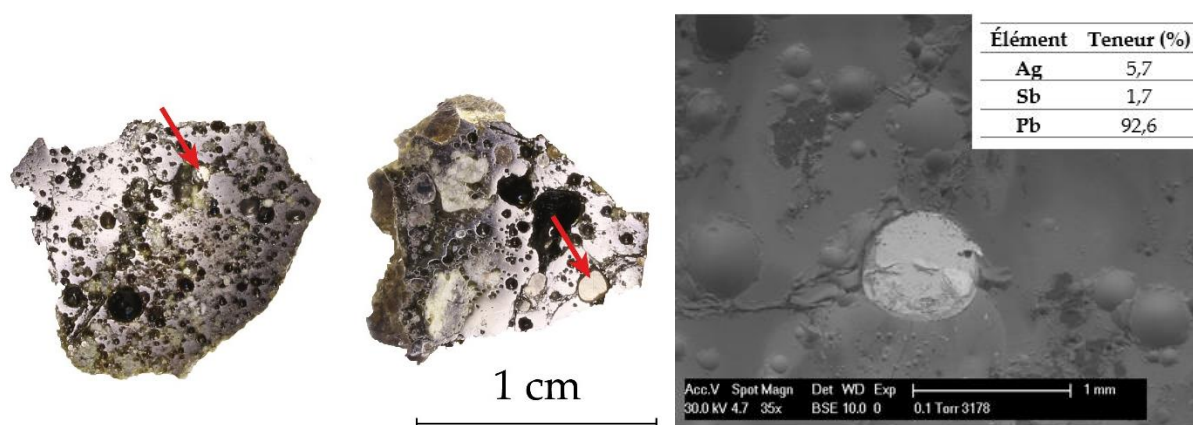


Figure 139 : À gauche : localisation des billes de plomb (flèches rouges) piégées dans les scories CL 12700. À droite : image MEB d'une bille de plomb et résultats de son analyse.

Si elle permet de dégager des tendances sur l'évolution des teneurs élémentaires, l'étude ponctuelle de quelques billes par MEB-EDX ne rend pas pleinement compte de leur comportement. L'analyse LA-ICP-MS d'un corpus de scories issues de la réduction de la galène permet d'aller plus loin en s'intéressant à

⁵⁴⁴ Voir la figure 136 p. 428.

l'ensemble des éléments-traces mobilisés lors de la transformation du minerai⁵⁴⁵. Les résultats sont présentés dans le tableau 28. Chaque scorie a fait l'objet de trois analyses dynamiques sur une surface polie puis la teneur moyenne de chaque élément a été calculée. Les scories contiennent très peu d'argent ce qui indique que l'incorporation de plomb dans la scorie n'entraîne pas de perte en métal blanc et conduit donc à l'enrichissement du plomb d'œuvre. En revanche, l'oxyde d'antimoine a été détecté en quantités significatives dans les scories. Son comportement suit deux tendances (figure 140). Dans le premier cas, on constate une corrélation entre l'oxyde d'antimoine et l'oxyde de plomb, ce qui indique que le plomb d'œuvre ne subit pas d'appauvrissement. Dans le second cas, les teneurs en oxyde d'antimoine incorporées dans la scorie sont plus faibles et sont indépendantes de la teneur en oxyde de plomb. Ce comportement peut donc entraîner l'enrichissement du plomb d'œuvre en antimoine tel que nous l'avons constaté pour le groupe 3⁵⁴⁶.

Le comportement du bismuth est intéressant : bien qu'il soit présent en petite quantité dans la scorie, cet élément présente une corrélation forte avec l'oxyde de plomb (figure 140). Le rapport entre ces deux métaux est donc conservé lors de l'incorporation de plomb dans la scorie. Par conséquent, le plomb d'œuvre ne présente ni enrichissement ni appauvrissement en bismuth puisque cet élément ne se volatilise pas⁵⁴⁷. Le bismuth apparaît donc comme un traceur géochimique de premier choix. Enfin l'évolution des teneurs en oxyde de strontium et en chaux est particulièrement instructive pour détecter une variation de la nature des matériaux qui contribuent à la formation de la scorie (figure 140). On distingue deux groupes dont l'un se caractérise par des teneurs en chaux faibles. Il regroupe deux scories prélevées dans le four Fr72, c'est-à-dire dans la seule structure de transformation de la galène bâtie en granite sur le site de Castel-Minier. La contribution de cette roche peut expliquer le particularisme des scories formées dans cette structure.

⁵⁴⁵ Analyses réalisées à partir du protocole développé par Bernard Gratuze (1999, *op. cit.*).

⁵⁴⁶ *Supra* p. 428

⁵⁴⁷ *Infra* p. 436.

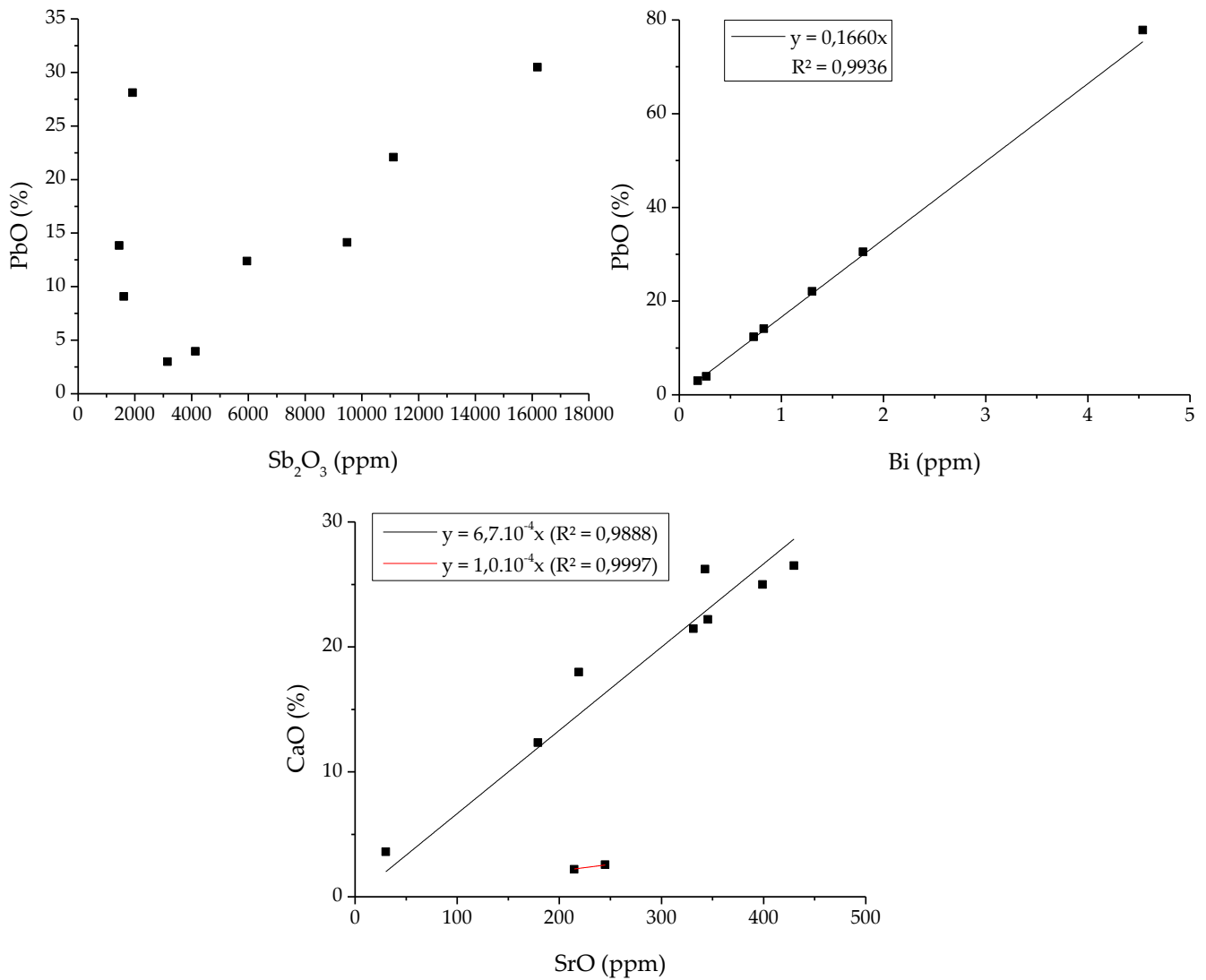


Figure 140 : Représentations binaires établies à partir des résultats d'analyses LA-ICP-MS. En haut à gauche, teneur en oxyde de plomb en fonction de la teneur en oxyde d'antimoine. En haut à droite, teneur en oxyde de plomb en fonction de la teneur en bismuth. En bas, teneur en chaux en fonction de la teneur en oxyde de strontium.

Partie 4 : La production de plomb et d'argent à partir de la galène argentifère

	11415	11671	12097	12111	12198	12765	13062	12700_1	12700_2	11261
MgO	5,8 %	4,5 %	7,9 %	7,9 %	8,1 %	1,1 %	7,1 %	1,3 %	2,0 %	5,8 %
Al₂O₃	9,0 %	6,9 %	6,2 %	10,8 %	10,8 %	1,5 %	10,2 %	12,0 %	17,0 %	8,8 %
SiO₂	34,6 %	30,6 %	37,4 %	38,2 %	40,0 %	11,7 %	33,8 %	42,1 %	51,4 %	31,9 %
CaO	22,2 %	12,3 %	26,5 %	25,0 %	26,2 %	3,6 %	21,5 %	2,2 %	2,6 %	18,0 %
PbO	12,4 %	30,5 %	9,1 %	3,9 %	3,0 %	77,8 %	14,1 %	28,1 %	13,8 %	22,1 %
Fe₂O₃	7,5 %	8,1 %	7,9 %	6,8 %	5,2 %	2,7 %	6,1 %	8,7 %	7,2 %	6,0 %
K₂O	3,7 %	2,0 %	1,2 %	2,9 %	3,0 %	245	2,6 %	1,7 %	2,9 %	2,8 %
Na₂O	0,51 %	0,34 %	0,50 %	0,49 %	0,70 %	526	0,51 %	0,61 %	1,1 %	0,51 %
P₂O₅	1,3 %	0,41 %	1,1 %	0,69 %	0,92 %	435	1,0 %	0,19 %	0,30 %	0,73 %
TiO₂	0,37 %	0,32 %	0,18 %	0,45 %	0,41 %	708	0,40 %	0,65 %	0,83 %	0,33 %
MnO	0,49 %	0,41 %	0,79 %	0,41 %	0,49 %	708	0,56 %	1,6 %	0,20 %	0,41 %
ZnO	1,0 %	1,5 %	0,82 %	1,6 %	0,40 %	0,61 %	0,82 %	0,23 %	906	1,2 %
Sb₂O₃	0,60 %	1,6 %	0,21 %	0,41 %	0,32 %	0,42 %	0,95 %	0,19 %	0,14 %	1,1 %
CuO	0,14 %	0,21 %	243	0,12 %	702	0,18 %	0,13 %	0,11 %	0,23 %	0,26 %
CoO	26	25	23	20	15	33	21	100	19	19
NiO	21	28	43	18	13	37	13	63	131	25
As₂O₃	123	305	29	66	237	49	425	89	36	209
SrO	345	179	430	399	343	30	331	215	245	219
Ag	3,2	7,1	1,0	5,2	1,0	42	2,3	16	70	4,9
SnO₂	4,9	9,5	12	6,8	3,9	6,3	5,2	16	11	5,8
Bi	0,7	1,8	0,5	-	-	4,5	0,8	1,9	1,1	1,3

Tableau 28 : Résultats des analyses LA-ICP-MS des scories issues de la transformation du plomb. Sauf mention contraire, les teneurs sont en ppm.

4.1.4.2. Apports des expérimentations

L'incorporation de plomb dans la scorie et les phénomènes d'enrichissement en éléments-traces qui en découlent résultent du traitement d'un minerai contenant suffisamment de gangue pour permettre la formation de scories. Avec du minerai exempt de gangue, la situation est différente et mérite d'être discutée. Pour cela, nous avons eu recours aux résultats issus de nos expérimentations et plus précisément aux analogues expérimentaux produits lors du traitement de galène de densité élevée selon le procédé de « grillage et réaction » à partir de la restitution du four Fr72⁵⁴⁸.

Le minerai utilisé, qui provenait du Maroc, ainsi que les plombs d'œuvre obtenus ont fait l'objet d'analyses par LA-ICP-MS dont les résultats sont consignés dans le tableau 29. On constate un enrichissement en antimoine et en argent dans le plomb d'œuvre par rapport au minerai⁵⁴⁹. Cette observation est en adéquation avec les plombs d'œuvre archéologiques qui forment le groupe 2⁵⁵⁰. Une infime partie du plomb et les quelques inclusions de gangue présentes dans le minerai ont réagi avec l'argile du four comme en témoignent les quelques éléments de paroi scoriacée récupérés lors du curage de la structure. Il faut donc conclure à une perte de plomb dans les fumées sous la forme de sulfates pour expliquer les enrichissements.

Les teneurs en cuivre relevées dans les plombs d'œuvre sont significatives. Nous suspectons une contribution des inclusions de chalcopryrite que nous avons par ailleurs identifiées dans le minerai. Quant au bismuth, il ne présente pas d'enrichissement, ce qui valide les observations faites sur les scories archéologiques : le plomb qui passe dans la scorie, dans la paroi du four ou dans les fumées est accompagné de bismuth selon un rapport Pb/Bi constant⁵⁵¹. Plusieurs éléments-traces

⁵⁴⁸ *Supra* p. 415.

⁵⁴⁹ Les teneurs sont rapportées au plomb pour calculer les coefficients d'enrichissement de manière à s'affranchir de la présence de soufre.

⁵⁵⁰ *Supra* p. 428 pour l'identification des groupes.

⁵⁵¹ L'évaporation du bismuth est exclue car les pressions de vapeur saturante du métal et de l'oxyde sont très faibles autour de 1000 °C : L'Héritier M., Baron S., Cassayre L. et Téreygeol F., « Bismuth behaviour during ancient processes of silver lead production », *Journal of Archaeological Science*, 57, 2015, p. 61.

sont absents des plombs d'œuvre alors qu'ils étaient contenus dans la galène. C'est le cas du zinc, du cadmium et du tellure. Le zinc a pu passer dans la scorie à l'état d'oxyde ou, comme le tellure et le cadmium, être réduit et s'être sublimé.

Élément	Galène	XP1	XP2	XP3
S	16,1 %	2276	6172	-
Pb	83,6 %	99,5 %	99,1 %	99,7 %
Ag	260	745	920	628
Co	32	-	-	-
Ni	2,1	28	16	12
Cu	19	1525	1083	1722
Zn	2194	-	-	-
Cd	45	-	-	-
Sb	98	244	232	252
Te	229	-	-	-
Tl	4,1	3,2	3,3	3,1
Bi	439	555	638	530
Coeff. enrichissement Ag		2,4	3,0	2,0
Coeff. enrichissement Sb		2,1	2,0	2,2
Coeff. enrichissement Cu		68,1	48,6	76,8

Tableau 29 : Résultats de l'analyse LA-ICP-MS de la galène et des plombs expérimentaux.
Sauf mention contraire, les teneurs sont en ppm.

Nous avons conduit de nouvelles expérimentations pour tâcher de comprendre les modalités d'obtention des plombs d'œuvre du groupe 1, qui se caractérisent par l'absence d'antimoine et un enrichissement plus ou moins poussé en argent, et ceux du groupe 3, riches en antimoine⁵⁵². Dans cette optique, nous avons utilisé de la galène archéologique issue du bâtiment 10. En raison de la quantité limitée de minerai disponible, nous avons décidé de travailler à petite échelle dans un four à moufle⁵⁵³. La transformation de la galène se fait toujours par « grillage et réaction » avec cependant la possibilité contrôler l'atmosphère en jouant sur les événements du four et en ajoutant du charbon de bois directement dans le moufle. Cet avantage nous a permis d'effectuer une première transformation dans des conditions modérément réductrices

⁵⁵² *Supra* p. 428 pour l'identification des groupes.

⁵⁵³ Notre protocole expérimental reprend dans ses grandes lignes, celui développé par Joseph Gauthier pour l'essai de la galène argentifère : Gauthier J., « L'essai des minerais au XVI^e ... », *op. cit.*, p. 155-168.

qui se rapprochent de celles qui règnent dans le four 72 : charbons dans le moufle, événements partiellement fermés et garnis de charbons. La seconde expérimentation s'est déroulée en conditions plus oxydantes avec une ouverture complète des événements et l'absence de charbons dans le moufle. Les deux expérimentations, d'une durée de 30 minutes, ont porté sur une prise de 30 g de minerai qui a livré deux billes de plomb ayant fait l'objet d'analyses par LA-ICP-MS (tableau 30) et deux petites masses scoriacées.

Élément	Galène CL 12806	Plomb 1	Plomb 2
S	12,5 %	3,0 %	76
Pb	87,4 %	96,7 %	99,9 %
Ag	326	406	452
Cd	27	1,1	-
Sb	633	1385	32
Bi	15	13	16
Coeff. enrichissement Ag		1,09	1,21
Coeff. enrichissement Sb		1,98	0,04
Coeff. enrichissement Cu		773	361
Rendement de la réduction (%)		46	66

Tableau 30 : Teneurs de six métaux des plombs expérimentaux produits à partir de la galène archéologique CL 12806. Analyses LA-ICP-MS. Sauf mention contraire, les teneurs sont en ppm.

Les résultats de la première expérimentation sont difficiles à interpréter puisque la transformation du minerai n'est pas complète comme l'indique la présence résiduelle de soufre. Si on constate un léger enrichissement en argent, l'accroissement des teneurs en antimoine est significatif : une variation dans la composition du minerai peut être avancée pour expliquer ce phénomène. Quoi qu'il en soit, ce métal n'a pas été incorporé dans les produits scoriacés : il est resté dans le plomb d'œuvre à l'état métallique. Quant au faible enrichissement en argent, il découle de la nature du minerai utilisé (pratiquement exempt de gangue) qui a entraîné la formation d'une quantité très réduite de scorie. L'incorporation d'oxyde de plomb dans cette dernière est donc limitée : le plomb d'œuvre est peu enrichi en métal blanc. Les résultats

obtenus à l'issue de cette première expérimentation sont en adéquation avec les caractéristiques des plombs d'œuvre du groupe 3, riches en antimoine. Toutefois, les teneurs plus élevées de ce métal dans les exemplaires archéologiques témoignent du recyclage de sous-produits de l'affinage de l'argent⁵⁵⁴.

À l'issue de la seconde expérimentation, le plomb produit est de meilleure qualité puisque tout le soufre a été éliminé : la réaction a été menée à son terme. Par ailleurs, on note cette fois un enrichissement en argent et un appauvrissement en antimoine. Les conditions moins réductrices qui régnaient dans le four ont favorisé l'oxydation des métaux ayant une bonne affinité avec l'oxygène : l'antimoine, le plomb et dans une moindre mesure le cuivre. Ces oxydes sont passés dans la petite masse scoriacée qui surnageait dans le scorificateur. Ainsi, les paramètres thermodynamiques ont une incidence non négligeable sur la composition en éléments-traces du plomb d'œuvre obtenu. On peut donc supposer l'existence au cours des XIV^e et XV^e siècles d'un procédé et/ou d'une structure de chauffe particulière qui ont permis aux métallurgistes médiévaux de produire les plombs d'œuvre du groupe 1, pauvres en antimoine⁵⁵⁵. Par rapport au four Fr72, les conditions étaient plus oxydantes ce qui pourrait indiquer le recours à une structure ouverte de type foyer (figure 141).

En définitive, il est possible à partir des expérimentations d'explicitier les conditions de formation des trois groupes de plombs d'œuvre archéologiques identifiés grâce aux analyses archéométriques :

- Le groupe 1, aux teneurs en antimoine faibles, correspond à une transformation d'un mélange de minerai et de roches stériles en conditions oxydantes (dans une structure de type foyer, figure 141) ayant conduit à

⁵⁵⁴ Cette pratique est démontrée *infra* p. 522.

⁵⁵⁵ *Supra* p. 428 pour l'identification des groupes. Ces plombs d'œuvre pauvres en antimoine représentent 50 % du corpus analysé. L'absence d'antimoine suppose la formation de scories durant la transformation du minerai qui ont incorporé ce métal. En outre, toutes les scories analysées présentent des teneurs significatives en oxyde d'antimoine (*supra* p. 435) ce qui indique qu'elles sont associées à une production de plombs d'œuvre qui appartiennent au groupe 1.

l'incorporation de l'antimoine et d'une partie du plomb dans la scorie et à un enrichissement en argent du plomb d'œuvre.

- Le groupe 2 correspond à une transformation d'un mélange de minerai et de roches stériles dans une structure de chauffe aux conditions modérément réductrices qui n'ont pas permis l'oxydation de l'antimoine (four Fr72 fonctionnant en ventilation naturelle). Une partie du plomb a été incorporée dans la scorie entraînant un enrichissement en argent et en antimoine du plomb d'œuvre.
- Les conditions de formation des plombs d'œuvre du groupe 3 sont similaires à celles du groupe 2. La différence concerne uniquement les teneurs en antimoine, qui sont beaucoup plus élevées pour les individus du groupe 3. Cette particularité dénote le recyclage de sous-produits d'affinage de l'argent tels que des casses de coupellation ou des litharges. L'ajout de ces artefacts, qui contiennent des oxydes de plomb, permet d'amorcer la réaction de transformation de la galène.



Figure 141: Exemple de structure foyer ayant pu accueillir des opérations métallurgique en lien avec la production de plomb d'œuvre. Fy2467 (Plate-forme 2).

4.1.4.3. Incidences économiques des procédés techniques

L'incorporation de plomb dans la scorie se produit à Castel-Minier lors du traitement de minerais qui contiennent de la gangue. Ce phénomène présente des avantages économiques multiples qui interviennent à différents niveaux de la chaîne opératoire. En premier lieu, le recours à un mélange de galène et de roches stériles réduit les étapes minéralurgiques à une simple calibration par concassage. Ensuite, l'incorporation de plomb dans la scorie facilite les étapes ultérieures d'affinage de l'argent. En effet, nous avons montré de quelle manière le bain métallique est enrichi en argent à mesure qu'une partie du plomb passe dans la scorie. Ainsi, la quantité de plomb qu'il faut séparer de l'argent lors des opérations ultérieures d'affinage est réduite. Les économies de temps et de combustible sont donc profitables et compensent les pertes en plomb. Ces dernières sont consenties d'autant plus facilement que le statut du plomb, métal relativement bon marché, est moindre que celui de l'argent. En outre, les scories au plomb récupérées lors du curage des structures de chauffe sont des sous-produits potentiellement valorisables. C'est le cas notamment des silicates de plomb vitreux dont quelques individus ont été identifiés parmi les corpus de scories. L'emploi de ces verres au plomb a été démontré dans des contextes domestiques⁵⁵⁶ (bijoux, vaisselle) ou artisanaux⁵⁵⁷ (lissoirs) du haut Moyen Âge. Ainsi, la quantité limitée de scories plumbeuses découverte à Castel-Minier ne signifie pas forcément un traitement limité des minerais de qualité intermédiaire contenant de la gangue. Ce constat peut indiquer une valorisation de ces sous-produits

⁵⁵⁶ Velde B. et Gratuze B., « Vaisselle, verre plat et petits objets en verre : aspects analytiques », In Bourgeois L. (éd.), *Une résidence des comtes d'Angoulême autour de l'an mil. Le castrum d'Andonne (Villejoubert, Charente)*, CRAHM, Caen, 2009, p. 244-249 ; Bayley J., « Early medieval lead-rich glass in the British Isles – A survey of the evidence », *Annales du 17^e congrès de l'association internationale pour l'histoire du verre*, Anvers, 2006, Janssens K., Degryse P., Cosyns P., Caen J. et Van't Dack L. (éd.), Aspeditions, Anvers, 2009, p. 255-260.

⁵⁵⁷ Gratuze B., Foy D., Lancelot J. et Téreygeol F., « Les « lissoirs » carolingiens en verre au plomb : mise en évidence de la valorisation des scories issues du traitement des galènes argentifères de Melle (Deux-Sèvres) », *Échanges et commerce du verre dans le monde antique, actes du colloque de l'AFAV, Aix-en-Provence-Marseille, 7-9 juin 2001*, Foy D. et Nenna M. D. (éd.), Monique Mergoïl, Montagnac, 2003, p. 101-107.

de l'extraction du plomb argentifère qui peut consister d'une part en une exportation et d'autre part, une fois réduits en poudres, en une utilisation pour la confection de mortier comme l'ont démontré les fouilles de plusieurs structures de Castel-Minier.

L'étude du comportement des éléments-traces de la galène au cours de sa transformation met en évidence des phénomènes de partitionnement entre le plomb d'œuvre et les produits scoriacés. Les mécanismes qui les gouvernent dépendent des propriétés physico-chimiques des éléments, mais également du type de procédé mis en œuvre pour traiter le minerai. Des phénomènes d'enrichissement et d'appauvrissement des plombs d'œuvre en éléments-traces sont possibles selon les conditions oxydo-réductrices qui règnent dans les structures de chauffe. Ainsi, la corrélation entre l'argent et l'antimoine est préservée lors d'une transformation « par grillage et réaction » dans le four Fr72. En revanche, si l'atmosphère est plus réductrice comme c'est le cas dans un foyer, l'antimoine s'oxyde et quitte le métal.

Quel que soit le procédé en utilisé, on observe une conservation des teneurs en bismuth entre le minerai et le métal ce qui fait de cet élément le seul véritable traceur rendant compte de la filiation géochimique. Ces résultats sont importants puisqu'ils démontrent la portée limitée des études de provenance du plomb basées uniquement sur les teneurs en éléments-traces.

4.2 L'extraction de l'argent

La séparation du plomb et de l'argent succède directement à l'étape de transformation du minerai. La récupération du métal blanc est l'objectif principal de cette opération qui constitue l'étape ultime de la chaîne opératoire de traitement de la galène argentifère. La séparation des métaux est assurée à l'état liquide lors d'une opération métallurgique particulière : la coupellation.

4.2.1. La séparation des métaux par voie sèche : la coupellation

4.2.1.1. Présentation du procédé de métallurgie extractive

Sur le plan physico-chimique, la coupellation consiste en une réaction d'oxydation à haute température qui exploite l'affinité différentielle des métaux avec l'oxygène. Ainsi, les métaux « nobles » tels que l'or et l'argent ne s'oxydent que très difficilement, voire pas du tout pour le métal jaune. En revanche, le plomb et plusieurs autres éléments⁵⁵⁸ qu'il contient en quantités mineures ou à l'état de traces se combinent avec l'oxygène pour former des oxydes, dont la litharge (autre terme pour désigner l'oxyde de plomb de formule PbO) est le plus abondant.

Le plomb d'œuvre à coupeller est placé dans une structure de chauffe dont la sole convexe est confectionnée avec un matériau réfractaire et poreux. La température de travail doit satisfaire deux critères : i) le maintien à l'état liquide du plomb (qui fond à 327 °C), ii) le maintien à l'état liquide de la litharge pour permettre son élimination (température supérieure à 860 °C). Afin d'assurer la formation d'oxydes, l'atmosphère qui règne dans la structure de chauffe doit être oxydante. Plusieurs moyens permettent de satisfaire cette condition. Il s'agit en premier lieu du type de combustible. L'usage du bois doit être préféré à celui du charbon qui consommerait l'oxygène pour former du monoxyde de carbone. Ensuite, l'utilisation d'une ventilation forcée permet d'une part de maintenir la température de travail et d'autre part de fournir un débit d'oxygène constant afin de favoriser la formation des oxydes.

La litharge qui apparaît à la surface du bain métallique doit être évacuée de manière à permettre l'oxydation du plomb restant et la progression de l'opération. L'élimination de la litharge peut être assurée par un processus physico-chimique et/ou manuel. Le premier tire profit des tensions de surface différentielles des métaux et des oxydes métalliques. Les tensions de surface du plomb et de l'argent sont suffisamment

⁵⁵⁸ Parmi les principaux figurent le cuivre, l'antimoine et le bismuth dont les comportements au cours de la coupellation sont discutés dans la suite : *infra* p. 494.

élevées pour leur permettre de ne pas mouiller la sole réfractaire tandis que celle de la litharge est moindre et conduit à son absorption par la sole⁵⁵⁹ à la faveur de mouvements convectifs qui l'entraînent au contact de celle-ci⁵⁶⁰. Néanmoins, ce mécanisme n'est pas toujours suffisant, en particulier lorsque la coupellation est conduite sur des masses de plomb d'œuvre importantes. Dans ce cas, la sole ne peut pas absorber toute la litharge qui doit alors être prélevée ou évacuée de la structure de chauffe.

La technique du prélèvement consiste à tirer délicatement la pellicule de litharge qui s'est formée au-dessus du bain au moyen d'un râble. Une alternative repose sur l'utilisation d'une tige en fer qui est immergée dans le bain de litharge. L'exécution d'un mouvement de rotation permet de déposer des couches successives de litharge sur la tige. Une fois dégagé, l'oxyde de plomb solidifié forme des rouleaux caractéristiques. À ces deux méthodes de prélèvement peut être substituée la technique « par débordement » qui consiste à aménager un petit canal dans la partie supérieure de la sole de manière à permettre l'écoulement de la litharge (figure 142). La profondeur du canal doit être régulièrement augmentée en adéquation avec la baisse du niveau du bain métallique.

⁵⁵⁹ 130 mN.cm⁻¹ pour la litharge à 900 °C contre 400 mN.cm⁻¹ pour le plomb à la même température : Joud J.-C., Eustathopoulos N., Bricard A. et Desré P., « Détermination de la tension superficielle des alliages Ag-Pb et Cu-Pb par la méthode de la goutte posée », *Journal de chimie physique*, 170, 1973, p. 1291 ; Shartsis L., Spinner S. et Smock A. W. « Surface tension of Compositions in the Systems PbO-B₂O₃ and PbO-SiO₂ », *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 40, 1948, p. 63.

⁵⁶⁰ Convection Marangoni : le gradient de tension de surface entre le plomb et la litharge permet le transport de cette dernière le long de l'interface : Eustathopoulos N., Ricci E. et Drevet B., « Tension superficielle », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : M67 v2, 1999, p. 1.

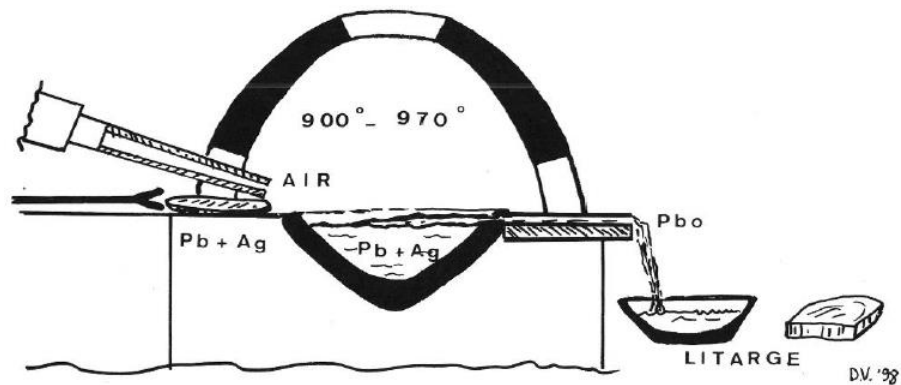


Figure 142 : Méthode par débordement de la litharge d'après Rehren T., Vanhove D., Mussche H. F. et Oikonomakou M., « Litharge from Laurion. A medical and metallurgical commodity from South Attika », *L'Antiquité classique*, 68(1), 1999, p. 301. La paternité du schéma revient en réalité à Constantin Conophagos : Conophagos C., *Le Laurium antique...*, op. cit., p. 318.

À l'issue de la coupellation, une fois le plomb éliminé, l'argent subsistant sur la sole est prélevé. Quant à la sole, elle nécessite une réfection : les portions imprégnées d'oxydes de plomb ne sont plus utilisables et sont généralement retirées. Elles se distinguent de la sole indemne par une densité plus élevée et un aspect pulvérulent. Fragiles, ces sous-produits qui se fragmentent facilement sont qualifiés de « casses de coupellation » (figure 143). S'il a eu lieu, le prélèvement de la litharge entraîne la formation d'un sous-produit supplémentaire qui se présente sous la forme de rouleaux, plaques ou masses informes selon la méthode mise en œuvre pour collecter l'oxyde de plomb (figure 143).

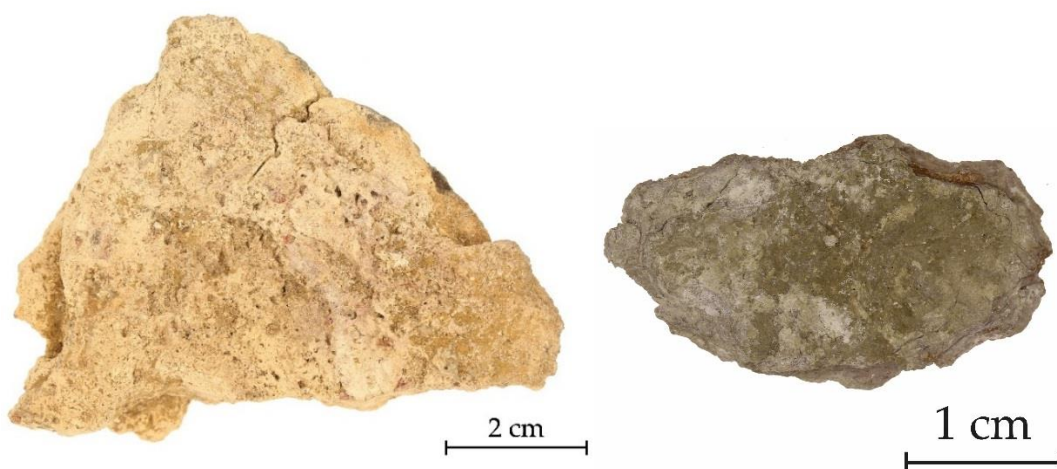


Figure 143 : Casse de coupellation de Castel-Minier (gauche, CL 11247) et plaque de litharge (droite, CL 10940).
Clichés : J.-C. Méaudre.

4.2.1.2. Les autres usages de la coupellation : métrologie et recyclage

Les principes généraux de la coupellation qui viennent d'être présentés s'appliquent dans le cadre des opérations de métallurgie extractive. Il convient néanmoins de présenter les autres contextes dans lesquels la coupellation peut être pratiquée et dont certains ont existé à Castel-Minier. Le plus courant relève du domaine de l'essai des minerais par voie sèche, au sein duquel la coupellation est une technique très répandue pour déterminer leur potentiel économique. À titre d'exemple, la galène argentifère est testée au cours d'un procédé en trois étapes qui consiste d'abord à griller le minerai, ensuite à le réduire pour obtenir du plomb d'œuvre qui est enfin coupellé pour en extraire l'argent⁵⁶¹.

Dans le cadre de l'essai, la coupellation est conduite à petite échelle dans des conditions qui diffèrent de celles décrites ci-dessus. Tout d'abord, les dimensions de la structure de chauffe utilisée sont plus modestes et celle-ci peut disposer d'aménagements spécifiques destinés à faciliter le contrôle des étapes de transformation, par exemple un four à moufle doté d'orifices oculaires. Ensuite, l'alliage à séparer n'est pas déposé sur la sole du four, mais dans une coupelle confectionnée le plus souvent à partir de cendres d'os. La coupellation conduite dans le cadre de l'essai de minerais livre donc des sous-produits différents de ceux obtenus dans le contexte de la métallurgie extractive de l'argent. La litharge n'est jamais tirée hors du four et les coupelles usagées sont les seuls vestiges subsistants.

Outre la pratique de l'essai de minerais, la coupellation à petite échelle est également un outil métrologique qui permet d'éprouver la composition des alliages, en particulier le contrôle de leur titre dans le cadre d'une production monétaire⁵⁶².

⁵⁶¹ Sur la place de la coupellation au sein des techniques d'essai : Gauthier J., « *La fortune des entreprises minières...*, *op. cit.*, p. 381 et suivantes.

⁵⁶² Sur ces aspects : Téreygeol F. et Thomas N., « La coupellation des alliages cuivre-argent : Approche expérimentale de l'essai d'argent par voie sèche », *Revue d'archéométrie*, 27, 2003, p. 171-181 ; Rehren T. et Eckstein K., « The development of analytical cupellation in the Middle Ages », *Archaeometry* 98, *Proceedings of the 31st Symposium, Budapest, April 26-May 3 1998*, Jerem E. et Biro K.T. (éd.), BAR

Cette opération concerne surtout les alliages argent-cuivre dont la coupellation est plus délicate que celle des alliages plomb-argent. Elle requiert l'ajout de plomb (on parle d'emplombage) pour diminuer la température de fusion du mélange et maintenir l'oxyde de cuivre à l'état liquide afin qu'il soit éliminé. Enfin, la coupellation peut être envisagée comme une technique de recyclage destinée à récupérer les métaux précieux présents dans des matériaux composites⁵⁶³ ou encore dans les sous-produits de l'affinage de l'or⁵⁶⁴. Les produits à recycler sont emplombés puis coupellés afin d'en extraire les métaux précieux.

4.2.1.3. Pratique de la coupellation durant la période médiévale : état de l'art

4.2.1.3.1. Sources écrites et iconographiques

La technique de la coupellation est décrite dans les sources écrites antiques dont la plus ancienne est le Papyrus de Leyde composé entre le III^e et le IV^e siècle ap. J.-C.⁵⁶⁵ :

« Purification de l'argent. Pour rendre tout argent pur et brillant, prenez une partie d'argent et une quantité égale de plomb. Après les avoir amollis, fondez au four jusqu'à ce que le plomb soit perdu et faites cela souvent jusqu'à ce que l'argent devienne brillant »

International Series 1043 – Central European Series 1, vol. 2, Archaeolingua, Oxford, 2002, p. 445-448 ; Guirado M.-P. et Téreygeol F., « Étude des coupelles d'essais », In Mille P. et Téreygeol F. (éd.), *L'Atelier monétaire royal de La Rochelle*, Presses Universitaires de Rennes, Rennes, 2011, p. 97-98.

⁵⁶³ Par exemple les objets d'orfèvrerie contenant des dorures ou des argentures. Plusieurs recettes de recyclage sont données par le moine Théophile dans son ouvrage *Diversarum artium schedula* : Smith C.S. et Hawthorne J.G., *Theophilus. On divers arts. The foremost medieval treatise on painting, glassmaking and metalwork*, Dover Publications, New York, 1963, p. 146 et suivantes.

⁵⁶⁴ La pratique du recyclage par emplombage et coupellation des chlorures d'argent, produits à l'issue de l'affinage de l'or par cémentation, est courante dans les traités métallurgiques de l'époque moderne : Biringuccio V., *De la Pirotechnia*, 1540, livre 4, chapitre 7 ; Agricola G., *De Re Metallica*, 1556, livre 10 ; Ercker L., *Beschreibung der Allerfürnemsten Mineralischen Erzt und Bergwerksarten ...*, 1574, livre 2.

⁵⁶⁵ Halleux R., *Les alchimistes grecs*, Les Belles Lettres, Paris, 2002, p. 91.

La recette très concise du Papyrus de Leyde ne livre aucune information sur le matériau employé pour concevoir la sole du four. En outre, elle ne s'insère pas dans une chaîne opératoire de métallurgie extractive, mais relève plutôt d'une opération d'affinage de l'argent contenant des impuretés comme du cuivre. La recette met en lumière la difficulté à obtenir de l'argent « pur » en une seule étape. Le procédé est en effet itératif puisque la coupellation doit être répétée jusqu'à ce que le métal « devienne brillant ». L'éclat de celui-ci constitue donc un critère visuel qui permet de juger de l'état d'avancement de l'affinage.

Dans les sources médiévales, la coupellation n'apparaît qu'au début du XII^e siècle sous la plume du moine Théophile dans une recette de la *Diversarum artium schedula*⁵⁶⁶. Dans ce recueil de recettes composé à partir de sources plus anciennes et de l'expérience de l'auteur⁵⁶⁷, sont abordés successivement le travail du verre, la peinture et l'orfèvrerie. La coupellation est décrite comme une méthode de purification de l'argent (*De purificando argento*) au chapitre 22 :

« Tamisez des cendres, les mêlant d'eau ; prenez un vase en terre éprouvé au feu, assez grand pour que vous pensiez pouvoir y fondre l'argent à purifier, sans qu'il se répande ; mettez-y les cendres, légères au milieu, épaisses autour du bord, et séchez aux charbons. Cela étant sec, éloignez un peu les charbons du fourneau, posez le vase avec les cendres sous l'ouverture devant le fourneau, à la portée du vent du soufflet ; et plaçant des charbons dessus, soufflez jusqu'à ce qu'ils s'enflamment. Mettez l'argent et par-dessus un peu de plomb ; jetant des charbons dessus, fondez. Ayez près de vous une baguette coupée à une haie et séchée au vent avec laquelle vous découvrirez soigneusement, et enlevez de l'argent tout ce que vous y verrez surnager de scorie ; puis y approchant un tison c'est-à-dire un

⁵⁶⁶ La coupellation est en effet rarement abordée dans les recettes alchimiques et métallurgiques du haut Moyen Âge : Gauthier J., *La fortune des entreprises minières...*, *op. cit.*, p. 96.

⁵⁶⁷ Celui-ci pourrait être le moine-orfèvre Roger issu de l'abbaye de Helmarshausen en Basse-Saxe Sur ce débat, voir l'introduction à l'édition anglaise : Smith C.S. et Hawthorne J.G., *Theophilus. On divers arts...*, *op. cit.*

bois brûlé par le feu, vous soufflerez doucement à longs traits. Lorsque vous aurez par ce procédé rejeté le plomb, si vous vous apercevez que l'argent n'est pas encore pur, remettez du plomb, et remplaçant vos charbons, faites comme déjà. Si l'argent rejaillit en ébullition, sachez que de l'étain ou de l'aurichalque s'y trouve mêlé : cassez menu un petit morceau de verre, jetez sur l'argent, ajoutez du plomb, apportez des charbons et soufflez fort. Regardez comme auparavant, enlevez avec la baguette les scories de verre et de plomb, approchez un tison, faites comme ci-dessus, et cela jusqu'à ce qu'il soit pur.⁵⁶⁸ »

Le texte de Théophile apporte des précisions fondamentales sur la conduite du procédé de coupellation et la manière de concevoir la coupelle. Cette dernière est façonnée en cendre dans un récipient réfractaire (*testa*) puis séchée. L'argent à purifier est déposé sur la coupelle puis emplombé. La chauffe s'effectue au charbon de bois et le débit d'air est assuré par un soufflet. Un fois le bain liquide, les impuretés sont collectées au moyen d'une baguette de bois sec. L'opération est répétée jusqu'à ce que la pureté, appréciée visuellement, soit satisfaisante. Dans le cas où l'argent contiendrait encore des éléments métalliques tels que de l'étain, Théophile préconise d'ajouter du verre dans le bain pour former une scorie au plomb (silicate de plomb) qui a la faculté de capter facilement les oxydes métalliques. Moins dense que l'argent, la scorie surnage et peut être prélevée facilement.

⁵⁶⁸ Traduction accompagnant l'édition de Charles de l'Escalopier : *Théophile prêtre et moine. Essai sur divers arts*, Firmin Didot, Paris, 1843, p. 143-144 : *Cribrā cineres, commiscens eos aqua, et accipe testam ollae in igne probatam, quae tantae magnitudinis sit, in qua credas liqueferi posse argentum, quod purificari debet, ut non effundatur, et mitte cineres in eam, in medio tenues et circa oram spissos, et sicca ad carbones. Qua siccata amove carbones a fornace modicum, et pone ipsam testam cum cineribus sub foramine ante fornacem, sic ut ventus ex folle in eam flet, superpositisque carbonibus suffla donec candescant. Deinde mitte argentum in eam, et superpone modicum plumbi, superquejectis carbonibus liquefac illud, et habeas juxta te virgam ex sepe vento siccata, cum qua discooperies diligenter, et puritica ab argento quicquid immunditiae super illud videris, positoque super illud titione, hoc est ligno igne usto, sufflabis mediocriter longo tractu. Cumque plumbum hoc facto egeris, si videris argentum nondum purum esse, rursus pone plumbum, superpositisque carbonibus fac sicut prius. Quod si videris argentum ebullire et exsilire, scito stagnum vel aurichalcum ei admixtum, et confringe particulam vitri minute, et proice super argentum, plumbumque adde, appositisque carbonibus fortiter suffla. Deinde respice sicut prius, et cum virgula aufer immunditiam vitri et plumbi, superpositoque titione fac sicut prius, et hoc tamdiu donec purum fiat*

La coupellation est mentionnée une seconde fois dans l'œuvre de Théophile comme une technique de recyclage qui permet de récupérer l'or qui constitue les dorures des objets en alliages cuivreux. La recette fait l'objet du chapitre 69 et présente des similitudes évidentes avec le chapitre 22 auquel renvoie d'ailleurs Théophile (*eo modo quo solet argentum purificari*) :

« Comment séparer l'or du cuivre. S'il vous arrive de casser des vases ou quelque autre ouvrage de cuivre ou d'argent doré, vous pourrez récupérer l'or comme suit. Prenez les os de n'importe quel animal que vous aurez trouvé sur la place et brûlez-les ; quand ils sont refroidis, broyez-les finement et mêlez-y un tiers de cendres de hêtre et faites des coupelles comme nous l'avons dit plus haut pour la purification de l'argent, et vous les ferez sécher au feu ou au soleil. Ensuite, vous raclerez soigneusement l'or sur le cuivre et vous emballerez cette raclure dans du plomb finement laminé, vous mettrez une de ces coupelles sur des braises dans le four et quand elle sera échauffée vous y mettrez l'emballage de plomb avec la raclure, vous mettrez des charbons au-dessus et vous fondrez. Quand il sera fondu de la même manière que l'on purifie l'argent, écarterez de temps à autre les braises et ajoutez du plomb, et de temps à autre en découvrant et en soufflant minutieusement vous brûlerez jusqu'à ce que le cuivre soit complètement consumé et que l'or pur apparaisse⁵⁶⁹ ».

⁵⁶⁹ Nous reproduisons ici la traduction proposée par Robert Halleux : « Méthodes d'essai et d'affinage des alliages aurifères dans l'Antiquité et au Moyen Age », In Morrisson C., Brenot C., Callu J.-P., Barrandon J.-N., Poirier J. et Halleux R. (éd.), *L'or monnayé I. Purification et altération de Rome à Byzance.*, Éditions du CNRS, Valbonne, 1985, p. 53. *Quod si aliquando vasa cuprea seu argentea deaurata fregeris, vel aliud quodlibet opus, hoc ordine acquirere poteris. Tolle ossa cujuscumque animalis, quae per plateam inveneris, et combure, quae refrigerata minutatim tere, et tertiam partem cinerum ex phago commisce, et fac testas sicut in purificando argento superius diximus ; quas igne sive sole siccabis. Deinde aurum a cupro diligenter abrades, et ipsam rasuram complicabis in plumbo tenue percusso, atque una ex testis illis coram fornace prunis imposita, jam calefactam ipsam complicaturam plumbi cum rasura impones, et superjectis carbonibus conflabis. Cumque liquefactum fuerit, eo modo quo solet argentum purificari, interdum prunas amovendo et plumbum addendo, interdum retigendo et morose flando combures, donec cupro penitus absumpto, purum aurum appareat.*

Cette recette, bien que ne concernant pas l'argent, contient une précision importante sur le type de cendre utilisé pour confectionner la coupelle. Théophile préconise l'usage d'un mélange de cendres d'os animal et de cendres végétales de hêtre à raison de deux pour un. Les métaux à recycler sont ensuite disposés sur la sole et emplombés. L'opération s'achève lorsque la totalité du cuivre et du plomb est transformée en oxydes et absorbée par la cendre.

À la fin du XIII^e siècle, le procédé de coupellation est décrit parmi les techniques d'essai des minerais qui composent une partie de la *Summa perfectionis*, production alchimique attribuée au *pseudo-Geber* alias Paul de Tarente⁵⁷⁰. La recette de la coupellation donnée au chapitre 83 se distingue quelque peu de celles de Théophile, en particulier par la diversification des matériaux employés pour confectionner la sole. L'auteur désigne comme matières premières la cendre (*cinis*) – qu'il distingue de la poudre d'os d'animaux brûlés (*pulvis ossium animalium combustorum*) – ainsi que la chaux. Un mélange de ces trois ingrédients, ou de deux d'entre eux au choix, est ensuite humidifié et appliqué directement dans la structure de chauffe en veillant à bien le tasser. Cette précaution vise à éviter la formation de fissures au cours du séchage qui pourraient entraîner la coulée d'une partie du métal dans la sole. Contrairement à la recette de Théophile, l'emploi d'un récipient réfractaire dans lequel est moulée la sole n'est pas requis. Il faut en revanche veiller à ce que cette dernière adopte une géométrie particulière. Elle doit présenter une dépression en son centre

⁵⁷⁰ Newman W.R., *The Summa Perfectionis of Pseudo-Geber. A Critical Edition, Translation and Study*, E.J. Brill, Leyde, 1991. *Est igitur sola lunaris atque solaris substantia in cineritii perdurans examine ... Est igitur modus illius ut tollatur cinis cribellatus, aut calx, aut pulvis ossium animalium combustorum, aut horum omnium commixtio, aut quorundam. Dehinc itaque cum aqua madefiat, et super illud praematur manus, et fiat stratum firmum et solidum, et in medio strati fiat rotunda fovea solida et polita, et super illius foveae fundum spargatur vitri triti quantitas aliqua. Deinde vero exsiccari permittatur, et cum siccatum fuerit, ponatur illud, de cuius intentione sit tolerare examen, in foveam dictam, et super illam ignis fortis carbonum succendatur et super faciem examinabilis suffletur corporis, donec fundatur, quo fuso, Saturni partem post partem projiciamus in illud, et super illud suffletur cum flamma fortis ignitionis, et dum videris illud agitari et moveri motu concussionis forti, non est purum ; expecta igitur, donec totum evanescat plumbum, quod si evanuerit et non cessat illius motus, non est depuratum. Iterato igitur, super illud plumbum proice, et super illius faciem iterato plumbi proiectionem, et sutflationem, et illius taciem perquire quousque quiescat, et tu videas illud mundum et clarum in superficie sua. Post hoc vero carbones aperi et ignem dissipa, et in taciem ejus aquam perfunde, hoc enim perfecte examinatum invenies.*

(*fovea rotunda*) qui accueille du verre pilé (*vitri triti*). L'emploi de ce matériau fait écho aux recommandations de Théophile : il vise à éliminer plus facilement certains oxydes métalliques. Enfin, la recette de Paul de Tarente contient la plus ancienne description du phénomène de convection qui est produit à la surface du bain métallique par le gradient de tension superficielle entre les oxydes et les métaux : *et dum videris illud agitari et moveri motu concussionis forti, non est purum* (« quand tu verras qu'il est agité et remué d'un fort tremblement, il n'est pas pur ; donc attends jusqu'à ce que tout le plomb ait disparu »).

Les recettes de coupellation qui viennent d'être présentées décrivent toutes une opération conduite à petite échelle qui ne relève pas de la métallurgie extractive. L'argent et l'or évoqués par Théophile sont déjà produits et il s'agit de les purifier ou de les recycler. Dans la *Summa perfectionis*, la coupellation est envisagée comme une méthode qui permet d'éprouver la pureté des alliages.

Dans le cadre de la métallurgie extractive de l'argent, la coupellation est pratiquée à grande échelle à partir de plomb d'œuvre et dans des structures de chauffe spécifiques qui apparaissent dans l'iconographie à partir de la fin du XV^e siècle. Les représentations les plus précoces sont issues de Bohême et plus précisément d'un feuillet d'un graduel anonyme dont nous avons déjà souligné l'originalité et l'importance pour l'étude des techniques minières et métallurgiques mises en œuvre au crépuscule du Moyen Âge⁵⁷¹ (figure 144). La coupellation est conduite dans un foyer ouvert et surélevé qui est alimenté par des rondins de bois et activé par un couple de soufflets actionnés par l'énergie humaine. Une personne est chargée de l'évacuation de la litharge qui se fait par débordement.

À l'aube du XVI^e siècle, la technique de la coupellation employée pour traiter les minerais de La Croix-aux-Mines se donne à voir dans le graduel de Saint-Dié-des-Vosges (figure 144). Elle diffère sensiblement du procédé bohémien par l'existence

⁵⁷¹ *Supra* p. 262.

d'une coupole au-dessus de la sole qui permet de réfléchir la chaleur et de la concentrer. Le chauffage se fait au bois tandis qu'un orifice permet à l'opérateur de contrôler la progression de l'opération.



Figure 144 : Scène de coupellation dans un graduel anonyme, Bohême, fin du XV^e siècle (gauche). Représentation de la coupellation dans le graduel de la collégiale de Saint-Dié-des-Vosges, 1494-1515 (droite).

Il faut attendre les traités métallurgiques du XVI^e siècle pour trouver des descriptions détaillées du procédé de coupellation qui exposent tant les techniques de construction des fours que le déroulement de l'opération. Les ouvrages de Biringuccio (*De la pirotechnia*, 1540) et d'Agricola (*De re metallica*, 1556) sont les plus importants et réservent une large place à la coupellation. Dans le chapitre 6 du livre 3, Biringuccio distingue d'emblée deux échelles de coupellation – en fonction de la masse métallique à traiter – définies par la nature du contenant dans lequel se déroule la séparation des métaux : une coupelle (*copella*) ou une sole de coupellation (*cenneraccio*). Cette dernière est réservée aux opérations à grande échelle et sa confection fait l'objet du chapitre 7. Sa composition et son épaisseur dépendent du type d'alliage à coupeller : Biringuccio

recommande l'emploi d'un mélange de cendres lavées⁵⁷², de sable et de céramique pilée (brique ou tuile) qui doit être humidifié afin d'en faciliter la mise en œuvre. L'artisan doit veiller à ce que la cendre soit bien compactée afin de limiter les risques de fissuration lors du séchage.

Dans son traité, Biringuccio dresse une typologie des fours de coupellation qui se fonde sur ses souvenirs de voyage et sur la littérature métallurgique à laquelle il a eu accès. La pluralité des structures de chauffe témoigne de traditions techniques propres à chaque région minière et métallurgique. Les solutions élaborées pour extraire l'argent sont adaptées aux particularités des alliages coupelés (liées notamment à la nature des minerais traités), mais également aux contraintes matérielles (accès au combustible et à l'énergie hydraulique). Les différences entre ces fours reposent à la fois sur le mode de couverture de la sole et sur le type d'énergie utilisée pour actionner les soufflets. Lors de son voyage au Tyrol, Biringuccio rapporte avoir découvert dans les ateliers métallurgiques impériaux d'Innsbruck l'usage d'une coupole en briques qui ne contient pas d'ouverture dans sa partie supérieure (figure 145). Il décrit ensuite l'emploi d'une coupole en fer percée de trous pour l'évacuation des fumées qui lui semble être plus adaptée pour contenir la zone chaude et maintenir le bain liquide (figure 145). Une alternative consiste à utiliser des plaques de terre cuite ou encore à disposer des bûches de chêne au-dessus de la sole (figure 145).

⁵⁷² Pour C. S. Smith et M. T. Gnudi, *cennere di bucato* correspond au réemploi de la cendre de bois utilisée pour laver les vêtements. Dans ce cas, le lavage permet l'élimination des métaux alcalins : Smith C. S. et Gnudi M. T., *The Pirotechnia of Vanoccio Biringuccio*, Dover Publications, New York, 1990, p. 162.

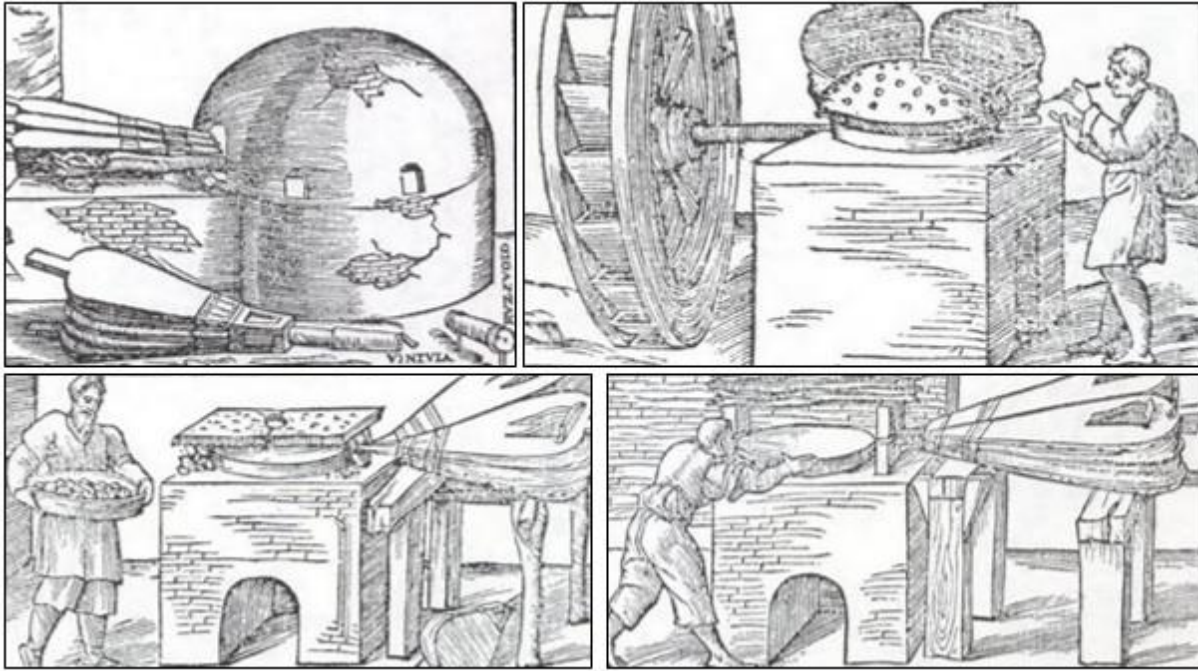


Figure 145 : Différents fours de coupellation décrits par Biringuccio. En haut à gauche : coupole en brique solidaire de la base du four (procédé tyrolien). En haut à droite : coupole en fer. En bas à gauche : couverture de la sole avec des plaques de terre cuite. En bas à droite : disposition de bûches de chêne au-dessus du foyer.

Dans le *De re metallica* d'Agricola, la coupellation occupe une partie du livre 10⁵⁷³. La description détaillée du four que propose l'auteur est accompagnée de gravures d'une très grande précision qui relèvent du dessin technique⁵⁷⁴. La base circulaire du four, montée en briques, reçoit une coupole composite dotée d'une structure métallique dont la partie interne est recouverte d'argile ; elle peut être manœuvrée au moyen d'un treuil et dispose d'ouvertures pour l'évacuation des fumées et de la litharge ainsi que pour l'alimentation en combustible et le contrôle visuel. La sole, confectionnée en cendres de bois lavées, s'appuie sur une couche d'argile. Le four est chauffé au bois et la ventilation est assurée par un couple de soufflets.

⁵⁷³ Hoover H. C. et Hoover L. H., *Georgius Agricola De re Metallica...*, *op. cit.*, p. 464-483.

⁵⁷⁴ Le four décrit par Agricola a fait l'objet d'une étude technique et d'une restitution qui ont permis de réaliser plusieurs coupellations d'alliages plomb-argent : Guirado M.-P., Téreygeol F. et Peyrat F., « Initial experiments on silver refining: how did a cupellation furnace work in the 16th century? », *Journal of the Historical Metallurgy Society*, 44(2), 2010, p. 126-135.



Figure 146 : Gravures tirées du *De re metallica* présentant le four de coupellation. À gauche, vue éclatée du four et détails des différents éléments. À droite, four en cours de fonctionnement.

À la fin du livre 10, Agricola consacre quelques paragraphes à la description d'autres fours de coupellation. Le premier dispose d'une coupole non amovible en briques similaire à celle présentée par Biringuccio ; il est utilisé dans les ateliers saxons de Freiberg, mais également en Hongrie et en Pologne avec toutefois quelques modifications, notamment l'aménagement d'une ouverture assez large qui donne accès à la sole et permet sa réfection. Enfin, en Moravie et en Carniole, la coupellation a lieu dans un foyer couvert de bois vert ou sec. La montée en température s'effectue en ventilation naturelle puis le foyer est attisé avec des soufflets. Ce dernier procédé se rapproche de celui représenté sur le graduel anonyme bohémien de la fin du XIV^e siècle, mais également sur des scènes du collier du maître des mines d'argent de Gand exécuté entre 1480 et 1520⁵⁷⁵.

⁵⁷⁵ Dorchy L., « The so-called "guild collar of the master of the silversmiths of Ghent". A unicum dedicated to silver ore mining and processing from Late Middle Ages », *In Smolnik R. (éd.), Archaeomontan 2012. Montanarchäologie im Osterzgebirge*, Landesamt für Archäologie Sachsen, Dresde, 2012, p. 279-288.

Les sources écrites et iconographiques que nous avons présentées illustrent la diversité des solutions techniques élaborées pour séparer les métaux par coupellation. Les structures de chauffe sont multiples ; certaines, très légères, s'apparentent plutôt à des foyers alors que d'autres sont dotées d'une superstructure massive dont la construction nécessite des moyens financiers et humains considérables. Les différences concernent également le type des matériaux employés pour confectionner la sole. Si la cendre est le constituant de base, son origine et les différents ajouts qu'elle peut recevoir sont multiples. Enfin, la gestion des sous-produits, en particulier la litharge, diffère selon l'époque et la région considérées : l'oxyde de plomb peut être complètement absorbé par la sole et/ou tiré hors de la structure de chauffe.

L'apport des sources écrites et iconographiques est donc précieux pour étudier les techniques métallurgiques médiévales car elles contribuent à une meilleure interprétation des vestiges archéologiques. Néanmoins, le corpus qui vient d'être présenté doit être utilisé avec discernement. Il souffre d'une faiblesse liée au hiatus chronologique qui existe entre la recette de coupellation à petite échelle du *pseudo-Geber* (fin du XIII^e siècle) et les productions iconographiques bohémiennes (fin du XV^e siècle) qui figurent pour la première fois la coupellation en grand⁵⁷⁶. De surcroît, les textes des XI^e et XIII^e siècle ne concernent pas la coupellation à grande échelle – pratiquée dans le cadre d'activités de métallurgie extractive –, mais plutôt un procédé conduit à petite échelle pour l'essai des minerais ou l'affinage de petites quantités d'argent. La situation des ateliers italiens ou saxons du XVI^e siècle est donc difficilement transposable à la vallée pyrénéenne du Garbet qui abrite au XIV^e siècle les ateliers de Castel-Minier.

⁵⁷⁶ Ce constat ne tient pas compte de la littérature scientifique arabe du Moyen Âge qui contient des recettes de coupellation : Moureau S. et Thomas N. « Understanding Texts with the Help of Experimentation: The Example of Cupellation in Arabic Scientific Literature », *Ambix*, 63(2), 2016, p. 98-117.

4.2.1.3.2. Apports des sources archéologiques et archéométriques

Les vestiges archéologiques de la coupellation conduite dans un cadre industriel⁵⁷⁷ sont rares pour la période médiévale. Ce constat découle d'une part du faible nombre de sites métallurgiques fouillés et d'autre part des difficultés d'identification posées par les vestiges de la coupellation. Ces derniers se partagent en deux catégories : la litharge – qui peut exister sous différentes formes – et les fragments de sole usagée (ou casses de coupellation).

Les casses de coupellation sont les indices les plus probants⁵⁷⁸ de l'activité éponyme, bien que difficiles à identifier. L'aspect terreux de ces artefacts pulvérulents ne les met pas en valeur et seule leur densité élevée, qui témoigne de la présence d'oxyde de plomb, indique au fouilleur non-initié sa particularité. Plusieurs sites miniers et métallurgiques médiévaux ont livré des casses de coupellation. Les recherches archéologiques entreprises dans le district carolingien de Melle ont permis de découvrir un rouleau de litharge ainsi qu'une casse de coupellation⁵⁷⁹. Dans les îles britanniques, de nombreuses casses de coupellation ont été mises au jour et plusieurs d'entre elles ont fait l'objet d'études archéométriques conduites par Justine Bayley à partir des années 1990. Les découvertes sont issues de sites voués à la production d'argent ou au recyclage de sous-produits ; elles couvrent une période qui s'étend du

⁵⁷⁷ Selon la définition donnée par Philippe Braunstein et Catherine Verna, l'industrie médiévale se distingue de l'artisanat par des volumes de production supérieurs, des produits de qualité constante et reconnus comme tels sur le marché : Braunstein P., « L'industrie à la fin du Moyen Âge... », *op. cit.* ; Verna C., « Innovations et métallurgies en Méditerranée... », *op. cit.*, p. 624.

⁵⁷⁸ Bien qu'elle provienne d'une opération de métallurgie extractive, la litharge découverte sur un site archéologique n'indique pas nécessairement une production endogène. L'exportation de litharge et son utilisation pour les besoins des ateliers de verriers et de potiers voire pour des applications cosmétiques est courante : *infra* p. 522.

⁵⁷⁹ Téreygeol F., « La métallurgie du plomb et de l'argent entre Melle et Jabali », In Téreygeol F. (éd.), *Du monde franc aux califats omeyyade et abbasside : extraction et produits des mines d'argent de Melle et de Jabali*, Deutschen Bergbau-Museum, Bochum, 2014, p. 133-166 ; Téreygeol F., *Les mines d'argent carolingiennes de Melle... op. cit.*, annexe 17, p. 587-592.

milieu de la période saxonne (VIII^e siècle) jusqu'au XIV^e siècle⁵⁸⁰. Ce mobilier a donné lieu à des premières analyses par MEB-EDX qui ont été poursuivies grâce à de nouvelles trouvailles ou à la redécouverte d'échantillons anciens⁵⁸¹. L'étude de sections polies de casses de coupellation a permis d'identifier le type de cendre employée pour confectionner la sole : dans la plupart des cas, il s'agit de cendres d'os ou d'un mélange avec des cendres végétales et/ou un matériau argileux (marne). L'observation microscopique a en outre permis de révéler la présence de billes métalliques à la surface des casses de coupellation qui se composent d'argent entouré d'oxydes de cuivre et de plomb. De surcroît, les analyses élémentaires globales des casses permettent d'apprécier l'efficacité du procédé qui doit en théorie se traduire par l'absence d'argent. Dans certains cas, ce métal a été détecté, en particulier dans les casses présentant de fortes teneurs en oxyde de cuivre. La perte d'argent découle d'un ajout insuffisant de plomb qui n'a pas permis la formation du composé intermétallique $PbO.Cu_2O$, mais seulement de Cu_2O qui peut dissoudre une quantité importante d'argent avant d'être absorbé par la cendre⁵⁸².

Plus récemment, une étude archéométrique d'envergure s'est intéressée à 45 casses de coupellation issues de douze sites archéologiques répartis sur les îles britanniques et qui couvrent une période s'étendant du I^{er} siècle av. J.-C. au XIV^e siècle⁵⁸³. Les résultats des analyses élémentaires conduites sur les exemplaires médiévaux (IX^e-XIV^e siècle) ont mis en évidence l'usage exclusif de cendres végétales mélangées à de l'argile.

⁵⁸⁰ Bayley J. et Eckstein K., « Silver Refining - Production, Recycling, Assaying », *Archaeological Sciences: Proceedings of a conference on the application of scientific techniques to the study of archaeology*, Liverpool, juillet 1995, Sinclair A., Slater E. et Gowlett J. (éd.), Oxbow Monograph 64, Oxford, 1997, p. 107-111.

⁵⁸¹ Bayley J. et Eckstein K., « Roman and medieval litharge cakes structure and composition », *34th International Symposium on Archaeometry, Zaragoza, 3-7 mai 2004*, Pérez-Arantegui J. (éd.), Institución "Fernando el Católico", Zaragoza, 2006, p. 145-153.

⁵⁸² Bayley J. et Eckstein K., « Roman and medieval litharge cake... », *op. cit.*, p. 152.

⁵⁸³ Girbal B., 2011, *Roman and medieval litharge cakes : a scientific examination*, English Heritage: Research Department Report Series, Portsmouth, 2011.

Dans les régions de tradition germanique, la coupellation est documentée archéologiquement dans le district du Harz, en particulier sur le site de Johanneser Kurhaus qui a livré un fragment de sole usagée⁵⁸⁴. L'étude archéométrique réalisée par Thilo Rehren et Lothar Klappauf a démontré l'usage d'un mélange de cendres végétales et d'un liant argileux pour confectionner la sole⁵⁸⁵. La coupellation était pratiquée sur du plomb d'œuvre produit à partir de galène argentifère. Dans les Monts de Bohême-Moravie (sites de Cvilínek et de Jihlava) et dans les monts Métallifères de Saxe (site de Dippoldiswalde) les recherches archéologiques récentes sur des sites miniers et métallurgiques actifs dans la seconde moitié du XIII^e siècle ont livré un corpus de cinq casses de coupellation⁵⁸⁶. Les analyses élémentaires effectuées sur les exemplaires du site de Dippoldiswalde suggèrent l'emploi d'un mélange de cendres et peut-être d'un liant argileux⁵⁸⁷.

Signalons enfin l'unique casse de coupellation exhumée lors des fouilles de l'atelier monétaire de La Rochelle⁵⁸⁸. Cet individu dépasse quelque peu notre cadre d'étude par sa datation et son contexte de découverte. Il s'inscrit en effet dans une phase d'activité qui s'étend de la seconde moitié du XV^e siècle au début du XVI^e siècle. L'atelier disposait d'un four de coupellation, dont la sole était composée majoritairement de cendres d'os, destiné au traitement d'alliages cuivre-argent.

Nous avons déjà insisté sur la rareté des structures de chauffe consacrées à la coupellation et découvertes en contexte archéologique. Les traces qu'elles ont laissées

⁵⁸⁴ Bartels Ch., Fessner M., Klappauf L. et Friedrich A. L., *Kupfer, Blei und Silber aus dem Goslarer Rammelsberg von den Anfängen bis 1620*, 2007, Deutsches Bergbau-Museum, Bochum, p. 179.

⁵⁸⁵ Rehren T. et Klappauf L., « Ut oleum aquis, Vom Schwimmen des Silbers auf Bleiglätte », *Metalla*, 2, 1995, p. 19-28.

⁵⁸⁶ Derner K., Hrubý P. et Schubert M., « Mittelalterliche Silberproduktion im wettinischen und premyslidischen Regierungsraum: Neue archäologische Untersuchungen », *Der Anschnitt*, 68, 2016, p. 233.

⁵⁸⁷ Hrubý P., Malý K. et Schubert M., « Metallurgische Funde aus der Bergbausiedlung in Dippoldiswalde – Roter Hirsch », In Smolnik R. (éd.), *ArchaeoMontan 2015. Montanarchäologie im Osterzgebirge*, Landesamt für Archäologie Sachsen, Dresden, 2015, p. 248.

⁵⁸⁸ Guirado M.-P. et Téreygeol F., « La casse d'un four d'affinage », In Mille P. et Téreygeol F. (éd.), *L'Atelier monétaire royal de La Rochelle*, Presses Universitaires de Rennes, Rennes, 2011, p. 99-101.

sont relativement discrètes. L'exemple le plus probant, bien qu'antérieur à la période médiévale, provient de l'atelier lydien de Sardes dont l'activité concerne le retraitement d'anciennes monnaies et/ou objets en électrum dans la première moitié du IV^e siècle av. J.-C.⁵⁸⁹. Plusieurs foyers de coupellation disposés à même le sol ainsi que des fragments de soles usagées ont été découverts (figure 147). Le nombre et la disposition des foyers suggèrent une utilisation limitée (peut-être unique) de ces structures légères. Aucun élément archéologique ne permet de discuter l'existence d'un système de ventilation et/ou de couverture du foyer.

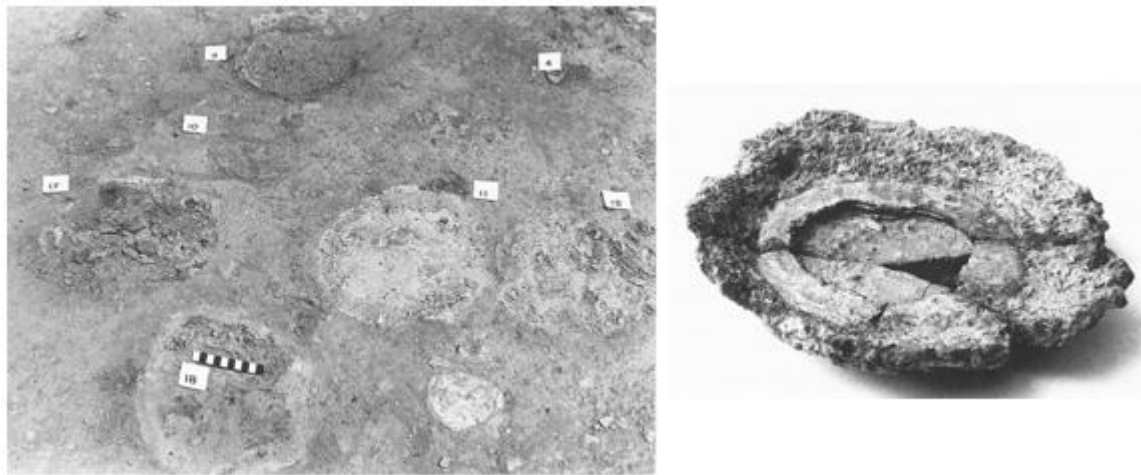


Figure 147 : Soles de coupellation dans l'atelier de Sardes (gauche) et casse de coupellation (droite ; diamètre : 15 cm). D'après Ramage A. et Craddock P.T., *King Croesus' gold: Excavations at Sardis and the History of Gold Refining: Archaeological Exploration of Sardis*, British Museum Press, Cambridge, 2000, p. 80 et 90.

Pour ce qui concerne la période médiévale, les structures de chauffe de coupellation sont très peu connues. Un probable four a été mis au jour en 1935 sur l'île de Man dans un atelier métallurgique du site de Bakenaldwath daté du milieu du

⁵⁸⁹ Sur l'atelier de Sardes, voir la synthèse de Ramage et Craddock : Ramage A. et Craddock P. T., *King Croesus' gold: Excavations at Sardis and the History of Gold Refining: Archaeological Exploration of Sardis*, British Museum Press, Cambridge, 2000, p. 80 et 90. Voir également la mise au point récente de Crawford H., Greenewalt J. et Cahill N., *Gold and silver refining at Sardis*, document en ligne, consulté le 12 juillet 2017, [http://www.sardisexpedition.org/en/essays/latw-greenewalt-gold-silver-refining#note_6].

XIII^e siècle⁵⁹⁰ (figure 148). Il se compose d'une sole et d'un tunnel initialement voûté en pierres calcaires qui assurait le tirage. Plusieurs fosses de stockage ont été aménagées dans le bâtiment. Trois, situées au nord, contenaient des ossements, des charbons et des fragments de galène tandis que celles du sud-est ont livré des matériaux argileux. L'interprétation fonctionnelle de l'atelier donnée par Ian Blanchard est sujette à discussion⁵⁹¹. Elle repose en partie sur les données archéologiques, mais également sur une source écrite découplée spatialement et chronologiquement de l'atelier de l'île de Man puisqu'il s'agit d'un compte-rendu rédigé en 1195 par les « gardiens » chargés de veiller sur les intérêts miniers de l'évêché de Durham durant la vacance du siège. Ce texte éclaire certains aspects techniques et financiers de l'entreprise minière et métallurgique épiscopale. À la lumière de ces données, Blanchard avance que le four de Bakenaldwarth assure toutes les étapes de la chaîne opératoire de l'argent en accueillant successivement la transformation de la galène et la coupellation du plomb d'œuvre. La sole devait donc être refaite entre chaque opération – avec un matériau et selon une géométrie différents – et une coupole en argile venait la coiffer durant la coupellation. L'absence de scories et de plomb métallique dans l'atelier fait douter de la réalité de la pratique de la réduction de la galène dans cet espace. Surtout, l'usage d'une même structure pour l'ensemble de la chaîne opératoire présente peu d'intérêt : d'une part la sole doit être entièrement renouvelée entre chaque opération et d'autre part l'indisponibilité du four pendant la réduction ne permet pas de produire l'argent, et vice-versa.

⁵⁹⁰ Megaw B., « 'Bakenaldwath' and the Medieval Lead Mines », *The Journal of the Manx Museum*, VI, 77, 1960, p. 105-107.

⁵⁹¹ Blanchard I., « Technical Implications of the Transition From Silver to Lead Smelting in the Twelfth-Century England », *Boles and Smelting Mills, Actes du colloque the History and Archaeology of lead Smelting, Reeth, 15-17 mai 1992*, Willies L. et Cranstone D. (éd.), Historical Metallurgy Society, 1992, p. 9-11.

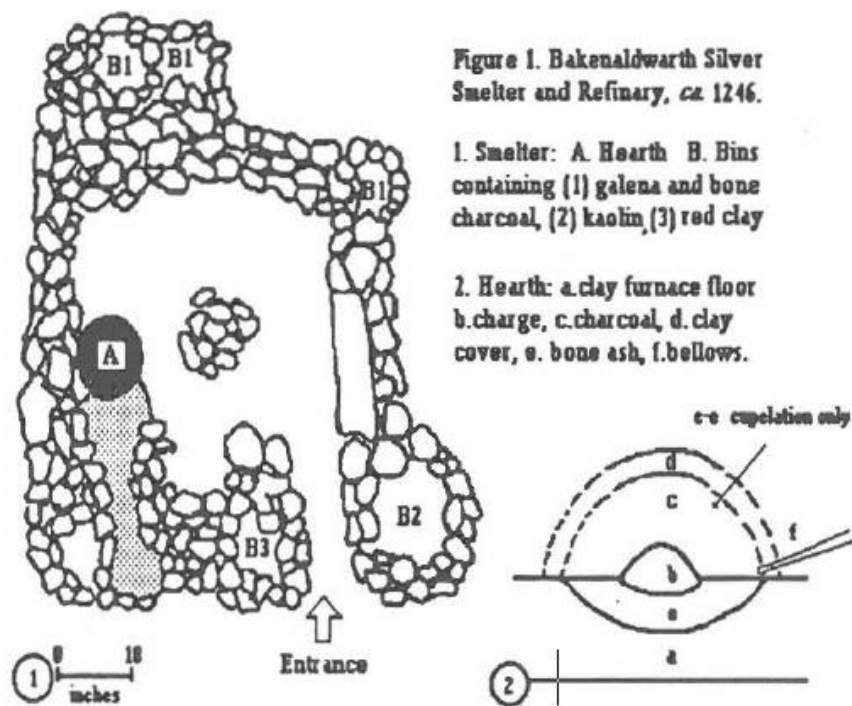


Figure 148 : Atelier métallurgique de Bakenaldwarth (île de Man). D'après Blanchard I. « Technical Implications of the Transition from Silver... », *op. cit.*, p. 10. Initialement publié dans Megaw B., « 'Bakenaldwarth' and the Medieval... », *op. cit.*, p. 106.

4.2.2. Les casses de coupellation de Castel-Minier : étude du corpus

4.2.2.1. Aspect et morphologie des artefacts

Le corpus de casses de coupellation qui s'est constitué au fur et à mesure des campagnes de fouilles archéologiques regroupe à ce jour 94 fragments représentant une masse totale de 5,7 kg. Il s'agit du plus important ensemble connu pour l'Europe médiévale (en termes de masse et de nombre d'individus). Tous les artefacts sont issus de contextes archéologiques qui s'échelonnent de la fin du XIII^e siècle au milieu du XV^e siècle. Les casses de coupellation se caractérisent par un aspect terreux et des couleurs variées qui forment un nuancier de gris. Ces sous-produits fragiles et pulvérulents doivent être manipulés avec soin. Le principal critère d'identification des casses de coupellation est leur densité dont la valeur élevée s'apprécie qualitativement en les soupesant. Cette particularité découle de la présence des oxydes de plomb

absorbés par la sole au cours de la coupellation. Dans certains cas, des altérations rouges ou jaunes de la surface des artefacts permettent de compléter cette appréciation par un examen visuel. Cette caractéristique colorimétrique traduit la présence de litharge ou de massicot⁵⁹². En revanche, les oxydes de cuivre n'ont pas été détectés visuellement ce qui indique la coupellation de plombs argentifères aux teneurs en cuivre faibles.

La morphologie des casses de coupellation apporte des informations sur la géométrie de la sole et les aménagements qu'elle a reçus. Tout d'abord, les individus les plus grands présentent fréquemment une dépression dans leur partie centrale dont les origines sont multiples (figure 149). Cet espace semble être volontairement façonné par les métallurgistes afin de faciliter la concentration de l'argent à mesure que le plomb s'oxyde et est absorbé par la sole. L'adoption d'un tel dispositif est d'ailleurs préconisée par Biringuccio dans son traité : « il faut donner une forme dans le milieu [de la sole] afin qu'elle soit semblable à un plateau⁵⁹³ ». Si elle existe dès l'origine, la dépression centrale est accentuée durant la coupellation. Les expérimentations ont en effet montré la tendance du bain métallique à « ronger » la sole⁵⁹⁴.

⁵⁹² La litharge et le massicot sont deux polymorphes du monoxyde de plomb. La litharge est rouge alors que le massicot est jaune. La formation de l'un ou l'autre de ces produits dépend de la température. En particulier, le massicot se forme au-dessus de 600 °C.

⁵⁹³ Smith C. S. et Gnudi M. T., *The Pirotechnia of Vanoccio Biringuccio...*, *op. cit.*, p. 162.

⁵⁹⁴ Téreygeol F., Gauthier J. et Cruz P., « La coupellation à la cendre de bois », *In* Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2013, p. 55-66.

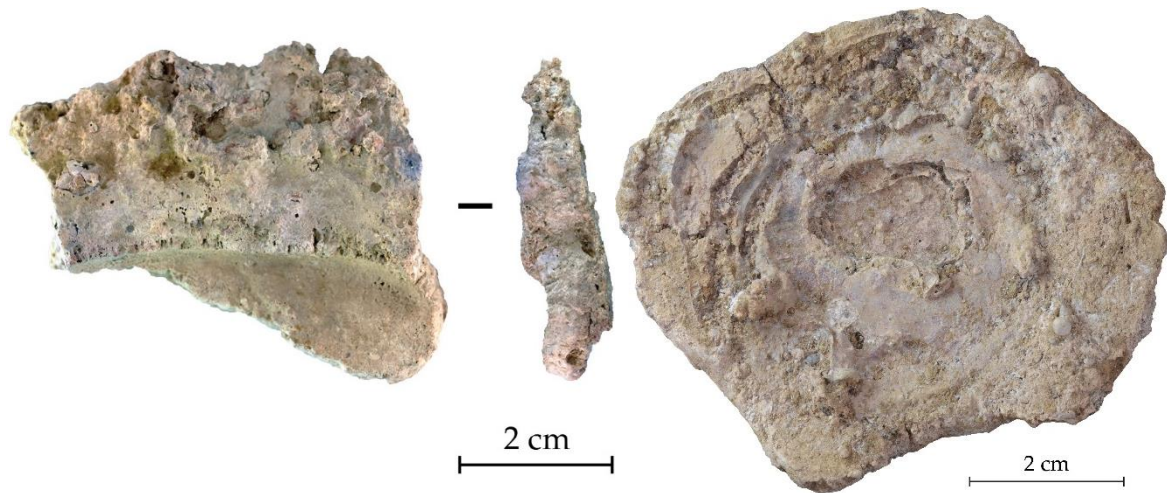


Figure 149 : Casse de coupellation CL 11227 vue du dessous et de côté (gauche) et casse CL 13130 (droite).
Clichés : J.-C. Méaudre.

La géométrie initiale de la sole, en particulier son diamètre, peut être en partie restituée pour les casses de coupellation de grande dimension (qui représentent 20 % des individus du corpus) (figure 150). Il s'agit néanmoins d'une approximation qui a tendance à sous-estimer le diamètre réel. En effet, la conservation des soles usagées n'est permise que par la présence d'oxyde de plomb qui agit comme un liant et maintient la cohésion de l'ensemble. Les portions de sole vierges se sont quant à elle délitées lors du prélèvement de la sole usagée.

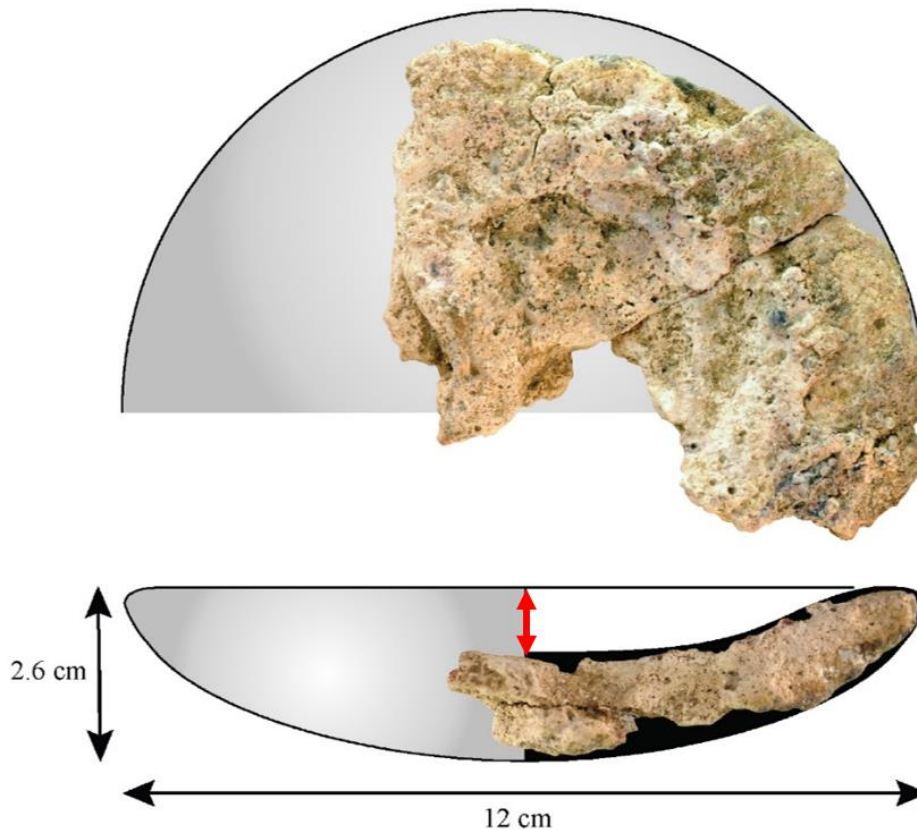


Figure 150 : Casse de coupellation CL 11251 vue du dessus et de côté. Restitution du diamètre initial de la sole. La flèche rouge représente l'épaisseur utile. Clichés et dessins : J.-C. Méaudre.

La détermination des diamètres des soles met en évidence une grande diversité avec des valeurs comprises entre 9 et 31 cm. Ce constat peut témoigner de la réalisation délibérée de soles de géométrie variable, adaptées à l'échelle de la coupellation. Le second paramètre géométrique à prendre en compte pour caractériser les modalités de la coupellation est l'épaisseur utile de la sole qui correspond à la hauteur entre le fond de la casse et le rebord (trait rouge sur la figure 150). Finalement, la combinaison de l'épaisseur utile et du diamètre permet de calculer le volume utile de la sole (assimilé au volume d'un segment sphérique), mais également la masse de plomb d'œuvre qu'elle pouvait accueillir (figure 151). Ce dernier paramètre permet de caractériser deux classes de soles de coupellation. La première regroupe des individus destinés à des opérations de séparation des métaux conduites à des échelles moyennes voire réduites avec des masses de plomb d'œuvre traitées comprises entre 300 g et 3,6 kg. La

seconde classe est composée de soles de grand volume utile qui ont la capacité d'accueillir des masses de plomb d'œuvre comprises entre 7,6 et 8,6 kg.

L'existence de plusieurs classes de soles de coupellation démontre la pratique de cette opération métallurgique à des échelles multiples qui peuvent correspondre à différentes étapes de la chaîne opératoire. Ainsi, les soles de grandes dimensions sont adaptées au traitement de quantités de plomb d'œuvre importantes. En revanche, les soles de petites dimensions sont plutôt réservées aux opérations à échelle réduite, plus délicates et plus sensibles, telles que l'affinage de l'argent. Ces hypothèses sont discutées plus loin⁵⁹⁵. Enfin, l'analyse spatiale du mobilier ne permet pas d'établir une corrélation entre les dimensions des soles et les ateliers fouillés à l'exception du Plat-du-Roi dans lequel les individus de grand volume sont absents (figure 151).

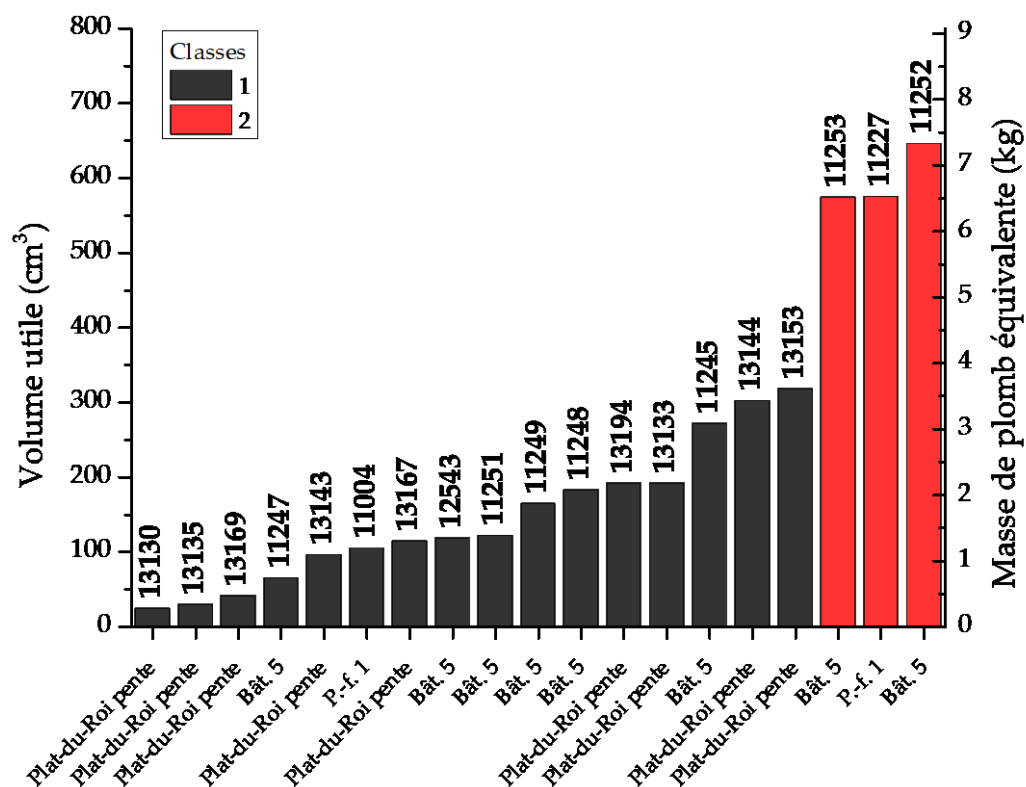


Figure 151 : Volume utile des casses de coupellation et calcul de la masse de plomb d'œuvre qu'elles pouvaient accueillir. Le code laboratoire de chaque individu figure en haut des colonnes tandis que la structure dont il provient est reportée au bas. Les classes sont individualisées par un code couleur.

⁵⁹⁵ *Infra* p. 525.

L'originalité du corpus de casse de coupellation de Castel-Minier réside dans la présence de nombreuses billes métalliques piégées en surface. Ainsi, 24 individus du corpus (soit environ 30 %) contiennent des billes de diamètre millimétrique. Elles sont brillantes et facilement observables à l'œil nu. Leur couleur couvre différents tons de blanc ce qui indique la présence d'argent en quantités plus ou moins importantes. La présence de métal sur les casses de coupellation a été rarement rapportée dans les études consacrées à ce mobilier métallurgique⁵⁹⁶. Le corpus de Castel-Minier offre donc l'occasion de s'intéresser non seulement à la nature du matériau employé pour concevoir la sole de coupellation, mais également aux modalités techniques de l'extraction de l'argent. L'analyse élémentaire des billes métalliques est possible grâce à une méthode d'analyse adaptée développée à l'IRAMAT-CEB. Les résultats permettent d'étudier d'une part la qualité du plomb d'œuvre traité et de l'argent produit et d'autre part, en s'intéressant à la distribution des compositions élémentaires à la surface des casses, les paramètres thermodynamiques de la réaction et le comportement des éléments chimiques.

4.2.2.2. Spatialisation du mobilier

Les casses de coupellation de Castel-Minier ont été découvertes dans l'ensemble des espaces fouillés appartenant à la période comprise entre la fin du XIII^e siècle et le milieu du XV^e siècle (figure 152). Hormis un dépôt intentionnellement remisé dans le bâtiment 5, les individus étaient en position de rejet. Ces faits archéologiques sont intéressants puisqu'ils indiquent qu'une partie des casses de coupellation subissait vraisemblablement un recyclage. L'autre partie quittait, semble-t-il, définitivement la chaîne opératoire et ne faisait pas l'objet d'une valorisation ce qui est d'autant plus

⁵⁹⁶ À l'exception notable de Bayley J. et Eckstein K., « Roman and medieval litharge cakes... », *op. cit.*, p. 149 et suivantes.

étonnant que bon nombre des individus contiennent en surface des billes métalliques dont les Anciens n'ont pas jugé la récupération rentable.

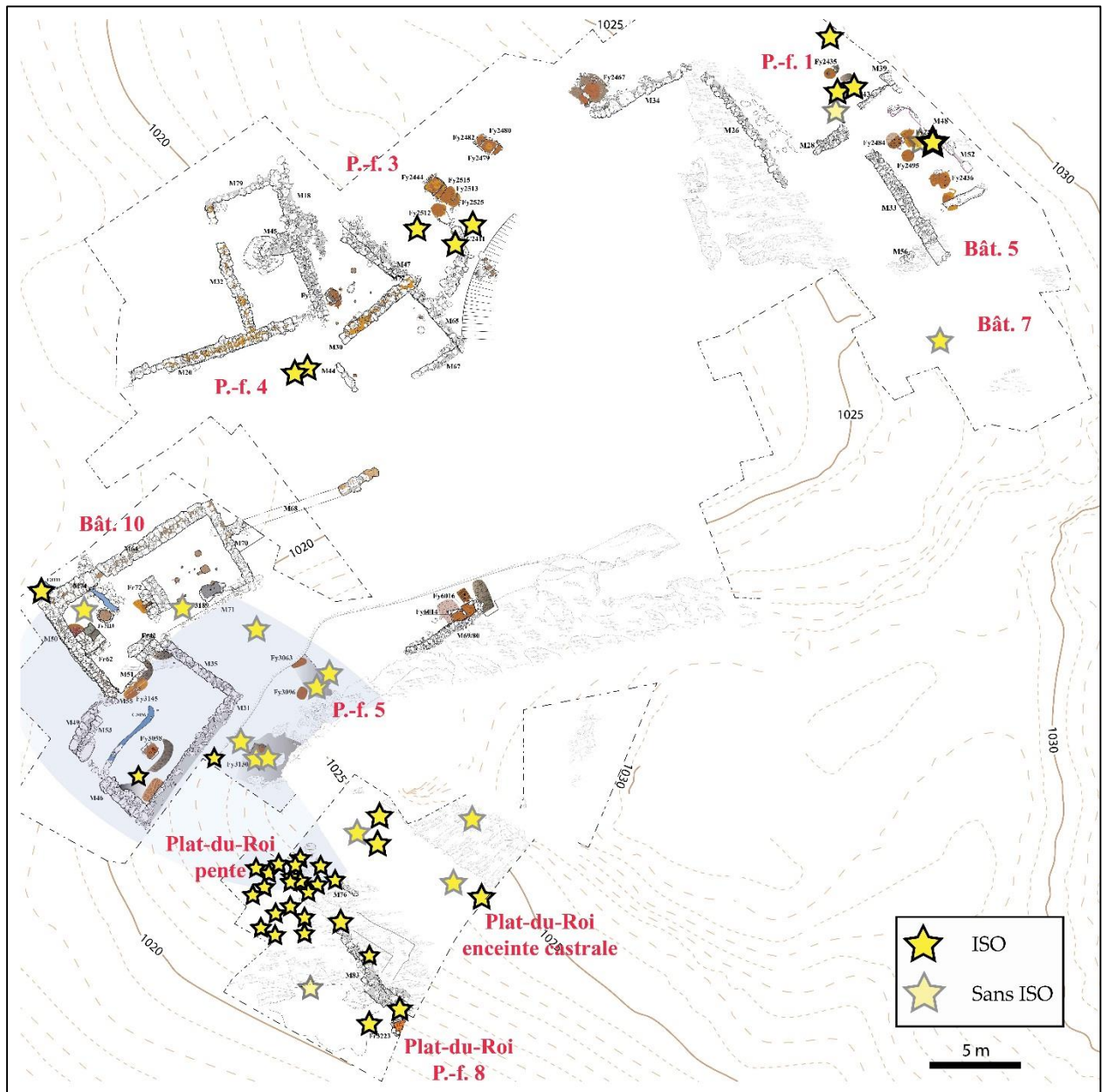


Figure 152 : Localisation des casses de coupellation dans les espaces fouillés.

La distribution spatiale des casses de coupellation met en lumière deux zones privilégiées dans lesquelles ce mobilier a été découvert en quantités importantes tant par le nombre d'individus que par la masse qu'ils représentent (figure 152 et figure 153). Il s'agit de la zone du Plat-du-Roi et de la partie septentrionale du site sur

lesquelles prennent place la plate-forme 1 et le bâtiment 5. La concentration de fragments de soles usagées dans ces espaces suggère que l'opération de séparation du plomb et de l'argent s'y déroulait. En effet, dans l'optique du non-recyclage de ces sous-produits, leur rejet à proximité immédiate des structures de chauffe est la solution la plus simple.

La spatialisation des étapes de la chaîne opératoire de l'argent est notable, en particulier dans la partie méridionale du site. La rareté des casses de coupellation dans le bâtiment 10 tend à démontrer que cet espace est entièrement dévolu à la transformation de la galène pour produire du plomb d'œuvre. Ce produit intermédiaire est ensuite acheminé vers la Plat-du-Roi (ou le bâtiment 5) afin d'en extraire l'argent. Le confinement de l'opération sensible et stratégique de la coupellation sur le Plat-du-Roi découle peut-être de la volonté des ayants droit de la mine, parmi lesquels figure le vicomte de Couserans, de contrôler la production de l'argent. Bien que l'issue du procès qui oppose le vicomte aux exploitants de la mine ne soit pas connue, il coïncide avec l'érection du *castrum* dans la seconde moitié du XIV^e siècle. Si le vicomte a retrouvé la jouissance de ses droits, ce ne fut pas sans difficulté⁵⁹⁷ et il est possible que la volonté de les affirmer se soit manifestée à travers cette réalisation architecturale. Le château a pu abriter les opérations de coupellation afin d'assurer un meilleur contrôle et éviter que le vicomte ne soit lésé. Cette hypothèse n'est en tout cas pas infirmée par le récit de Jean de Malus qui en 1600 décrit avec précision le site de Castel-Minier, en particulier le château dans lequel est installée l'affinerie : « du costé de la plus grande montagne y a une vieille porte par laquelle on entroit dans la grande fonte, où l'on fondoit l'or et l'argent⁵⁹⁸ ».

⁵⁹⁷ *Supra* p. 103.

⁵⁹⁸ Dupuy J. *La recherche et découverte des mines...*, *op. cit.*, p. 127.

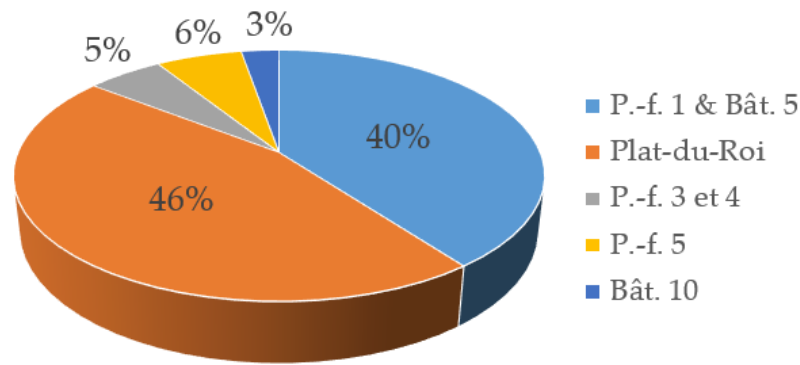


Figure 153 : Proportion de la masse totale du corpus de casses de coupellation dans les espaces fouillés.

4.2.2.3. Matériaux et mise en forme des soles

Nous avons présenté ci-dessus l'état des recherches archéométriques sur les casses de coupellation et en particulier les nombreuses analyses élémentaires conduites dans le but de déterminer la nature du matériau employé pour concevoir les soles. Comme le suggérait l'étude des sources écrites, les solutions mises en œuvre par les Anciens sont multiples avec l'utilisation de cendres de différentes origines (animales ou végétales) et de divers additifs tels que des argiles ou des marnes. La méthodologie la plus communément employée pour caractériser les casses de coupellation repose sur l'analyse élémentaire MEB-EDX et sur une transformation des données dont la méthode a été proposée par Martín-Torres *et al.*⁵⁹⁹. Elle consiste à déterminer la proportion des différents oxydes puis à éliminer ceux qui proviennent de l'alliage coupellé, c'est-à-dire essentiellement les oxydes de plomb et éventuellement de cuivre. La composition chimique est alors renormalisée à 100 %.

Les casses de coupellation de Castel-Minier ont déjà fait l'objet d'une étude archéométrique dans le cadre du mémoire de recherche de Francesca Silenzi dont nous

⁵⁹⁹ Martín-Torres M., Thomas N., Rehren T. et Mongiatti A., « Some problems and potentials of the study of cupellation remains the case of post-medieval Montbéliard France », *Archéosciences*, 32, 2008, p. 59-70.

allons présenter les travaux⁶⁰⁰. Nos recherches sur les cendres s'appuient sur ses résultats et les prolongent grâce à la collecte de nouvelles données et aux acquis de plusieurs campagnes d'expérimentation. Le corpus analysé se compose de quatorze casses de coupellation sélectionnées d'une part par pour leur bon état de conservation et d'autre part selon leur localisation sur le site de manière à couvrir la plus grande partie des espaces fouillés. Elles ont été mises en résine et polies afin de permettre les observations microscopiques et les analyses élémentaires semi-quantitatives par MEB-EDX.

CL	Na ₂ O (%)	MgO (%)	Al ₂ O ₃ (%)	SiO ₂ (%)	P ₂ O ₅ (%)	K ₂ O (%)	CaO (%)	FeO (%)	Cu ₂ O (%)	PbO (%)
10841*	-	1,2	4,5	10,1	1,5	1,2	4,2	-	-	80,1
11004*	-	1,6	2,6	6,4	2,1	-	1,9	-	-	85,4
11245*	1,0	2,2	5,1	11,3	1,4	-	5,4	-	-	73,7
11251*	1,2	2,4	4,6	10,6	1,8	1,2	4,1	-	-	74,1
11252*	-	1,4	3,8	9,2	1,1	-	4,2	-	-	80,2
11253*	-	1,5	3,6	9,4	0,7	-	5,0	-	-	79,9
11546*	1,2	2,4	5,8	12,5	2,0	2,9	5,6	0,6	-	67,0
11229/2*	-	1,2	1,8	8,5	0,8	-	4,1	-	-	80,9
11410*	-	1,0	1,0	3,3	1,1	-	1,4	-	-	87,1
11511/1*	1,3	1,7	1,2	4,8	1,5	-	1,6	-	-	76,3
12113*	-	1,6	2,0	7,6	1,3	-	3,4	-	0,5	76,8
11957*	-	-	1,3	4,7	1,4	-	3,3	-	-	79,7
13197/1	-	2,0	2,7	9,2	1,4	1,0	6,6	-	-	77,2
13198/1	-	1,8	2,4	6,6	-	1,3	6,6	-	-	81,3

Tableau 31 : Résultats des analyses globales par MEB-EDX des casses de coupellation de Castel-Minier. Les individus suivis d'un astérisque ont été analysés par F. Silenzi (2014). L'argent faisait partie des éléments mesurés, mais n'a jamais été détecté.

Avant de discuter la nature du matériau employé pour confectionner la sole de coupellation, il convient de présenter les résultats des observations microscopiques et des analyses élémentaires. Pour chaque casse, ces dernières ont été réalisées par MEB-EDX sur trois zones d'environ 5 cm² puis la moyenne a été calculée. Les compositions

⁶⁰⁰ Silenzi F., *Analyses des cendres d'affinage de l'argent : caractérisation élémentaire et structurale de casses de coupellation issues de Castel-Minier (XIV^e-XV^e siècle)*, Mémoire de Master 2 MPCA, Université de Bordeaux Montaigne, 2015.

élémentaires semi-quantitatives obtenues permettent tout d'abord d'identifier la nature des alliages coupellés. Les casses de coupellation sont composées en majorité d'oxydes de plomb (tableau 31). À l'exception d'un individu, le cuivre n'a jamais été détecté, ce qui corrobore les observations macroscopiques de la surface des casses et confirme l'hypothèse du traitement de plombs d'œuvre issus de galènes argentifères. En outre, l'absence d'argent permet de discuter l'efficacité du procédé. La probabilité de perdre le métal blanc lors de la coupellation est augmentée par la présence de cuivre dans l'alliage à traiter. L'oxyde formé (Cu_2O) peut en effet dissoudre une quantité importante d'argent⁶⁰¹. Ce risque est inexistant à Castel-Minier vues les faibles teneurs en cuivre des plombs d'œuvre. Les pertes d'argent se produisent donc uniquement par piégeage de billes métalliques dans les fissures de la sole. Hormis les oxydes de plomb qui résultent de la coupellation, les principaux constituants des casses de coupellation sont la silice, l'alumine et la chaux.

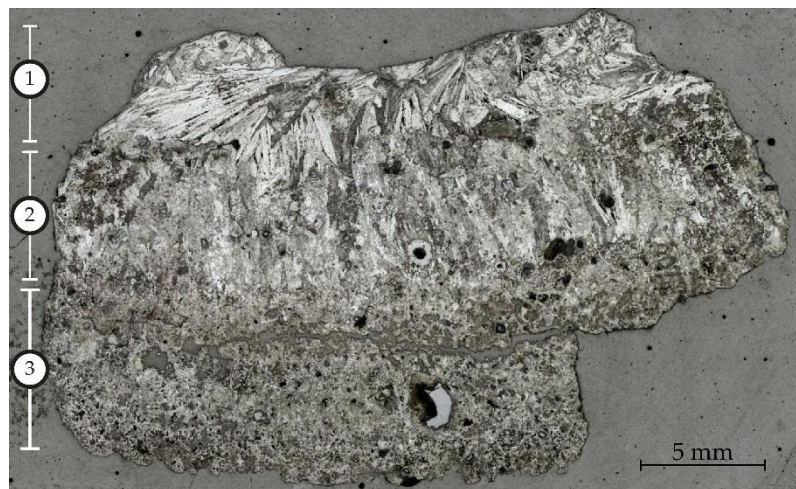


Figure 154 : Section polie de la casse de coupellation CL 11410. Identification de la stratification.

L'observation des coupes met en évidence la structure hétérogène des casses de coupellation et une stratification de la litharge (figure 154). Les résultats des analyses ont permis de caractériser un gradient de concentration en oxydes de plomb depuis la surface jusqu'au fond de la casse. Ainsi la litharge et parfois le massicot dominant à

⁶⁰¹ *Supra* p. 459.

proximité de la surface libre : elle forme de longs cristaux allongés en forme de lattes (zone 1, tableau 32 et figure 154). Dans cette zone, la teneur globale en oxydes de plomb varie entre 81,0 et 97,0 %. À mesure que l'on s'éloigne de la surface, cette proportion diminue (elle est comprise entre 44 et 74 %) au profit de la silice et de la chaux et parfois des oxydes de fer substitués à cette dernière (zone 2, tableau 32 et figure 154). Les minéraux formés sont des silicates de calcium (CaSiO_3) et des silicates de plomb ($\text{CaPb}_2\text{SiO}_5$) pris dans une matrice amorphe de litharge⁶⁰². La partie basse de la casse de coupellation, c'est-à-dire celle qui est la plus éloignée de la surface et donc de l'opération métallurgique, se distingue par des teneurs réduites en oxydes de plomb (inférieures à 28,3 %) et par une structure complexe et très hétérogène (zone 3, tableau 32 et figure 154). Cette zone se compose d'aluminosilicates de potassium (kaliophilite et feldspath potassique) et parfois d'aluminosilicates de sodium (albite)⁶⁰³. La monticellite a également été détectée ainsi que des grains de quartz (tableau 32).

Zone	Minéral	Na ₂ O (%)	MgO (%)	Al ₂ O ₃ (%)	SiO ₂ (%)	P ₂ O ₅ (%)	K ₂ O (%)	CaO (%)	TiO ₂ (%)	Cu ₂ O (%)	FeO (%)	PbO (%)
1	Litharge	1,3	1,4	1,4	2,7	1,6	-	0,5	-	-	-	91,1
	Silicate de Pb et Ca	1,0	1,3	1,9	18,1	3,5	-	9,9	0,7	1,5	-	62,1
2	Silicate de Pb et Fe	-	-	4,2	20,6	1,3	-	0,5	1,1	2,0	20,8	49,5
	Kaliophilite	1,6	1,1	31,9	36,9	-	23,2	-	-	-	-	5,4
3	K-feldspath	1,5	1,7	25,5	49,2	0,8	15,7	0,4	-	-	1,6	3,5
	Monticellite	1,1	22,5	3,3	36,3	0,8	-	30,3	-	-	0,9	4,8
	Albite	9,3	0,8	21,8	63,3	1,0	-	1,9	-	-	-	1,1

Tableau 32 : Composition moyenne des différentes zones des casses de coupellation analysées par MEB-EDX. Données d'après Silenzi (2014) et nos propres mesures.

Les enseignements tirés des analyses élémentaires sont multiples et permettent de construire une première hypothèse sur la nature des matériaux employés pour concevoir les soles de coupellation. Après l'élimination des oxydes de plomb et de

⁶⁰² Silenzi F., *Analyses des cendres d'affinage de l'argent...*, op. cit., p. 41 et suivantes.

⁶⁰³ *Ibidem* p. 44 et suivantes.

cuire et la renormalisation des compositions chimiques globales (tableau 33), on constate la faible part de l'oxyde de phosphore qui permet d'écarter l'usage exclusif de cendres d'os pour concevoir les soles de coupellation. En effet, la cendre d'os se singularise par la présence des deux constituants majeurs que sont la chaux et l'oxyde de phosphore⁶⁰⁴ avec un ratio entre ces deux composés qui s'établit autour de 1,2. Cette caractéristique a été exploitée dans de précédentes études pour identifier l'usage de ce matériau, notamment pour la confection de coupelles pour la coupellation à petite échelle⁶⁰⁵. Les cendres que nous avons produites à partir d'os d'ovins et de caprins, outre une composition très similaire, présentent le ratio CaO/P₂O₅ attendu : elles forment notre référentiel qui est complété par de la cendre d'os du commerce⁶⁰⁶ (figure 155).

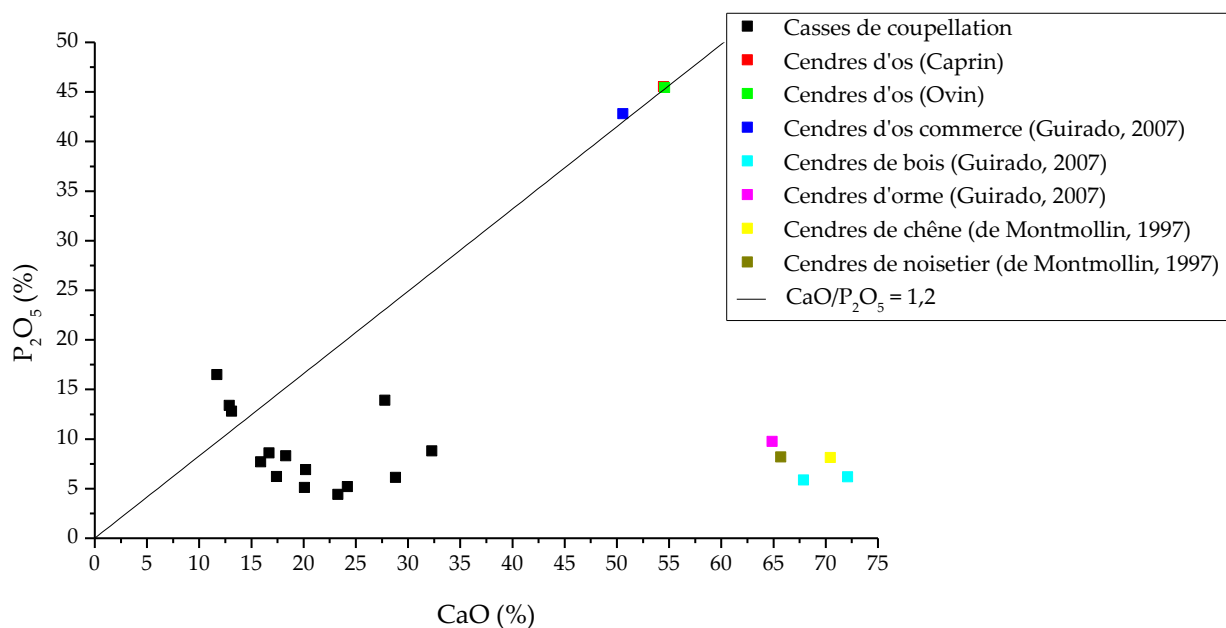


Figure 155 : Représentation des teneurs (renormalisées) en chaux et en oxyde de phosphore pour les casses de coupellation et divers types de cendres. Les points correspondant à la cendre d'os de caprin et d'ovin sont pratiquement confondus.

⁶⁰⁴ Ces composés proviennent de la décomposition de l'hydroxyapatite (Ca₅(PO₄)₃(OH)) au cours de la combustion des os.

⁶⁰⁵ Martín-Torres M., Thomas N., Rehren T. et Mongiatti A., « Some problems and potentials of the study of cupellation... », *op. cit.*, p. 65 et suivantes ; White H., *Legge's Mount, the Tower of London, London: Scientific Analysis of the Crucibles*, English Heritage, Portsmouth, 2010, p. 5 et suivantes.

⁶⁰⁶ Analyse de Marie-Pierre Guirado dans le cadre de son mémoire de master 2 : Guirado M.-P., *L'essai d'argent par voie sèche*, Mémoire de Master 2 MPCA, Université de Bordeaux Montaigne, 2007.

À Castel-Minier, seules deux casses de coupellation (CL 11410 et CL 11511/1) présentent un ratio CaO/P₂O₅ proche de celui de la cendre d'os ce qui semble indiquer l'usage partiel de ce matériau pour confectionner les soles (figure 155). Pour ces deux individus, il est possible sous certaines conditions de calculer la part que représente cette qualité de cendre au sein du matériau⁶⁰⁷. En supposant que l'oxyde de phosphore provient uniquement de la cendre d'os alors celle-ci apporte également une partie de la chaux (1,2 fois plus). Ainsi, dans les deux casses concernées, la proportion de la cendre d'os s'établit autour de 29 %. Malheureusement le calcul du diamètre initial et de l'épaisseur n'est pas possible en raison de la petite taille des deux fragments et l'éventuelle corrélation avec les échelles de coupellation ne peut pas être discutée.

CL	Na ₂ O (%)	MgO (%)	Al ₂ O ₃ (%)	SiO ₂ (%)	P ₂ O ₅ (%)	K ₂ O (%)	CaO (%)
10841	2,3	7,7	16,1	43,1	8,6	5,5	16,7
11004	-	11,1	16,5	42,8	16,5	-	11,7
11245	3,6	8,2	19,0	41,5	5,1	2,4	20,1
11251	4,8	9,5	17,2	41,0	7,7	3,9	15,9
11252	1,5	7,1	16,3	44,5	6,9	3,2	20,2
11253	-	8,4	15,0	44,9	4,4	2,8	23,3
11546	4,1	7,6	17,7	38,4	6,2	8,6	17,4
12113	-	9,4	11,8	50,5	8,3	-	18,3
11511/1	10,2	13,3	8,3	40,2	12,8	2,0	13,1
11410	-	9,4	9,6	52,5	13,4	-	12,9
11229/2	-	7,3	10,3	50,9	5,2	-	24,2
11957	-	5,3	8,6	43,6	13,9	-	27,8
13197/1	-	8,9	11,7	40,2	6,1	4,2	28,8
13198/1	-	10,7	15,2	33,7	8,8	5,2	32,3

⁶⁰⁷ Martín-Torres M., Thomas N., Rehren T. et Mongiatti A., « Identifying materials, recipes and choices some suggestions for the study of archaeological cupels », *Archaeometallurgy in Europe 2007: Selected Papers from the 2nd International Conference, Aquileia, 17-21 June 2007*, Giunlia-Mair A., Craddock P., Hauptmann A. et Bayley J. (éd.), Associazne Italiana di Metallurgia, Milan, 2009, p. 441 et suivantes.

CL	Na ₂ O (%)	MgO (%)	Al ₂ O ₃ (%)	SiO ₂ (%)	P ₂ O ₅ (%)	K ₂ O (%)	CaO (%)
Cendre d'os (Caprin)	-	-	-	-	45,5	-	54,5
Cendre d'os (Ovin)	-	-	-	-	45,4	-	54,6
Cendre d'os du commerce (Guirado, 2007)	3,0	1,4	-	0,2	42,8	1,3	50,6
Cendres de bois (Guirado, 2007)	1,0	11,3	2,9	5,1	6,2	1,4	72,1
Cendres d'orme (Guirado, 2007)	0,1	6,0	1,3	14,3	9,8	3,6	64,9
Cendres de bois (Guirado, 2007)	-	8,8	3,1	7,8	5,9	6,5	67,9
Cendres de chêne (de Montmollin, 1997)	0,3	2,8	7,3	6,0	8,1	2,7	70,4
Cendres de noisetier (de Montmollin, 1997)	0,9	7,5	11,8	1,7	8,2	4,1	65,7

Tableau 33 : Compositions élémentaires renormalisées des casses de coupellation et des cendres étudiées.

Les compositions des autres casses de coupellation sont plus difficiles à interpréter. Nous les avons comparées avec plusieurs types de cendres végétales issues de différentes essences d'arbres (figure 155). Il convient de rappeler les limitations d'une telle démarche qui réside dans la variabilité des compositions élémentaires de ces cendres. Plusieurs facteurs sont à l'origine de ce phénomène, tels que la nature du sol sur lequel les végétaux ont poussé, mais également la saison à laquelle ils ont été prélevés ou encore la partie utilisée pour produire les cendres (branche, tronc ou

écorce d'un arbre par exemple)⁶⁰⁸. De surcroît, les paramètres de la combustion peuvent influencer la composition finale des cendres⁶⁰⁹.

Les teneurs élevées en chaux mesurées dans les casses de coupellation plaident en faveur d'une cendre d'origine végétale. La présence de quantités modérées de chaux et de magnésie est compatible avec cette hypothèse. En revanche, la comparaison des compositions élémentaires des casses de coupellation avec celles des cendres de bois fait apparaître des différences notables, en particulier pour la silice et l'alumine, ce qui suggère une origine autre ou la réalisation d'un mélange avec un autre matériau (tableau 33).

Cette dernière hypothèse a pu être testée en comparant les compositions élémentaires des argiles cuites provenant des soles des foyers et du mobilier céramiques⁶¹⁰. L'étude des compositions élémentaires démontre la possibilité de l'utilisation d'un mélange d'argile et de cendres végétales issues du bois (figure 156). Cependant, dans ce cas de figure, l'argile représenterait le constituant majeur de la sole de coupellation (entre 70 et 75 % d'après la figure 156) ce qui n'est pas en accord avec les observations microscopiques. Si l'utilisation de l'argile comme additif – qui peut agir comme un liant – est très probable⁶¹¹, il faut envisager l'existence d'une cendre végétale particulière, qui serait plus acide que la cendre de bois, pour expliquer les teneurs élevées en silice. De telles caractéristiques peuvent être atteintes en recourant à des cendres issues de graminées, à des feuilles ou encore à des branches d'arbres. Ces matériaux contiennent en effet plus de silice et moins de chaux que les cendres de

⁶⁰⁸ Pitman R. N. « Wood ash use in forestry – a review of the environmental impacts », *Forestry*, 79(5), 2006, p. 564 et suivantes ; Montmollin D. de, *Pratique des émaux de cendres*, Éditions de la Revue de la céramique et du verre, Vendin-le-Vieil, 1997, p. 15 et suivantes.

⁶⁰⁹ Misra M. K., Ragland K. W. et Baker A. J., « Wood ash composition as a function of furnace temperature », *Biomass and Bioenergy*, 4(2), 1993, p. 103-116.

⁶¹⁰ Les données sur la céramique ainsi que les analyses sont tirées du master 2 de Manon Géraud. Ses résultats suggèrent une origine locale de la céramique commingeoise : *La Commingeaise de Castel-Minier (Aulus-les-Bains, Ariège) : étude typologique, technologique et archéométrique*, Master 2 Mondes Médiévaux, Université de Toulouse Jean Jaurès, 2017.

⁶¹¹ Elle est d'ailleurs renforcée par l'observation de grains de quartz dans l'épaisseur de certaines casses de coupellation.

bois⁶¹². Ainsi, un mélange de cendres végétales d'origines variées peut produire un matériau dont la composition se rapproche de celle observée pour les casses de coupellation. Cette hypothèse est vraisemblable dans l'optique d'une production de cendres à partir des résidus d'activités sylvicoles : les métallurgistes récupèrent alors l'écorce, les branches, les brindilles et les feuilles pour produire de la cendre à laquelle ils ajoutent un liant argileux avant de confectionner les soles de coupellation.

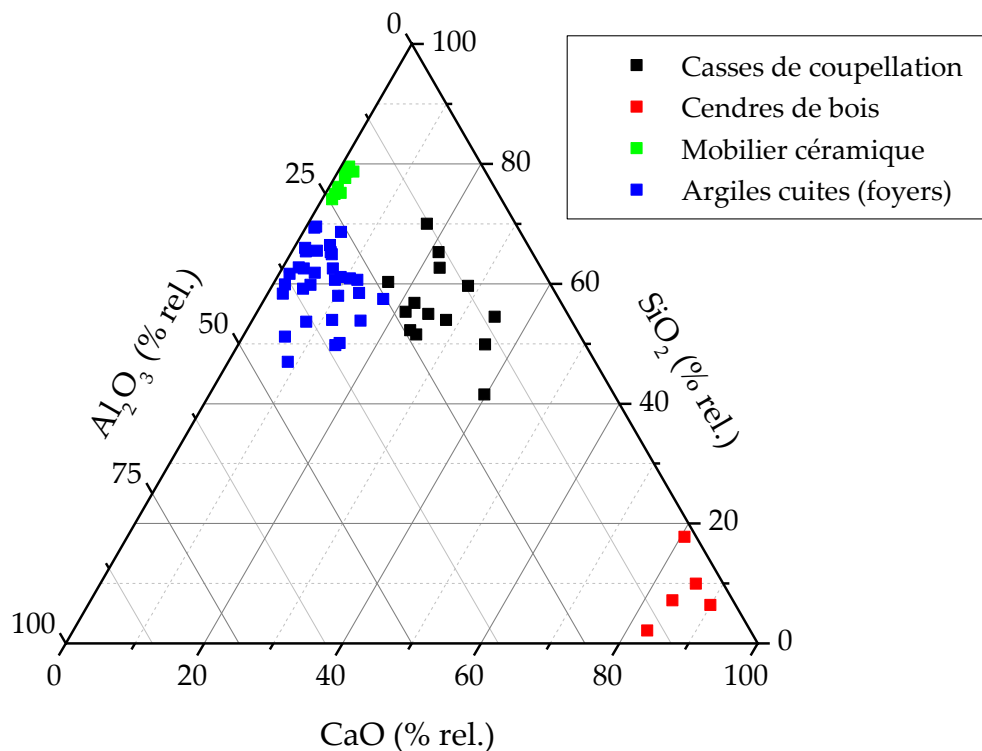


Figure 156 : Diagramme ternaire représentant les teneurs en alumine, chaux et silice des casses de coupellation, des argiles cuites des foyers, du mobilier céramique et des cendres de bois.

Les teneurs en oxydes alcalins sont notables au sein du corpus étudié, en particulier la potasse et la soude. Elles ont été préférentiellement observées dans la partie inférieure des casses de coupellation sous la forme de feldspath potassique et de kaliophilite. La présence de potasse est révélatrice des modalités de préparation de

⁶¹² Canti M. G., « Aspects of the chemical and microscopic characteristics of plant ashes found in archaeological soils », *Catena*, 54, 2003, p. 352 et suivantes.

la cendre notamment la pratique du lavage. Dans les différents traités techniques, il est recommandé de laver la cendre avant utilisation ou d'employer de la cendre ayant servi à la lessive⁶¹³. Le lavage permet d'éliminer une partie des métaux alcalins présents dans les cendres végétales, en particulier la potasse (K_2O). Les profils de concentration de cet oxyde établis sur les coupes des casses de coupellation font apparaître des teneurs très faibles en surface alors qu'à cœur elles atteignent quelques pour cent⁶¹⁴. L'absence de potasse dans la partie supérieure des casses de coupellation découle des difficultés à détecter le potassium, élément léger dont le signal est masqué par celui du plomb. En outre, un lessivage des artéfacts au cours de leur enfouissement peut également expliquer les lacunes observées à proximité des bords. En revanche, la présence de potasse à cœur semble indiquer l'usage de cendres non lavées pour confectionner les soles de coupellation⁶¹⁵.

Le cas de la soude (Na_2O) est différent puisque cet oxyde n'est présent que dans des végétaux très particuliers, les plantes halophiles, dont l'usage à Castel-Minier pour confectionner des cendres est hautement improbable. Plus sûrement, les teneurs en soude observées sont imputables au liant argileux mêlé à la cendre.

4.2.3. Conduite du procédé

4.2.3.1. La question des structures de chauffe

4.2.3.1.1. Des indices ténus

Castel-Minier n'échappe pas au constat de rareté que nous avons dressé au sujet des structures de chauffe dévolues aux opérations de coupellation. Si les soles usagées

⁶¹³ Sur ces aspects : Gauthier J. et Téreygeol F., « La production de la cendre de bois pour l'affinage de l'argent », In Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2013, p. 49-54.

⁶¹⁴ Ce comportement est particulièrement marqué pour la potasse : Silenzi F., *Analyses des cendres d'affinage de l'argent...*, *op. cit.*, p. 53.

⁶¹⁵ Cette hypothèse est discutée plus loin à la lumière des expérimentations : *infra* p. 481.

ont été découvertes en abondance, elles ne se trouvaient jamais dans des contextes de fonctionnement, mais dans des positions de rejet qui n'apportent pas de renseignements sur la structure de chauffe et le déroulement de la coupellation. La fouille conduite à l'été 2016 a néanmoins révélé les vestiges ténus d'un probable foyer de coupellation qui a été aménagé sur la halde de concassage⁶¹⁶ (figure 157). Il se compose d'une couche de cendres sur laquelle reposent des carbonates de plomb qui témoignent de l'altération de produits plombifères travaillés dans cette structure. Le dosage de cette unité stratigraphique par XRF portable confirme cette interprétation visuelle avec des teneurs en plomb autour de 9,0 %. Ces données archéométriques et archéologiques incitent à interpréter l'US 3219 comme un foyer de coupellation. Cette hypothèse est renforcée par l'abondance des casses de coupellation dans les niveaux stratigraphiques synchrones de la pente du Plat-du-Roi⁶¹⁷ et la discrétion des artefacts relatifs à la réduction de la galène (plombs d'œuvre et scories). Dans ce cas, les vestiges observés correspondent à la partie inférieure du foyer sur laquelle était façonnée la sole de coupellation. Après usage, cette dernière était prélevée puis mise au rebut ou remise pour être recyclée.



Figure 157 : Sole de coupellation (US 3219) découverte dans la pente du Plat-du-Roi. D'après Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09) Rapport intermédiaire*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2016, p. 38.

⁶¹⁶ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09) Rapport intermédiaire*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2016, p. 37 et suivantes.

⁶¹⁷ Voir figure 152 p. 468.

Le site choisi pour réaliser la coupellation n'est pas pérenne. En effet, la halde de concassage est en cours de formation au début du XIV^e siècle à mesure que le minerai est préparé avant d'entamer un cycle métallurgique. Il faut donc envisager la réalisation d'un nombre très réduit de coupellations dans ce foyer avant qu'il ait été oblitéré par la halde. L'utilisation d'une structure légère, facile à concevoir avec un nombre limité de matériaux, est en accord avec l'hypothèse d'un procédé facile à mettre en œuvre et aisément transposable dans un autre espace du site. Par ces aspects, la coupellation à Castel-Minier se rapproche donc des solutions techniques mises en œuvre dans certains districts miniers européens et documentées par les sources iconographiques et textuelles, notamment dans l'espace germanique à la fin du Moyen Âge⁶¹⁸. Surtout, les pratiques métallurgiques adoptées à Castel-Minier présentent des ressemblances frappantes avec les habitudes de l'atelier lydien de Sardes, notamment l'usage de foyers de coupellation disposés à même le sol⁶¹⁹.

4.2.3.1.2. Apports des expérimentations

La nature du système mis en place pour assurer la ventilation et l'usage ou non d'une superstructure disposée au-dessus du foyer pour contenir la chaleur demeurent problématiques à Castel-Minier en l'absence de données archéologiques. Néanmoins, la réalisation de sessions d'expérimentations a permis de tester plusieurs hypothèses⁶²⁰. Il s'agit en premier lieu de la coupellation au sol : la cendre est disposée

⁶¹⁸ *Supra* p. 453.

⁶¹⁹ *Supra* p. 461.

⁶²⁰ Ces expérimentations ont été engagées dès 2013 et se poursuivent depuis : Gauthier J., Téreygeol F., Méaudre J.-C. et Flament J., « La coupellation à la cendre de bois à moyenne échelle », *In* Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2014, p. 28-52 ; Gauthier J., Flament J., Méaudre J.-C., Sarah G., Silenzi F. et Téreygeol F., « L'affinage au sol à moyenne échelle : expérimentations basées sur le corpus de casses de Castel-Minier (XIV^e-XV^e siècles) », *In* Téreygeol F.

directement sur une surface aplanie de manière à concevoir une sole concave présentant une dépression centrale selon les observations faites sur les casses de coupellation archéologiques. Jusqu'à présent, l'usage d'une coupole en matériaux légers est systématique. Il s'agit d'une solution facile à mettre en œuvre et qui a priori augmente les chances de succès de la coupellation en permettant un maintien en température efficace. Les alternatives, notamment celles proposées par Biringuccio⁶²¹ devront être testées à l'avenir. La coupole consiste en une armature en osier qui reçoit un habillage d'argile (figure 158). Elle est amovible et dotée d'une ouverture sommitale, assurant le tirage et l'évacuation des fumées, et de trois ouvertures à la base qui permettent d'alimenter le foyer en combustible, d'évacuer les charbons et de contrôler le déroulement de l'opération, mais également d'accueillir un soufflet manuel. En effet, qu'elle soit assurée par l'énergie hydraulique, animale ou humaine, la ventilation forcée est systématiquement employée pour la coupellation comme en témoignent les sources écrites. Le débit d'air apporté par ce dispositif permet de maintenir une atmosphère oxydante dans la structure. Cette condition est également remplie par la nature du combustible qui consiste en bûchettes de bois sec.

(dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2015, p. 108-137.

⁶²¹ *Supra* p. 455.



Figure 158 : Coupellation expérimentale. À gauche : structure de chauffe employée : foyer et coupole amovible. En haut à droite : bain métallique en cours d'oxydation. En bas à droite : aspect du foyer après prélèvement de la sole usagée. Illustrations tirées de Gauthier J., Flament J., Méaudre J.-C., Sarah G., Silenzi F. et Téreygeol F., « L'affinage au sol à moyenne échelle... », *op. cit.*, p. 108-137.

Au total, huit expérimentations ont été conduites avec succès dans cette structure avec des masses de plomb d'œuvre comprises entre 500 g et 1 kg et qui correspondent aux estimations établies à partir du mobilier archéologique. Plus précisément, il s'agit de soles correspondant à la classe 1 du corpus.

La coupellation est achevée au bout d'environ deux heures pour une masse de plomb de 1 kg. À l'issue de l'opération, une masse métallique constituée d'un alliage argent-plomb est prélevée sur la sole usagée. Le dispositif utilisé permet donc d'atteindre les paramètres thermodynamiques adéquats malgré sa faible inertie thermique. Quelle que soit la masse métallique coupellée, le prélèvement de la litharge ne s'est pas avéré nécessaire : la cendre a été en mesure de l'absorber en totalité. Une fois la coupole escamotée et la sole prélevée, les vestiges subsistants sont très superficiels avec une légère rubéfaction du sol et un dépôt de cendres (figure 158).

Cette discrétion est en accord avec les observations archéologiques et démontre l'incidence très limitée de la coupellation sur les sols de travail.

Les expérimentations ont également permis de démontrer la possibilité de travailler avec de la cendre de bois, qu'elle soit lavée ou non. La bonne tenue mécanique du matériau au cours des coupellations a été démontrée. La cendre résiste bien au choc thermique et ne présente pas de fissurations compromettantes pour le succès de l'opération. En outre, la dépression centrale observée sur les casses de coupellation archéologiques, bien qu'elle préexiste dans la sole, est amplifiée au cours de la séparation du plomb et de l'argent. Ce phénomène est imputable à la litharge qui a tendance à « ronger » la cendre.

En définitive, les expérimentations ont permis de démontrer la faisabilité de la coupellation avec des moyens relativement réduits. L'usage d'un foyer léger ainsi que la portabilité du soufflet et d'une éventuelle coupole concourent à la discrétion des vestiges ultimes de la coupellation. Dans l'état des recherches archéologiques, la coupellation à Castel-Minier semble être une opération métallurgique relativement souple qui n'a pas entraîné d'aménagements lourds tels que nous les avons identifiés pour l'étape de production du plomb d'œuvre. Ce résultat contraste avec le récit des prospections de Malus qui mentionne la « grande fonte d'or et d'argent » installée dans l'espace castral. La poursuite de la fouille devra dire si cet espace a effectivement accueilli des opérations de séparation du plomb de l'argent ou s'il était réservé aux étapes ultimes de la chaîne opératoire telles que l'affinage, le lingotage et le contrôle métrologique.

4.2.3.2. Nature des alliages coupellés

Les billes métalliques présentes à la surface des casses de coupellation découvertes en contexte archéologique ont fait l'objet d'analyses LA-ICP-MS dont l'intérêt est considérable pour comprendre les modalités de la coupellation et notamment la composition des alliages traités (tableau 34). Tout d'abord, les résultats

mettent en évidence une très forte hétérogénéité des compositions d'une casse de coupellation à l'autre, mais également au sein d'un même fragment. Avant de discuter les phénomènes à l'origine de cette dispersion, il convient de s'intéresser à la composition des alliages métalliques soumis à la coupellation. Cette démarche requiert la distinction du produit de départ – le plomb d'œuvre – et des différents niveaux d'affinage qui représentent autant d'états d'avancement de l'opération métallurgique.

Partie 4 : La production de plomb et d'argent à partir de la galène argentifère

CL	Ag	Cu	Pb	Ni	Zn	As	Rh	Pd	Cd	Sn	Sb	Te	Au	Hg	Tl	Bi
10841_5	72,9%	239	27,0%	5,0	94	7,5	1,6	15	8,0	4,0	12	-	401	17	1,1	51
10841_6	18,3%	71	81,7%	1,0	27	10	4,9	47	2,0	-	6,5	-	69	1,7	2,5	40
10841_6_1	50,8%	147	49,2%	-	1,8	1,6	3,1	29	5,2	-	2,7	-	160	2,9	1,6	85
11004_1	95,5%	2282	4,3%	2,8	3,4	2,8	1,2	15	13	1,2	6,5	3,4	6,5	4,4	1,1	120
11004_2	91,7%	2225	8,1%	1,1	27	2,1	1,2	11	11	1,4	4,7	1,4	6,5	1,9	1,1	133
11004_3	97,4%	449	2,5%	3,9	44	3,3	0,6	10	12	1,1	11	1,0	6,8	3,2	0,6	1,7
11004_4	97,4%	5926	2,0%	1,5	5,1	1,2	1,0	5,1	11	0,6	2,1	1,7	6,7	3,2	1,5	121
11004_5	63,3%	2298	36,4%	2,1	28	4,9	3,3	29	7,8	0,9	13	0,9	4,8	2,2	1,7	145
11234_1	2,9%	120	97,1%	1,2	-	-	13	115	-	-	-	0,8	-	1,4	4,1	20
11234_2	1,9%	94	98,1%	0,9	-	-	12	116	0,7	-	-	0,8	-	1,3	4,2	16
11246/2_1	99,4%	44	6350	-	-	-	-	1,1	17	-	-	-	9,1	4,1	-	-
11246/2_2	99,2%	61	8226	-	0,9	-	-	1,4	16	-	-	-	8,9	3,6	4,1	-
11246/2_3	1,1%	2164	97,9%	256	6837	202	21	83	56	81	578	15	4,7	122	2,3	35
11246/2_4	3677	2088	98,9%	265	4293	150	10	46	5,0	35	200	1,4	-	10	-	42
11246/3_12	99,6%	28	4142	0,5	-	-	-	1,3	17	-	-	-	10	3,9	4,7	-
11246/3_13	99,5%	68	5447	-	-	-	-	1,2	17	-	-	-	9,4	6,5	4,3	-
11247_1	99,2%	42	8222	0,8	11	3,1	-	1,7	13	-	1,2	-	29	3,2	11	3,2
11247_2	99,1%	46	9621	0,7	8,9	1,7	-	1,7	13	0,9	0,8	-	30	3,5	12	6,0
11247_4	99,0%	137	1,0%	1,8	26	2,0	-	2,1	14	1,0	2,3	1,5	63	12	24	21
11247_5	2795	399	99,7%	-	2,1	0,6	283	16	-	0,6	-	-	19	1,3	9,4	31
11247_7	1365	685	99,8%	-	4,0	0,9	501	24	-	1,4	3,9	-	-	2,9	-	23
11247_8	1,4%	102	98,6%	-	28	7,9	106	24	0,7	0,8	4,1	-	-	2,9	-	99
11248_1	99,4%	78	6123	-	21	2,8	-	1,2	13	-	1,8	0,7	11	1,5	-	4,0
11248_3	98,9%	81	1,1%	-	12	0,9	-	1,6	14	-	4,8	0,8	12	1,8	-	1,5
11248_4	98,0%	78	1,9%	1,9	45	4,6	-	2,7	14	-	4,7	0,8	13	1,8	-	14
11249_2	3082	241	99,7%	1,6	0,9	0,7	1073	123	-	0,5	-	1,3	-	8,6	-	32
11249_5	2215	885	99,7%	0,9	2,9	-	14	129	-	1,0	1,2	-	-	1,2	4,6	9,2

CL	Ag	Cu	Pb	Ni	Zn	As	Rh	Pd	Cd	Sn	Sb	Te	Au	Hg	Tl	Bi
<u>11249_6</u>	2400	781	99,7%	0,7	5,0	1,3	13	124	-	0,8	4,9	-	-	1,2	4,2	8,0
11250/4_1	98,5%	239	1,5%	2,5	2,4	1,2	-	2,6	12	1,2	0,5	2,8	31	15	12	4,1
11250/2_2	98,8%	257	1,3%	2,0	1,0	1,1	-	1,8	13	0,9	-	2,1	32	14	12	1,5
11253_2	9273	1,20%	97,5%	105	74	83	16	68	21	70	31	204	33	219	-	23
11269_1	98,8%	44	1,2%	-	1,2	-	-	1,8	10	-	1,4	-	5,2	3,1	-	-
11269_2	99,1%	54	8936	-	8,4	0,6	-	2,0	12	-	-	-	6,0	1,7	-	-
11269_3	97,7%	57	2,3%	-	3,9	-	-	3,0	12	-	7,2	-	5,9	2,3	-	-
11269_4	92,7%	4020	6,9%	-	3,9	-	1,3	11	11	-	7,8	-	4,9	2,0	1,0	59
11269_6	25,6%	2249	74,1%	-	7,8	1,3	8,6	78	3,0	-	6,7	-	1,1	0,8	2,9	146
11269_8	99,0%	47	9803	-	3,2	-	-	3,0	12	-	0,8	-	8,2	2,7	-	-
11269_9	98,5%	170	1,5%	0,9	3,5	1,2	-	2,2	11	0,8	4,5	0,9	13	2,7	-	-
11494_2	8158	646	98,9%	48	1780	186	13	117	8,5	12	179	1,0	-	4,2	5,2	50
11914/1_1	98,9%	211	1,1%	0,7	1,1	1,1	-	1,8	15	-	-	1,7	6,1	3,5	-	-
11914/1_4	98,3%	5894	1,1%	1,2	1,1	1,2	-	2,4	15	0,6	0,5	3,1	5,1	2,4	0,6	20
11995/4_1	2726	4628	99,2%	-	122	1,3	12	103	0,9	-	11	-	-	1,0	4,2	48
11995/4_2	3651	4226	99,2%	-	323	2,4	13	117	2,0	0,7	24	-	1,8	1,1	4,4	51
11995/4_3	6023	878	99,3%	2,7	5234	21	15	138	26	0,5	66	-	-	1,0	4,7	67
<u>11995/4_5</u>	1343	1237	99,6%	0,7	923	2,3	13	119	2,3	-	5,9	-	-	1,0	4,3	24
11995/1_7	84,5%	3669	15,1%	4,6	46,5	3,1	4,6	41	17	1,2	35	5,0	11	6,7	1,0	5,0
12113_1	1,9%	2,2%	94,7%	47	8945	299	15	129	37	6,8		10	1,8	11	4,3	24
12113_2	1,2%	7768	97,5%	6,4	2962	186	23	-	2212	7,6	12,1	1,9	-	1,9	5,0	5,1
12113_3	6,0%	7330	93,0%	26	3283	33	14	118	10	1,4	133	1,6	-	1,6	4,9	61
12113_4	6,0%	1,2%	92,2%	54	5797	40	13	113	31	2,1	150	2,0	14	1,6	4,6	62
12113_5	10,8%	1317	89,0%	0,6	245	11	11	99	4,0	-	21,7	-	0,8	0,8	3,9	50
<u>12113_7</u>	1262	2,8%	96,7%	38	2749	25	14	129	8,9	2,0	183	6,6	0,5	3,3	5,0	15
12661_1	13,1%	1892	86,7%	2,0	44,4	0,9	12	107	1,5	-	6,9	-	0,6	1,4	4,4	60
12661_2	5,2%	1268	94,7%	3,9	116	3,1	13	118	0,7	-	10	-	-	1,1	4,8	50

Partie 4 : La production de plomb et d'argent à partir de la galène argentifère

CL	Ag	Cu	Pb	Ni	Zn	As	Rh	Pd	Cd	Sn	Sb	Te	Au	Hg	Tl	Bi
12661_3	3,5%	563	96,4%	1,2	6,4	-	14	130	-	-	3,1	-	-	1,9	4,7	81
12661_4	1,7%	685	98,3%	1,3	7,8	-	14	126	-	-	2,5	-	-	0,9	4,5	49
12661_5	7,2%	1355	92,7%	1,0	0,7	-	14	127	1,0	-	1,7	-	-	2,3	4,2	56
12703/1_1	59,1%	6870	40,1%	-	23	6,1	6,2	55	5,5	-	13	-	2,6	2,2	1,9	423
12703/1_2	57,1%	6959	42,1%	-	62	4,1	6,2	56	6,1	-	11	-	2,4	0,7	2,1	365
12703/1_3	53,5%	7025	45,8%	-	5,1	0,5	6,8	61	5,2	-	0,9	-	2,3	-	2,4	313
13153_1	98,5%	1438	1,3%	-	1,2	-	-	1,4	9,0	-	-	-	4,0	29	-	5,0
13153_2	98,6%	1170	1,2%	-	1,8	-	-	1,4	8,9	-	-	-	7,0	31	-	3,8
13153_3	99,9%	164	384	-	6,6	-	-	0,6	8,9	-	-	-	4,1	30	-	-
13197/1_1	99,7%	31	2807	-	24	0,6	-	1,1	10	-	-	-	13	28	-	53
13197/1_2	99,9%	34	967	-	4,0	-	-	0,9	9,3	-	-	-	14	25	-	5,7
13198/1_1	99,7%	35	2921	-	18	-	-	0,9	9,1	-	-	-	14	29	-	3,0
13198/1_2	99,9%	26	1142	-	3,2	-	-	0,8	9,2	-	-	-	14	27	-	2,3
13198/1_3	96,1%	290	3,3%	-	1,3	-	0,7	6,2	8,8	-	-	-	12	22	7,5	
13198/1_4	94,9%	199	4,4%	-	3,1	-	-	3,4	8,8	-	-	-	13	31	5,0	
13219_1	100,0%	44	54	-	4,5	-	-	0,7	9,5	-	-	-	3,3	26	-	-
13219_2	99,9%	256	1177	-	2,2	-	-	0,9	10	-	1,2	-	3,3	25	-	-
13219_3	99,9%	32	293	0,8	1,1	-	-	0,7	10	-	-	-	3,2	25	-	-

Tableau 34 : Résultats des analyses par LA-ICP-MS des billes métalliques présentes à la surface des casses de coupellation. Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm. Le code laboratoire des billes est souligné lorsqu'il s'agit de plomb d'œuvre.

La composition élémentaire des billes métalliques démontre tout d'abord que la coupellation vise exclusivement à traiter des plombs d'œuvre, les teneurs en cuivre témoignant de la présence de ce métal à un niveau de trace. Seul l'individu CL 12113 fait exception avec des concentrations en métal rouge dépassant les quelques pour cent. Dans ce cas, la sole usagée a vraisemblablement été employée pour coupeller un alliage plomb-cuivre-argent provenant du traitement d'un minerai mixte galène-tétraédrite. Quant aux autres individus du corpus, ils démontrent une fois de plus la place privilégiée de la galène au sein des ateliers, principal pourvoyeur d'argent.

Les billes métalliques présentant les concentrations en argent les plus faibles sont des individus témoins qui constituent un échantillon du produit de départ soumis à la coupellation. Pour autant, il n'est pas aisé de distinguer précisément les billes qui relèvent du plomb d'œuvre ou des premiers instants de la coupellation qui se caractérisent par le démarrage de l'enrichissement en métal blanc à mesure que le plomb est oxydé et éliminé dans la sole en cendres. En effet, nous avons vu que les rapports élémentaires entre le plomb et, respectivement, l'antimoine et le cuivre ne sont pas conservés au cours de la production de la galène. Le seul marqueur fiable se trouve être le bismuth d'une part parce que son rapport avec le plomb est conservé lors de la production du plomb d'œuvre et d'autre part grâce à son comportement particulier au cours de la coupellation⁶²². En effet, le bismuth est éliminé du bain métallique à la fin de la coupellation, c'est-à-dire lorsqu'il ne subsiste presque plus de plomb. Auparavant, il se produit donc un enrichissement en bismuth.

Les casses de coupellation contenant suffisamment de billes métalliques dans une gamme de concentration variée illustrent ce phénomène. Ainsi, il est possible de déceler le moment à partir duquel l'enrichissement en bismuth est engagé et par conséquent de distinguer les billes relevant du plomb d'œuvre non-transformé de celles témoignant du début de la séparation des métaux (figure 159). Finalement les billes pouvant être attribuées à du plomb d'œuvre sont au nombre de six avec des

⁶²² *Infra* p. 494 et L'Héritier M., Baron S., Cassayre L. et Téreygeol F., « Bismuth behaviour during ancient processes of silver lead production », *Journal of Archaeological Science*, (57), 2015, p. 56-58.

teneurs en argent comprises entre 1262 ppm et 1,92 % (tableau 34 et figure 159). Cette faible proportion ne doit pas étonner puisque la coupellation vise théoriquement à éliminer tout le plomb c'est pourquoi il est rare de trouver des compositions correspondant à des plombs d'œuvre. De même, les compositions intermédiaires sont peu représentées alors que les billes métalliques dont la teneur en argent est supérieure à 95 % constituent près de la moitié du corpus analysé.

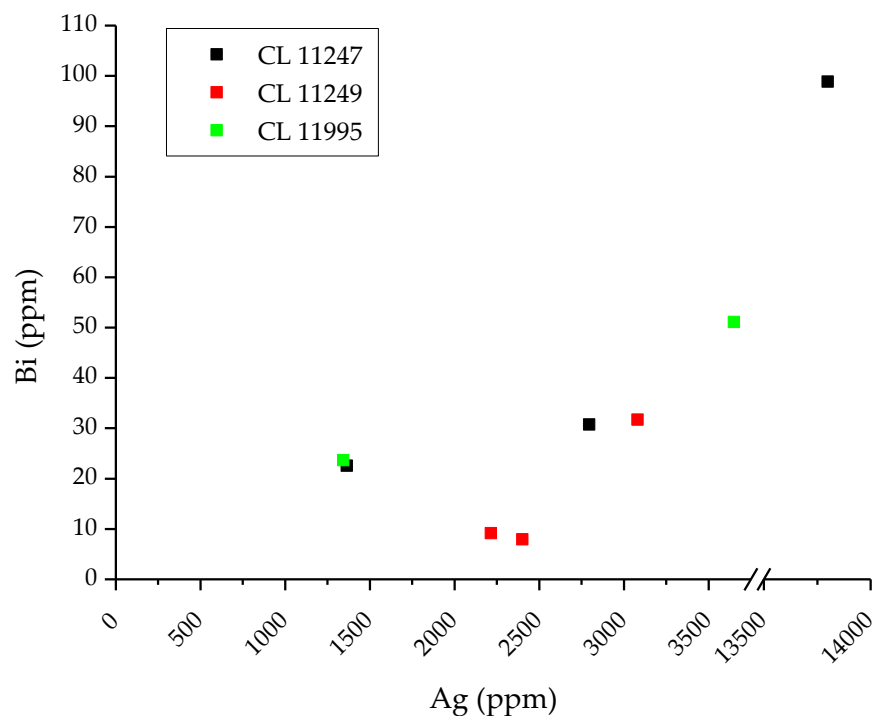


Figure 159 : Représentation des teneurs en bismuth et en argent des billes métalliques présentes à la surface des casses de coupellation. L'enrichissement en bismuth indique que la coupellation a débuté.

4.2.3.3. Déroulement de la coupellation

Après avoir étudié la composition des billes métalliques disséminées à la surface des casses de coupellation, il convient à présent de les confronter à leur localisation spatiale afin d'étudier précisément le déroulement du procédé de coupellation tel qu'il était pratiqué à Castel-Minier.

4.2.3.3.1. Fractionnement du bain métallique

D'une manière générale, les billes métalliques présentant les concentrations en argent les plus élevées se trouvent préférentiellement dans la dépression centrale des casses de coupellation (figure 160). Ce constat est consécutif au fractionnement du bain métallique au cours de l'opération métallurgique. Des gouttes ont été projetées en dehors de la partie centrale de la casse de coupellation sous l'action du soufflet ou à la suite des manipulations effectuées par les métallurgistes pour alimenter le foyer en combustible et dégager les charbons de bois. Ces fractions métalliques se sont retrouvées isolées sur la sole. En outre, leur faible volume les rend particulièrement sensibles aux variations de température. Ainsi, elles se sont solidifiées à la faveur d'une diminution de celle-ci. Leur composition élémentaire dépend du moment au cours duquel se sont produits le fractionnement du bain puis la solidification.

Le phénomène que nous venons de décrire est inévitable lors de la coupellation comme l'ont démontré les expérimentations⁶²³ (figure 160). Ainsi, il n'est guère possible d'atteindre une séparation totale des métaux à l'issue de l'opération et une certaine quantité d'alliage argent-plomb demeure sur la sole.

⁶²³ Téreygeol F. et Guirado M.-P., « Affiner l'argent au four de coupellation : expérimentations autour du *De Re Metallica* d'Agricola », In Téreygeol F. (éd.), *Comprendre les savoir-faire métallurgiques antiques et médiévaux*, Errance, Paris, 2013, p. 185.

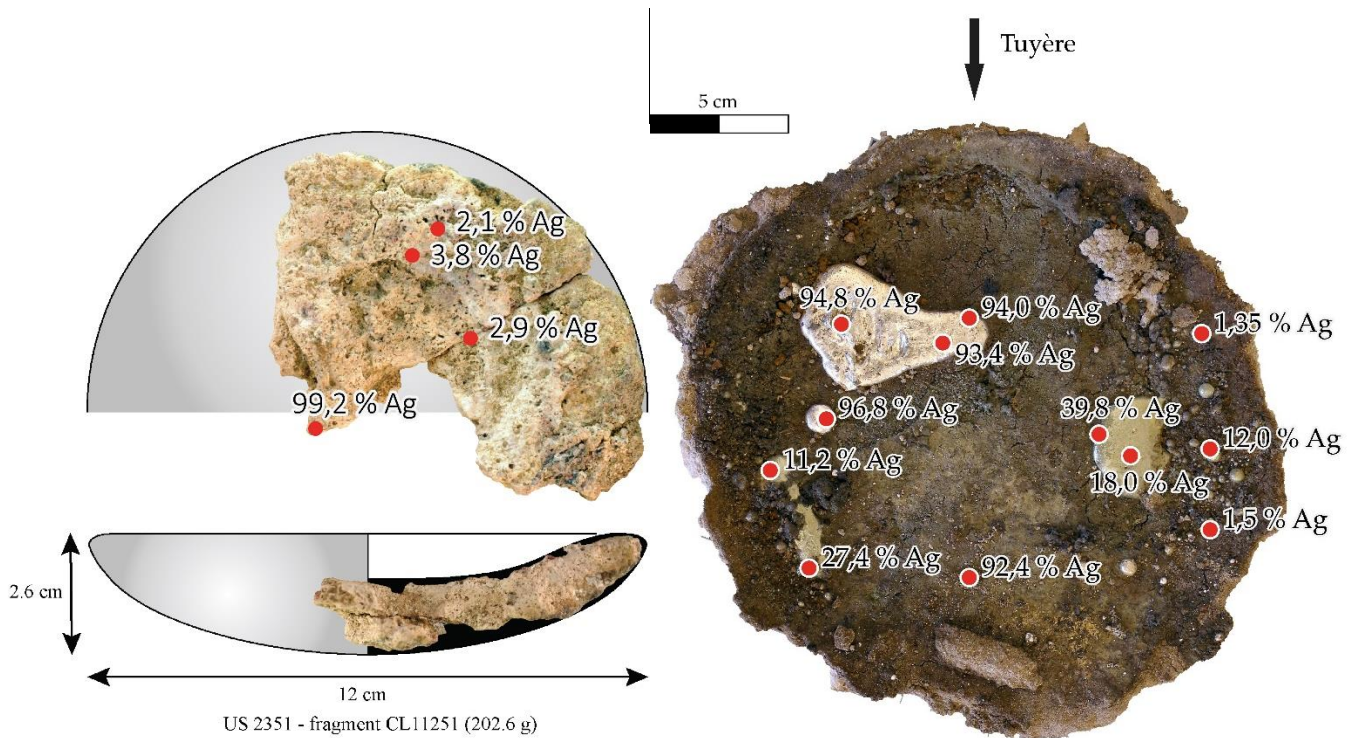


Figure 160 : Teneur en argent des billes métalliques selon leur position sur une casse de coupellation archéologique (gauche) et expérimentale (droite).

4.2.3.3.2. Paramètres thermodynamiques

À partir des analyses élémentaires des billes métalliques, il est possible d'étudier les paramètres thermodynamiques qui régnaient dans le foyer de coupellation, en particulier la température et le débit d'air. Les teneurs en argent mesurées sur les billes métalliques en divers endroits des casses de coupellation permettent d'établir une interpolation spatiale via la méthode du krigeage déjà présentée⁶²⁴. Ainsi, les compositions en métal blanc peuvent être estimées en tout point de la sole usagée (figure 161). Elles livrent de précieuses informations qui mettent clairement en lumière l'hétérogénéité des paramètres thermodynamiques au sein de la structure de chauffe. Ainsi, la séparation du plomb et de l'argent est aboutie dans une zone relativement restreinte des casses de coupellation. Il s'agit de l'emplacement qui satisfait deux conditions essentielles à la réussite de l'opération : une température

⁶²⁴ *Supra* p. 136.

élevée et un débit d'air suffisant pour maintenir une atmosphère oxydante permettant la formation de la litharge. Il s'agit a priori de la zone qui se trouve dans l'axe de la tuyère même si ce paramètre n'est pas suffisant comme le montrent les résultats des expérimentations⁶²⁵. En effet, un débit d'air approprié est une condition nécessaire qui doit néanmoins être combinée à une température élevée. Or, il est malaisé, de surcroît dans des structures de chauffe légères telles que nous les avons envisagées à Castel-Minier, de maintenir des températures homogènes. En réalité, un gradient se développe entre les zones les plus chaudes, qui se trouvent à proximité du combustible et du soufflet, et le reste de la structure.

Le cantonnement des teneurs en argent élevées à des zones relativement restreintes de la sole démontre également la difficulté à séparer totalement le plomb et l'argent. En effet, à mesure que la proportion de plomb diminue, la température de fusion de l'alliage plomb-argent formé augmente⁶²⁶. Aussi, la solidification guette l'alliage à la fin de la coupellation alors que tout le plomb n'a pas encore été évacué. Pour limiter ce risque, une température avoisinant les 1000 °C est requise. Elle ne peut être atteinte sur l'ensemble de la sole ce qui conduit à l'obtention d'argent impur dans lequel subsiste une petite quantité de plomb qui doit subir un affinage ultérieur.

⁶²⁵ La comparaison de la figure 160 et de la figure 161 montre que la zone « efficace » est légèrement décalée par rapport à l'axe du soufflet ce qui peut indiquer une perturbation du flux d'air (présence de charbons) ou une température trop basse en cet endroit.

⁶²⁶ En réalité, cela n'est vrai que pour les alliages plomb-argent hypoeutectiques. Toutefois, cette configuration est très vite atteinte au cours de la coupellation puisque le point eutectique correspond à une teneur en plomb très élevée (97,4 %). En ce point, la température de fusion de l'alliage (303 °C) est peu différente de celle du plomb pur (327 °C).

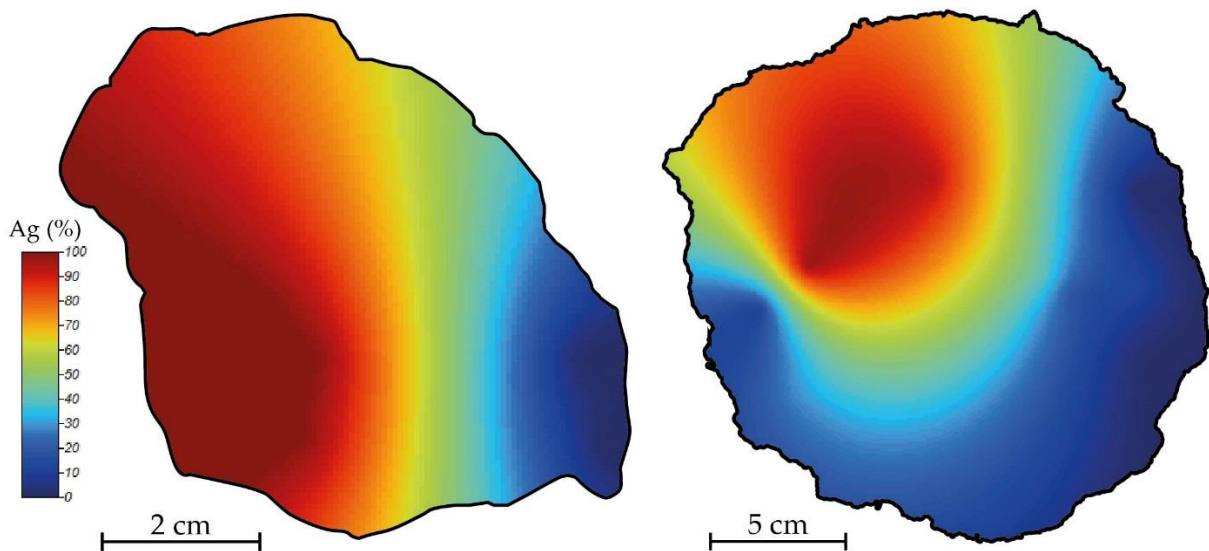


Figure 161 : Résultats de l'interpolation spatiale des teneurs en argent obtenue par la méthode du krigeage à partir des analyses élémentaires des billes métalliques disséminées à la surface d'une casse de coupellation archéologique (gauche, CL 11248) et expérimentale (droite).

4.2.4. Résultats de l'opération de coupellation

4.2.4.1. Comportement des éléments-traces au cours de la coupellation

Les résultats des analyses élémentaires de billes métalliques présentes à la surface des casses de coupellation sont suffisamment nombreux pour envisager d'étudier le comportement des éléments-traces au cours du procédé métallurgique. La coupellation est une opération d'oxydation qui est susceptible d'affecter des éléments chimiques autres que le plomb en fonction de plusieurs paramètres thermodynamiques tels que la température et la pression partielle de dioxygène. Ainsi, plusieurs mécanismes concourent à modifier la concentration en éléments-traces du bain métallique selon qu'ils y demeurent, qu'ils se volatilisent ou qu'ils sont absorbés par la sole. Leur prise en compte est indispensable pour discuter le potentiel de certains éléments comme traceurs du minerai dans le cadre d'études de provenance. Par exemple, le bismuth a pu être utilisé comme un traceur fiable avant qu'une étude récente ne vienne discuter la pertinence de cette pratique⁶²⁷.

⁶²⁷ L'Héritier M., Baron S., Cassayre L. et Téreygeol F., « Bismuth behaviour ... », *op. cit.*, p. 56-58.

Du point de vue physico-chimique, le comportement des éléments-traces peut être en partie prédit grâce aux diagrammes d'Ellingham qui représentent la variation de l'enthalpie libre standard⁶²⁸ des réactions d'oxydation des métaux en fonction de la température (figure 162). Ces diagrammes sont des représentations adaptées pour étudier les équilibres entre les métaux et leurs oxydes en particulier dans le cas des procédés de métallurgie extractive tels que le grillage des minerais ou la coupellation du plomb d'œuvre. Néanmoins, leur utilisation s'avère délicate lorsqu'il s'agit d'étudier les métaux qui ne sont pas dans l'état standard tels que les alliages. Elle nécessite de prendre en compte l'activité chimique de chaque métal, c'est-à-dire sa capacité à participer à la réaction d'oxydation. Dans le cas de la coupellation d'alliages métalliques, l'activité chimique a pour effet d'augmenter l'enthalpie libre standard des réactions d'oxydation. La description thermodynamique de la coupellation est assez complexe et requiert le concours d'outils de simulation⁶²⁹.

Il est cependant possible d'exploiter les diagrammes d'Ellingham pour en tirer quelques grandes tendances sur l'évolution des métaux présents dans le plomb d'œuvre au cours de la coupellation. Outre l'or qui est un métal noble inoxydable, l'argent s'oxyde difficilement dans les conditions de température et de pression de la coupellation telle qu'elle était pratiquée à l'époque médiévale ($T=1000\text{ °C}$ et $p_{O_2}=0,2\text{ atm}$). Cependant, de petites quantités d'argent peuvent être oxydées à la fin de la coupellation lorsqu'il ne subsiste plus d'autres métaux⁶³⁰. En revanche, parmi les autres éléments-traces présents dans les plombs d'œuvre, certains s'oxydent facilement. C'est le cas du zinc, de l'étain, de l'antimoine, de l'arsenic et du nickel. Sur le diagramme d'Ellingham, les réactions dont la variation d'enthalpie standard est

⁶²⁸ On considère que les variations de température ne modifient pas l'enthalpie standard et l'entropie standard (approximation d'Ellingham).

⁶²⁹ Voir par exemple les études thermodynamiques consacrées à ce procédé : L'Héritier M., Baron S., Cassayre L. et Téreygeol F., « Bismuth behaviour ... », *op. cit.*, p. 59 et suivantes ; Swinbourne D. R., Yan S., Hoang G. et Higgins D., « Thermodynamic modelling of cupellation: activity of $Ag_{0.5}$ in molten PbO at 1000 °C », *Mineral Processing and Extractive Metallurgy*, 112(2), 2003, p. 69-74.

⁶³⁰ L'Héritier M., Baron S., Cassayre L. et Téreygeol F., « Bismuth behaviour ... », *op. cit.*, p. 65.

supérieure à celle de l'oxydation du plomb interviennent tardivement au cours de la coupellation, c'est-à-dire lorsque la quantité de plomb devient minimale⁶³¹. Les éléments-traces concernés sont le cuivre, le bismuth, le rhodium et le palladium (figure 162). Si la coupellation n'est pas menée à son terme, ils peuvent subsister dans l'argent partiellement affiné.

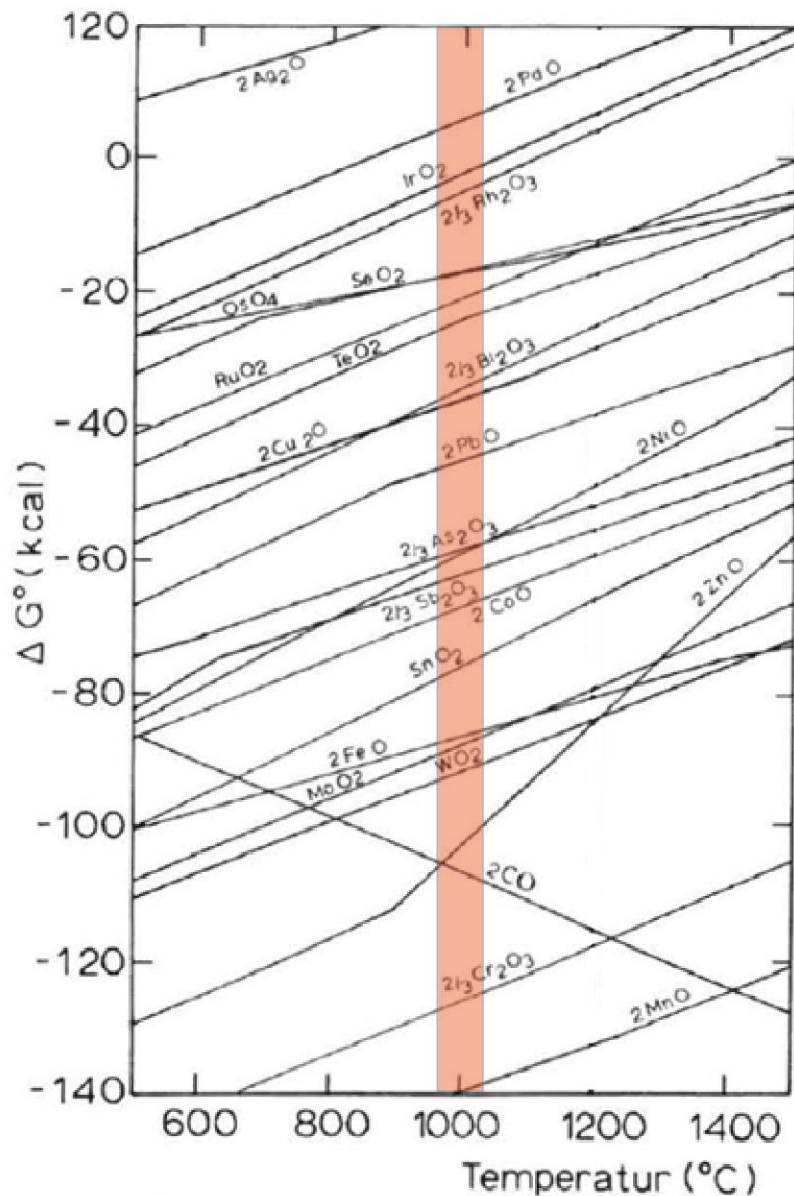


Figure 162 : Diagramme d'Ellingham modifié d'après Pernicka E., « Erzlagerstätten in der Ägäis und ihre Ausbeutung im Altertum : Geochemische Untersuchungen zur Herkunftsbestimmung archäologischer Metallobjekte », *Jahrbuch d. Romisch-Germanischen Zentralmuseums Mainz*, 34, 1987, p. 631. La zone rouge correspond au domaine de températures dans lequel est conduite la coupellation.

⁶³¹ Auparavant, ce sont en effet les réactions dont les variations d'enthalpie standard sont moindres qui sont privilégiées.

Les analyses élémentaires réalisées sur les billes métalliques disséminées à la surface des casses de coupellation permettent de suivre les évolutions des concentrations en éléments-traces au cours du procédé et de les confronter au modèle théorique que nous venons de présenter. Les comportements de l'antimoine et de l'arsenic ont tout d'abord été étudiés (figure 163). La variation d'enthalpie standard nécessaire pour oxyder ces métaux est faible, ce qui indique une élimination rapide au cours de la coupellation. Cette prédiction a été vérifiée avec la mise en évidence d'un seuil à partir duquel on observe systématiquement des teneurs très faibles, inférieures à 10 ppm. Ainsi, les teneurs en antimoine, très fluctuantes d'un plomb d'œuvre à l'autre suivant les conditions de réduction du minerai et la nature de la charge⁶³², n'excèdent plus les quelques ppm dès que la teneur en argent a franchi le palier 7,2 - 10,8 %. Ce seuil est légèrement plus élevé pour l'arsenic ; il se situe entre 18,3 et 25,6 % d'argent.

⁶³² *Supra* p. 428.

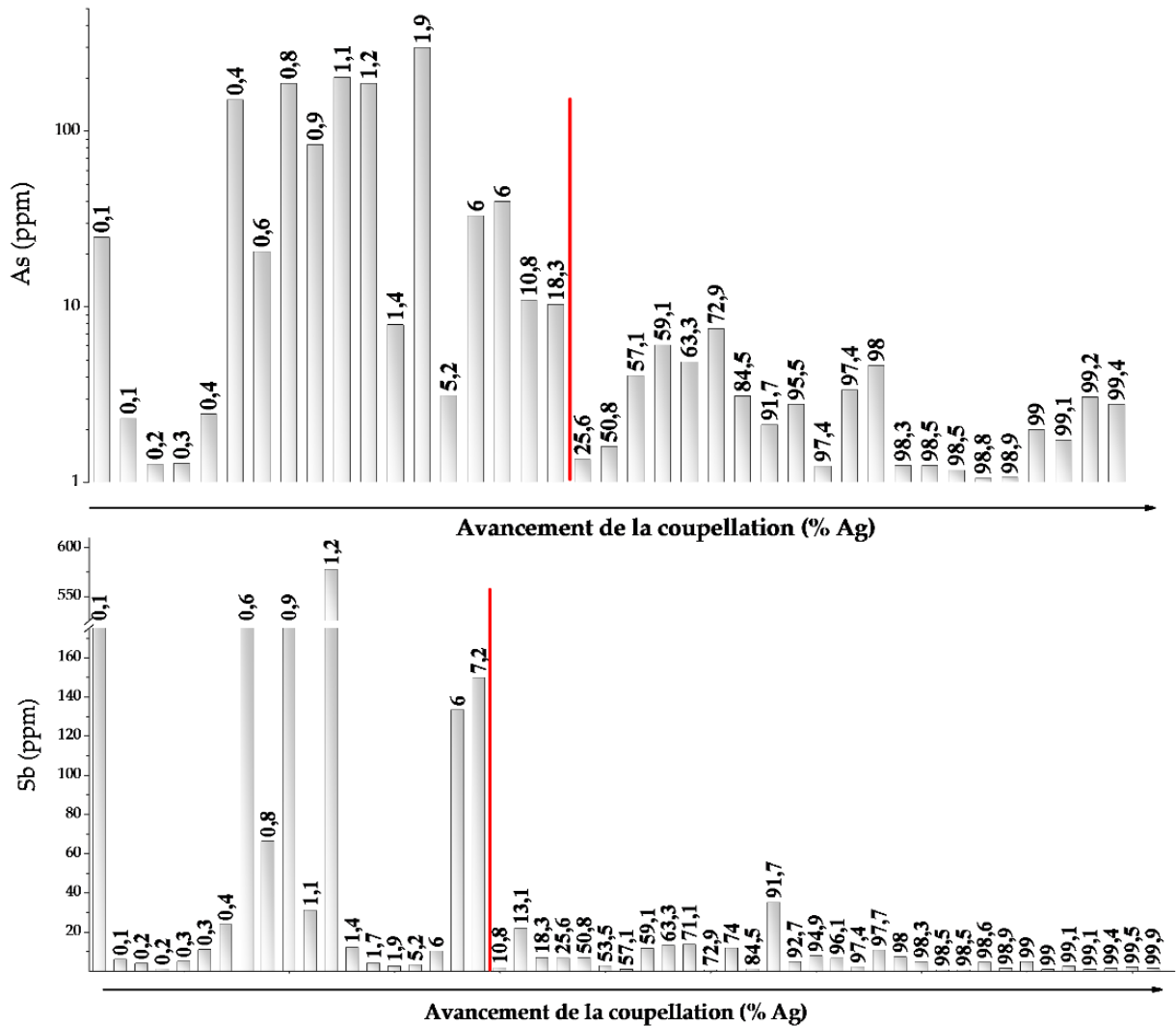


Figure 163 : Évolution des teneurs en arsenic et en antimoine au cours de la coupellation. Les teneurs en argent figurent au-dessus des colonnes : elles permettent d'apprécier l'avancement de la coupellation. Les seuils sont matérialisés par des lignes rouges.

Le comportement du zinc ne correspond pas à celui prévu par les diagrammes d'Ellingham puisqu'on observe, à la fin de la coupellation, la subsistance de concentrations pouvant dépasser les 20 ppm (figure 164 et figure 163). Bien que ces valeurs soient faibles, le zinc devrait avoir totalement disparu du plomb d'œuvre puisque c'est le métal qui présente le plus d'affinité avec l'oxygène. On peut avancer

l'hypothèse de la formation de précipités argent-zinc dans le bain métallique pour expliquer le phénomène observé⁶³³.

Les teneurs en cuivre mesurées dans les billes métalliques sont en accord avec les données théoriques fournies par les diagrammes d'Ellingham. La variation d'enthalpie standard nécessaire à l'oxydation de ce métal est supérieure à celle de la formation de la litharge, c'est pourquoi le cuivre peut subsister en quantités importantes dans l'argent affiné (figure 164). Afin d'oxyder tout le cuivre et permettre son élimination, il faudrait que la quantité d'oxygène soit plus élevée. Cette condition peut être remplie en modifiant la composition de l'atmosphère et/ou en augmentant la pression partielle de ce gaz⁶³⁴. Ces paramètres sont difficiles à ajuster dans les structures de coupellation médiévales ce qui explique la subsistance du cuivre dans l'argent.

⁶³³ Blazy P. et Jdid E.-J., « Métallurgie du Plomb - Procédés classiques et ressources primaires », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : m2264, 2011, p. 11.

⁶³⁴ Swinbourne D., Winters A. et Giunti M., « Theory and Practice of Cupellation at Port Pirie Pasmaenco Smelter », *European Metallurgical Conference, Friedrichshafen, 18-21 septembre 2001*, p. 329-346.

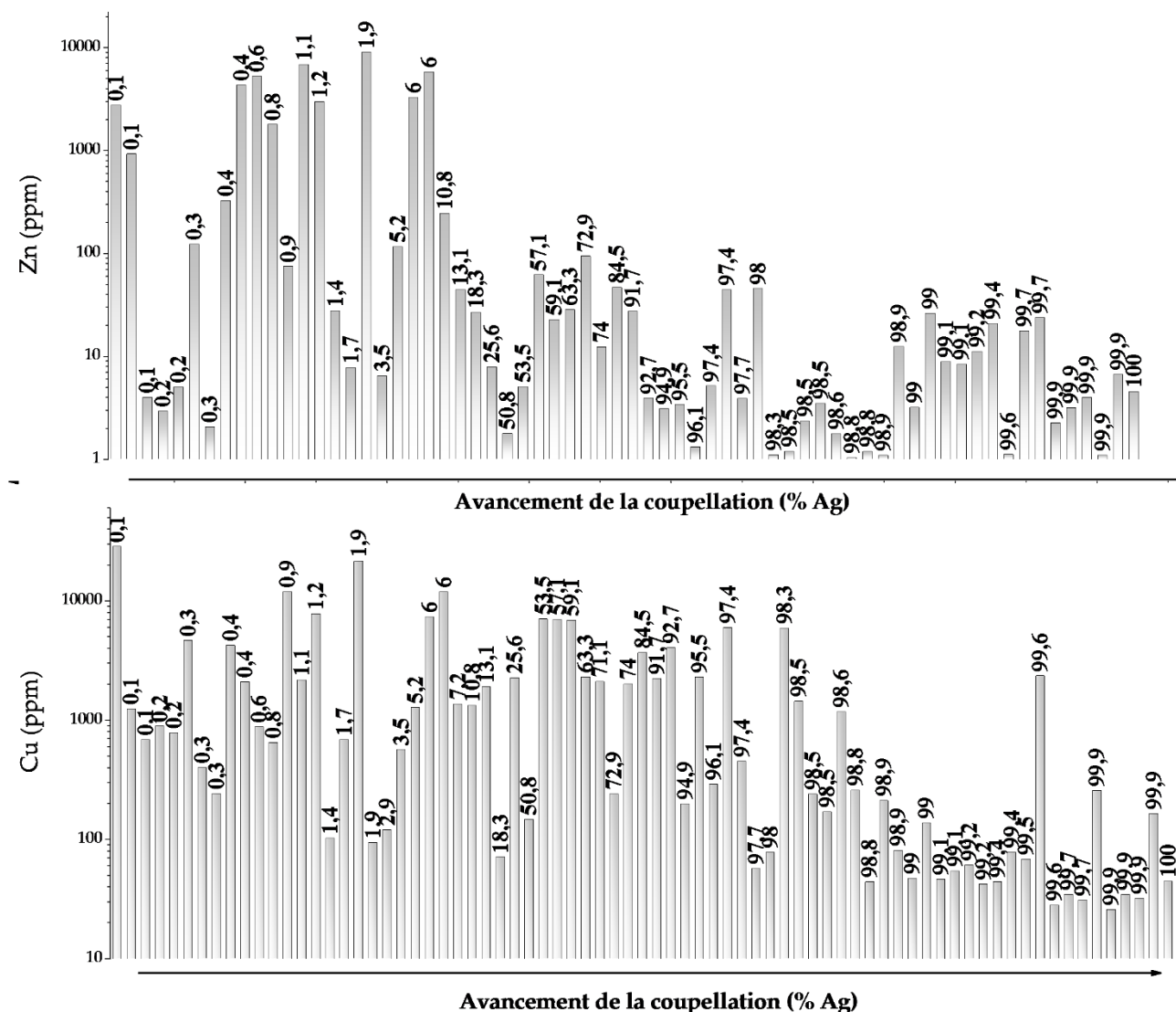


Figure 164 : Évolution des teneurs en zinc et en cuivre au cours de la coupellation. Les teneurs en argent figurent au-dessus des colonnes : elles permettent d'apprécier l'avancement de la coupellation.

Parmi les autres métaux présents dans les plombs d'œuvre et susceptibles d'être affectés lors de la coupellation figurent le bismuth et le rhodium. Les teneurs en bismuth sont stables dans le bain métallique jusqu'à ce que l'avancement de la coupellation atteigne environ 25 %. On constate alors un enrichissement à la faveur de l'élimination des autres éléments, principalement le plomb sous la forme de litharge et les autres oxydes métalliques dont la variation d'enthalpie standard nécessaire à leur formation est faible. En revanche, au-delà d'une concentration en argent égale à 97,4 %, c'est-à-dire à la fin du processus de coupellation, le bismuth est éliminé du bain

métallique (figure 165). Il s'est oxydé avant d'être incorporé dans la litharge qui pénètre dans la sole ou est prélevée. Le rhodium présente un comportement similaire à celui du bismuth avec toutefois un seuil moins élevé atteint pour une teneur en argent de 95,5 % (figure 165). Au-delà, ce métal n'a plus été détecté dans les billes métalliques des casses de coupellation.

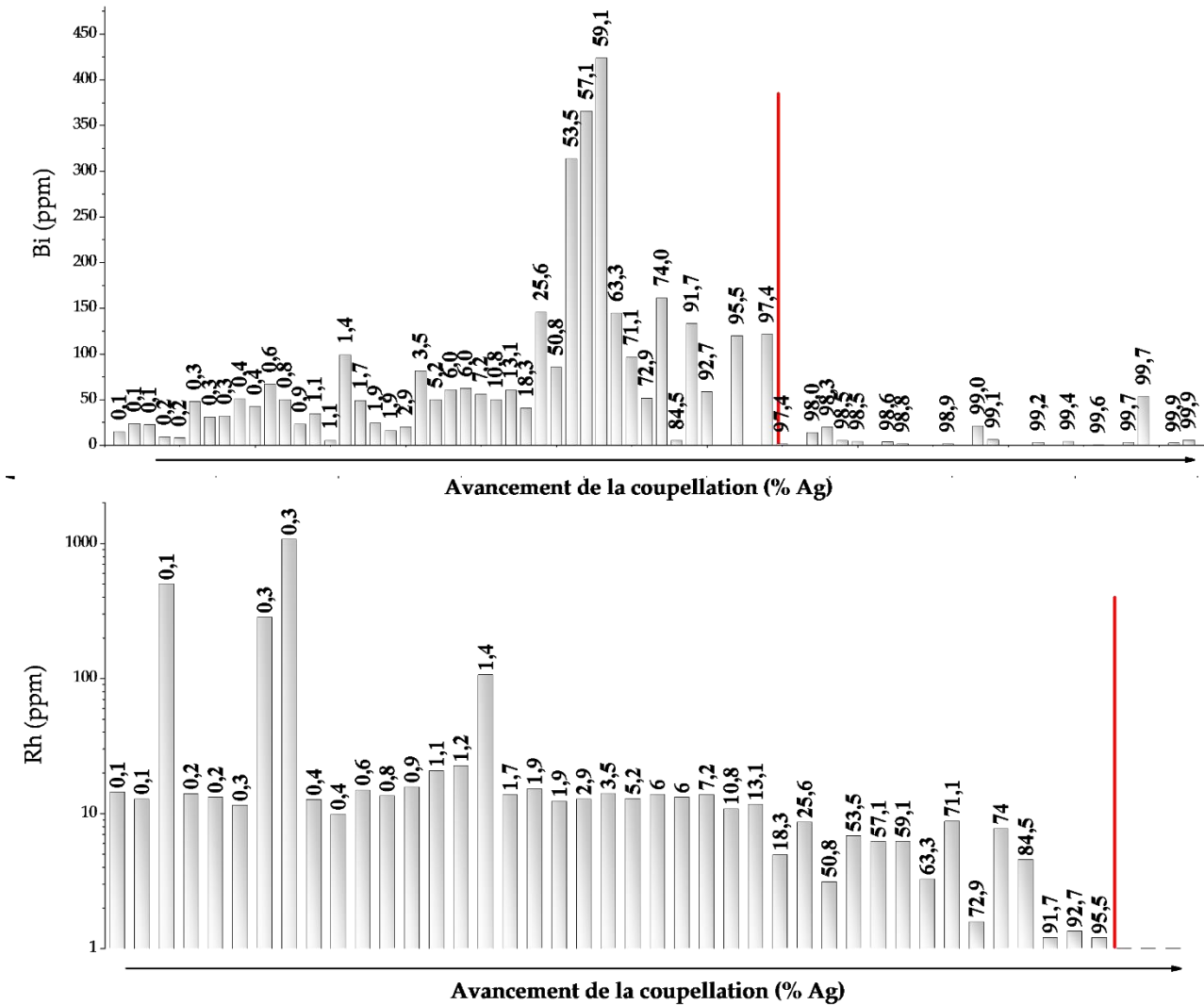


Figure 165 : Évolution des teneurs en bismuth et en rhodium au cours de la coupellation. Les teneurs en argent figurent au-dessus des colonnes : elles permettent d'apprécier l'avancement de la coupellation. Les seuils sont matérialisés par des lignes rouges.

Enfin, les derniers éléments étudiés sont le palladium et l'or. Le premier s'oxyde difficilement, car la variation d'enthalpie standard nécessaire à sa transformation est

élevée ; le second est inoxydable. La teneur en palladium décroît lentement au cours de la coupellation et ce métal disparaît totalement du bain métallique lorsque la coupellation est sur le point de se terminer (figure 166). Ainsi, au-delà de 97,4 % il n'en subsiste plus que quelques ppm dans l'argent. Finalement, et comme attendu, l'or présente un comportement différent de celui des autres éléments qui résulte de la nature particulière de ce métal qui cède très difficilement des électrons⁶³⁵. Au cours de la coupellation, le bain métallique est régulièrement enrichi en or à la faveur de l'élimination des autres oxydes (figure 166).

⁶³⁵ Le mercure, mesuré en faibles quantités dans les plombs d'œuvre, présente un comportement similaire à celui de l'or durant la coupellation bien qu'il soit oxydable. Dans les conditions de pression et de température du procédé médiéval de coupellation, la variation d'enthalpie standard nécessaire à son oxydation n'est donc pas atteinte.

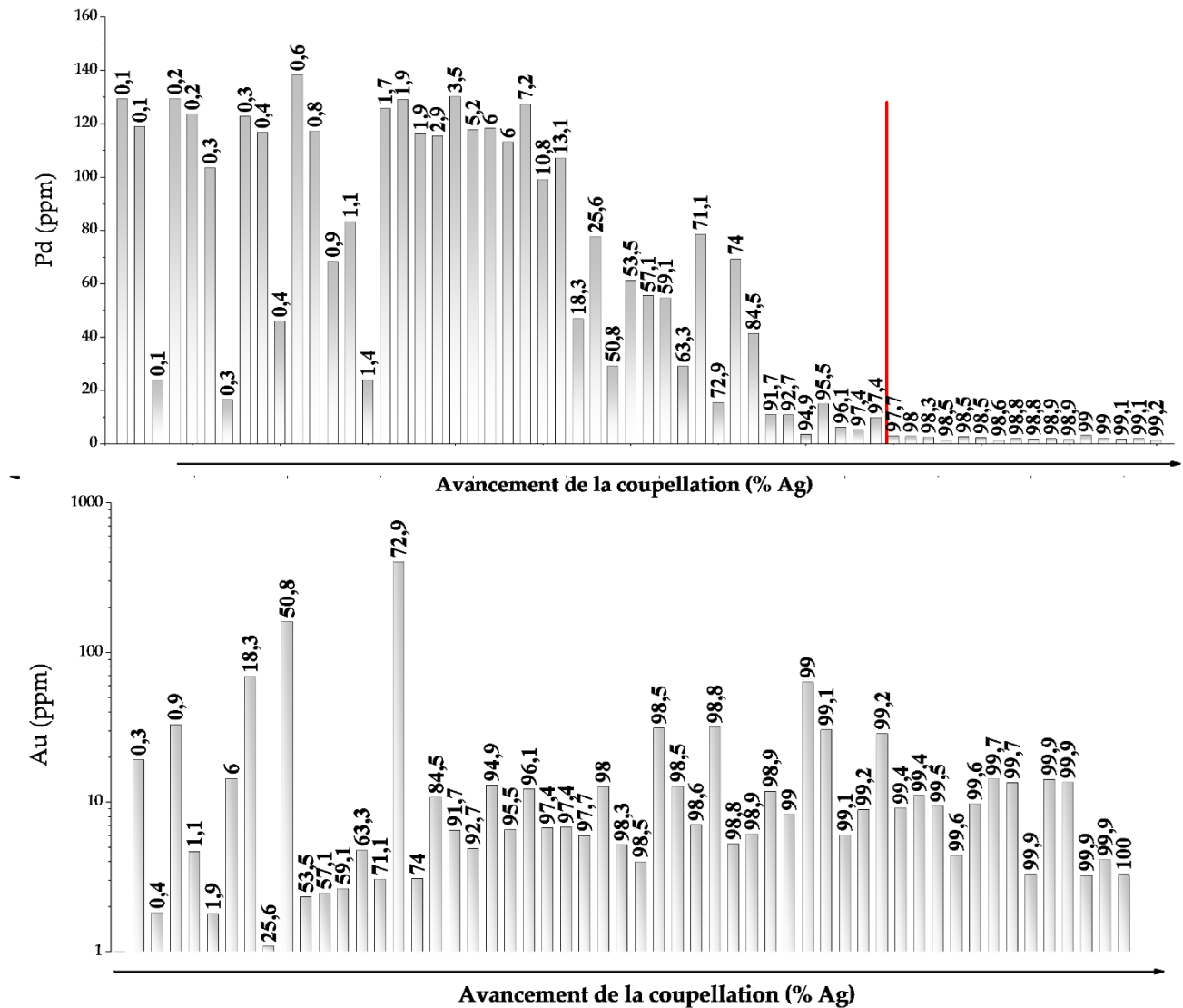


Figure 166 : Évolution des teneurs en palladium et en or au cours de la coupellation. Les teneurs en argent figurent au-dessus des colonnes : elles permettent d'apprécier l'avancement de la coupellation. Le seuil est matérialisé par une ligne rouge.

L'étude du comportement des éléments-traces au cours de la coupellation permet de dresser un bilan particulièrement utile qui nourrit le débat sur l'interprétation des analyses élémentaires réalisées sur des mobiliers en argent. De manière plus large, nos résultats contribuent aux réflexions sur l'usage des teneurs en éléments-traces dans le cadre des études de provenance.

Le premier enseignement concerne la dépendance entre les teneurs finales en éléments-traces dans l'argent et l'état d'avancement de la coupellation. Il est ainsi possible de proposer des seuils au-dessus desquels certains éléments sont éliminés au

cours du processus d'extraction. Le second enseignement concerne le nombre d'éléments-traces métalliques susceptibles de subsister à l'issue de la coupellation. La liste est réduite et se limite à l'or et au mercure si l'affinage est particulièrement poussé (teneur en argent supérieure à 97,4 %). Pour des argents moins purs, le bismuth, le rhodium et le palladium peuvent subsister. Enfin, une quantité résiduelle de cuivre et de zinc a été observée, quelle que soit la pureté de l'argent produit.

La dépendance au procédé métallurgique des teneurs en éléments-traces incite donc à considérer avec prudence les études de provenance de l'argent fondées uniquement sur les analyses élémentaires. Il convient d'intégrer à la réflexion l'influence du procédé métallurgique, mais également d'autres données telles que les rapports isotopiques du plomb qui ne sont pas affectés au cours de l'extraction du métal⁶³⁶.

4.2.4.2. La réutilisation des soles de coupellation usagées : pratique du resurfaçage

L'analyse élémentaire des billes métalliques ainsi que l'étude de leur répartition spatiale à la surface des casses de coupellation ont permis d'améliorer significativement la compréhension du procédé métallurgique tel qu'il était pratiqué à Castel-Minier. La réalisation de coupes mises en résine et polies offre l'opportunité d'affiner l'étude spatiale des billes métalliques en étudiant une troisième dimension, c'est-à-dire l'épaisseur des casses de coupellation.

Les résultats mettent en évidence deux phénomènes à l'origine de l'incorporation de billes métalliques dans la cendre au cours de la coupellation. Le premier est imputable aux fissures et aux porosités présentes dans la sole et dont les dimensions sont suffisamment grandes pour permettre le piégeage par gravité de billes métalliques (figure 167). Ces dernières se répartissent à proximité de la surface et leur pénétration dans la sole n'excède jamais plus d'un centimètre. L'analyse

⁶³⁶ Sous réserve que du plomb exogène n'ait pas été introduit dans la chaîne opératoire.

élémentaire par LA-ICP-MS a permis de caractériser différents alliages plomb-argent dont la composition dépend de l'état d'avancement de la coupellation au moment du piégeage.

Les défauts de conception de la sole qui sont à l'origine de pertes de métal peuvent être réduits en améliorant le tamisage de la cendre et son compactage ainsi que la phase de séchage. Pour autant, le piégeage de métal dans la sole au cours de la séparation du plomb et de l'argent n'est pas rédhibitoire. En effet, dans l'optique d'un recyclage des casses de coupellation durant la réduction de la galène – partiellement pratiqué à Castel-Minier comme l'atteste l'association de ce sous-produit et de minerai dans le bâtiment 10 – les métaux qu'elles contiennent sont récupérés et forment une partie du plomb d'œuvre.

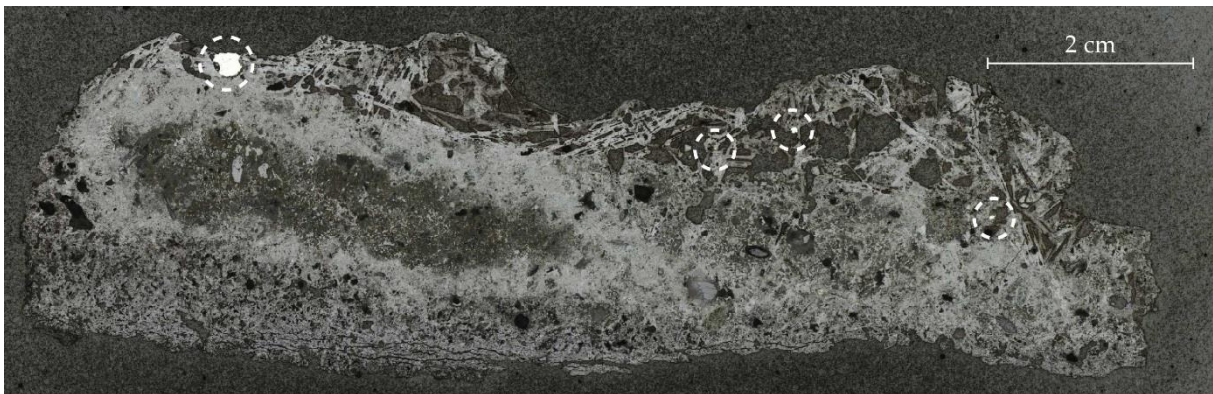


Figure 167 : Vue en coupe de la casse de coupellation CL 11957 et identification de billes métalliques de différentes tailles (image MEB).

Le second phénomène à l'origine du piégeage du métal dans les soles de coupellation se distingue du premier par la localisation des billes. En effet, ces dernières ne sont pas circonscrites à la proche surface, mais disséminées dans toute l'épaisseur des casses de coupellation. Le piégeage du métal si profondément ne peut résulter uniquement des fissures présentes dans la sole et il faut envisager une autre explication. Des éléments de réponse sont fournis par l'étude spatiale des billes métalliques. Dans certains cas, leur distribution n'est pas aléatoire, mais semble individualiser une interface (figure 168). Cette dernière marque la limite entre deux

zones imprégnées d'oxydes de plomb dont la formation n'est pas synchrone comme le suggèrent la taille et la direction de croissance des cristaux de litharge. Il s'agit en réalité de deux soles usagées superposées qui correspondent à deux coupellations distinctes. La première opération a permis d'obtenir de l'argent partiellement affiné qui a été prélevé à la surface de la sole. Néanmoins, quelques billes métalliques de petite taille subsistent : elles matérialisent la partie supérieure de la première sole. Cette dernière a ensuite été resurfaçée avec de la cendre afin de conduire une seconde coupellation, à l'issue de laquelle l'assemblage des deux soles usagées a été prélevé.

L'hypothèse d'un resurfaçage des soles usagées afin d'y conduire une seconde coupellation a été testée expérimentalement afin de discuter sa faisabilité et l'efficacité de la séparation des métaux⁶³⁷. Des résultats positifs ont été obtenus avec à chaque fois la production de masses d'argent plus ou moins pures. Surtout, le faciès des casses expérimentales est similaire aux exemplaires archéologiques. En particulier, la délimitation de l'interface entre les soles est clairement matérialisée par les billes métalliques (figure 168).

Le resurfaçage des soles de coupellation présente plusieurs intérêts. Tout d'abord, il permet de s'affranchir de la réfection totale du foyer, notamment de la structure, souvent confectionnée en argile, qui reçoit la cendre. En outre, le système de ventilation n'a pas besoin d'être déplacé. Ensuite, la sole usagée laissée en place constitue une préforme sur laquelle il est relativement facile de s'appuyer pour en façonner une nouvelle. À notre connaissance le réemploi des soles de coupellation usagée n'est documenté qu'à Castel-Minier pour la période médiévale. Pour les périodes plus anciennes, seul l'atelier lydien de Sardes pourrait témoigner d'une démarche similaire. En effet, parmi les nombreuses soles de coupellation usagées découvertes, certaines se superposent à de plus anciennes, ce qui suggère un réemploi⁶³⁸.

⁶³⁷ Gauthier J., Flament J., Méaudre J.-C., Sarah G., Silenzi F. et Téreygeol F., « L'affinage au sol à moyenne échelle... », *op. cit.*, p. 131-137.

⁶³⁸ Ramage A. et Craddock P. T., *King Croesus' gold...*, *op. cit.*, p. 81.

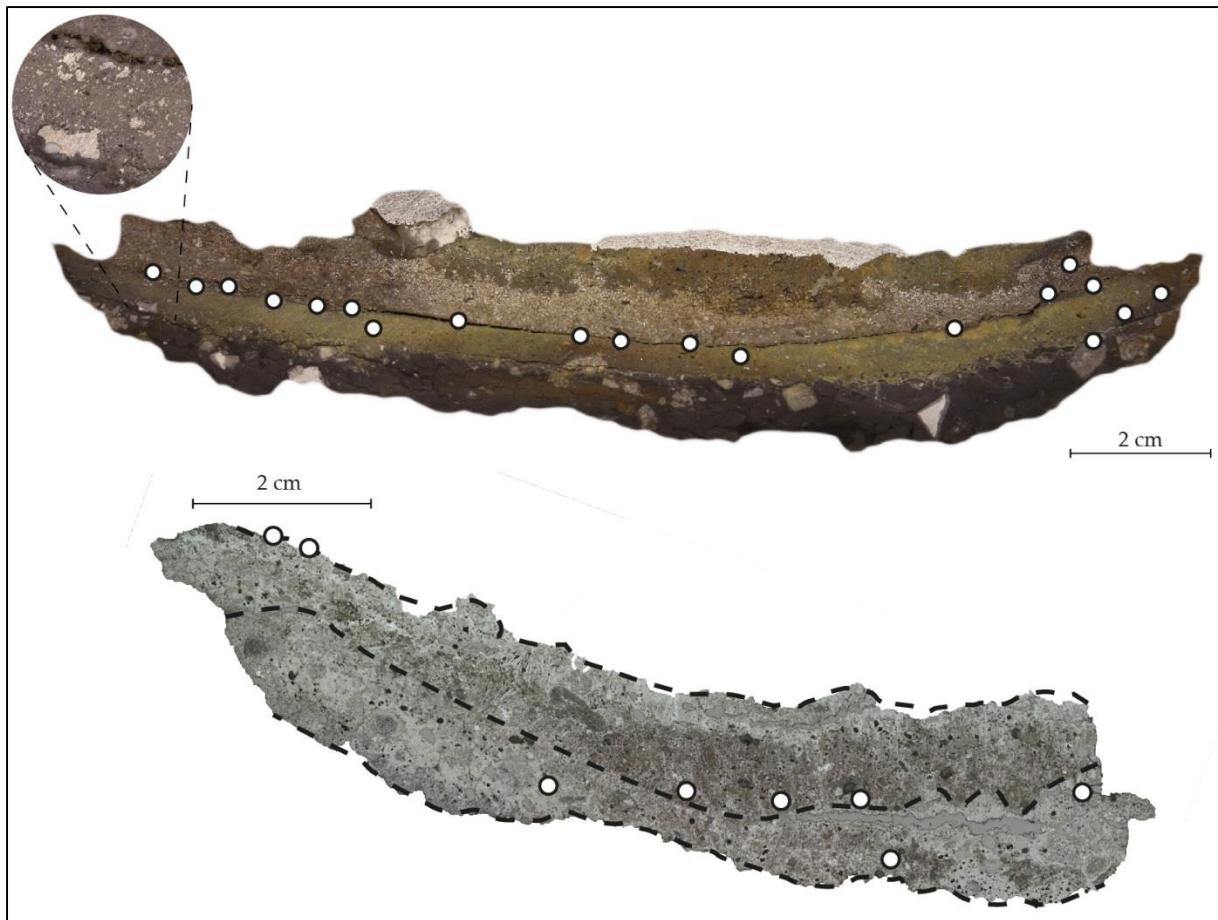


Figure 168 : Distribution des billes métalliques dans l'épaisseur d'une casse de coupellation expérimentale (haut) et archéologique (bas, CL 11252). Sur cette dernière, les lignes en pointillés matérialisent les deux soles usagées.

4.2.5. La question des litharges : vers un autre procédé de coupellation ?

4.2.5.1. Production de la litharge et échelle de la coupellation

Les expérimentations de coupellation réalisées d'après les vestiges archéologiques ont apporté un résultat essentiel qui concerne la gestion de la litharge. Il est en effet apparu que ce sous-produit est totalement absorbé par la cendre au cours de l'opération rendant ainsi superflu son prélèvement selon une des méthodes présentées ci-dessus⁶³⁹. Néanmoins, ces conclusions se heurtent à un problème de taille puisqu'un corpus conséquent de litharge a été mis au jour lors des fouilles archéologiques de Castel-Minier. Cette découverte pose la question des modalités de

⁶³⁹ *Supra* p. 445.

production de ces oxydes qui sont d'ordinaire intimement liés à la coupellation. Il est donc vraisemblable que ce procédé existait à des échelles différentes sur le site avec d'une part une coupellation à moyenne échelle produisant une quantité de litharge limitée et absorbée par la sole et d'autre part une coupellation à grande échelle générant davantage de litharge. Dans le second cas, la sole ne peut pas absorber la totalité de l'oxyde de plomb dont une partie doit être prélevée. La mise en évidence de plusieurs classes de soles de coupellation selon leur volume utile⁶⁴⁰ renforce cette hypothèse qui est confirmée par l'étude archéométrique des litharges.

Le corpus de litharges de Castel-Minier se compose de 37 individus représentant une masse totale de 2,2 kg dont 1,0 kg provient d'un unique bloc⁶⁴¹. La litharge s'identifie visuellement par sa couleur rouge et la présence de cristaux qui forment parfois des lattes allongées (figure 170). En outre, la densité élevée de cet oxyde composé en moyenne de 93,4 % de plomb est un facteur discriminant pertinent. Les morphologies des litharges sont variées avec toutefois la prédominance des fragments de plaques et des individus informes (tableau 35).

Morphologie	Effectif	Masse (g)
Bloc	6	1283,7
Plaque	14	594,2
Informe	10	98,6
Culot	1	51,6
Empreinte	4	178,8
Bille	2	14,9

Tableau 35 : Classification morphologique du corpus de litharge de Castel-Minier.

⁶⁴⁰ *Supra* p. 466.

⁶⁴¹ La couverture photographique de l'ensemble du corpus figure dans l'annexe 9.

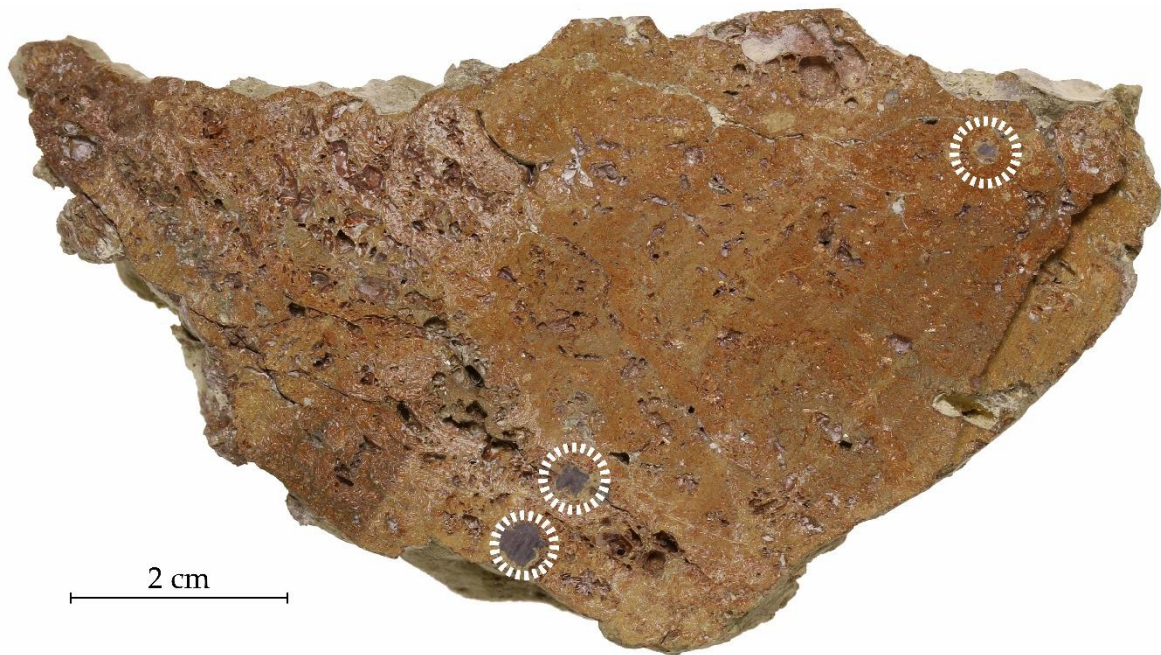


Figure 169 : Coupe du bloc de litharge CL 11244. Les cercles en pointillés indiquent la localisation des billes métalliques.

Les plaques de litharges peuvent résulter d'un prélèvement au râble à la surface du bain métallique au cours de la coupellation. Les petites billes proviennent de projections lors de la manipulation de la litharge liquide, par exemple lors de son écoulement en dehors du foyer de coupellation. Quant aux blocs de litharge, ils peuvent indiquer un prélèvement par débordement ; l'oxyde de plomb s'accumule alors en lits successifs à l'extérieur de la structure de chauffe. L'observation de la coupe d'un bloc de litharge (CL 11244, figure 169) a permis d'identifier des billes constituées d'un alliage de plomb et d'argent. L'individualisation de ces métaux au sein de l'oxyde de plomb témoigne bien du prélèvement de la litharge à la surface du bain de coupellation. Malgré les précautions prises par les métallurgistes, une faible proportion des métaux en cours de séparation a pu être entraînée avec la litharge. La découverte d'un individu présentant une empreinte caractéristique d'un écoulement (figure 170) soutient cette dernière hypothèse. Il s'agit d'une masse de litharge qui s'est solidifiée alors qu'elle était en cours d'écoulement. La partie supérieure – informe – se trouvait à l'air libre tandis que la partie inférieure a moulé un probable canal. La direction de l'écoulement de l'oxyde de plomb liquide montre qu'il a subi un soutirage

depuis un bain exposé à l'air libre. Cette observation est compatible avec un procédé de coupellation par débordement.

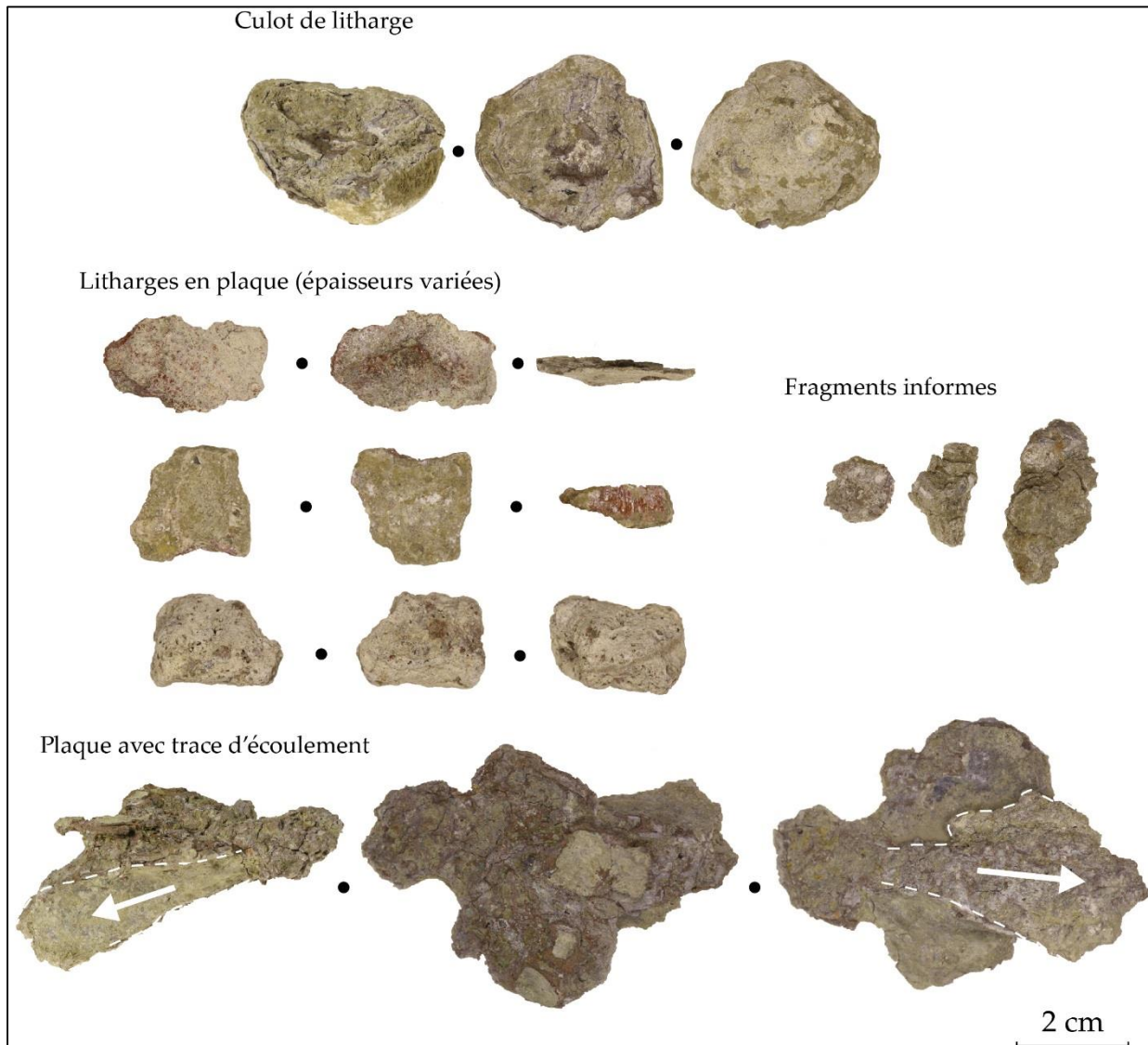


Figure 170 : Typologie des litharges. Culot (CL 11231), plaques (CL 12691, CL 12707 et CL 11897), fragments informes (CL 10924) et empreinte (CL 10831).

4.2.5.2. Répartition spatiale du mobilier

La répartition du mobilier sur le site révèle la présence de litharge dès le début de l'exploitation à la fin du XIII^e siècle (figure 171). La coupellation à grande échelle est donc un procédé déjà opérationnel à cette période. À l'exception de la plate-forme 1, les litharges ont été découvertes dans des contextes d'occupation. Leur présence

dans le bâtiment 3 et sur la plate-forme 5 permet d'identifier ces structures à des espaces destinés à la coupellation ou à la valorisation des sous-produits qu'elle génère. Ce dernier point est discuté ci-dessous⁶⁴².

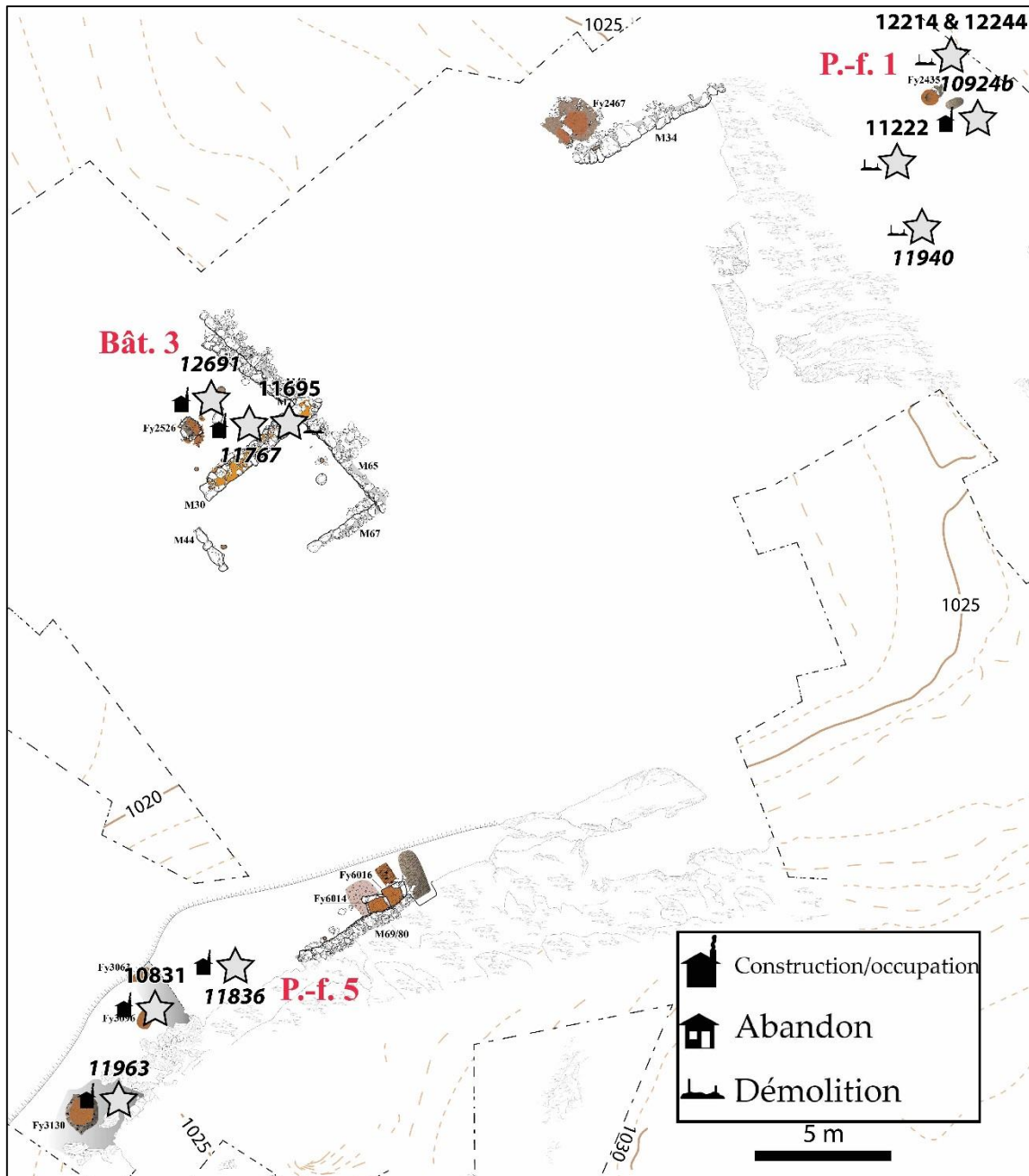


Figure 171 : Localisation des litharges dans les structures de la fin du XIII^e siècle.

⁶⁴² *Infra* p. 522

Dans les structures du XIV^e siècle, la distribution de la litharge permet d'améliorer la compréhension fonctionnelle des espaces de travail (figure 173). Ainsi, il apparaît que l'oxyde de plomb se concentre principalement sur le Plat-du-Roi, la plate-forme 4 et le bâtiment 10. Nous avons déjà évoqué la relation privilégiée qu'entretient le Plat-du-Roi avec la coupellation notamment à travers l'abondant corpus de soles usagées découvert dans cet espace. Il est donc probable que la coupellation en grand s'y déroulait.

Le cas du bâtiment 10 est quelque peu différent puisque les indices de coupellation sont rares dans cet espace. Sa fonction est en partie destinée à la transformation de la galène comme l'a démontré l'étude du four Fr72⁶⁴³. En revanche, cette structure de chauffe n'est pas la seule découverte dans le bâtiment 10 puisqu'elle fait face au four Fr62 à sole suspendue (figure 172). La découverte d'un dépôt de litharge à proximité de cette structure semble indiquer la pratique d'un recyclage de ce sous-produit plutôt que celle de la coupellation. Néanmoins, on ne peut totalement exclure l'hypothèse d'une activité de séparation du plomb et de l'argent dans le bâtiment 10 puisqu'une élévation en granite fortement arasée (Fr42), disposée dans le mur est, pourrait s'apparenter aux vestiges d'un four de coupellation d'autant plus qu'une coulure de litharge est visible sur cette structure (figure 172).

Quant aux litharges découvertes sur la plate-forme 4, elles ne sont associées ni à une structure de chauffe, ni à un corpus important de casses de coupellation. Nous envisageons donc un remisage de ces sous-produits avant un éventuel recyclage.

⁶⁴³ *Supra* p. 399.



Figure 172 : À gauche, four Fr62 à sole suspendue et dont un piédroit réemploie un fragment de meule. À droite, hypothétique four de coupellation Fr42 avec en incrustation la coulée de litharge. Ces deux structures de chauffe se trouvent dans le bâtiment 10.

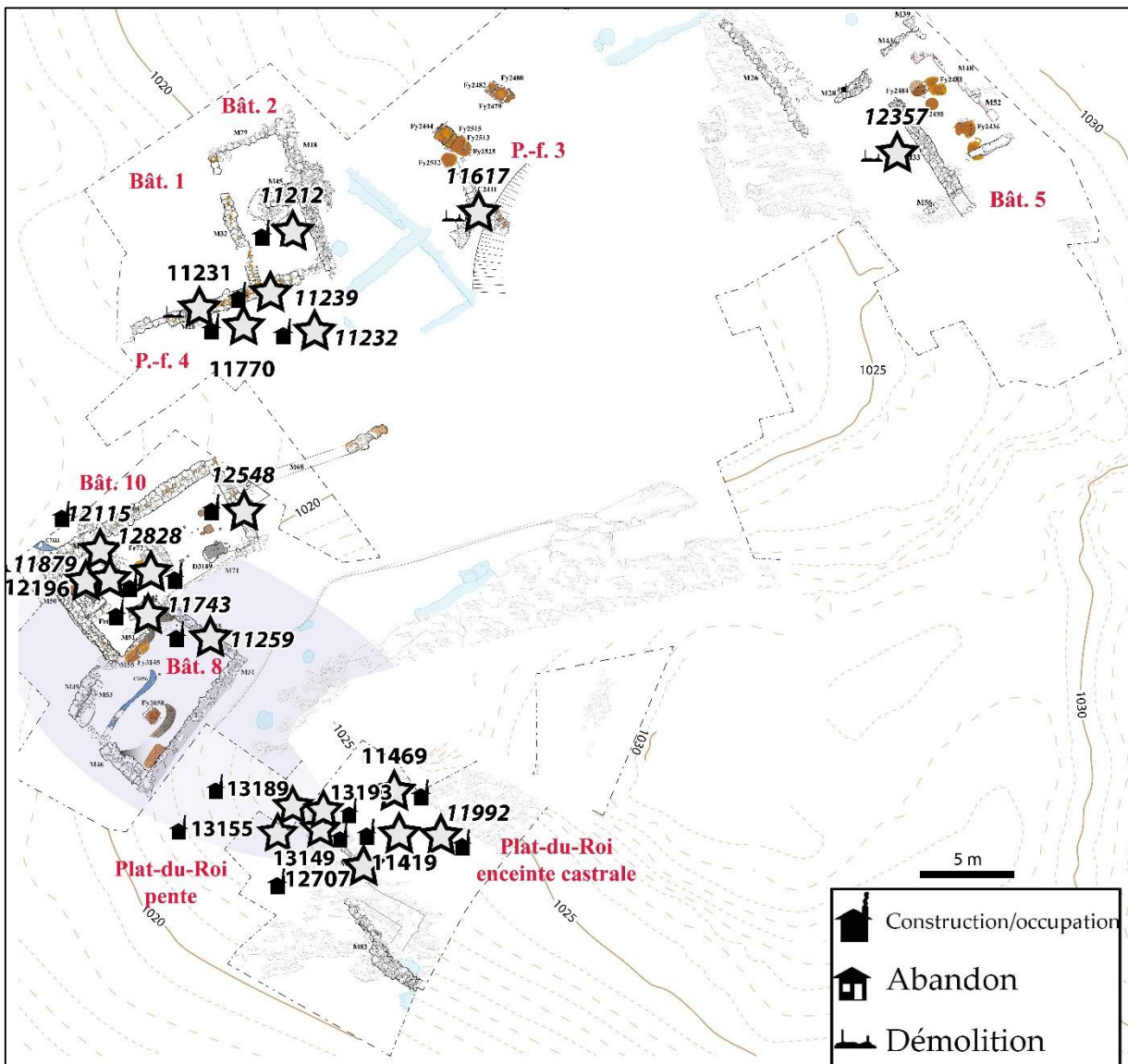


Figure 173 : Localisation des litharges dans les structures du XIV^e siècle.

Les litharges sont plus rares dans les structures de la première moitié du XV^e siècle (figure 174). Cette période est marquée par le ralentissement des activités métallurgiques non-ferreuses au profit de la sidérurgie à laquelle se convertit progressivement le site. Seuls quelques individus découverts sur le Plat-du-Roi et dans le bâtiment 6 attestent de la survivance du procédé de coupellation à grande échelle.

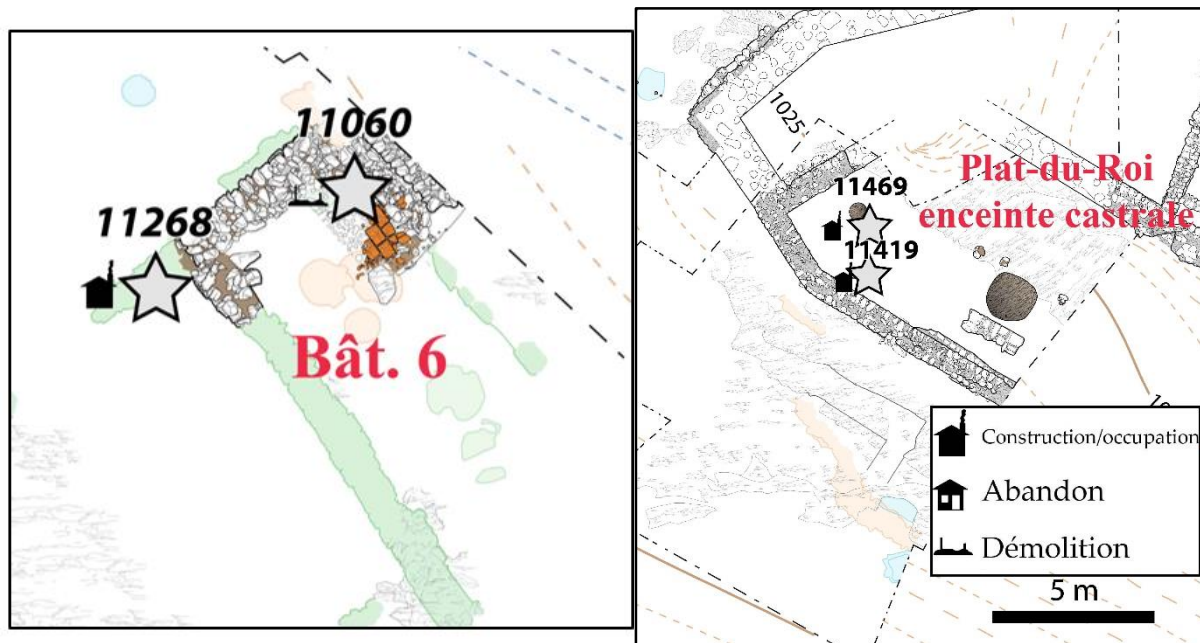


Figure 174 : Localisation des litharges dans les structures de la première moitié du XV^e siècle.

4.2.5.3. Analyse élémentaire des litharges

L'ensemble des litharges découvertes à Castel-Minier a fait l'objet d'analyses élémentaires par LA-ICP-MS dont les résultats sont présentés dans le tableau 36. Les principaux éléments-traces présents dans l'oxyde de plomb sont l'argent, l'antimoine, le cuivre et le zinc. Les concentrations en métal blanc sont instructives puisqu'elles permettent de discuter l'efficacité du prélèvement de la litharge. Ainsi, la distribution des teneurs en argent au sein du corpus est bimodale avec un premier groupe, le plus important en termes d'individus, pour lequel les concentrations mesurées sont systématiquement inférieures à 100 ppm tandis que pour le second, les valeurs sont

comprises entre 200 et 500 ppm (figure 175). Ces teneurs sont relativement faibles et dénotent un prélèvement de la litharge particulièrement efficace qui minimise les pertes en argent.

Les comparaisons avec les analyses antérieures de litharge médiévales mettent en évidence des gammes de concentrations semblables. Ainsi, les analyses de sept individus provenant du site métallurgique de Huneberg, situé dans le district du Harz et actif à la fin du XII^e siècle, mettent en évidence des teneurs maximales en argent de 100 ppm⁶⁴⁴. Dans les Monts Métallifères de Saxe, le site de Dippoldiswalde, actif dans la seconde moitié du XIII^e siècle, a livré des litharges qui ont fait l'objet d'analyses par XRF. Malgré les réserves que l'on peut émettre quant à la validité des teneurs en éléments-traces déterminées par cette méthode, les analyses révèlent la présence d'argent (300 ppm) dans un seul des cinq individus étudiés⁶⁴⁵. Aux périodes plus anciennes, des teneurs avoisinant les 100 ppm ne sont pas rares dans les litharges⁶⁴⁶.

⁶⁴⁴ Asmus B., *Medieval Copper Smelting...*, *op. cit.*, p. 352. L'auteur cite des analyses anciennes de Kronz sans indiquer la méthode utilisée pour déterminer les compositions élémentaires.

⁶⁴⁵ Hrubý P., Malý K. et Schubert M., « Metallurgische Funde aus der Bergbausiedlung in Dippoldiswalde... », *op. cit.*, p. 249.

⁶⁴⁶ Pernicka E., « Erzlagerstätten in der Ägäis und ihre Ausbeutung im Altertum: Geochemische Untersuchungen zur Herkunftsbestimmung archäologischer Metallobjekte », *Jahrbuch d. Romisch-Germanischen Zentralmuseums Mainz*, 34, 1987, p. 684.

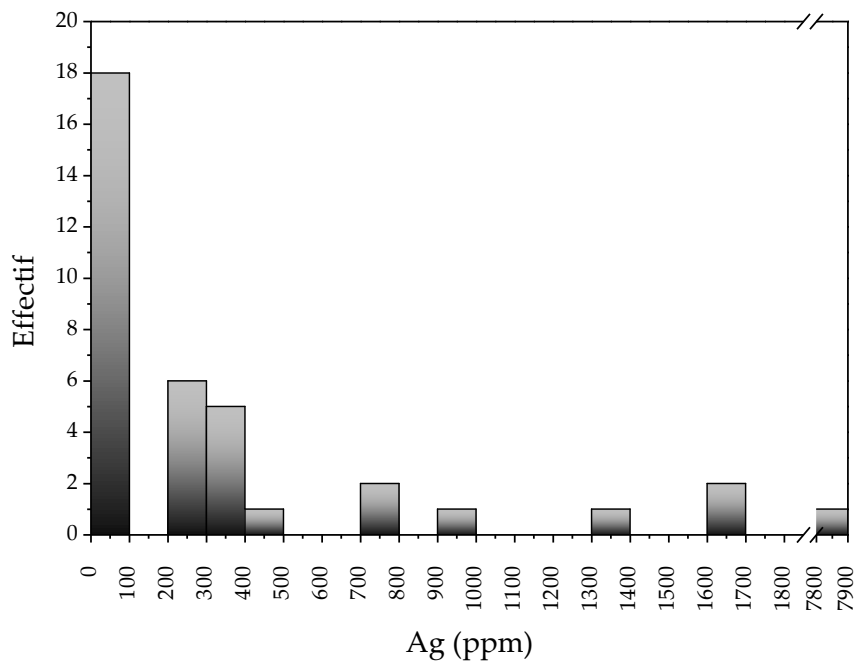


Figure 175 : Histogramme représentant la distribution des teneurs en argent dans les litharges.

Sept litharges se démarquent par des teneurs en argent plus élevées qui varient entre 736 et 7891 ppm. Ces valeurs significatives illustrent les difficultés de prélèvement de l'oxyde de plomb au cours de la coupellation et sont préjudiciables à la production d'argent métallique. Le métallurgiste doit en effet veiller à ne retirer que la pellicule de litharge qui se forme à la surface du bain métallique. Ses gestes, qu'il s'agisse du percement d'un canal d'écoulement ou d'un tirage au râteau, doivent être exécutés avec précision dans des conditions de travail pénibles causées par le rayonnement thermique du foyer. Malgré plusieurs précautions, une quantité d'argent peut être incorporée dans la litharge. L'augmentation du risque est corrélée à l'état d'avancement de la coupellation. La quantité d'oxyde de plomb formée diminue alors tandis que le bain métallique est enrichi en argent. Si le prélèvement de la litharge n'est pas circonscrit à la surface du bain, une quantité significative de métal blanc peut être perdue.

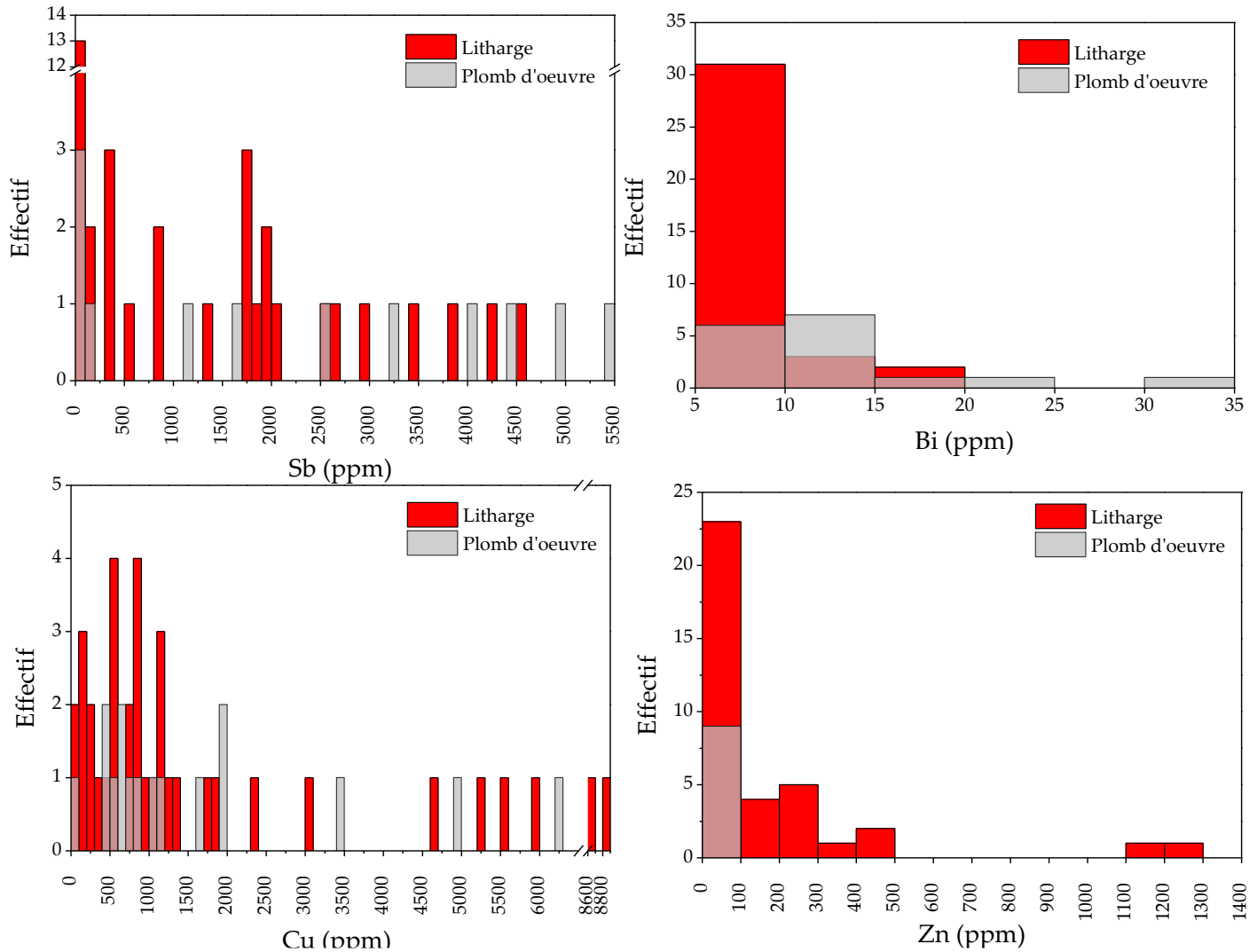


Figure 176 : Histogramme représentant la distribution des teneurs en antimoine, bismuth, cuivre et zinc dans les litharges et les plombs d'œuvre. Pour les besoins de la comparaison, les valeurs données pour les litharges ont été recalculées. Pour le bismuth une litharge et un plomb d'œuvre présentent des teneurs hors du graphique (respectivement 120 et 245 ppm).

Parmi les autres métaux présents dans les litharges figure l'antimoine. Ce métal est facilement oxydé au cours de la coupellation et accompagne l'oxyde de plomb qui pénètre dans la sole en cendre ou qui est tiré hors du four. En outre, l'amplitude des teneurs en antimoine des litharges correspond en grande partie à celles des plombs d'œuvre (figure 176). Un comportement similaire a été observé pour le cuivre⁶⁴⁷ (figure 176).

⁶⁴⁷ Bien que nous ayons montré *supra* p. 500 qu'une certaine proportion de cuivre peut subsister dans l'argent produit à l'issue de la coupellation, cette quantité est faible comparée à la teneur initiale en cuivre dans le plomb d'œuvre. La majeure partie du cuivre est donc passée dans la litharge.

En revanche, la comparaison des teneurs en bismuth des litharges et des plombs d'œuvre met en évidence des différences significatives (figure 176). En effet, la majorité des litharges contient moins de 10 ppm de bismuth alors que ce métal peut être présent en quantités plus importantes dans certains plombs d'œuvre. Cette dissimilarité est à mettre en relation avec le comportement du bismuth au cours de la coupellation que nous avons explicité précédemment⁶⁴⁸. En effet, l'élimination du bismuth se produit à la fin de la coupellation. Ce métal pénètre dans la cendre tardivement et/ou est évacué avec les derniers fragments de litharge. Ainsi, la teneur en bismuth de ces sous-produits dépend du moment auquel ils sont formés. Plus précisément, des teneurs en bismuth et en argent élevées indiquent un prélèvement de la litharge à la fin de la coupellation. Seuls trois individus correspondent à ce cas de figure (figure 177). Ce constat de rareté peut indiquer un recyclage préférentiel des litharges formées à la fin de la coupellation d'autant plus qu'elles contiennent des teneurs en argent significatives pouvant atteindre le pour cent.

Les traités métallurgiques de l'époque moderne, en particulier celui d'Agricola, montrent clairement que les métallurgistes avaient conscience de la nature et de la composition différentielles des litharges selon l'état d'avancement de la coupellation⁶⁴⁹. Ainsi, les premières litharges sont qualifiées d'*Abzug* : elles contiennent principalement du cuivre, du fer, du zinc et des sulfures non transformés. Les *Abstrich* se forment ensuite : il s'agit de litharges contenant de l'antimoine et de l'arsenic. Dans un troisième temps, une fois les *Abzug* et les *Abstrich* éliminés, la litharge seule se forme et les impuretés qu'elle contient sont à l'état de traces⁶⁵⁰.

⁶⁴⁸ *Supra* p. 494

⁶⁴⁹ Hoover H. C. et Hoover L. H., *Georgius Agricola De re Metallica...*, *op. cit.*, p. 465 et suivantes.

⁶⁵⁰ Cette distinction entre les sous-produits de la coupellation se retrouve dans les traités métallurgiques du XIX^e siècle : Rivot M. L. E., *Principes généraux du traitement des minerais métalliques. Traité de métallurgie théorique et pratique*, tome 2, Dalmont et Dunod, Paris, 1860, p. 531 et suivantes ; Schnabel C., *Traité théorique et pratique de métallurgie cuivre-plomb-argent-or*, Librairie polytechnique Baudry et C^{ie}, Paris, 1896, p. 386 et suivantes.

Les teneurs en zinc sont significatives dans les litharges (figure 176). Surtout, elles s'accordent mal avec les valeurs observées dans les plombs d'œuvre qui ne dépassent jamais la centaine de ppm. L'origine de certaines litharges est donc vraisemblablement liée à la coupellation de plombs d'œuvre contenant des quantités de zinc élevées qui n'ont, en l'état des recherches archéologiques, pas été caractérisés. La production de tels plombs est envisageable puisque certaines galènes contiennent des inclusions de sphalérite⁶⁵¹.

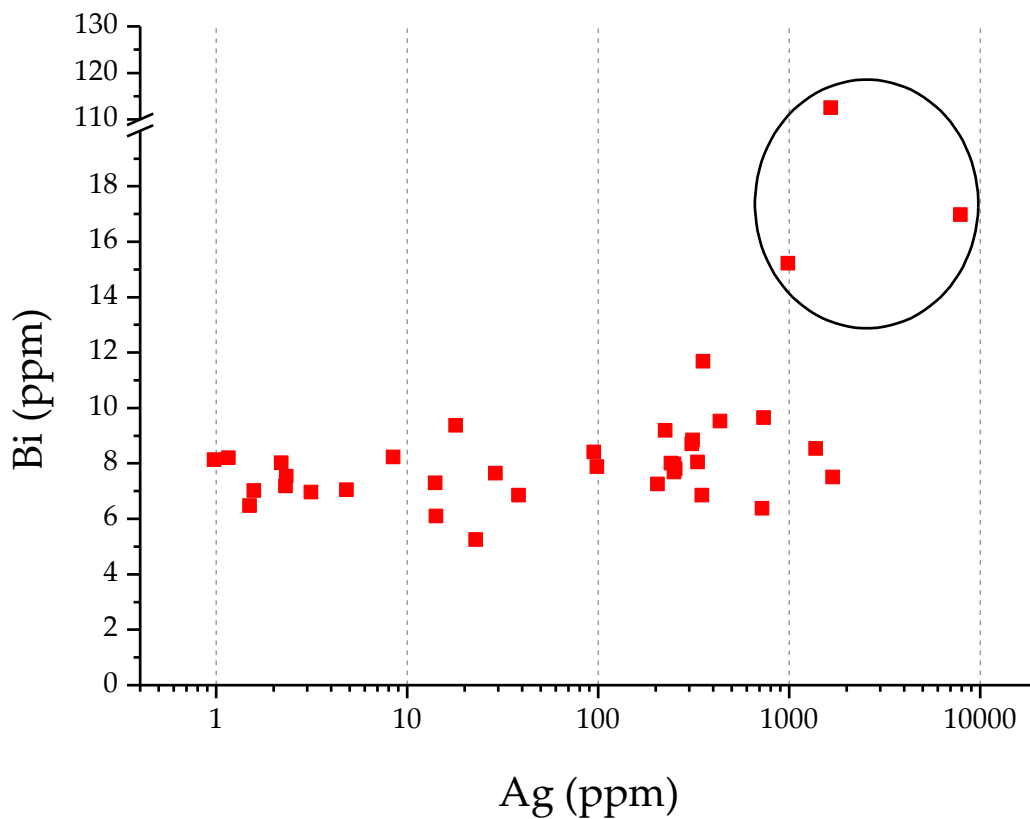


Figure 177 : Représentation des teneurs en argent et en bismuth des litharges. Le cercle noir contient les litharges prélevées à la fin de la coupellation.

⁶⁵¹ *Supra* p. 305.

CL	Structure	Ni	Cu	Zn	As	Pd	Ag	Cd	Sn	Sb	Au	Tl	Pb	Bi
11231	Bât. 1	4,8	968	2,9	-	-	355	-	-	1284	-	2,7	93,5 %	11,7
11212	Bât. 2	-	265	-	23	-	1695	-	-	4303	-	3,0	93,1 %	7,5
12691	Bât. 3	-	707	26	-	-	8,5	-	-	14	0,5	2,5	93,7 %	8,2
11767	Bât. 3	-	539	2	-	-	205	-	-	2479	-	2,4	93,4 %	7,3
11695	Bât. 3	5,0	143	5,7	23	-	99	-	-	1643	-	2,8	93,6 %	7,9
11060	Bât. 6	4,1	12	2,8	-	-	435	-	-	7,4	-	2,7	93,7 %	9,5
11409	Bât. 7	-	412	1,1	-	-	312	-	-	3269	-	3,0	93,3 %	8,8
11259	Bât. 8	12	490	269	7,6	-	95	-	-	8,3	-	2,7	93,7 %	8,4
12196	Bât. 10	34	478	97	5,6	-	2,2	-	1,5	157	-	2,8	93,7 %	8,0
12548	Bât. 10	136	847	402	13	-	4,8	-	0,7	126	-	2,4	93,6 %	7,1
11879	Bât. 10	47	726	276	15	-	1,0	-	1,7	318	-	2,5	93,6 %	8,1
12828	Bât. 10	7,9	4888	17	-	-	1,2	-	-	24	3,4	2,7	93,3 %	8,2
12115	Bât. 10	101	751	15	6,9	-	2,3	-	-	10	-	2,6	93,7 %	7,5
11268	Bât. 11	43	5554	278	21	-	3,1	-	-	559	-	2,6	93,1 %	7,0
12357	Bât. 12	8,8	785	-	15	-	241	-	-	835	-	2,4	93,6 %	8,0
11214	P.-f. 1	15	8305	401	20	-	14	-	0,5	1677	1,1	2,6	92,7 %	7,3
10924b	P.-f. 1	-	825	2,9	54	-	254	-	-	2435	-	2,7	93,4 %	7,8
10940	P.-f. 1	-	1207	6,8	-	-	1652	-	-	3,9	0,5	3,1	93,5 %	112
11222	P.-f. 1	3,2	353	103	14	-	250	-	0,6	1733	85	2,7	93,5 %	8,0
11244	P.-f. 1	7,1	4332	110	8,7	-	2,3	-	-	787	-	2,7	93,2 %	7,2
11617	P.-f. 3	-	252	-	41	-	332	-	-	1824	-	2,7	93,5 %	8,0
11239	P.-f. 4	16	1105	350	14	-	38	1,5	5,9	1880	-	2,6	93,4 %	6,9
12720 1	P.-f. 4	191	6136	10	31	-	225	-	-	4003	-	2,9	92,6 %	9,2
12720 2	P.-f. 4	146	2892	128	41	-	736	-	-	3566	-	2,9	92,9 %	9,7
11232	P.-f. 4	-	495	7,5	-	-	988	-	-	8,5	-	2,3	93,6 %	15
11770	P.-f. 4	8,8	1733	259	19	-	1,6	-	2,7	284	-	2,6	93,5 %	7,0
11836	P.-f. 5	3,7	1041	37	-	-	349	-	-	1868	-	2,4	93,4 %	6,9
11963	P.-f. 5	3,5	1275	-	42	-	1381	-	-	6223	-	2,8	92,9 %	8,5
10831	P.-f. 5	-	774	-	-	-	250	-	1,6	1599	-	2,7	93,5 %	7,7

CL	Structure	Ni	Cu	Zn	As	Pd	Ag	Cd	Sn	Sb	Au	Tl	Pb	Bi
11419	Plat-du-Roi enceinte castrale_2	14	5209	1135	34	-	29	3,6	1,7	340	0,3	2,5	93,1 %	7,7
11469	Plat-du-Roi enceinte castrale_2	5,0	1032	-	11	-	309	-	-	2785	-	2,7	93,3 %	8,7
11992	Plat-du-Roi enceinte castrale_1	2,1	176	-	-	-	7891	-	-	17	0,5	2,6	92,9 %	17,0
12707	Plat-du-Roi pente	-	134	42	-	-	18	-	-	11	2,5	2,4	93,7 %	9,4
13155	Plat-du-Roi pente	8,0	8120	270	5,5	-	14	-	0,7	32	-	2,2	92,9 %	6,1
13193	Plat-du-Roi pente	-	54	11	-	-	723	-	-	26	0,4	2,2	93,7 %	6,4
13189	Plat-du-Roi pente	6,8	1668	1097	-	-	1,5	-	0,8	73	22	2,1	93,5 %	6,5
13149	Plat-du-Roi pente	2,3	2165	49	-	-	23	-	-	10	1,9	2,1	93,6 %	5,3

Tableau 36 : Résultats des analyses LA-ICP-MS des litharges. Sauf mention contraire, les valeurs sont en ppm. Pour chaque individu, la composition moyenne a été calculée à partir de trois analyses.

4.2.5.4. Revivification de la litharge

La litharge est un sous-produit de la chaîne opératoire de l'argent qui peut faire l'objet d'une valorisation pour diverses applications. Ainsi, l'oxyde de plomb constitue un matériau de choix pour la réalisation de glaçures sur les céramiques ou encore la confection de verre⁶⁵². C'est également un produit dont les vertus cosmétiques et médicinales ont été exploitées. Durant certaines périodes, la litharge a fait l'objet d'un réemploi intensif : c'est le cas par exemple au IV^e siècle av. J.-C. dans la région du Laurion où ce matériau est broyé et lavé dans la laverie de Thorikos avant d'être employé comme flux dans les fourneaux de réduction des minerais non-ferreux ou comme matière première à la confection de plâtres ou de préparations médicinales⁶⁵³.

À Castel-Minier, plusieurs indices suggèrent une production de plomb désargenté à partir de la litharge. Il s'agit tout d'abord des sources écrites et en particulier du mémoire de Paolo Girardi qui mentionne, outre celle de l'argent, une production de plomb dont le vicomte de Couserans se réserve le seizième⁶⁵⁴. Ensuite, au sein du corpus des plombs archéologiques de Castel-Minier, le plomb d'œuvre ne représente que 23 % des individus. La majorité d'entre eux présente en effet des teneurs en argent inférieures au seuil de 800 ppm. Pour autant, ces plombs pauvres en argent peuvent également provenir de galènes peu argentifères qui n'ont pas subi de coupellation. Bien que cette hypothèse soit possible, elle suppose que les Anciens aient disposé d'une technique analytique, telle que l'essai par voie sèche, pour contrôler le

⁶⁵² Les fouilles du quartier Sainte-Barbe de Marseille ont livré des fours datés du XIV^e siècle destinés à la préparation des oxydes de plomb : Marchesi H., Thiriot J. et Vallauri L., *Marseille, les ateliers de potiers du XIII^e s. et le quartier Sainte-Barbe (V^e-XVII^e s.)*, Éditions de la Maison des Sciences de l'Homme, Paris, 1997, p. 153 et suivantes. Sur l'usage de la glaçure plombifère et stannifère au Moyen Âge : Hanusse C., Leenhardt M., Meyer-Rodrigues N. et Vallauri L., « L'apparition des glaçures plombifères et stannifères : exemples français », *L'innovation technique au Moyen Âge. Actes du VI^e Congrès international d'Archéologie Médiévale, Dijon - Mont Beuvray - Chenôve - Le Creusot - Montbard, 1-5 Octobre 1996*, Beck P. (éd.), Errance, Paris, 1998, p. 242-248.

⁶⁵³ Rehren T., Vanhove D., Mussche H. F. et Oikonomakou M., « Litharge from Laurion... », *op. cit.*, p. 299-308.

⁶⁵⁴ *Supra* p. 103.

potentiel des minerais et décider d'engager soit l'extraction de l'argent soit celle du plomb.

Les résultats des analyses élémentaires des plombs de Castel-Minier permettent d'apprécier la part du recyclage des litharges et celle du traitement de galènes pauvres en argent. L'étude des éléments-traces des plombs d'œuvre a déjà révélé plusieurs particularités, notamment pour ce qui concerne le rapport argent/antimoine dont les valeurs forment trois groupes distincts. Le premier est proche de 1 et correspond à celui observé dans les galènes (dont le porteur d'argent est la miargyrite AgSbS_2) ; le second est élevé et dénote un enrichissement en argent au cours de la transformation du minerai ; le troisième est faible, ce qui indique la prépondérance de l'antimoine consécutive à l'emploi d'un mélange entre le minerai et des sous-produits de l'affinage de l'argent⁶⁵⁵.

Un raisonnement similaire peut être appliqué au reste du corpus de plombs, c'est-à-dire aux individus dont la teneur en argent est inférieure à 800 ppm (figure 178). Un rapport Ag/Sb proche de 1 indique que la galène seule a été utilisée pour produire le métal. C'est le cas de quelques plombs désargentés pour lesquels l'hypothèse d'une production à partir de galènes peu argentifères est vérifiée. Lorsque le ratio est supérieur à 1, cette hypothèse est toujours valable. Seulement, les conditions de transformation du minerai devaient être différentes (plus oxydantes) puisque par rapport au minerai, le plomb est appauvri en antimoine. Enfin, lorsque le ratio est inférieur à 1, l'antimoine est majoritaire, ce qui permet d'avancer l'hypothèse d'une production à partir de la litharge et/ou de casses de coupellation. Elle concerne la plupart des plombs désargentés mis au jour à Castel-Minier (figure 178).

⁶⁵⁵ Sur ces aspects : *supra* p. 427.

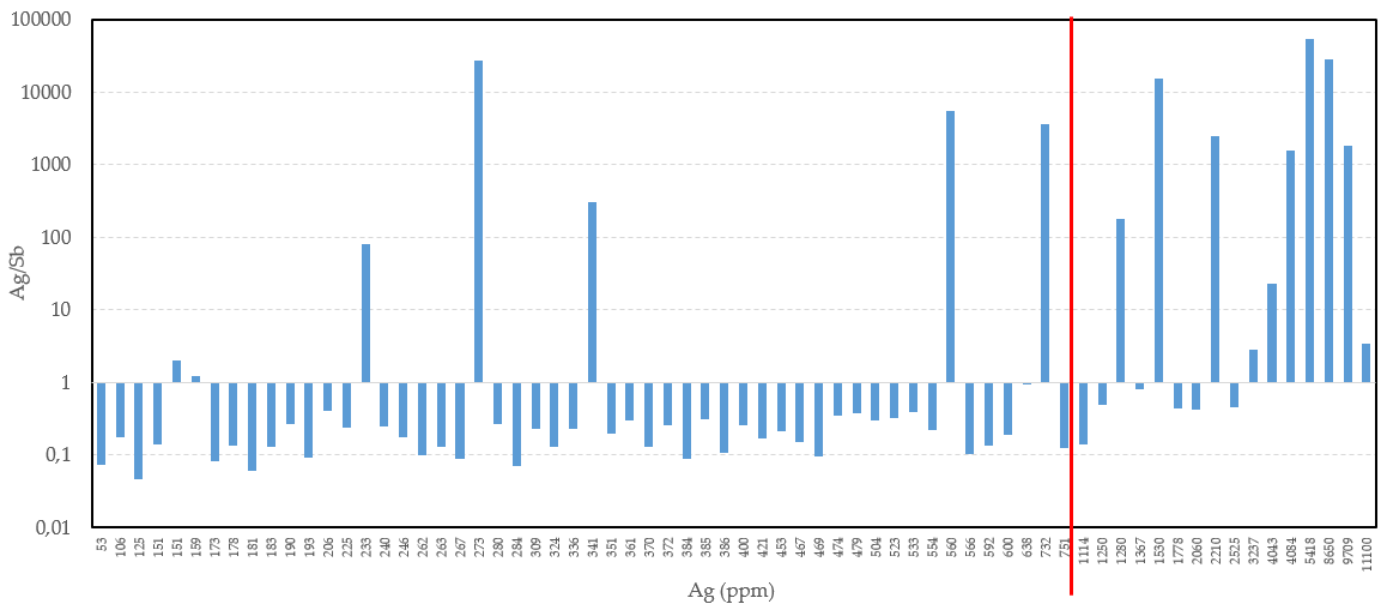


Figure 178: Diagramme en barre représentant le rapport Ag/Sb et la teneur en argent correspondante pour les plombs de Castel-Minier. La ligne verticale rouge représente le seuil du plomb d'œuvre (800 ppm).

Le riche mobilier lié à la coupellation découvert à Castel-Minier a permis de documenter précisément les modalités techniques et économiques de ce procédé. Contrairement à l'étape de production de plomb d'œuvre, la coupellation semble prendre place dans des structures légères disposées à même le sol et transportables. Elles consistent en des soles en cendres végétales non lavées, auxquelles est ajouté un liant argileux. L'étude métrologique des soles usagées, ou casses de coupellation, met en évidence deux classes dont la distinction se fonde sur la valeur de leur diamètre. L'analyse élémentaires des billes métalliques piégées sur les soles usagées est riche d'enseignements. Elle révèle la nature de l'alliage coupellé qui, hormis un cas, est exclusivement composé de plomb et d'argent. Le plomb qui s'oxyde au cours de la coupellation est absorbé par la cendre mais une partie doit être tirée hors du four comme le démontre la quantité significative de litharge découverte à Castel-Minier. Le prélèvement se fait probablement par débordement comme le suggère la morphologie des individus. Les expérimentations ont démontré qu'il ne concerne que les coupellations à grande échelle qui sont documentés à Castel-Minier par les soles usagées de grand diamètre. L'étude de la composition en éléments-traces des litharges permet d'identifier le moment précis où a eu lieu le prélèvement : la teneur en argent

élevée des dernières litharges montre les difficultés de l'exercice et l'incorporation inévitable d'argent. Ce phénomène n'est pas rédhibitoire puisque les litharges font l'objet d'un recyclage dont la destination varie selon leurs compositions. Les litharges riches en argent sont ajoutées avec la galène dans le four de réduction pour amorcer les réactions chimiques qui doivent permettre de former du plomb d'œuvre, tandis que celles qui sont moins riches en métal blanc fournissent du plomb désargenté après un recyclage. Quant aux casses de coupellation, elles font d'abord l'objet d'un réemploi : elles sont resurfacées afin d'accueillir une seconde opération à l'issue de laquelle une partie des soles usagées est mise au rebut tandis que l'autre est recyclée dans les fours de transformation de la galène. Le procédé de coupellation dont nous venons de résumer les modalités ne permet pas d'obtenir de l'argent pur, mais des alliages enrichis en métal blanc qui doivent faire l'objet d'un affinage dont nous allons présenter le déroulement.

4.2.6. Affinage de l'argent et devenir de la production

4.2.6.1. Les alliages plomb-argent

La coupellation, qu'elle se déroule à moyenne ou à grande échelle, ne permet pas de séparer tout l'argent du plomb. L'affinage de l'argent requiert des opérations métallurgiques ultérieures pour obtenir un niveau de pureté satisfaisant. L'étude des billes métalliques disséminées à la surface des casses de coupellation a permis de s'en convaincre. Elle a mis en évidence des degrés de séparation divers caractérisés par des alliages plomb-argent dont les compositions sont variées. Les coupellations expérimentales réalisées d'après les vestiges archéologiques de Castel-Minier arrivent au même constat avec l'obtention d'un ensemble de masses métalliques hétérogènes en termes de composition élémentaire.

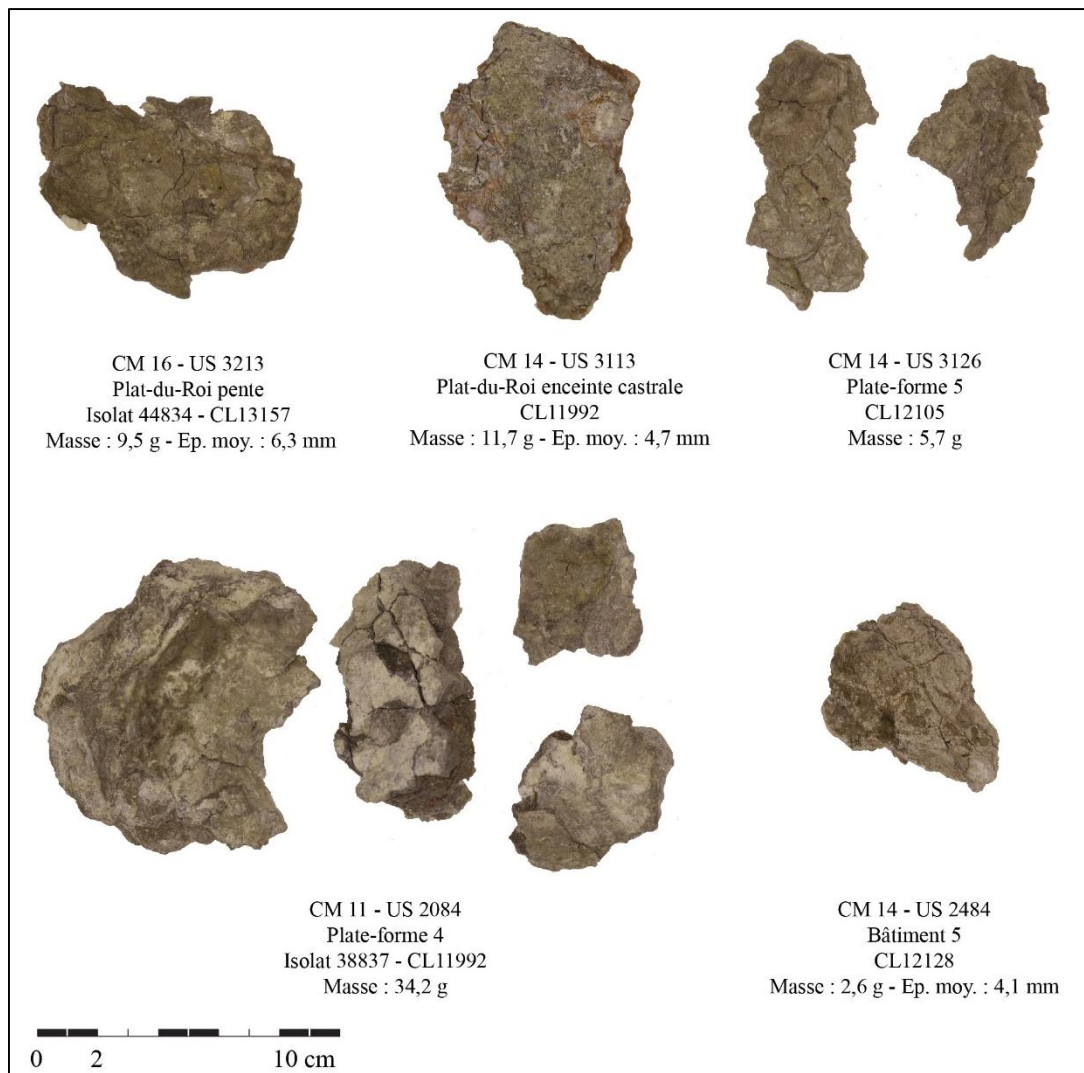


Figure 179 : Planche présentant les alliages plomb-argent découverts à Castel-Minier.

Les découvertes d'alliages plomb-argent en contexte archéologique sont rares. Ces produits intermédiaires issus d'une première coupellation ont vocation à être affinés. Ils font très certainement l'objet d'une collecte minutieuse sur les soles usagées et d'une attention particulière lors de leur manipulation afin de limiter les pertes. Ainsi, la découverte d'un petit corpus d'alliages plomb-argent à Castel-Minier est exceptionnelle (figure 179). Les neuf individus qui le composent constituent les produits d'une première opération de coupellation. Il s'agit de fragments de quelques grammes découverts dans des structures de la fin du XIII^e siècle (plate-forme 5) et du XIV^e siècle (plate-forme 4, bâtiment 5 et Plat-du-Roi). Ils sont recouverts de litharge qui s'est partiellement transformée en carbonate de plomb au cours de l'enfouissement. La

litharge entoure une âme métallique formée d'un alliage de plomb et d'argent : cette caractéristique témoigne d'un processus inachevé de coupellation.

L'analyse par LA-ICP-MS des alliages a permis de déterminer leurs compositions élémentaires dont les principaux constituants sont le plomb et l'argent (tableau 37). L'individu CL 11992 présente une teneur en métal blanc faible par rapport au reste du corpus. Le bain métallique à partir duquel il s'est formé se trouvait donc dans une zone moins favorisée de la structure de chauffe. Néanmoins, on ne peut exclure un prélèvement involontaire de cette masse métallique au cours du tirage de la litharge intervenue peu de temps après le début du processus de coupellation.

L'analyse des éléments-traces permet de tirer des conclusions similaires à celles présentées lors de l'étude des billes métalliques présentes sur les casses de coupellation. En particulier, les faibles teneurs en antimoine et en zinc illustrent l'élimination précoce de ces métaux au cours de la coupellation. En revanche, des teneurs élevées en cuivre et en bismuth subsistent malgré l'état d'avancement de la coupellation. Ces métaux subissent un enrichissement au cours de la coupellation et sont éliminés à partir d'un seuil en argent relativement élevé qui n'a pas été atteint pour les individus étudiés⁶⁵⁶.

CL	Structure	Pb	Ag	Cu	Zn	Sb	Au	Tl	Bi
10890	P.-f. 4	85,8 %	14,1 %	857	-	-	2,9	2,9	688
12128	Bât. 5	67,5 %	32,3 %	1822	6,1	2	4,3	3,5	315
11992	Plat-du-Roi enceinte castrale	98,3 %	1,7 %	306	1,5	31	0,1	2,6	17
12105	P.-f. 5	83,7 %	16,2 %	1403	67	136	2,3	2,4	128
13157	Plat-du-Roi pente	63,1 %	36,8 %	996	3,8	15	4,2	2,0	74

Tableau 37 : Résultats des analyses élémentaires par LA-ICP-MS des alliages plomb-argent. Sauf mention contraire, les valeurs sont en ppm.

⁶⁵⁶ *Supra* p. 494.

4.2.6.2. Déroulement de l'affinage

Les alliages plomb-argent obtenus à l'issue d'une première coupellation doivent subir une nouvelle fois ce procédé afin d'éliminer totalement le plomb. Cependant, il semble qu'ils fassent l'objet d'une préparation préalable. En effet, les alliages plomb-argent collectés sur la sole usagée du foyer de coupellation ont des masses et des compositions élémentaires très différentes. Certains individus atteignent des teneurs en argent très élevées alors que d'autres ne sont que très légèrement enrichis en métal blanc (figure 180).

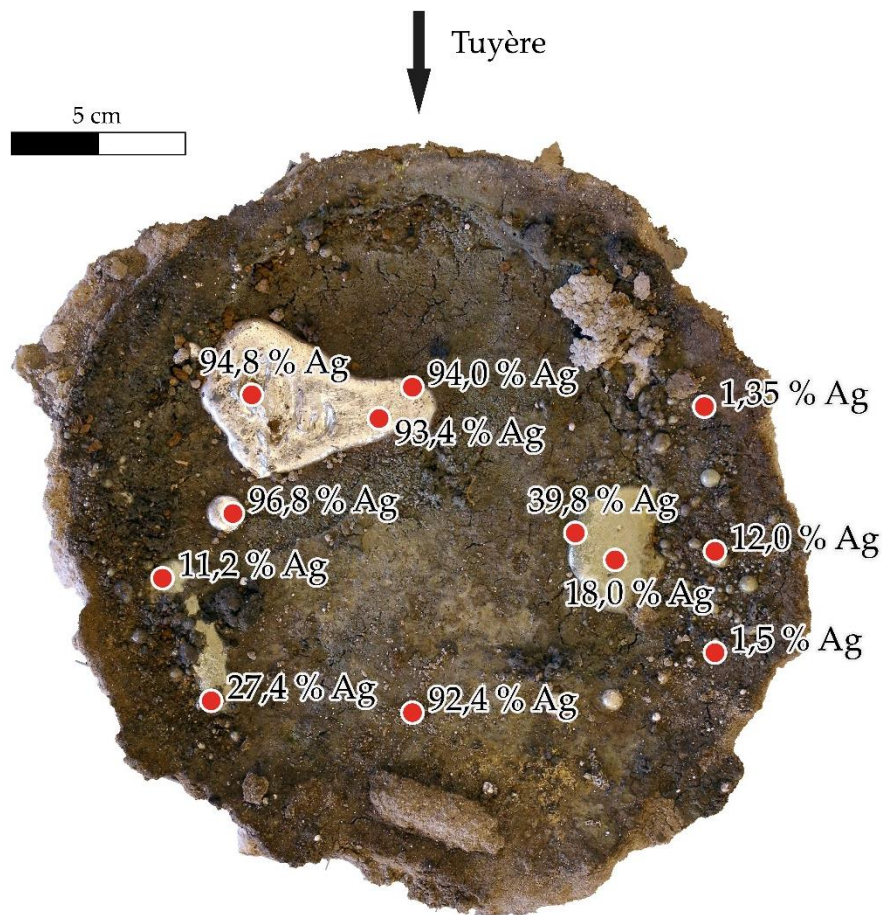


Figure 180 : Teneurs en argent des alliages argent-plomb obtenus à l'issue d'une coupellation expérimentale. Les variations de couleur permettent d'apprécier l'hétérogénéité des niveaux d'affinage.

Avant d'être affinés, il semble que les alliages plomb-argent étaient lingotés dans des contenants en céramique. À partir de masses métalliques de tailles et de

compositions très variées (figure 180) un seul lingot était formé de manière à faciliter la manipulation et minimiser les pertes. Dans le même temps, le passage à l'état liquide entraîne l'homogénéisation de la composition élémentaire et facilite la coupellation.

L'étude archéométrique de la céramique CL 11059 permet de lui donner une fonction métallurgique identifiée grâce à sa morphologie, typique d'un creuset, et à la présence de billes métalliques piégées sur la surface interne du creuset (figure 181). L'analyse⁶⁵⁷ par LA-ICP-MS a été possible pour l'une de ces billes : elle se compose d'un alliage d'argent et de plomb (tableau 38). La séparation de ces deux métaux n'est pas aboutie et nécessite de conduire une nouvelle coupellation. Préalablement, l'alliage a fait l'objet d'une homogénéisation dans le creuset.

Élément	Ag	Cu	Pb	Au	Bi	Zn	As	Cd	Sb
CL 11059	92,7 %	5402	6,7 %	4,6	371	1,4	1,4	17	-

Tableau 38 : Résultats de l'analyse LA-ICP-MS de la bille métallique contenue dans le creuset CL 11059. Sauf mention contraire, les valeurs sont en ppm.

⁶⁵⁷ La bille métallique présente sur l'individu CL 11059 a été analysée par Guillaume Sarah.

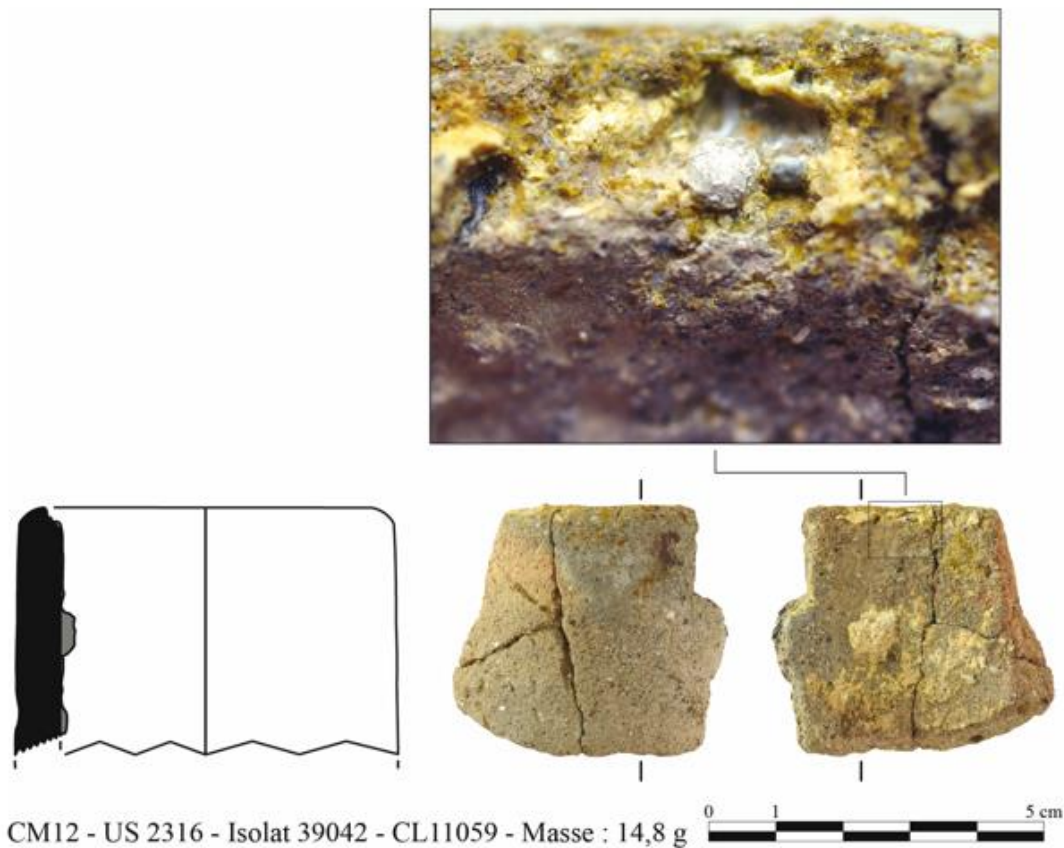


Figure 181 : Planche présentant le fragment de creuset CL 11059 et la bille métallique qu'il contient.
Clichés et dessins : J.-C. Méaudre.

L'affinage de l'argent se déroule selon le procédé de coupellation que nous avons déjà présenté. Il est néanmoins délicat de distinguer les vestiges, notamment les casses de coupellation, relevant de l'étape d'affinage de l'argent de ceux appartenant à la première coupellation qui permet d'obtenir des plombs enrichis en argent. Bien qu'il mette en œuvre également le procédé de coupellation, l'affinage de l'argent est réalisé selon des modalités différentes. Dans le *De re metallica*, Agricola consacre la fin du livre 10 à la présentation de cette étape ultime de la chaîne opératoire de l'argent⁶⁵⁸. Par rapport à la première coupellation, la seconde requiert des températures plus élevées pour maintenir l'alliage liquide. Un contenant évasé en céramique reçoit la sole sur laquelle est déposé l'alliage à affiner. Agricola insiste sur le soin à apporter à la préparation de la cendre, mais également aux étapes de confection de la sole,

⁶⁵⁸ Hoover H. C. et Hoover L. H., *Georgius Agricola De re Metallica...*, op. cit., p. 483-490.

notamment le compactage et le séchage. La coupellation se déroule ensuite dans un four à moufle ou dans un four d'affinage en briques doté d'une arche et activé par un couple de soufflets.

À Castel-Minier, plusieurs indices permettent de restituer partiellement le procédé d'affinage de l'argent. Tout d'abord, l'existence de casses de coupellation pouvant accueillir des volumes métalliques réduits⁶⁵⁹ témoigne d'une opération pratiquée à petite échelle qui pourrait correspondre à l'affinage de l'argent. Par ailleurs, la découverte d'une céramique très évasée et dont la fonction métallurgique est attestée par la présence de billes métalliques sur sa face interne suggère la mise en œuvre d'un procédé similaire à celui décrit par Agricola (figure 182). La morphologie de cette céramique exclut une utilisation comme creuset. D'une part, la forme évasée n'est pas propice à la concentration du métal ni à sa coulée et d'autre part, la grande surface de contact avec l'atmosphère est préjudiciable puisqu'elle favorise les chutes de température et l'oxydation du bain métallique. En revanche ce type de contenant est adapté à l'accueil d'une sole en cendre dans le cadre de l'affinage de l'argent selon le procédé de coupellation. L'analyse par LA-ICP-MS des billes métalliques piégées dans la céramique renforce ce constat.

Élément	CL 11123					
	85,3 %	95,9 %	96,4 %	99,4 %	99,9 %	99,9 %
Ag	85,3 %	95,9 %	96,4 %	99,4 %	99,9 %	99,9 %
Pb	13,8 %	3,8 %	3,2 %	0,48 %	0,014 %	0,025%
Cu	8785	2552	3453	895	229	254
Au	3	3,3	3,4	3,8	3,7	3,9
Bi	89	39	38	1,2	-	-
Zn	49	57	43	-	-	-
As	3,4	10	8,2	-	-	-
Cd	12	13	14	14	13	13
Sb	63	22	13	-	-	-

Tableau 39 : Résultats des analyses LA-ICP-MS des billes métalliques contenues dans le creuset CL 11123. Sauf mention contraire, les valeurs sont en ppm.

⁶⁵⁹ *Supra* p. 466.

Les six billes métalliques analysées sont constituées soit d'argent, soit d'alliages argent-plomb qui forment trois gammes de compositions. La première regroupe des billes aux teneurs en argent supérieures à 99 % : on peut donc affirmer qu'il s'agit du produit final. Bien sûr, la représentativité de ces billes est limitée et leur teneur ne serait être utilisée pour discuter de la pureté de l'argent produit sur le site. Le second groupe est composé de deux billes contenant 96,4 et 95,9 % d'argent. La coupellation s'est terminée avant que tout le plomb ne soit oxydé sans qu'il soit possible de savoir si cette qualité d'alliage était celle recherchée. Enfin, le troisième groupe est constitué d'une bille contenant 85,3 % d'argent : elle représente un état d'avancement moindre de la coupellation.

La présence de billes métalliques sur le contenant en céramique indique certainement une malfaçon de la sole qui a permis la pénétration de faibles quantités d'alliage. On peut imaginer l'apparition de fissures et de vides au contact céramique-cendre imputables au phénomène de retrait lors de la phase de séchage de la cendre. Des projections issues du bain métallique ont pu les atteindre à différents stades de la coupellation ce qui expliquerait l'hétérogénéité des teneurs en argent observées.

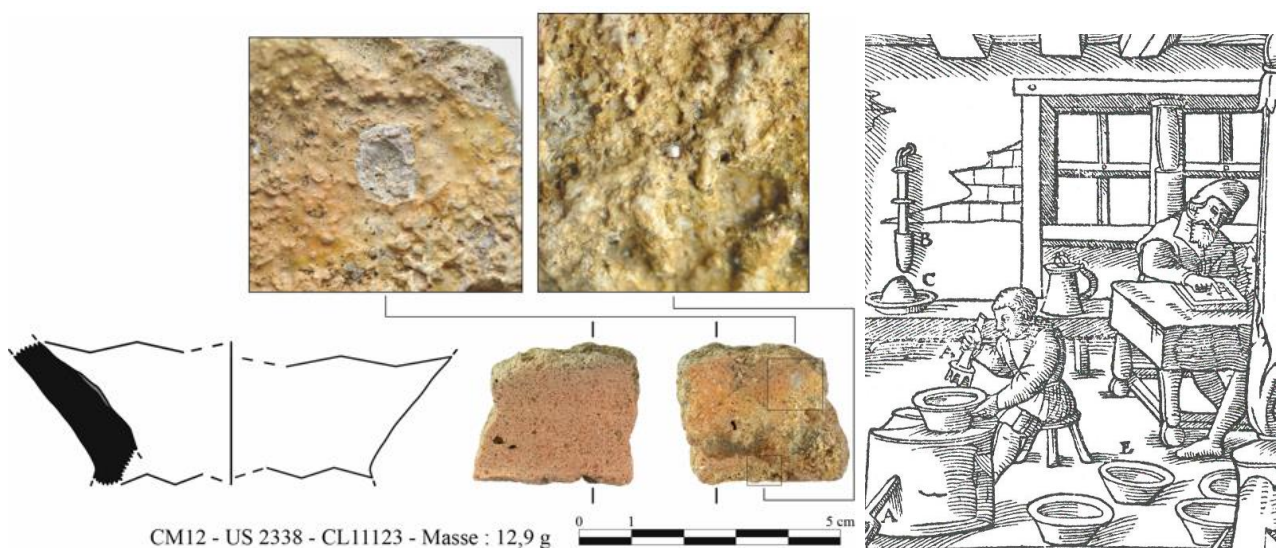


Figure 182 : À gauche, planche présentant la céramique évasée CL 11123 et les billes métalliques qu'elle contient (clichés et dessins J.-C. Méaudre). À droite, confection des soles d'affinage dans le *De re metallica* d'Argicola (d'après Hoover H. C. et Hoover L. H., *Georgius Agricola De re Metallica...*, op. cit., p. 484).

4.2.6.3. Des espaces et du mobilier dédiés

L'étude de la distribution du mobilier relatif à l'affinage de l'argent, c'est-à-dire les alliages plomb-argent et les céramiques métallurgiques, permet d'identifier deux espaces privilégiés : la plate-forme 4 et le bâtiment 5 (figure 183). Ils fonctionnent dans la première moitié du XIV^e siècle. Le bâtiment 5 a livré une quantité importante de casses de coupellation. La découverte d'un alliage plomb-argent dans le foyer Fy2484 renforce l'hypothèse que nous avons émise quant à la réalisation de la coupellation à moyenne échelle dans cet espace. Le bâtiment 5 était également destiné à l'affinage de l'argent, ou au moins au lingotage préalable comme l'atteste la découverte du fragment de creuset CL 11059. Sur la plate-forme 4, les indices de l'affinage concernent un alliage plomb-argent et une céramique évasée (CL 11123). En revanche, la fouille n'a pas livré de structure de chauffe. On peut donc supposer que les produits intermédiaires et les céramiques métallurgiques y étaient remisés.

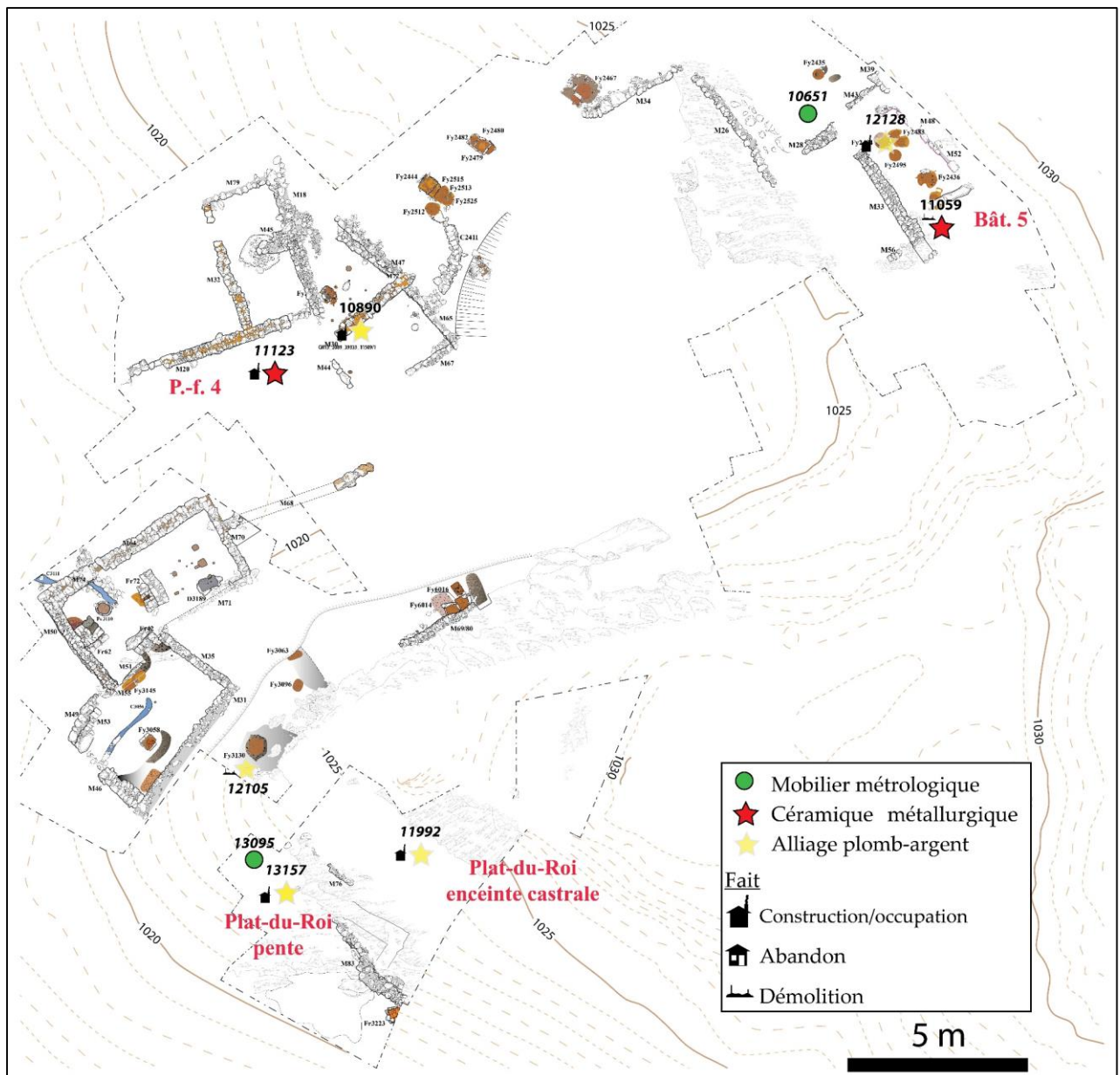


Figure 183 : Distribution des alliages plomb-argent, des céramiques métallurgiques et du mobilier métrologique dans les espaces de la fin du XIII^e siècle et du XIV^e siècle.

Le caractère hautement stratégique de l'argent durant la période médiévale a déjà été souligné à plusieurs reprises. À Castel-Minier, l'affinage de ce métal selon le procédé de coupellation à petite échelle a fait l'objet d'une attention particulière et d'un contrôle précis de la qualité des productions dont les modalités peuvent être esquissées à partir du mobilier archéologique. Celui-ci se compose d'un poids marchand monétiforme d'une demi-once de la ville de Toulouse et d'un godet issu d'une pile dite de Charlemagne dont la masse correspond également à une demi-

once⁶⁶⁰ (figure 184). Ce mobilier métrologique a été découvert dans deux structures archéologiques actives au XIV^e siècle : la plate-forme 1 pour la pile et la pente du Plat-du-Roi pour le poids monétiforme (figure 183). Les poids monétiformes de Toulouse sont bien connus, notamment l'émission de 1239 à laquelle l'exemplaire de Castel-Minier se rattache⁶⁶¹. Quant au godet, il s'agit d'un élément d'une pile : c'est-à-dire une série métrologique composée de plusieurs godets qui s'emboîtent les uns dans les autres. Cet instrument est réservé à la pesée des métaux précieux comme l'attestent les sources iconographiques, notamment les dessins⁶⁶² de Henrich Gross de 1529 (figure 185), ou encore les archives du XV^e siècle des ateliers monétaires⁶⁶³. L'exemplaire retrouvé à Castel-Minier démontre son utilisation précoce dans un contexte minier et métallurgique.

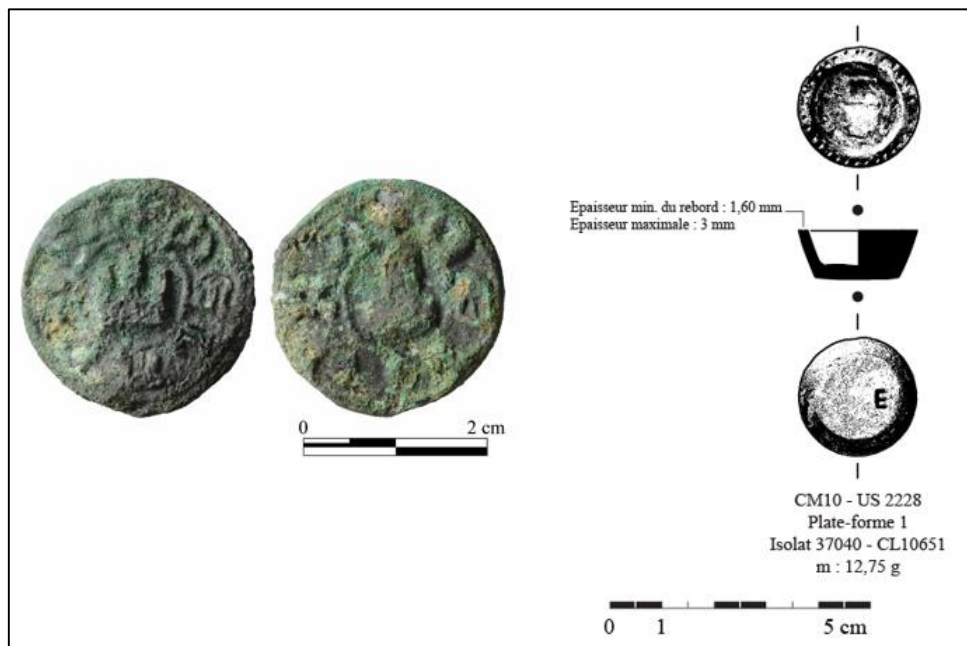


Figure 184 : Mobilier métrologique. À gauche: poids marchand monétiforme de la ville de Toulouse. À droite, godet d'une pile dite de Charlemagne. Clichés et dessins : J.-C. Méaudre.

⁶⁶⁰ Sur la pile à godets : Téreygeol F. et Gauthier J., « Le godet d'une pile du XIV^e siècle à Castel-Minier », *Instrumentum*, 38, 2013, p. 44-46.

⁶⁶¹ Machabey A., *Poids et mesures du Languedoc et des provinces voisines*, Musée Paul-Dupuy, Toulouse, 1953 ; Lassure J.-M. et Villeval G., « Poids monétiformes de Toulouse, de Montauban et d'Orthez », *Archéologie du Midi médiéval*, 2(1), 1984, p. 214-216 ; Cazes J.-P., « Quatre poids monétiformes de Toulouse, émission de 1239, trouvés dans l'Aude », *Archéologie du Midi médiéval*, 3(1), 1985, p. 169-170.

⁶⁶² Groff H., Bari H., Benoit P. et Brugerolles E., *La mine, mode d'emploi...*, *op. cit.*, p. 52.

⁶⁶³ Téreygeol F. et Gauthier J., « Le godet d'une pile... », *op. cit.*, p. 45.

Le godet et le poids monétiforme sont des objets de petite masse destinés à établir un contrôle précis des productions. Ils peuvent être utilisés dans le cadre de l'essai de minerai, pour la pesée de la prise de départ et du bouton de retour, mais également pour contrôler la masse des demi-produits exportés. La production de lingots d'argent est attestée à Castel-Minier grâce au récit des prospections de Jean de Malus. Un demi-produit trouvé sur le site par des habitants d'Aulus vers 1580 est décrit en ces termes : « un lingot d'argent pesant huit livres, qui valent seize marcs⁶⁶⁴ ».



Figure 185 : La pesée d'un lingot d'argent à La-Croix-aux-Mines. On distingue les godets d'une pile sur la table et dans le plateau de la balance. D'après Groff H., Bari H., Benoit P. et Brugerolles E., *La mine, mode d'emploi...*, op. cit., p. 52.

L'affinage de l'argent à petite échelle est moins bien documenté que l'étape précédente de coupellation pour laquelle le mobilier archéologique est abondant. La discrétion du métal blanc sur le site rend l'étape ultime de la chaîne opératoire de la galène argentifère difficilement observable. L'attention portée par les métallurgistes à cette production métallique hautement profitable contraste avec la gestion des sous-produits de la coupellation, par exemple la mise au rebut des soles usagées alors que

⁶⁶⁴ C'est-à-dire environ 4 kg. Dupuy J. *La recherche et découverte des mines...*, op. cit., p. 127-128.

des billes partiellement enrichies en argent sont piégées à leur surface. Au contraire, la rareté des alliages argent-plomb et l'absence de l'argent « purifié » dénotent la rigueur avec laquelle les métallurgistes réalisent l'affinage du métal blanc, qui n'entraîne pas de pertes en métal et des déchets très limités. Les masses d'argent produites font l'objet d'une pesée au moyen d'outils métrologiques de précision. Si les standards de qualité de l'argent de Castel-Minier ne peuvent pas être observés, le contrôle des masses peut en revanche être discuté dans une perspective fiscale, rappelons que le vicomte de Couserans taxe une partie de la production, et commerciale avec par exemple l'approvisionnement des ateliers monétaires. Ce dernier aspect est développé dans notre conclusion.

Partie 5 : Les productions métallurgiques à base de cuivre

La place privilégiée de la chaîne opératoire de l'extraction de l'argent ne doit pas faire oublier le caractère polymétallique du site de Castel-Minier qui se traduit par l'introduction de plusieurs chaînes opératoires métallurgiques associées au cuivre. Leur existence est soutenue par le premier faisceau d'indices que constitue la découverte en contexte archéologique de deux types de minerais polymétalliques à base de cuivre : la chalcoppyrite et la bournonite. Ce corpus est complété par des scories cuivreuses et des soles de structures de chauffe. Enfin, plusieurs demi-produits en alliages cuivreux viennent enrichir cet ensemble. Ces différents types de mobiliers représentent autant d'étapes des chaînes opératoires de production du cuivre et de ses alliages dont il convient de présenter les modalités.

La démarche méthodologique que nous avons adoptée pour étudier les chaînes opératoires de production du cuivre et de ses alliages est différente de celle que nous avons suivie pour aborder la production d'argent à partir de la galène argentifère. En effet, nous avons choisi de considérer en premier lieu non pas la matière première, c'est-à-dire le minerai ayant permis de produire le mobilier à base de cuivre, mais les demi-produits qui constituent le dernier maillon de la chaîne opératoire. Ce choix est justifié par la diversité des alliages cuivreux en circulation durant la période médiévale. Il est donc nécessaire d'opérer dans un premier temps des séparations avant d'étudier, dans un second temps, les relations entre les demi-produits et les minerais de cuivre.

5.1 Nature du mobilier métallique à base de cuivre

5.1.1. Description macroscopique du corpus

5.1.1.1. Le mobilier exogène

Les demi-produits métalliques en alliages cuivreux sont facilement identifiables par la présence de produits de corrosion qui recouvrent leur surface et dont la couleur verte indique la présence d'oxydes, de carbonates ou de chlorures de cuivre. Le corpus des demi-produits cuivreux réuni à l'issue des campagnes de fouille est conséquent et diversifié. Il se compose en effet de 153 individus représentant une masse totale de 1,54 kg. Toutefois, il n'a pas été soumis à l'étude archéométrique dans sa totalité et une stratégie d'échantillonnage a été mise en place. En effet, plusieurs objets ont été exclus pour des raisons morphologiques. Il s'agit tout d'abord des individus découverts dans les contextes de la fin du XV^e siècle et du XVI^e siècle qui correspondent à la dernière phase d'occupation de Castel-Minier. Celle-ci se caractérise par des activités métallurgiques tournées exclusivement vers la sidérurgie. Les gisements de minerais non-ferreux de la vallée du Garbet ne sont plus exploités et l'atelier de transformation de Castel-Minier s'approvisionne en minerai de fer auprès de la communauté voisine de Vicdessos dans le cadre d'un échange contre du charbon de bois. Ainsi, le mobilier en alliages cuivreux découvert au cours de cette phase d'activité ne témoigne pas d'une production endogène. Il s'agit d'objets d'importation dont la fonction est principalement vestimentaire. Leur découverte permet d'étudier le niveau de vie et les habitudes sociales des ouvriers du fer travaillant sur le site.

La seule exception à notre stratégie d'échantillonnage concerne les artefacts trouvés dans les niveaux de fondations des structures des XV^e et XVI^e siècle (canal, marteau, bas foyer). Les sols anciens remobilisés au cours de ces aménagements peuvent apporter des renseignements sur les phases antérieures de production du cuivre.



Figure 186 : Planche figurant plusieurs exemples d'objets exogènes. D'après Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09) Rapport intermédiaire 2015*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, annexe 2, planche 21.

Les autres individus écartés du corpus d'étude appartiennent aux espaces datés de la fin du XIII^e siècle au milieu du XV^e siècle et dont l'activité concerne les métaux non-ferreux. Leur exclusion se fonde sur des critères morphologiques qui attestent d'une origine exogène. Il s'agit d'objets finis et non de demi-produits, objets du quotidien ou accessoires du costume perdus par les ouvriers tels que les mordants de

ceinture, manches de couteau, épingles, rondelles, paillettes, boucles et pendants divers (figure 186). Qu'elle soit accomplie par fonderie ou par déformation plastique, la mise en forme de ces objets en alliages cuivreux laisse des traces archéologiques de différentes natures au sein des ateliers. Il s'agit par exemple de fragments de moules avec des empreintes, de creusets et de chutes de découpes, mais également d'outils tels que des pinces, des cisailles, des limes ou encore des emporte-pièces⁶⁶⁵. La fouille des différents ateliers de Castel-Minier n'a livré aucun de ces fossiles directeurs⁶⁶⁶ ce qui renforce l'hypothèse d'une origine exogène des produits finis et justifie leur exclusion de notre étude centrée sur la métallurgie extractive. Nous avons cependant inclus quelques petits fragments correspondant à du mobilier exogène (présence de rivets, de ciselures) et dont la petite taille ne permet pas de leur attribuer une fonction précise. Ces artéfacts usés ou brisés ont pu faire l'objet d'un recyclage sur le site comme le suggèrent la présence de découpes et de pliures.

⁶⁶⁵ Ce mobilier est parfois représenté dans les sources iconographiques. Ainsi, parmi les portraits des artisans figurant dans le *Livre des frères Mendel* (XV^e-XVI^e siècle), les ouvriers du cuivre sont figurés avec leurs outils : Treue W., Kellermann R., Klemm F., Schneider K., Stromer W. von, Wissner A. et Zirnbauer H., *Das Hausbuch der Mendelschen Zwölfbrüderstiftung zu Nürnberg - Deutsche Handwerksbilder des 15. und 16. Jahrhunderts*, Bruckmann, München 1965. Concernant les données archéologiques : fouilles de l'atelier parisien du XIV^e siècle sur le site de l'hôtel de Mongelas : Thomas N., *Les ateliers urbains de travail du cuivre et de ses alliages au bas Moyen Âge : Archéologie et histoire d'un site parisien du XIV^e siècle dans la Villeneuve du Temple (1325-1350)*, Thèse de 3^e cycle, Université de Paris I, 2009, p. 153 et suivantes ; fouilles urbaines de Tours : Motteau J., « Un atelier d'épinglier », In Galinié H. (éd.), *Tours antique et médiéval, lieux de vie, temps de la ville, 40 ans d'archéologie urbaine*, FERACF, Tours, 2007, p. 106-107. Sur les ateliers de fondeurs et de batteurs de la vallée de la Meuse et en particulier de Dinant et Bouvignes, en dernier lieu : Thomas N., Leroy I. et Plumier J., *L'or des dinandiers. Fondeurs et batteurs mosans du Moyen Âge*, Maison du patrimoine médiéval mosan, Bouvignes, 2015. Pour l'Angleterre : Bayley J., « Anglo-Saxon Non-Ferrous Metalworking: A Survey », *World Archaeology*, 23(1), 1991, p. 115-130 ; Egan G., « The medieval copper alloy foundry excavations in London », *Archaeometallurgy in Europe, Milan, 24-26 septembre 2003*, AIM, Milan, 2003, p. 243-252.

⁶⁶⁶ À l'exception d'un fragment de creuset dont les études céramologique et archéométrique ont montré qu'il se rattache à la chaîne opératoire du plomb argentifère : *supra* p. 533.

5.1.1.2. Le mobilier sélectionné : diversité morphologique

Le corpus retenu pour l'étude se fonde sur des critères morphologiques et esthétiques. Il s'agit des objets dont les dimensions et l'état de conservation ne permettent pas d'identifier leur fonction et une éventuelle origine exogène. En définitive, nous nous intéressons aux objets dont la compréhension est malaisée, c'est-à-dire aux individus informes et aux petits fragments de tôles. Parmi ce mobilier, plusieurs individus peuvent relever d'une production locale : leur examen est donc précieux pour restituer les modalités techniques des chaînes opératoires de production du cuivre à l'œuvre à Castel-Minier.

Le corpus⁶⁶⁷ constitué selon les critères que nous venons de présenter se compose de 79 individus représentant une masse de 1,0 kg. Sur le plan morphologique, les individus se partagent entre les tôles, les fragments informes s'apparentant à des déchets de coulée et un lingot (figure 187). L'importance de chaque catégorie est inégale avec une prévalence des tôles en termes d'individus. L'unique lingot représente à lui seul la moitié de la masse totale du corpus. Les groupes des tôles et des déchets de coulée ont environ la même masse pour un nombre d'individus près de quatre fois inférieur pour la seconde catégorie.

⁶⁶⁷ La couverture photographique de l'ensemble du corpus étudié fait l'objet des annexes 13 à 18.

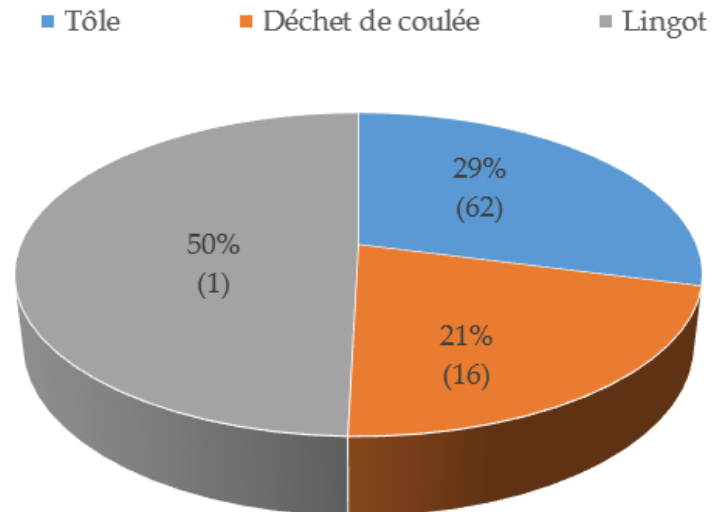


Figure 187 : Nombre d'individus de chaque catégorie du corpus (entre parenthèses) et pourcentage de la masse totale.

Plusieurs tôles ont subi des déformations par pliage ou roulage qui peuvent être liées à leur fonction ou provenir de détériorations intervenues lors du recyclage de ces objets ou au cours de l'enfouissement (figure 188). Quant aux déchets de coulée, ils présentent un état de surface irrégulier et rugueux. On distingue à la surface de certains individus des inclusions de charbons de bois. À ce stade, l'observation du mobilier ne permet pas d'identifier les alliages à partir desquels ils ont été confectionnés.



Figure 188 : Exemples d'objets en alliages cuivreux sélectionnés pour l'étude : tôles et déchets de coulée (trois premiers depuis la droite).

5.1.2. Caractérisation des alliages cuivreux : apports des analyses élémentaires

5.1.2.1. Système de classification

L'ensemble du corpus présenté ci-dessus a fait l'objet d'analyses élémentaires par LA-ICP-MS dont la protocole a déjà été présenté⁶⁶⁸. La détermination des compositions élémentaires poursuit plusieurs objectifs qui s'inscrivent dans une démarche globale visant à comprendre l'organisation fonctionnelle des ateliers métallurgiques de Castel-Minier et les chaînes opératoires qui y sont à l'œuvre. La diversité des ressources minérales qui approvisionnent le site suggère une vocation polymétallique. En particulier, la découverte de plusieurs minerais de cuivre a permis d'introduire un axe de recherche supplémentaire qui vise à comprendre les modalités techniques de leur traitement, mais également à évaluer la place du cuivre et de ses alliages au sein d'une fonderie originellement tournée vers la production d'argent. Pour ce faire, il convient de dépasser le cadre trop imprécis circonscrit par l'appellation « alliage cuivreux » et qui restitue mal la diversité des alliages confectionnés à base de métal rouge.

L'identification visuelle de la nature des alliages, en se fondant sur un critère colorimétrique, est une méthode inopérante sur le mobilier archéologique mis au jour puisqu'il présente en surface une couche d'altération formée de produits de corrosion. Le métal ou l'alliage sain ne se donne pas à voir ce qui compromet les chances d'identification en l'absence d'un décapage. Les analyses élémentaires par LA-ICP-MS offrent une solution à ce problème : l'analyse en profil permet de s'affranchir de la couche de corrosion tandis que la mesure des éléments majeurs et mineurs autorise la caractérisation des alliages. Il est ensuite possible de leur assigner une dénomination précise qui se fonde sur des critères chimiques. Encore faut-il utiliser un système de classification adapté qui tienne compte des particularités des alliages anciens notamment la présence fréquente de plomb en quantités significatives pouvant

⁶⁶⁸ *Supra* p. 176.

dépasser les 20 %. En outre, les domaines de concentration des alliages utilisés dans l'industrie moderne, par exemple pour les bronzes ou les laitons, ne recouvrent pas la totalité des combinaisons constatées au cours des études archéométriques.

Ainsi, tout en conservant la désignation actuelle des alliages, il convient de modifier les domaines de composition afin qu'ils tiennent compte des particularités du mobilier archéologique. Cette solution est privilégiée par rapport à l'usage de la terminologie antique et médiévale, d'un maniement risqué tant par les difficultés d'interprétation qu'elle pose que par les réalités multiples que peut recouvrir un même terme⁶⁶⁹. Cette recommandation n'interdit pas dans un second temps de rapprocher les analyses de mobiliers archéologiques des sources écrites antiques ou médiévales pour tenter de cerner la réalité des nomenclatures qu'elles consignent.

Pour toutes ces raisons, l'utilisation d'une classification adaptée aux alliages anciens est indispensable. Elle a été mise au point progressivement dans le cadre de plusieurs publications et se fonde sur les enseignements tirés de l'étude des compositions élémentaires de mobiliers archéologiques à base de cuivre. La réflexion a été engagée en 1989 par Bayley et Butcher dans le cadre d'une étude portant sur les broches romaines découvertes en Angleterre⁶⁷⁰. La méthodologie proposée pour représenter les compositions élémentaires repose sur l'utilisation d'un diagramme ternaire dont les sommets sont occupés par le zinc, l'étain et le plomb. Chaque axe représente donc la proportion relative des éléments d'alliage contenus dans le matériau à base de cuivre. Le report sur le diagramme ternaire des domaines de composition des différents alliages (bronzes, laitons...) permet de classer

⁶⁶⁹ Voir une illustration de ces problèmes dans Bayley J., « Alloy nomenclature », In Egan G. et Pritchard F. (éd.), *Medieval Finds from Excavations in London: 3. Dress Accessories c.1150- c.1450*, HMSO, Londres, 1991, p. 16 et suivantes et *infra* p. 608 pour le cas du *caldarium*. Voir également la confrontation des analyses du cratère de Vix avec les alliages cuivreux mentionnés par Pline dans son *Histoire naturelle* : Bourgarit D. et Mille B., « Provenance du cuivre et alliages », In Dillmann P. et Bellot-Gurlet L. (éd.), *Circulation et provenance des matériaux dans les sociétés anciennes*, Éditions des archives contemporaines, Paris, 2014, p. 121 et suivantes.

⁶⁷⁰ Bayley J. et Butcher S., « Romano-British plate brooches. Composition and decoration », *Jewellery Studies*, 3, 1989, p. 25-32.

rapidement un corpus de mobilier et d'évaluer la variabilité des teneurs.

Toutefois, la définition des domaines de composition n'est pas aisée. Leurs limites ne sont pas figées dans le temps et peuvent varier en fonction des habitudes techniques des métallurgistes médiévaux, mais également de la disponibilité des matières premières. Dans le cadre de l'étude du mobilier issu des fouilles londoniennes, Bayley a proposé un modèle dont la construction se fonde sur des critères physico-chimiques et historiques⁶⁷¹. Ainsi, un alliage à base de cuivre correspond à un laiton si sa teneur en zinc est égale à quatre fois celle en étain. De la même manière, pour être considéré comme un bronze, un alliage doit contenir au moins trois fois plus d'étain que de zinc. Tous les alliages qui ne relèvent pas de ces deux catégories forment le groupe des *gunmetal*. Quel que soit l'alliage étudié, si la teneur en plomb est supérieure à 4 % alors il est considéré comme plombifère.

Depuis son élaboration, le modèle présenté ci-dessous a fait l'objet de plusieurs ajustements qui concernent essentiellement la dénomination des alliages et leurs domaines de concentration. En outre, des représentations alternatives ont été proposées pour rendre compte des particularités de certains alliages⁶⁷². Les problèmes que posent l'appellation *gunmetal* ont été également soulevés, notamment le domaine de composition très réduit qu'elle recouvre et le présupposé qu'elle introduit sur la destination de l'alliage. Certains auteurs lui ont préféré l'expression « laiton rouge », moins connotée et correspondant mieux à la diversité des compositions rencontrées dans les alliages anciens⁶⁷³.

⁶⁷¹ Bayley J., « Alloy nomenclature... », *op. cit.*, 1991, p. 15 et suivantes.

⁶⁷² Notamment le groupement de plusieurs éléments d'alliages sur un axe du diagramme ternaire, par exemple l'étain et le plomb : Oddy W.A., La Niece S., Stratford N., Craddock P.T. et Hughes M.J., *Romanesque Metalwork: copper alloys and their decoration*, British Museum Publications Ltd, Londres, 1986. Voir également *infra* p. 619 le diagramme ternaire utilisé pour étudier les bronzes au plomb antimoniés. Pollard *et al.* ont proposé dans un article récent une classification qui se fonde sur les rapports entre éléments : Pollard A. M., Bray P., Gosden C., Wilson A. et Hamerow H., « Characterising copper-based metals in Britain in the first millennium AD: a preliminary quantification of metal flow and recycling », *Antiquity*, 89(345), 2015, p. 697-713.

⁶⁷³ Bourgarit D. et Thomas N., « Late medieval copper alloying practices a view from a Parisian workshop of the 14th century AD », *Journal of Archaeological Science*, 39, 2012, p. 3054 et suivantes. L'appellation alternative de « bronze au zinc » est également employée dans l'industrie de fonderie

L'usage d'un diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en éléments d'alliage n'est pas adapté aux artefacts faiblement alliés. Il s'agit du mobilier en cuivre dont les teneurs en étain, zinc et plomb sont suffisamment faibles pour considérer que ces métaux n'ont pas été ajoutés délibérément. Il peut s'agir de cuivre « neuf » issu de la métallurgie extractive et plus ou moins affiné ou de métal provenant du recyclage tel que du cuivre étamé. Toute la difficulté consiste à identifier le seuil au-dessus duquel les teneurs en éléments d'alliage sont significatives pour caractériser un ajout volontaire. Ainsi, Bayley considère qu'un artefact dont les teneurs en étain, zinc et plomb sont inférieures à respectivement 3 %, 8 % et 4 % n'est pas un alliage, mais un cuivre impur⁶⁷⁴. Ce domaine de concentration nous paraît particulièrement large, notamment en ce qui concerne les teneurs en zinc et il nous semble que ces dernières peuvent être ramenées à des valeurs plus faibles comme le suggèrent Bourgarit et Thomas⁶⁷⁵.

Il est illusoire d'espérer établir une typologie compositionnelle « universelle » des alliages cuivreux. En réalité les domaines de concentration dépendent du contexte technique et économique de la période considérée et leurs limites peuvent varier. Finalement, dans le cadre de notre étude, les domaines retenus figurent ci-dessous et sont résumés (pour les alliages) sur la figure 189. Ils reprennent en grande partie le modèle établi par Bayley excepté pour le cuivre non allié dont le domaine défini par Bourgarit et Thomas correspond mieux au corpus de Castel-Minier.

- Bronze : étain > 3×zinc
- Laiton : zinc > 4×étain
- Cuivre non allié : étain < 3 %, zinc < 2 % et plomb < 3 %
- Laiton rouge sinon

Un alliage est dit « au plomb » si la teneur de ce métal est supérieure à 3 %.

moderne. Elle nous paraît malvenue dans le cas des alliages médiévaux puisque le zinc en tant qu'élément chimique n'est pas connu à cette époque.

⁶⁷⁴ Bayley J., « Alloy nomenclature... », *op. cit.*, p. 15.

⁶⁷⁵ La limite retenue par ces auteurs est de 2 % : Bourgarit D. et Thomas N., « Late medieval copper... », *op. cit.*, p. 3059.

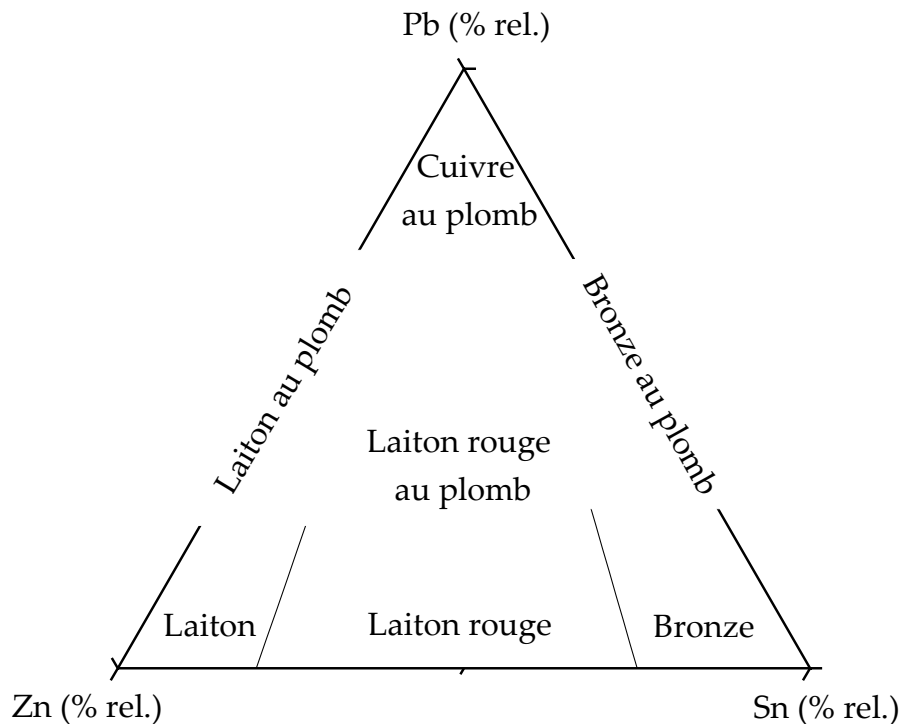


Figure 189 : Classification du mobilier cuivreux selon les teneurs relatives en éléments d'alliage. Diagramme ternaire adapté d'après Bayley J., « Alloy nomenclature », *op. cit.*, p. 14.

5.1.2.2. Principaux résultats de l'analyse élémentaire par LA-ICP-MS : l'importance du cuivre non allié

Les résultats des analyses élémentaires du mobilier cuivreux sont présentés dans le tableau 40. La classification des alliages met en évidence la prédominance du cuivre non allié qui représente plus de 40 % du corpus analysé tant en termes d'individus que de masse⁶⁷⁶ (figure 190). Les artefacts se partagent entre les tôles, qui constituent 80 % du corpus, et les déchets de coulée. Les laitons sont également nombreux mais il s'agit exclusivement de petits fragments de tôles représentant une masse très faible (figure 190). Les bronzes, qu'ils contiennent ou non du plomb, sont sous la forme de tôles (un tiers du corpus) et de déchets de coulée. Ils représentent une

⁶⁷⁶ Pour faciliter la visualisation des données, nous avons volontairement écarté le lingot constitué d'un alliage ternaire cuivre-antimoine-plomb qui représente plus de la moitié de la masse totale du corpus.

masse très faible au sein du corpus. Deux déchets de coulée relèvent de la catégorie du cuivre au plomb. Enfin, deux ensembles se distinguent au sein du corpus par la présence d'éléments d'alliage supplémentaires, notamment l'antimoine – dont les teneurs peuvent atteindre plusieurs dizaines de pour cent – l'arsenic et le nickel. La première catégorie se compose de bronzes au plomb antimoniés, dont trois quarts des individus se présentent sous la forme de tôles, tandis que la seconde catégorie regroupe deux alliages ternaires cuivre-antimoine-plomb (l'unique lingot du corpus et un déchet de coulée). Ces deux ensembles sont atypiques et leur production relève du traitement d'un minerai sulfuré polymétallique particulier dont la chaîne opératoire fait l'objet d'un développement spécifique⁶⁷⁷.

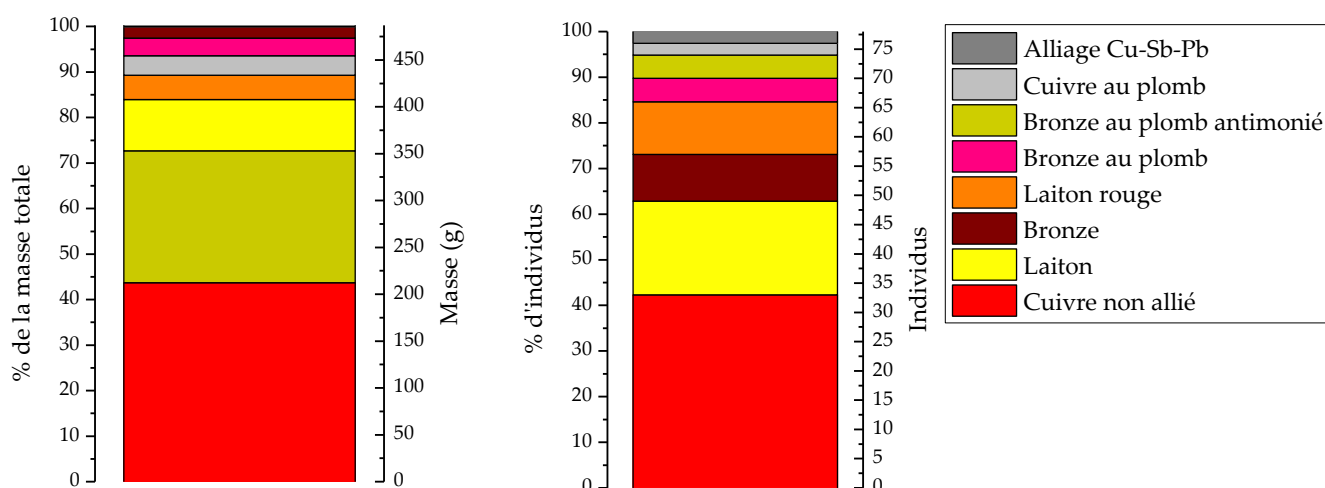


Figure 190 : Effectifs et masse des catégories d'alliages cuivreux mises en évidence à Castel-Minier.

Au sein du corpus étudié, la très forte proportion de cuivre non allié est remarquable d'autant plus qu'elle contraste avec le statut de ce métal dans l'économie médiévale. En dehors des grandes places marchandes telles que Venise⁶⁷⁸, Bruges⁶⁷⁹ ou

⁶⁷⁷ *Infra* p. 585.

⁶⁷⁸ Braunstein P., « Le marché du cuivre à Venise à la fin du Moyen Âge », *In* Kellenbenz H. (éd.), *Schwerpunkte der Kupferproduktion und der Kupferhandels in Europa 1500-1650*, Böhlau, Cologne-Vienne, 1977, p. 78-94.

⁶⁷⁹ Contamine P., Bompaire M., Lebecq S. et Sarrazin J.-L., *L'économie médiévale*, Paris, Armand Colin, 1999, p. 279 et suivantes.

encore Lyon⁶⁸⁰ et des sources écrites commerciales qu'elles ont suscitées, le métal rouge est peu observable durant cette période comme le suggère l'étude analytique d'envergure menée sur le mobilier en alliage cuivreux issu de fouilles archéologiques conduites dans les Îles Britanniques⁶⁸¹. Le travail de compilation de nombreux résultats d'analyses élémentaires a permis d'étudier de manière diachronique la consommation des alliages pour ce territoire. Entre le XIV^e et le XVI^e siècle, il apparaît que le mobilier cuivreux est confectionné majoritairement à partir de laiton tandis que le cuivre non allié représente moins de 10 % du corpus étudié. Ce schéma mériterait d'être éprouvé dans les autres espaces de l'Europe occidentale. Malheureusement, le peu de données disponibles ne permet pas pour le moment de dresser une telle synthèse et les analyses de mobilier cuivreux disponibles concernent essentiellement des objets de prestige conservés dans des collections publiques. Néanmoins, plusieurs études ponctuelles semblent confirmer la tendance observée outre-Manche. Ainsi au sein de l'atelier métallurgique parisien du site de l'hôtel de Mongelas, actif entre 1325 et 1350, le cuivre non allié représente seulement 6,8 % des productions analysées⁶⁸² (161 individus au total). Dans la même sphère géographique, l'analyse du petit mobilier domestique à base de cuivre issu des fouilles de Saint-Denis illustre la même tendance entre le XIV^e et le XV^e siècle avec seulement 3,8 % des objets du corpus (79 individus) confectionnés à partir de cuivre non allié⁶⁸³.

⁶⁸⁰ Benoit P., *La mine de Pampailly. XV^e-XVIII^e. (Brussieu-Rhône)*, Ministère de la Culture, Direction régionale des Affaires culturelles, Service régional de l'Archéologie, DARA n° 14, Lyon, 1997, p. 86 et suivantes.

⁶⁸¹ Bayley J., Crossley D. W. et Ponting M., *Metals and Metalworking: A Research Framework for Archaeometallurgy*, Londres, Historical Metallurgy Society, 2008, p. 50 et suivantes et en particulier figure 65 ; Blades N. W., 1995, *Copper alloys from English archaeological sites...*, *op. cit.* Le mobilier étudié consiste essentiellement en petits objets du quotidien provenant d'accessoires du costume ou à usage domestique.

⁶⁸² Bourgarit D. et Thomas N., « Late medieval copper... », *op. cit.*, p. 3055 et suivantes.

⁶⁸³ Bourgarit D. et Thomas N., « Late Medieval copper metallurgy in France: technical insights into the mass production of copper alloy common wares », *Archaeometallurgy in Europe 2007: Selected papers from 2nd International Conference, Aquileia, 17-21 June 2007*, Giunlia-Mair A., Craddock P., Hauptmann A., Bayley J., Cavallini M., Garagnani G., Gilmour B., La Niece S., Nicodemi W., et Rehren T. (éd.), Associazione Italiana di Metallurgia, Milano, 2009, CD-ROM.

Plus récemment, les analyses élémentaires conduites sur un corpus de 155 objets provenant du *castrum* Saint-Jean à Rougiers (Var) illustrent l'évolution de la nature des alliages cuivreux sur près de deux siècles d'occupation⁶⁸⁴. Le mobilier analysé consiste en accessoires du costume dont les typologies et les techniques de mise en forme sont très diversifiées. À la fin du XII^e siècle, le cuivre non allié représente 60 % du mobilier cuivreux ; cette proportion tombe à 26,7 % entre le milieu du XIII^e et le début du XIV^e siècle pour atteindre 10,1 % dans la première moitié de ce siècle. La seconde moitié du XIV^e siècle voit cette proportion augmenter légèrement à 14,8 %.

La diminution de l'usage du cuivre non allié dans les derniers siècles du Moyen Âge se fait au profit de ses alliages dont les applications ne cessent de se diversifier. Le recours aux alliages cuivreux procède tant de contraintes techniques qu'économiques et esthétiques. La confection d'alliages permet ainsi d'obtenir un nuancier de couleurs très variées et adaptées à la fonction de l'objet fini. En outre, les critères techniques expliquent l'usage des alliages cuivreux notamment pour améliorer les propriétés mécaniques des produits, mais également faciliter leur mise en forme par fonderie. Par ailleurs, la disponibilité des alliages sur le marché des métaux est à mettre en relation avec l'essor de grands centres de production telle la vallée de la Meuse à la fin du XIII^e siècle⁶⁸⁵.

Les sources écrites, avec tous les risques que comporte leur utilisation pour l'identification des alliages cuivreux, apportent toutefois des informations complémentaires notamment dans les régions pour lesquelles les analyses élémentaires de mobiliers archéologiques font défaut. Ainsi en Catalogne, dans la cité de Lérida, les inventaires après décès permettent d'apprécier la proportion des alliages

⁶⁸⁴ Thuaudet O., *Les accessoires métalliques du vêtement et de la parure de corps en Provence du XI^e au XVI^e siècle étude archéologique et approche croisée d'une production méconnue*, thèse de 3^e cycle, Aix-Marseille Université, 2015, p. 134 et suivantes.

⁶⁸⁵ Thomas N., Bourgarit D., Verbeek M., Plumier J. et Asmus B., « Commerce et techniques métallurgiques : les laitons mosans dans le marché européen au Moyen Âge (XIII^e-XVI^e siècles) », *L'archéologie au laboratoire, Paris, 27-28 janvier 2012*, Thiébault S. et Depaepe P. (éd.), La Découverte, Paris, 2013, p. 169-182.

cuireux parmi le mobilier domestique. Les 177 documents publiés couvrent une période qui s'étend du XIV^e au XVI^e siècle et concernent essentiellement un groupe d'ecclésiastiques de rang social élevé⁶⁸⁶. Le matériau des biens mobiliers inventoriés est parfois précisé. Pour les alliages cuivreux, il s'agit du laiton (*lautó*), du bronze (*aram*) et du cuivre (*coure*). Au cours du XIV^e siècle, le cuivre est à la base de près de 40 % des objets confectionnés à partir de ce métal et figurant dans les inventaires. Il s'agit du matériau le plus courant à égale proportion avec le bronze. Au XV^e siècle, le cuivre représente encore 32 % du mobilier alors que le bronze atteint 40 %. Au XVI^e siècle, le bronze devient majoritaire avec 52 % tandis que la proportion de cuivre chute à 18 %. Ces tendances doivent néanmoins être considérées avec prudence ; elles souffrent d'imprécisions imputables à la nomenclature utilisée dans les inventaires pour décrire les matériaux cuivreux et dont les nuances ne sont pas perceptibles. De surcroît, les proportions calculées à partir des inventaires après décès peuvent souffrir d'un biais important consécutif à la non prise en compte des menus objets du quotidien de faible valeur. En définitive, les conclusions que l'on peut tirer sur le marché du cuivre médiéval sont fragiles.

L'exemple catalan s'inscrit à rebours des schémas établis pour les autres espaces de l'Europe occidentale avec une persistance de l'usage du cuivre (pas ou peu allié) dans les derniers siècles du Moyen Âge. Ailleurs, c'est principalement sous la forme d'alliages avec l'étain, le zinc ou le plomb que le cuivre a été identifié sur les sites de production et de consommation des objets domestiques grâce aux analyses archéométriques. Au regard de ce constat, la très grande proportion du cuivre non allié à Castel-Minier plaide donc en faveur de l'origine endogène de ce métal qui découle de la pratique d'une métallurgie extractive.

⁶⁸⁶ Bolòs J. et Sànchez-Boira I., *Inventaris i encants conseruats a l'Arxiu Capítular de Lleida (segles XIV-XVI)*, Fundació Noguera, Barcelone, 2014.

Nature	CL	Structure	Masse (g)	Cu	Sn	Sb	Pb	As	Ni	Ag	Fe	Bi	Au	Zn	Mise en forme
	10928	Aire de grillage 1500-1600	29,30	99,5%	741	1039	727	512	1026	445	76	-	6,0	57	Tôle
	11919	P.-f. 4	8,50	99,5%	592	1666	776	1164	161	656	72	232	-	12	Déchet de coulée
	12501	Ferrier 2	6,20	99,4%	56	1006	3143	291	249	743	14	124	-	-	Tôle
	12511	Ferrier 2	1,70	99,3%	229	3118	1678	361	214	796	34	106	-	20	Tôle
	10259	P.-f. 3	1,80	99,2%	230	523	1291	283	10	2269	905	20	13	2634	Déchet de coulée
	11014	P.-f. 3	17,00	99,2%	952	3017	1232	1228	1191	264	136	22	6	5	Déchet de coulée
	10882	P.-f. 1	0,31	99,1%	256	3255	193	2103	190	2445	59	-	8,0	25	Tôle
	11863	Plat-du-Roi pente	2,80	99,1%	562	54	104	511	1486	5887	117	-	-	34	Tôle
Cuivre non allié	11332	Ferrier 3	46,20	99,1%	1623	3196	685	532	1068	964	369	12	25	317	Déchet de coulée
	12096b	Plat-du-Roi pente	1,10	99,1%	274	56	112	609	1931	5805	23	-	-	28	Tôle
	13098	Plat-du-Roi pente	4,70	99,1%	160	3116	752	2005	462	1831	406	357	21	6,8	Tôle
	11946	P.-f. 3	0,70	99,1%	1036	620	1219	342	21	715	847	26	22	4348	Tôle
	11895	Bât. 7	1,40	99,0%	312	3440	877	1667	266	2767	77	462	23	10	Tôle
	11706	Bât. 11	3,80	99,0%	148	3853	2082	1766	270	1217	389	273	16	25	Tôle
	10602	Ferrier 1	40,40	98,9%	1794	2272	2788	428	416	807	2302	184	-	32	Tôle
	12174a	Plat-du-Roi enceinte castrale	0,10	98,9%	238	160	364	2020	1973	6349	37	-	-	29	Tôle
	12500	P.-f. 5	5,10	98,8%	390	40	110	99	11	578	54	12	13	1,0%	Tôle
	11678	Canal 1450-1600	29,30	98,9%	1272	2635	3891	1321	1550	530	229	33	8,0	21	Déchet de coulée

Nature	CL	Structure	Masse (g)	Cu	Sn	Sb	Pb	As	Ni	Ag	Fe	Bi	Au	Zn	Mise en forme
	11581	Bât. 3	1,00	98,8%	221	393	2588	139	13	1724	2167	13	13	4465	Tôle
	12026	P.-f. 3	0,07	98,8%	2344	1370	2198	815	28	1010	3841	95	11	144	Déchet de coulée
	12165	Marteau 1549	4,00	98,7%	240	3934	2128	1982	341	2963	299	928	28	10	Tôle
	12114	Plat-du-Roi enceinte castrale	0,10	98,7%	463	429	1987	253	16	1194	1259	14	16	7558	Tôle
	11933	Bât. 10	0,25	98,7%	252	8223	2211	1192	353	944	29	47	8,7	5,0	Tôle
	12163	Bât. 10	1,50	98,7%	2042	4569	1650	1468	721	1923	511	361	29	6,8	Tôle
	11331	P.-f. 4	0,20	98,6%	1405	3389	1983	2343	303	2253	2356	20	31	40	Tôle
	10761	Bas-foyer 1550-1600	0,48	98,6%	495	74	1091	289	28	762	1930	98	20	9496	Tôle
	11938	P.-f. 5	2,70	98,6%	238	6882	889	3922	250	2033	119	132	6,3	26	Tôle
	12159	P.-f. 5	5,20	95,8%	413	4391	6199	2165	207	2521	3,0%	51	13	306	Tôle
	13110	Plat-du-Roi pente	0,20	98,0%	84	1695	336	1569	175	1747	300	151	-	1,4%	Tôle
	12362	P.-f. 4	0,30	97,9%	214	262	5699	451	97	4189	635	40	56	9239	Tôle
	12166	Bât. 10	1,90	97,9%	5490	5640	4089	1739	836	1702	706	869	49	34	Tôle
	11721	Plat-du-Roi enceinte castrale	3,30	97,6%	9121	1735	1046	3005	1948	6379	869	115	15	21	Tôle
	11423	Ferrier 2	5,40	97,3%	295	1,4%	4748	2233	832	3873	101	737	20	24	Tôle
	12167	Plat-du-Roi enceinte castrale	3,00	97,3%	271	6475	7645	4545	988	2362	3502	567	20	565	Tôle
	12554	Bât. 10	6,70	90,7%	3,8%	2229	7416	3645	530	826	1390	637	6,7	3,8%	Tôle
Laiton	11266	Bât. 2	0,90	90,4%	5,0%	2037	9882	7627	442	321	1527	1087	-	2,4%	Tôle
rouge	12694	Bât. 3	0,87	91,0%	5,0%	2384	7797	5959	386	579	979	617	-	2,1%	Tôle
	12693	Bât. 3	2,50	91,9%	4,2%	1988	7243	5304	380	526	965	602	-	2,2%	Tôle

Nature	CL	Structure	Masse (g)	Cu	Sn	Sb	Pb	As	Ni	Ag	Fe	Bi	Au	Zn	Mise en forme
	10953	P.-f. 1	0,90	86,4%	4,5%	4080	2,2%	6116	547	932	4231	1015	8,0	5,2%	Tôle
	11893	P.-f. 4	0,80	88,8%	5,8%	2166	1,6%	8853	408	568	3323	1429	5,0	2,1%	Tôle
	11937	P.-f. 5	3,60	81,3%	10,0%	2862	2,0%	8570	467	2024	5252	279	19	4,8%	Tôle
	11499	Bât. 11	1,00	83,9%	8,1%	1100	9230	639	366	282	1967	150	10	6,5%	Déchets de coulée
	11650	Bât. 11	1,60	82,6%	8,7%	9086	2,0%	7432	590	2110	2173	833	10	4,2%	Tôle
	10138	Ferrier 1	0,20	90,4%	5,7%	2450	1,1%	7840	426	409	1129	950	-	1,5%	Tôle
	12627	Bât. 3	1,30	87,1%	7,8%	5457	1,9%	6225	282	1330	1870	1333	8,9	1,5%	Tôle
	11743	Bât. 10	3,90	88,6%	9,0%	7232	0,9%	3286	427	1953	1122	650	27	18	Tôle
	12174b	Plat-du-Roi enceinte castrale	1,00	74,4%	22,3%	9678	1,6%	4081	924	1936	343	322	10	182	Déchets de coulée
Bronze	12825	Plat-du-Roi pente	45,50	82,5%	11,9%	1,7%	1,7%	7123	1,3%	1179	298	530	7,3	174	Déchets de coulée
	11491	Bât. 11	2,00	88,5%	6,0%	7626	2,2%	5146	766	823	1984	522	4,7	1,6%	Tôle
	11579	Marteau 1550-1600	1,00	86,1%	7,8%	8302	2,1%	7194	921	851	3164	1047	5,5	1,9%	Tôle
	11096	Marteau 1550-1600	0,10	89,9%	5,5%	2302	2,0%	5657	705	618	1773	975	6,9	1,4%	Tôle
	10935	P.-f. 4	0,19	76,2%	17,2%	1434	3,1%	2,6%	83	2066	4009	6182	29	6697	Tôle
	11492	Canal 1450-1600	1,00	87,6%	7,2%	7151	3,2%	7292	779	2067	1230	1810	18	536	Tôle
Bronze au plomb	11280	Canal 1400-1450	9,10	68,3%	11,5%	1,3%	18,5%	1942	919	898	308	74	4,0	749	Déchets de coulée
	12192	Ferrier 2	2,00	73,4%	20,3%	2,1%	3,3%	5104	1878	1825	917	1269	18	588	Déchets de coulée
	11092	Bât. 1	2,10	84,5%	412	366	1266	281	305	189	206	11	5,3	15,2%	Tôle
Laiton	11424	Bât. 3	1,20	82,0%	8757	277	5418	689	759	262	3132	248	10	16,0%	Tôle
	11098	Bât. 6	1,20	85,0%	1019	606	2811	448	454	303	1199	32	7,0	14,3%	Tôle

Nature	CL	Structure	Masse (g)	Cu	Sn	Sb	Pb	As	Ni	Ag	Fe	Bi	Au	Zn	Mise en forme
	10115	Bât. 9	3,60	83,3%	212	118	2850	245	853	644	1857	31	8,6	16,0%	Tôle
	11692	Canal 1450-1600	2,00	87,1%	720	114	1761	269	870	274	1176	13	9,3	12,3%	Tôle
	10825	P.-f. 1	0,36	91,5%	2207	249	755	917	331	1273	2339	79	7,0	7,7%	Tôle
	10824	P.-f. 1	0,27	87,8%	3711	3216	3009	1592	774	485	1118	123	5,5	10,8%	Tôle
	10927/2	P.-f. 4	1,30	86,9%	1886	489	939	271	227	529	674	6	5,3	12,6%	Tôle
	11945	P.-f. 5	3,70	92,5%	436	66	1021	176	402	181	491	-	7,5	7,3%	Tôle
	11745	P.-f. 5	1,90	86,6%	402	1214	2596	848	749	485	2151	54	8,7	12,6%	Tôle
	12536	P.-f. 5	0,77	76,8%	204	106	886	188	561	298	1434	6	7,0	22,8%	Tôle
	11709	Bât. 11	3,50	95,8%	4744	1328	7161	1120	95	503	5667	36	-	2,1%	Tôle
	11710	Bât. 11	0,20	89,1%	439	95	2655	267	895	353	2250	20	21	10,2%	Tôle
	11769	Bât. 11	0,80	88,8%	442	77	2642	274	871	790	1348	18	21	10,5%	Tôle
	11628	Bât. 11	2,10	86,5%	851	226	3844	237	279	197	1177	12	6,7	12,8%	Tôle
	12178	Plat-du-Roi enceinte castrale	0,90	96,2%	212	306	363	559	72	993	139	35	8,6	3,5%	Tôle
Bronze au plomb antimonié	11088	P.-f. 4	30,00	68,5%	4,7%	10,4%	11,3%	2,5%	2,2%	3114	301	447	-	158	Tôle
	11107	P.-f. 4	45,80	66,0%	4,8%	12,5%	10,3%	3,2%	2,7%	3517	101	422	-	193	Tôle
	11089	P.-f. 4	63,70	74,2%	6,2%	11,3%	13,0%	3,2%	2,1%	3287	116	497	-	171	Tôle
	11513	P.-f. 4	1,50	67,4%	9,7%	13,8%	6,8%	1,3%	3283	7100	268	105	-	47	Déchet de coulée
Alliage ternaire Pb-Sb-Cu	11095	Ferrier 2 Plat-du-Roi	496	18,3%	20	31,8%	49,6%	60	200	900	1300	-	-	-	Lingot
	12174c	enceinte castrale	1,30	23,4%	85	17,3 %	59,2 %	1031	5,7	102	41	14	-	47	Déchet de coulée
Cuivre au plomb	11148	P.-f. 3	12,50	72,2%	98	2,8%	23,5%	1934	5572	4238	1146	338	-	48	Déchet de coulée
	13138	Plat-du-Roi penne	7,30	65,9%	20	2,0%	30,7%	236	5339	6861	1263	280	-	45	Déchet de coulée

Tableau 40 : Résultats des analyses par LA-ICP-MS réalisées sur le corpus de mobilier cuivreux. Pour chaque individu, la composition moyenne a été calculée à partir de trois analyses. Sauf mention contraire, les teneurs sont exprimées en ppm.

5.1.2.3. Les alliages exogènes : bronzes et laitons

Outre le cuivre non allié, les analyses élémentaires réalisées sur le corpus ont révélé la présence d'alliages qui peuvent être identifiés comme des laitons, des laitons rouges et des bronzes contenant plus ou moins de plomb (figure 191). En l'état des recherches archéologiques, aucun élément ne permet d'envisager l'existence à Castel-Minier de chaînes opératoires consacrées à la confection de ces alliages. De surcroît, les minerais ou les métaux nécessaires à leur production n'ont pas été découverts sur le site. Ainsi, l'absence de minerais de zinc (oxydes ou carbonates) infirme l'hypothèse d'une production de laiton selon le procédé de cémentation⁶⁸⁷. Il en va de même pour l'étain, métal pour lequel ni la production, ni l'utilisation n'ont pu être démontrées à Castel-Minier. Par ailleurs, les mobiliers métallurgiques qui se rapportent à la confection des alliages cuivreux, tels que les creusets, n'ont pas été mis au jour à Castel-Minier. Par conséquent les laitons et les bronzes identifiés au sein du corpus retenus pour l'étude archéométrique sont issus de productions exogènes. Rappelons que ce corpus est composé des objets indéterminés dont l'examen visuel ne permettait d'identifier ni la nature du matériau à partir duquel ils ont été confectionnés, ni leur origine. Seul l'alliage des analyses élémentaires par LA-ICP-MS et des données archéologiques permet à présent d'exclure définitivement une origine locale de ces productions. Toutefois certains alliages ont pu être recyclés à Castel-Minier et entrer

⁶⁸⁷ Le zinc métallique est inconnu en Europe avant la fin du XVII^e siècle et le laiton est produit selon le procédé de cémentation. Le principe repose sur la diffusion à haute température du zinc gazeux dans le cuivre pour former du laiton. En pratique, du cuivre finement divisé (sous la forme de tôles, de lamelles ou de copeaux) est introduit dans un creuset avec du minerai de zinc (sous la forme d'oxydes ou de carbonates) et du charbon pilé. Le zinc est d'abord réduit par le monoxyde de carbone puis il pénètre dans le cuivre par diffusion formant ainsi du laiton. Sur le procédé de cémentation : Bourgarit D. et Thomas N., « Ancient brasses: misconceptions and new insights », *Archaeometallurgy in Europe III*, 29 juin-1^{er} juillet 2011, Bochum, Hauptmann A. et Modaresi-Tehrani D. (éd.), Deutsches Bergbau Museum Bochum, Bochum, 2015, p. 255-262 ; Rehren T., Martín-Torres M., « Naturam ars imitata: European brassmaking between craft and science », In Martín-Torres M. et Rehren T. (éd.), *Archaeology, History and Science: Integrating approaches to Ancient Materials*, Left Coast Press, Walnut Creek, 2008, p. 167-188 ; Doridot A., Robbiola L. et Téreygeol F., « Production expérimentale de laiton par cémentation en creuset ouvert, avec du minerai de zinc, selon les recettes médiévales et modernes », *Archéosciences*, 30, 2006, p. 15-24.

dans la fabrication d'autres alliages cuivreux produits sur place tels que le bronze au plomb antimonié. C'est pourquoi il convient de présenter succinctement les propriétés physico-chimiques de ce mobilier.

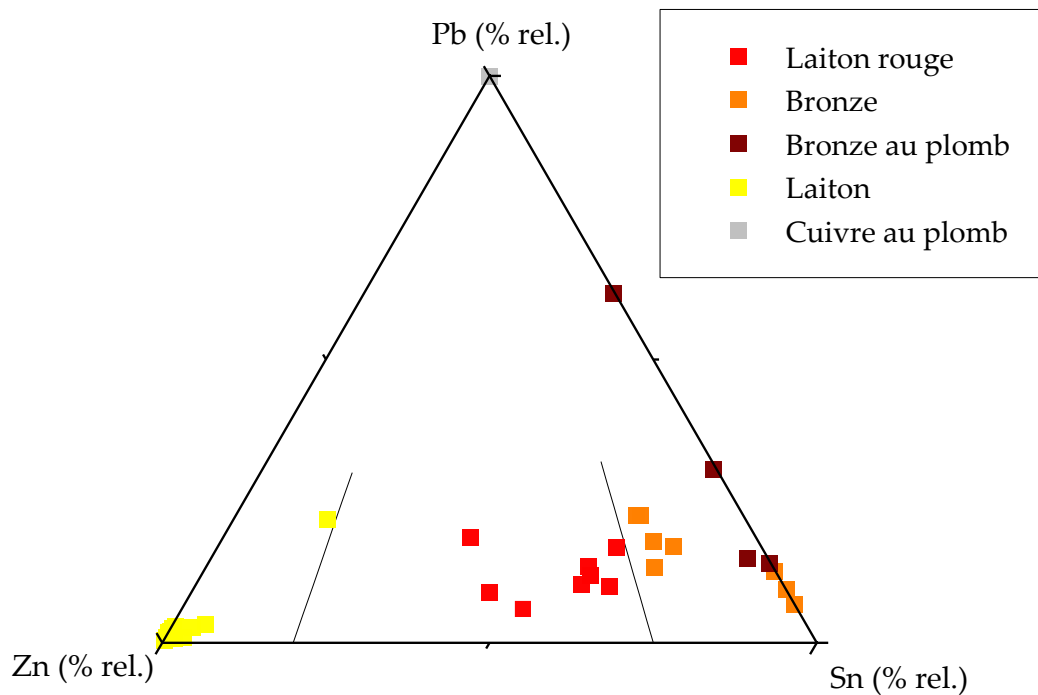


Figure 191 : Diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en étain, zinc et plomb des alliages cuivreux de Castel-Minier analysés par LA-ICP-MS.

Au sein du corpus, les laitons se distinguent par l'absence d'autres éléments d'alliages notamment l'étain et le plomb. L'amplitude des teneurs en zinc est élevée avec des valeurs qui varient entre 2 % et près de 23 % (figure 192). Les artefacts se présentent tous sous la forme de tôles dont l'épaisseur est plutôt homogène : pour les deux tiers du corpus, cette valeur est comprise entre 0,4 et 0,6 mm. Lorsque l'épaisseur est plus élevée, nous n'avons pas constaté de corrélation avec le niveau d'impureté (c'est-à-dire la somme des éléments-traces) qui pourrait indiquer une limite technique imposée par la qualité du laiton travaillé par déformation plastique. En définitive, les petits fragments de laitons, qui se présentent tous sous la forme de tôles, sont très probablement issus d'accessoires du costume qui ont été perdus par les métallurgistes bien que leur petite taille ne permette pas de préciser leur type.

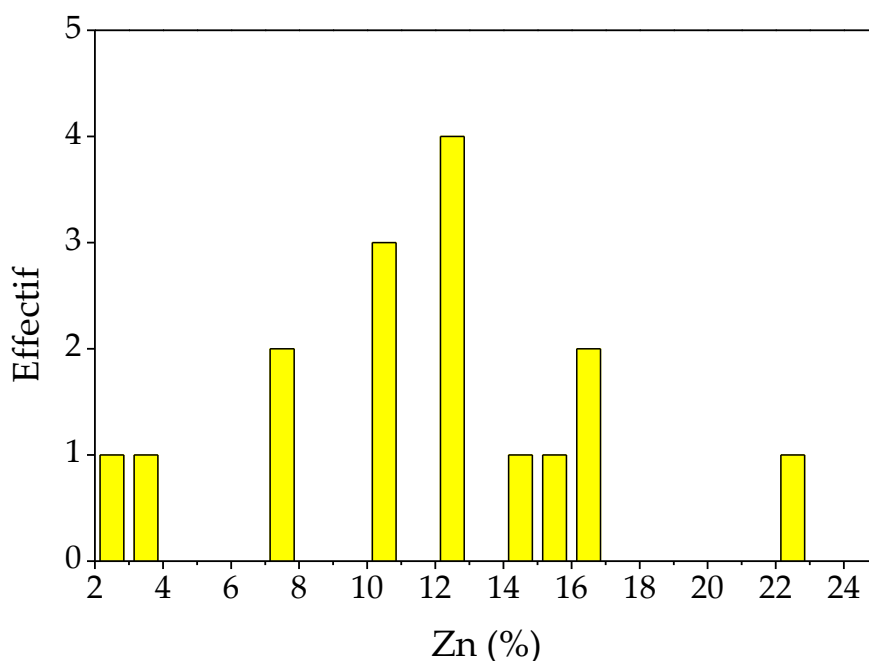


Figure 192: Distribution des teneurs en zinc des laitons archéologiques.

Les bronzes archéologiques présentent des teneurs en étain comprises entre 5,5 et 11,9 % excepté un individu pour lequel cette valeur atteint 22,3 % (figure 193). Le corpus des bronzes peut être partagé en deux classes dont la discrimination se fonde sur la présence de zinc (figure 191). Ce métal dépasse le pour cent pour cinq artefacts tandis que pour les trois autres, il n'est présent qu'à l'état de trace, les teneurs n'excédant pas quelques dizaines de ppm. Outre le zinc, le plomb constitue la principale impureté. Ce métal est systématiquement présent dans une gamme de concentration comprise entre 1 et 2 %. Un individu (CL 12825) se singularise par la présence d'antimoine et de nickel en quantités élevées par rapport au reste du corpus (respectivement 1,7 % et 1,3 %). Néanmoins, tous ces ajouts (zinc et plomb) sont involontaires ; ils correspondent à l'incorporation de métaux au cours de la réduction des minerais. Ainsi, le zinc peut provenir d'inclusions de sphalérite, fréquemment rencontrées dans les minerais de cuivre sulfurés, ou d'un ajout de laiton dans le bronze. De la même manière, le plomb est hérité d'inclusions de galène présentes dans les minerais de cuivre polymétalliques tels que les « cuivres gris ». Il peut également

témoigner de l'usage de plomb métallique pour les opérations de métallurgie extractive (emplombage). Le cuivre qui a servi à confectionner le bronze CL 12825 est très probablement issu du traitement d'un « cuivre gris », plus précisément de tétraédrite comme le suggèrent les teneurs importantes en nickel, antimoine et plomb.

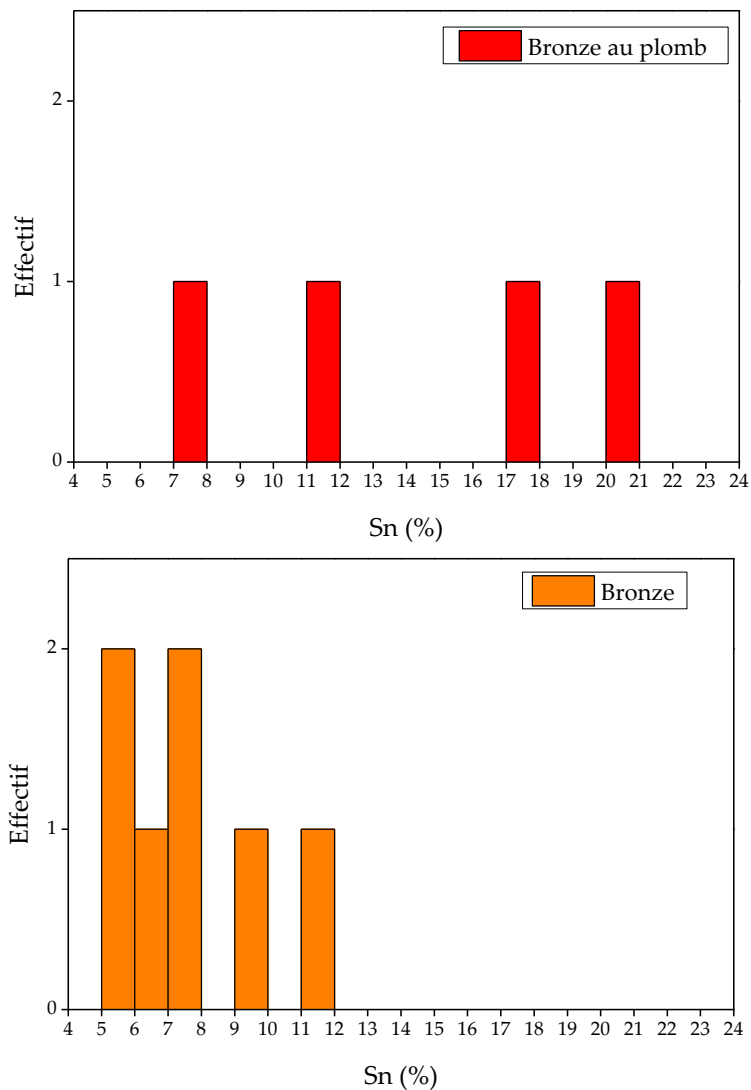


Figure 193: Distribution des teneurs en étain des bronzes et des bronzes au plomb archéologiques.

Les bronzes au plomb sont peu représentés à Castel-Minier avec seulement quatre individus. Hormis une teneur en plomb plus importante, ils se distinguent également des bronzes par la présence d'étain en quantités plus élevées (figure 193). Les teneurs en plomb sont modérées pour trois individus et tout juste supérieures au

seuil de 3 %. Le quatrième individu présente en revanche une concentration en plomb élevée (18,5 %).

Les bronzes, qu'ils contiennent ou non du plomb, ont été découverts sous la forme de tôles pour les deux tiers du corpus. Le dernier tiers regroupe les déchets de coulée dont l'existence atteste d'une utilisation de ces alliages sur le site. Il faut donc envisager un recyclage des bronzes à Castel-Minier, non pour réaliser des objets finis – dont l'hypothèse d'une production endogène n'est soutenue par aucune donnée archéologique –, mais plutôt pour confectionner des demi-produits spécifiques destinés à valoriser des ressources minières particulières⁶⁸⁸.

Le groupe des laitons rouge se partage en deux classes (figure 194). La première regroupe des individus dont les teneurs en zinc sont faibles, entre 2,1 et 2,4 %, tandis que dans la seconde, les valeurs sont comprises entre 3,8 et 6,5 %. En outre, quatre laitons rouges présentent des teneurs en plomb supérieures au pour cent. Ces concentrations sont par ailleurs corrélées à celles du zinc ce qui indique une origine commune : le plomb contenu dans les laitons rouges provient donc du laiton qui a été ajouté au bronze. L'ajout de zinc présente plusieurs avantages. Il permet tout d'abord d'abaisser le point de fusion de l'alliage. Ensuite, ce métal améliore la fluidité et par conséquent la coulabilité lors d'une mise en forme par fonderie : il est donc possible d'atteindre des épaisseurs plus fines sur les objets coulés et une précision accrue dans la restitution de la forme et de l'état de surface⁶⁸⁹. Enfin, le zinc permet de désoxyder et de dégazer le bain métallique⁶⁹⁰. Les laitons rouges se présentent tous sous la forme de tôles. Il s'agit probablement d'accessoires du costume perdus par les métallurgistes.

⁶⁸⁸ Cette question est abordée *infra* p. 618.

⁶⁸⁹ Bourgarit D. et Thomas N., « Later medieval copper alloying practices... », *op. cit.*, p. 3064. Toutefois, aucune corrélation entre l'épaisseur des tôles et la teneur en laiton n'a pu être établie pour le corpus de Castel-Minier.

⁶⁹⁰ Centre d'Information du Cuivre Laitons et Alliages, *Les propriétés du cuivre et de ses alliages*, Paris, Variance, 1992, p. 38.

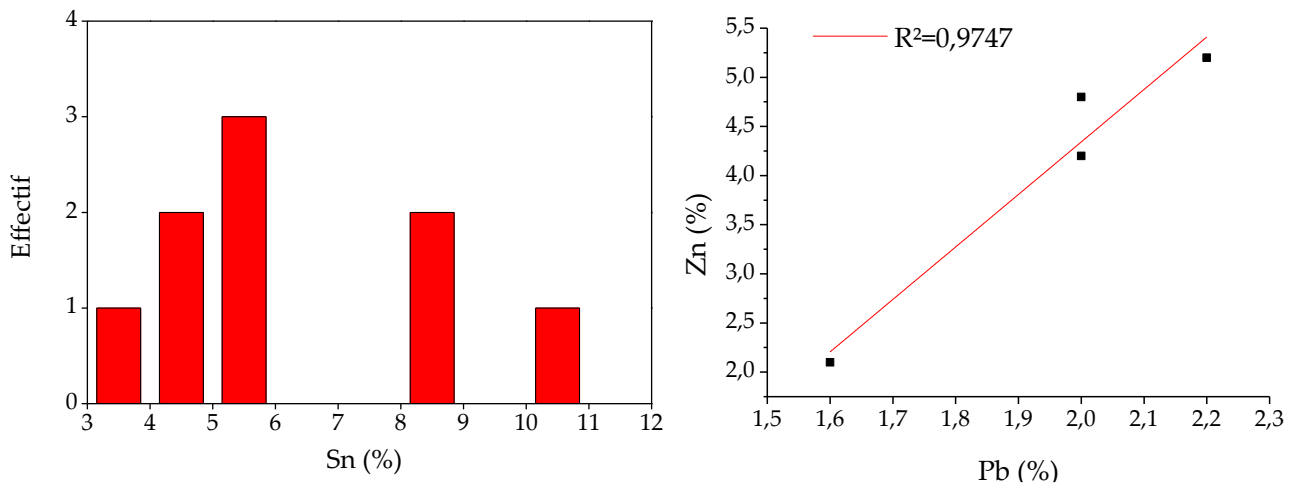


Figure 194 : Distribution des teneurs en étain des laitons rouges archéologiques (gauche). Représentation des teneurs en zinc et en plomb des laitons rouges (droite).

5.2 La production de cuivre non allié à Castel-Minier : éléments de la chaîne opératoire

5.2.1. La répartition du cuivre non allié : organisation fonctionnelle des espaces de travail

5.2.1.1. La fin du XIII^e siècle

Le cuivre non allié se rencontre dès les premiers temps de l'histoire de Castel-Minier à la fin du XIII^e siècle. Le mobilier découvert se répartit inégalement entre les plates-formes 1 et 5, au bénéfice de cette dernière, et le bâtiment 3 (figure 195). Les contextes archéologiques correspondent à des phases d'abandon et de démolition. Sur le plan morphologique, le cuivre non allié se présente exclusivement sous la forme de tôles. Ces artefacts documentent donc l'étape de production par déformation plastique alors que la métallurgie extractive n'a pas laissé de traces pour cette période.

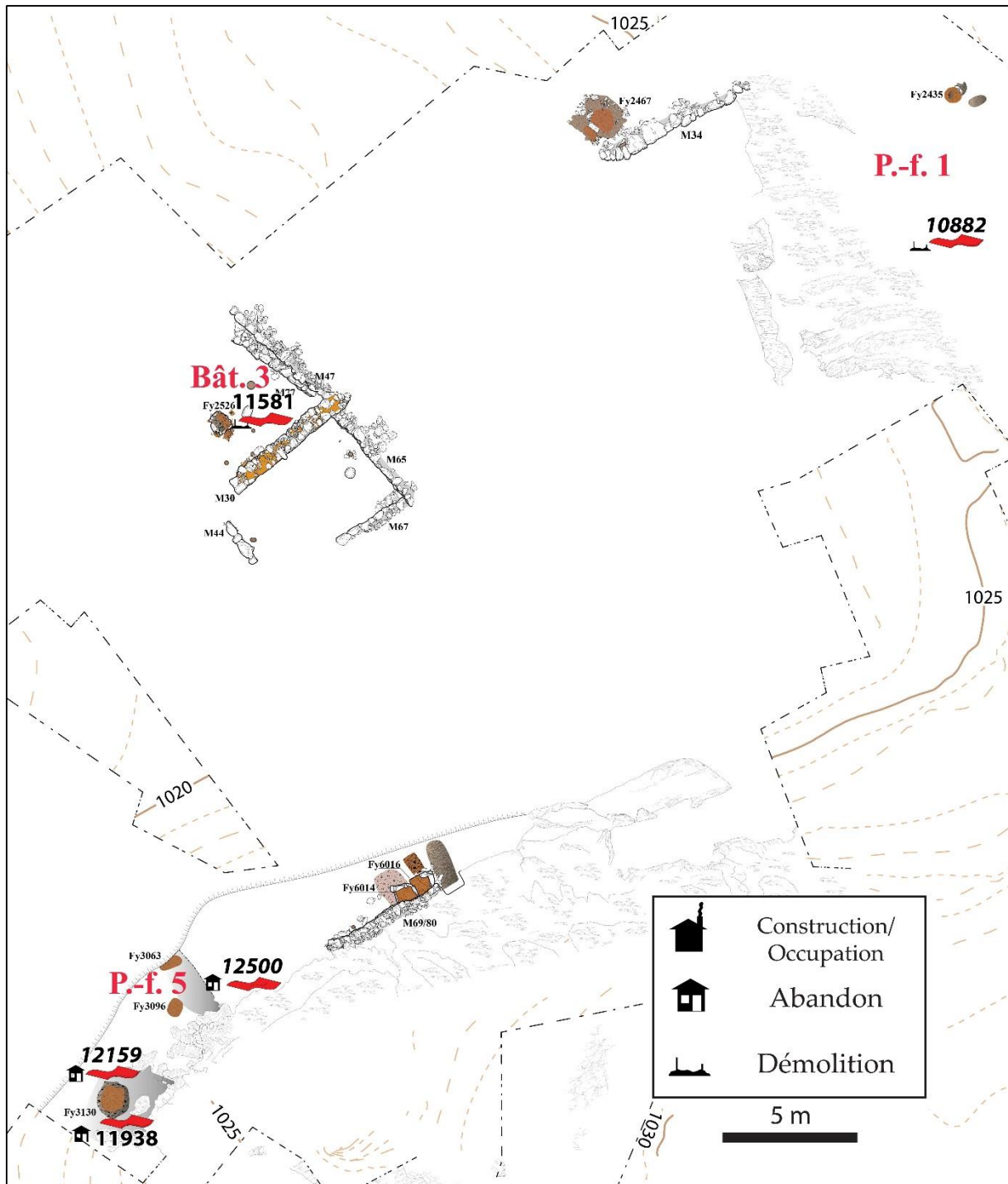


Figure 195 : Répartition du cuivre non allié dans les structures archéologiques de la fin du XIII^e siècle.

5.2.1.2. Le XIV^e siècle

Au cours du XIV^e siècle, les découvertes de cuivre non allié sont plus nombreuses. Le métal occupe préférentiellement les structures occidentales du site, en

particulier les plates-formes 3 et 4 et les aménagements qui enserrant la moraine : le Plat-du-Roi, le bâtiment 10 et le ferrier 2 dans lequel plusieurs fragments ont été mis au jour au milieu des scories de fer (figure 197). La présence de fragments de cuivre non allié dans le ferrier 2 est consécutive à des pertes intervenues par exemple lors du nettoyage des espaces de travail et du curage des structures de chauffe dont le contenu a été épandu dans le ferrier.

La morphologie des fragments de cuivre découverts sur les plates-formes 3 et 4 apporte des enseignements sur la fonction de ces espaces et les étapes de la chaîne opératoire qui s'y déroulent. Tous les déchets informes et partiellement fondus, qui témoignent d'une chauffe au-dessus de la température de fusion du cuivre, sont regroupés sur ces deux plates-formes qui ont livré, par ailleurs, plusieurs exemplaires de tôles. Il semble donc que le cuivre était épuré – voire extrait du minerai – dans ces espaces puis mis en forme par déformation plastique. Toutefois, l'identification des structures de chauffe utilisées pour la transformation de la chalcopirite demeure problématique. En effet, l'étude des foyers de la plate-forme 3 permet d'écarter un usage tourné vers la métallurgie extractive du cuivre. Les dosages par XRF et LA-ICP-MS ainsi que l'analyse spatiale des résultats par la méthode du krigeage montrent que les foyers quadrangulaires n'étaient pas destinés à accueillir le cuivre, mais plutôt le plomb (figure 196). Les teneurs de ce métal dans les argiles rubéfiées sont en effet très élevées par rapport à celles du cuivre. Surtout, ces foyers semblent avoir été réservés au travail dans un contenant. L'interpolation spatiale des teneurs en métaux démontre en effet l'absence d'un contact direct entre la sole et les métaux contrairement aux abords du foyer que l'on peut identifier à des zones de défournement. Ainsi, en l'état des recherches archéologiques, les structures de chauffe destinées au traitement de la chalcopirite ne sont pas connues.

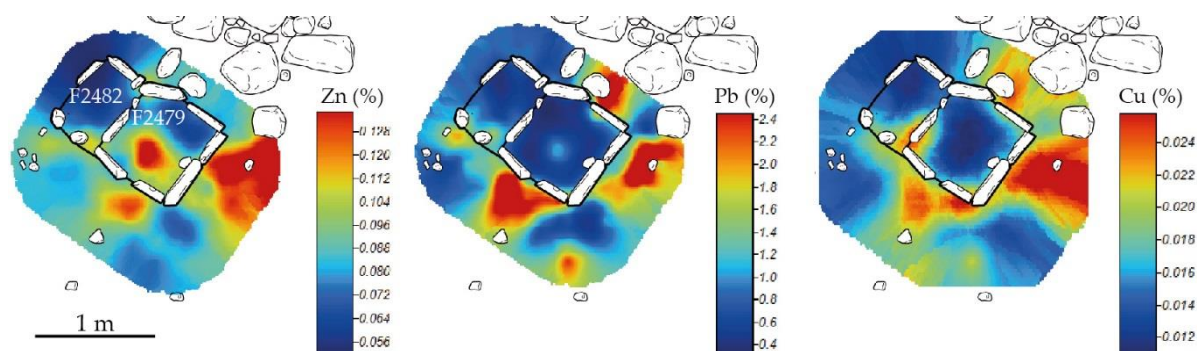


Figure 196 : Résultats du krigeage réalisé à partir des analyses XRF ponctuelles des foyers Fy2482 et Fy2479 pour les teneurs en zinc, plomb et cuivre.

Le bâtiment 10 a également livré du cuivre non allié dont deux des trois individus correspondent à une phase d'occupation. Surtout, un fragment de tôle (CL 11933) a été découvert à proximité du four à sole suspendue Fr62, plus précisément dans une unité stratigraphique qui s'appuie sur son piédroit nord. Il s'agit d'une vidange de cette structure de chauffe qui contient par ailleurs un abondant mobilier ferreux. À proximité immédiate du four se trouve une fosse circulaire qui est interprétée comme le dispositif de maintien d'un billot⁶⁹¹. Ainsi, tous les outils sont réunis dans le bâtiment 10 pour permettre la production de tôles de cuivre non allié par déformation plastique. Cette conclusion révèle la nature polyvalente du bâtiment 10 dont les installations métallurgiques, d'abord vouées à la chaîne opératoire du plomb argentifère, sont également utilisées pour la production de cuivre non allié.

⁶⁹¹ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport Intermédiaire 2015*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2015, p. 78.

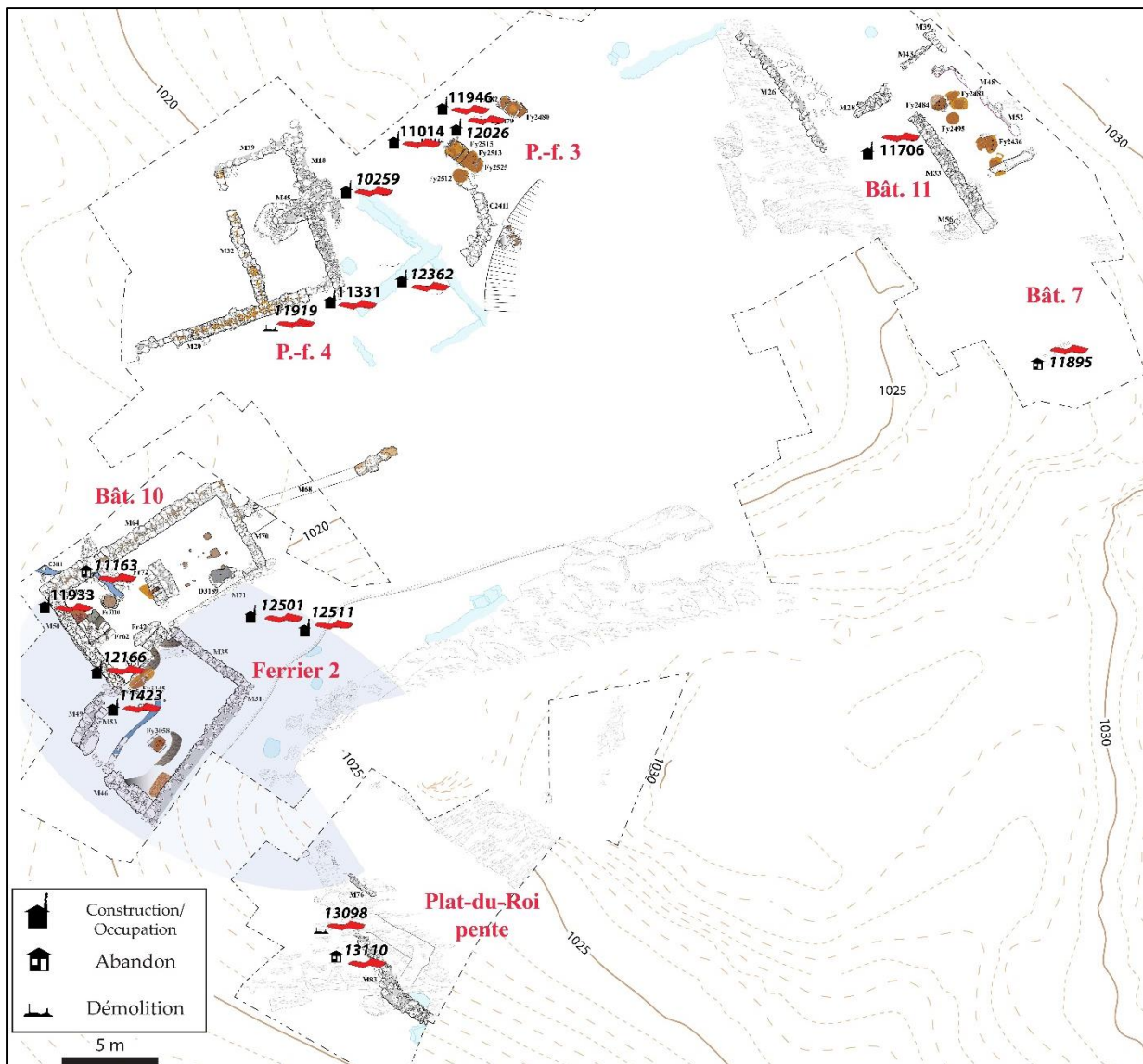


Figure 197 : Répartition du cuivre non allié dans les structures archéologiques de la fin du XIV^e siècle. Les structures de la phase précédente figurent en transparence ainsi que l'emprise du ferrier 2 qui contient les individus CL 11423, CL 11501 et CL 12511.

5.2.1.3. Le XV^e siècle

L'analyse spatiale du mobilier en cuivre non allié met en évidence une évolution de l'organisation fonctionnelle de Castel-Minier au XV^e siècle qui se manifeste par une concentration des activités de production du métal rouge sur le Plat-du-Roi, en particulier dans l'enceinte castrale. Cet espace concentre la quasi-totalité des tôles en cuivre non allié qui constituent les seuls témoins de la chaîne opératoire pour cette période. Le mobilier découvert dans la pente du Plat-du-Roi est en position de rejet au

sein d'un remblai qui s'est mis en place au milieu du XIX^e siècle lors de la construction de la grange qui a entraîné un profond bouleversement de l'espace castral.

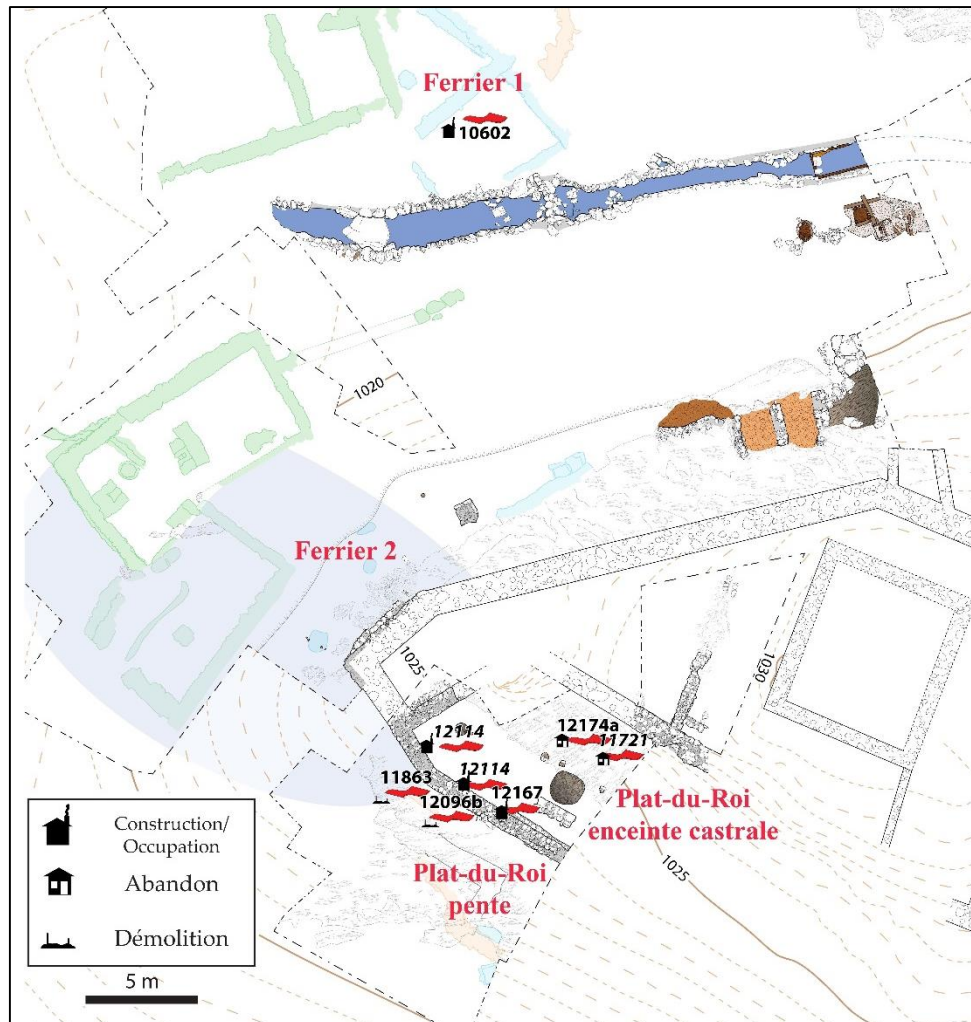


Figure 198 : Répartition du cuivre non allié dans les structures archéologiques de la fin du XV^e siècle. Les structures des phases précédentes figurent en transparence.

5.2.2. Une chaîne opératoire discrète

La métallurgie extractive du cuivre est très mal documentée à Castel-Minier. Les données archéologiques sont en effet lacunaires et se limitent à quelques fragments de chalcopryrite et à des demi-produits en cuivre non allié qui se présentent sous la forme de tôles et de déchets de coulée. L'observation métallographiques et les analyses

élémentaires réalisées sur ce mobilier permettent néanmoins d'esquisser quelques aspects de la chaîne opératoire.

5.2.2.1. Mise en forme du cuivre non allié : tôles et demi-produits

Le cuivre non allié se présente sous la forme de tôles et de déchets de fonderie. L'étude morphologique et métallographique permet de préciser les modalités de mise en forme par déformation plastique. Cette démarche est néanmoins limitée puisqu'elle ne repose que sur un seul paramètre géométrique : l'épaisseur. En effet, les objets étudiés sont des petits fragments dont les autres dimensions (longueur et largeur) ne sont plus celles qu'elles étaient à l'origine. Si ces données ne peuvent être intégrées à notre réflexion, l'épaisseur livre néanmoins des enseignements sur la destination des productions. Ce paramètre a été systématiquement mesuré sur les tôles en cuivre non allié (figure 199). Les valeurs moyennes ont été calculées à partir de trois mesures effectuées sur des portions très peu corrodées de manière à restituer le plus fidèlement possible l'épaisseur originelle des demi-produits. L'analyse des résultats met en évidence une relative standardisation de la production avec une épaisseur comprise entre 0,6 et 0,8 mm pour la majorité des échantillons du corpus. Cette caractéristique métrologique a été observée pour l'ensemble de la période d'activité du site de Castel-Minier. Elle témoigne sans ambiguïté de la volonté de confectionner des demi-produits de qualité constante. La destination du métal peut expliquer cette pratique. Ainsi, la mise en forme de tôles constitue l'étape préliminaire de nombreuses techniques de fabrication des objets domestiques telles que l'emboutissage, le cintrage ou la découpe. Les tôles de cuivre sont également des matières premières pour la confection de plusieurs alliages, notamment celle du laiton produit par cémentation. Si elle répond à des besoins précis, l'exportation de tôles plutôt que de lingots de cuivre confère également une valeur ajoutée non négligeable aux productions de Castel-Minier

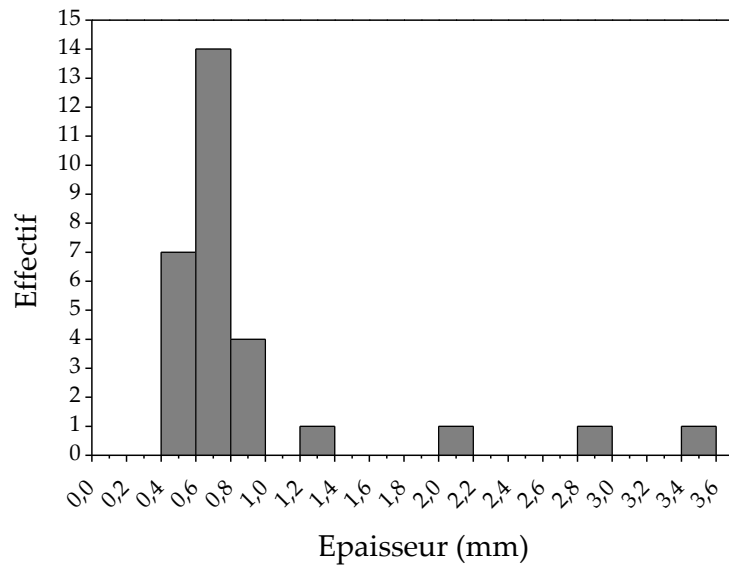


Figure 199 : Distribution des épaisseurs des tôles en cuivre non allié.

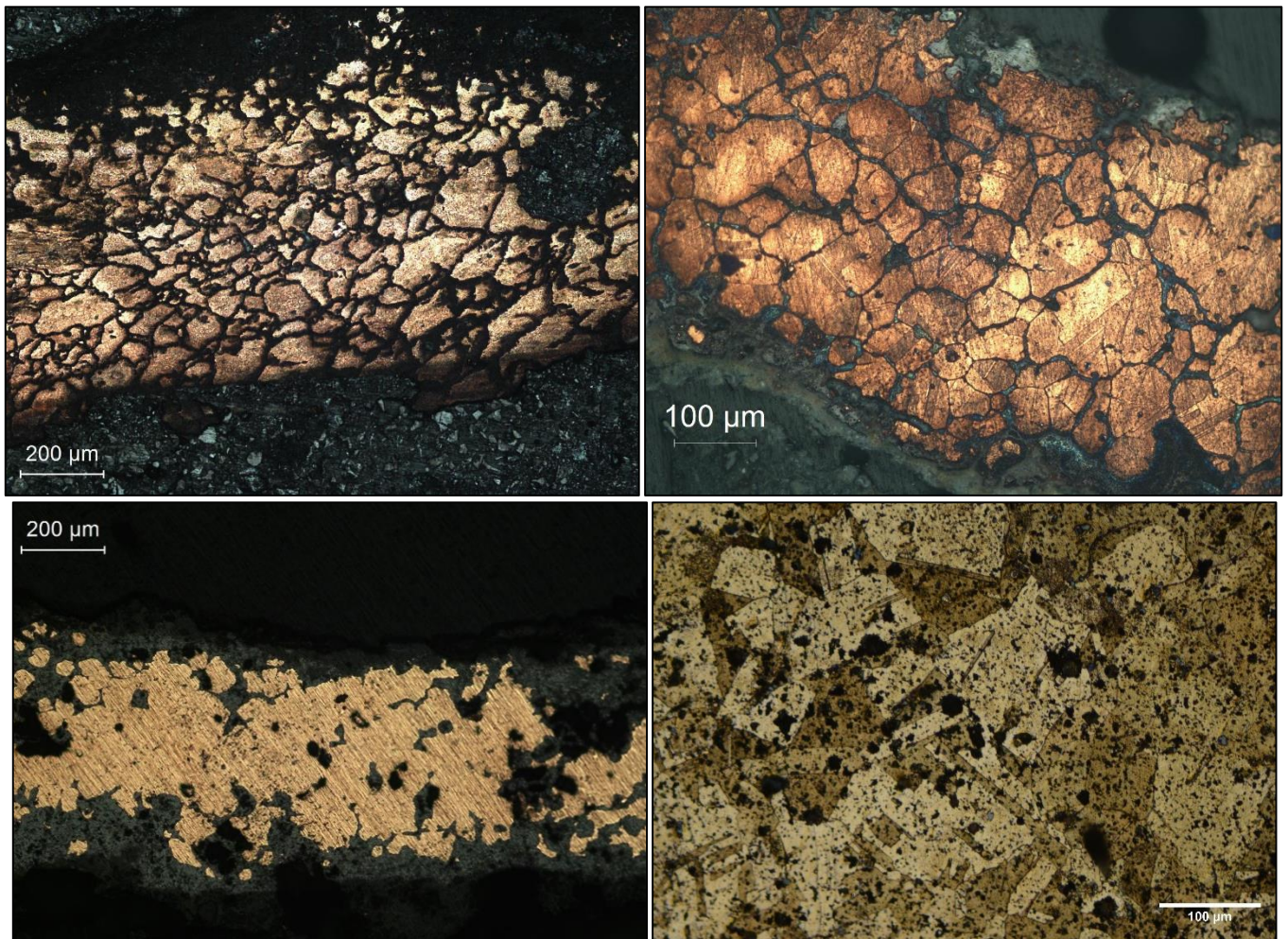


Figure 200 : En haut à gauche : section polie de la tôle CL 10928 après attaque au perchlorure de fer. Structure granulaire déformée par martelage. En haut à droite : section polie de la tôle CL 11958 après attaque au perchlorure de fer, structure après recuit. Grains équiaxes et macles thermiques. En bas à gauche : section polie de la tôle CL 12159 sans attaque. Porosité et corrosion de surface. En bas à droite : section polie du déchet de coulée CL 11678 après attaque au perchlorure de fer. Structure granulaire maclée thermiquement, nombreuses porosités et petites inclusions de sulfures (gris).

L'étude métallographique des demi-produits en cuivre non allié a été réalisée après attaque au perchlorure de fer. Les observations microscopiques mettent en évidence une microstructure granulaire pour les tôles et les déchets de coulée. L'existence de grains indique un refroidissement lent dans les structures de chauffe. Les déchets de coulée contiennent de nombreuses porosités d'aspect globulaire (CL 11678, figure 200). Les joints de grains de la microstructure des tôles constituent des amorces privilégiées pour la corrosion. Sur certains de ces artéfacts, des macles thermiques sont visibles. Elles indiquent une recristallisation au cours du recuit. Pendant la déformation plastique, le métal s'écrouit : sa dureté augmente et sa ductilité se réduit. L'écrouissage au cours du martelage peut être décelé auditivement ce qui permet de choisir le moment adéquat pour pratiquer le recuit. Ce traitement thermique, conduit entre 500 et 800 °C⁶⁹², permet d'adoucir le métal en vue d'une nouvelle déformation plastique. Au cours de la chauffe, de nouveaux grains sont formés : c'est la recristallisation. Le processus débute par la germination des grains – favorisée par les perturbations du réseau⁶⁹³ – puis leur croissance jusqu'à ce qu'ils se rencontrent et forment des joints. La durée du recuit conditionne la taille finale des grains.

Les tôles de Castel-Miner ont été mises en forme par une succession de cycles de déformation plastique et de recuit. L'individu CL 10928 présente des grains allongés perpendiculairement à l'axe du martelage qui indiquent une déformation plastique intervenue après un recuit. La microstructure de la tôle CL 11938 est le résultat d'une recristallisation au cours d'un recuit : les grains sont equiaxes et présentent des macles thermiques. Les tôles contiennent parfois des porosités plus ou moins circulaires qui forment des vides de couleur noire visibles sur les sections polies

⁶⁹² La température de recuit dépend du taux d'écrouissage, mais également des impuretés. La présence d'éléments-traces, comme c'est le cas dans les métaux anciens, augmente la température d'adoucissement du cuivre.

⁶⁹³ L'écrouissage préalable est un prérequis à la recristallisation et le seuil à partir duquel elle se produit est appelé écrouissage critique.

(CL 12159). Enfin, les produits de corrosion qui se développent aux joints de grains et en surface (par exemple CL 12159) sont formés d'oxyde cuivrique (CuO).

L'observation de la microstructure des tôles ne permet pas de trancher entre une déformation plastique à froid suivie d'un recuit et une déformation plastique à chaud : ces deux procédés conduisent en effet à une microstructure similaire à celle observée. En revanche, l'absence de macles mécaniques et l'aspect rectiligne des macles thermiques de la tôle CL 11938 indiquent qu'elle n'a pas subi de martelage supplémentaire à l'issue d'un recuit final.

5.2.2.2. L'analyse des éléments-traces du cuivre non allié

Les analyses par LA-ICP-MS des cuivres non alliés ont permis de quantifier les éléments-traces qu'ils contiennent. Ces résultats peuvent être mis à profit pour apprécier la similarité ou la dissimilarité des demi-produits de Castel-Minier et étudier l'évolution spatiale et chronologique des compositions élémentaires. Cette démarche vise à constituer des groupes d'objets qui renseignent d'une part sur les variations des sources de minerai et d'autre part sur les procédés métallurgiques mis en œuvre pour produire le métal. En revanche, il nous paraît illusoire de tenter d'établir une filiation avec les minerais de cuivre archéologiques découverts à Castel-Minier, en particulier avec la chalcopryrite, pour plusieurs raisons que nous allons exposer.

En préambule, il convient de rappeler l'état de l'art sur les études de provenance des mobiliers archéologiques à base de cuivre, dont les origines remontent au milieu du XIX^e siècle⁶⁹⁴, en insistant tout particulièrement sur les évolutions méthodologiques qu'elles ont subi depuis une quarantaine d'années et qui concernent d'une part les

⁶⁹⁴ Pour les éléments historiographiques voir : Pernicka E., « Provenance Determination of Archaeological Metal Objects », In Robert B.W. et Thornton C.T. (éd.), *Archaeometallurgy in Global Perspective*, Springer, New-York, 2014, p. 239-268.

analyses élémentaires, en particulier la mesure des éléments mineurs et traces, et d'autre part la détermination des rapports isotopiques du plomb⁶⁹⁵. Jusqu'à la fin des années 1970, l'influence du procédé métallurgique sur la signature chimique des artefacts métalliques était largement ignorée dans les études consacrées à la filiation métal-minerai. Les analyses élémentaires réalisées sur de grandes séries d'objets archéologiques, à travers plusieurs programmes de recherche, visaient à établir une classification fondée sur un traitement statistique des teneurs élémentaires puis à la comparer à des référentiels établis à partir de minerais⁶⁹⁶.

Les faiblesses de ces approches ont été soulignées depuis. Il s'agit principalement des problèmes de représentativité des référentiels géochimiques utilisés et de la non prise en compte de l'influence des procédés métallurgiques sur les compositions finales en éléments-traces. Ce second point suggère donc que les résultats de ces programmes d'étude ne caractérisent pas uniquement la provenance, mais également les procédés métallurgiques utilisés, sans distinction possible. Le développement des recherches archéométallurgiques et la mise en place d'équipes pluridisciplinaires ont permis de faire progresser de manière significative la connaissance du comportement des éléments mineurs et traces au cours de la transformation des minerais selon les procédés anciens. La démarche engagée par Tylecote *et al.* en 1977 visait à étudier les teneurs en éléments-traces dans le cuivre et les scories⁶⁹⁷. Les auteurs ont également évalué les contributions du fondant et du combustible à la signature chimique du métal. Les principaux résultats concernent

⁶⁹⁵ Pour une synthèse récente, voir Bourgarit D. et Mille B. « Provenance du cuivre... », *op. cit.*, p. 103-131.

⁶⁹⁶ Parmi les grands programmes d'analyse figurent celui du « groupe de Stuttgart » ou encore le programme d'étude du cuivre du Moyen Orient au III^e et IV^e millénaires : Junghans S., Sangmeister E. et Schroder M., *Studien zu den Anfängen der Metallurgie, Kupfer und Bronze in der frühen Metallzeit Europas 1-4*, Gebr. Mann Verlag, Berlin, 1968, 1974 ; Berthoud T., Bonnefous S., Dechoux M. et Françaix J., « Data analysis: Towards a model of chemical modification of copper from ores to metal », *In* Craddock P. T. (éd.), *Scientific studies in early mining and extractive metallurgy*, British museum Occasional paper, London, 1980, p. 87-102

⁶⁹⁷ Tylecote R. F., Ghaznavi H. A. et Boydell P. J., « Partitioning of Trace Elements Between the Ores, Fluxes, Slags and Metal During the Smelting of Copper », *Journal of Archaeological Science*, (4), 1977, p. 305-333.

l'appauvrissement en éléments volatils dans le minerai au cours du grillage⁶⁹⁸, mais également lors de la conversion de la matte. L'influence de la température de réduction sur les teneurs de certains éléments (zinc, antimoine, plomb et bismuth) dans le cuivre a également été démontrée.

Pollard *et al.* se sont intéressés au comportement de l'antimoine, de l'arsenic et du nickel au cours de la réduction d'un minerai mixte composé de malachite et de différents minéraux et oxydes⁶⁹⁹. Les auteurs démontrent la possibilité d'obtenir à partir d'un même minerai, des cuivres métalliques incorporant plus ou moins d'arsenic et de nickel selon la température de travail. Ainsi, le cuivre métallique est formé dès 700 °C alors que l'arsenic et le nickel sont réduits et incorporés totalement dans le métal à des températures élevées qui se situent autour de 1000 °C. Si ces conclusions n'ont pas été remises en cause, la faible efficacité du procédé de réduction du cuivre en phase solide – qui nécessite par ailleurs de maintenir des températures modérées – rend peu probable son utilisation par les anciens métallurgistes, capables par ailleurs d'atteindre des températures bien supérieures pour fondre le cuivre⁷⁰⁰.

Nos propres expérimentations sur la chalcopirite d'Aulus nous ont permis d'étudier les teneurs en éléments-traces du cuivre obtenu à l'issue de trois grillages puis d'une réduction dans un creuset avec ajout de flux noir et de silice (figure 201). La transformation du minerai a été réalisée à petite échelle avec de la chalcopirite archéologique de Castel-Minier (CL 11089). Le minerai finement broyé a subi trois grillages successifs puis a été introduit dans un creuset avec du sable, de la silice et du

⁶⁹⁸ Sur l'influence du grillage, voir également les expérimentations de Happ *et al.* d'après les données archéologiques du district de Cabrières (Hérault, France) : Happ J., Ambert P., Bourhis J.-R. et Briard J., « Premiers essais de métallurgie expérimentale à l'archéodrome de Beaune à partir de minerais chalcolithiques de Cabrières (Hérault) », *Bulletin de la société préhistorique française*, 91(6), 1994, p. 429-434.

⁶⁹⁹ Pollard A. M., Thomas R. G., Ware D. P. et Williams P. A., « Experimental smelting of secondary copper minerals: Implications for Early Bronze Age metallurgy in Britain », *In* Pernicka E. et Wagner G.A. (éd.), *Archaeometry '90*, Birkhäuser Verlag, Bâle, 1991, p. 127-136.

⁷⁰⁰ Pernicka E., « Provenance Determination of Archaeological Metal Objects... », *op. cit.*, p. 252.

flux noir⁷⁰¹ selon la recette donnée par Lazarus Ercker dans son traité de 1574 consacré à l'essai des minerais⁷⁰². L'opération s'est déroulée dans un four à moufle, durant 40 min et à une température de 1100 °C. À l'issue de la réduction, un bouton métallique de cuivre est obtenu ainsi qu'une matte de cuivre et une scorie (figure 201). L'analyse élémentaire de la scorie démontre qu'elle est composée de silicate de fer et qu'elle contient très peu d'oxydes de cuivre (1,8 %). Des résultats similaires ont été observés par Burger au cours d'expérimentations visant à restituer la chaîne opératoire de la chalcoppyrite dans des structures préhistoriques de type vase-four découvertes sur le site d'Al-Claus (figure 201).

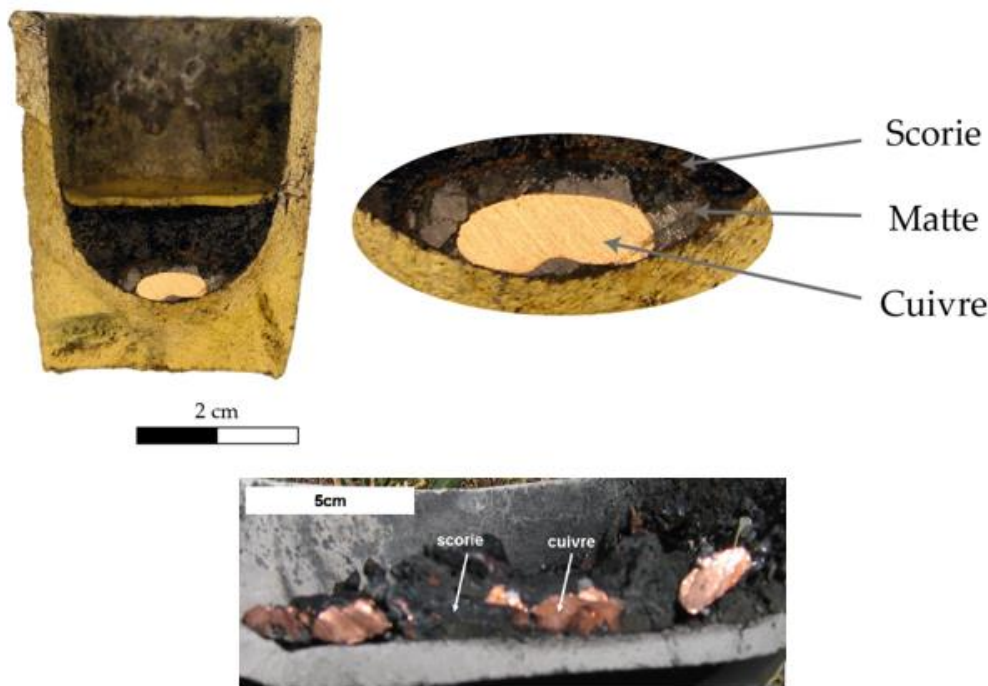


Figure 201: Haut, résultats de nos expérimentations à petite échelle d'après la recette de Lazarus Ercker. Bas, expérimentations conduites par Burger à partir de données issues de contextes préhistoriques. (Cliché d'après Burger E., *Métallurgie extractive protohistorique du cuivre : Etude thermodynamique et cinétique des réactions chimiques de transformation de minerais de cuivre sulfurés en métal et caractérisation des procédés*, thèse de 3^e cycle, Université Pierre et Marie Curie, 2008, p. 235).

⁷⁰¹ Le flux noir est confectionné à partir de gravelle (le bitartrate de potassium ($KC_4H_5O_6$), un des composants du vin qui précipite dans le fond des fûts) et de salpêtre (KNO_3). Du charbon ardent est déposé sur le mélange finement broyé afin d'amorcer la réaction de combustion qui entraîne la formation de carbonate de potassium (K_2CO_3). Le flux noir permet de séparer le métal des impuretés non organiques tandis que son pouvoir réducteur facilite les réactions.

⁷⁰² Ercker L., Sisco A. G. et Smith C. S., *Lazarus Ercker's Treatise...*, *op. cit.*, p. 210 et suivantes.

L'analyse par LA-ICP-MS du bouton de cuivre et du minerai permet d'étudier le comportement de plusieurs éléments-traces au cours de notre réduction expérimentale. La comparaison met en évidence un appauvrissement en zinc. Ce métal s'est très probablement volatilisé lors des grillages successifs. En revanche, les teneurs en argent, nickel, antimoine et étain sont stables. Ces métaux ont été incorporés dans le cuivre au cours de la réduction. Les teneurs en plomb, arsenic et en bismuth sont plus difficiles à expliquer puisqu'elles dénotent un enrichissement au cours de la transformation du minerai. L'hypothèse de la présence d'inclusions de galène (contenant des traces en bismuth et en antimoine) dans la chalcoppyrite est la plus probable pour expliquer ce phénomène.

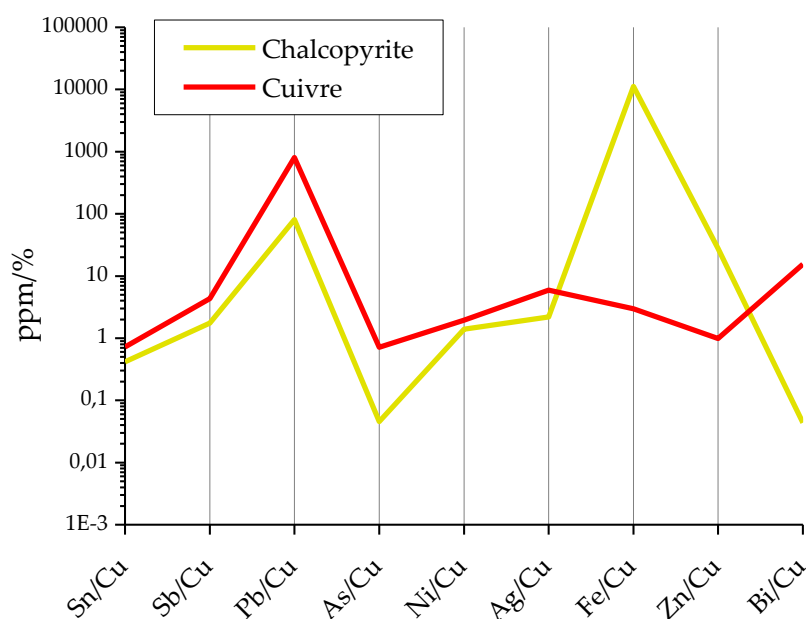


Figure 202 : Rapports entre les éléments-traces et le cuivre pour la chalcoppyrite et le métal obtenu à l'issue de sa transformation dans le cadre de notre expérimentation à petite échelle. Les teneurs de la chalcoppyrite ont été renormalisées après élimination du soufre.

Les expérimentations réalisées par Merkel concernent les étapes ultérieures de la chaîne opératoire du cuivre, c'est-à-dire la refonte puis l'affinage sous atmosphère

oxydante⁷⁰³. Les résultats permettent d'identifier plusieurs éléments tels que l'argent, l'antimoine, le nickel ou encore l'arsenic qui ne sont pas affectés de manière significative au cours de ces étapes. En revanche, l'appauvrissement en soufre, plomb, zinc et cobalt a été clairement démontré.

Finalement, la définition de marqueurs chimiques fiables pour les études de provenance est loin d'être achevée. La synthèse proposée par Pernicka, qui compile de nombreux résultats issus d'expérimentations archéométallurgiques et d'études de mobilier archéologique à base de cuivre, est la plus complète⁷⁰⁴. L'auteur classe les éléments chimiques selon qu'ils présentent un potentiel pour étudier la provenance du cuivre et/ou le procédé métallurgique à partir duquel il a été produit.

La seconde évolution méthodologique majeure intervenue dans le champ des études de provenance du cuivre concerne l'introduction des méthodes isotopiques et notamment la détermination des rapports isotopiques du plomb. Appliquée à la fin des années 1980 aux mobiliers archéologiques⁷⁰⁵, cette méthode permet de s'affranchir des problèmes de partitionnement des éléments-traces entre le métal, la scorie et les fumées au cours des procédés métallurgiques. En effet, les rapports isotopiques du plomb ne subissent pas de fractionnement tout au long des étapes de transformation des minerais. Il est donc possible d'étudier une potentielle filiation minerai-métal en observant toutefois quelques précautions. Les études de provenance ayant recours à la géochimie isotopique du plomb nécessitent en effet de disposer d'un référentiel géochimique fiable. Cette étape préliminaire est cruciale et conditionne les interprétations. Elle permet de tenir compte de la variabilité géochimique d'un

⁷⁰³ Merkel J., « Summary of experimental results for Late Bronze Age copper smelting and refining », *Museum Applied Science Center Journal*, 2(6), 1983, p. 173-179 ; Merkel J., « Experimental reconstruction of Bronze Age copper smelting based on archaeological evidence from Timna », In Rothenberg B. (éd.), *The ancient metallurgy of copper, Institute of Archaeo-Metallurgical Studies*, Londres, 1990, p. 78-122.

⁷⁰⁴ Pernicka E., « Trace element fingerprinting of ancient copper », In Young S. M. M., Pollard A. M., Budd P. et Ixer R. A. (éd.), *Metals in Antiquity*, Archaeopress BAR International Series 792, Oxford, 1999, p. 163-171

⁷⁰⁵ Pernicka, E., « Instrumentelle Multi-Elementanalyse archäologischer Kupfer- und Bronzeartefakte Ein Methodenvergleich », *Jahrbuch Römisch-Germanisches Zentralmuseum*, 31, 1984, p. 517-531.

gisement. Elle n'est pas toujours réalisée de manière optimale, surtout pour les mines anciennes qui sont la plupart du temps épuisées ou inaccessibles. En outre, l'intérêt des analyses isotopiques est fortement réduit lorsque plusieurs sources de minerais ont été mélangées ou lorsque le cuivre a servi de base à la confection d'alliages.

En définitive, la solution la plus satisfaisante pour mener à bien les études de provenance consiste à combiner les approches élémentaires et isotopiques. Dans le cas de Castel-Minier, les éléments-traces mesurés dans le cuivre non allié ne permettent pas d'envisager raisonnablement l'étude de la filiation. En effet, les données relatives au procédé d'extraction du cuivre mis en oeuvre sur le site sont trop fragmentaires. En particulier, le comportement des éléments-traces au cours des opérations métallurgiques n'est pas connu précisément. Nous proposons en revanche de discuter les compositions élémentaires du mobilier mis au jour et d'évaluer leurs évolutions sur la période envisagée de manière à mettre en évidence une éventuelle variation de la source d'approvisionnement et/ou des procédés techniques.

Les principaux éléments-traces contenus dans les cuivres non alliés sont l'antimoine, l'argent, l'arsenic et le plomb (figure 203). L'analyse des teneurs cumulées met en évidence une forte disparité au sein du corpus avec des individus contenant peu d'impuretés (autour de 5000 ppm) tandis que pour d'autres, le niveau peut atteindre plusieurs pour cent. Sur les deux siècles d'activités métallurgiques que recouvre le corpus analysé, il n'y a pas de distinctions chrono-spatiales notables des niveaux d'impuretés.

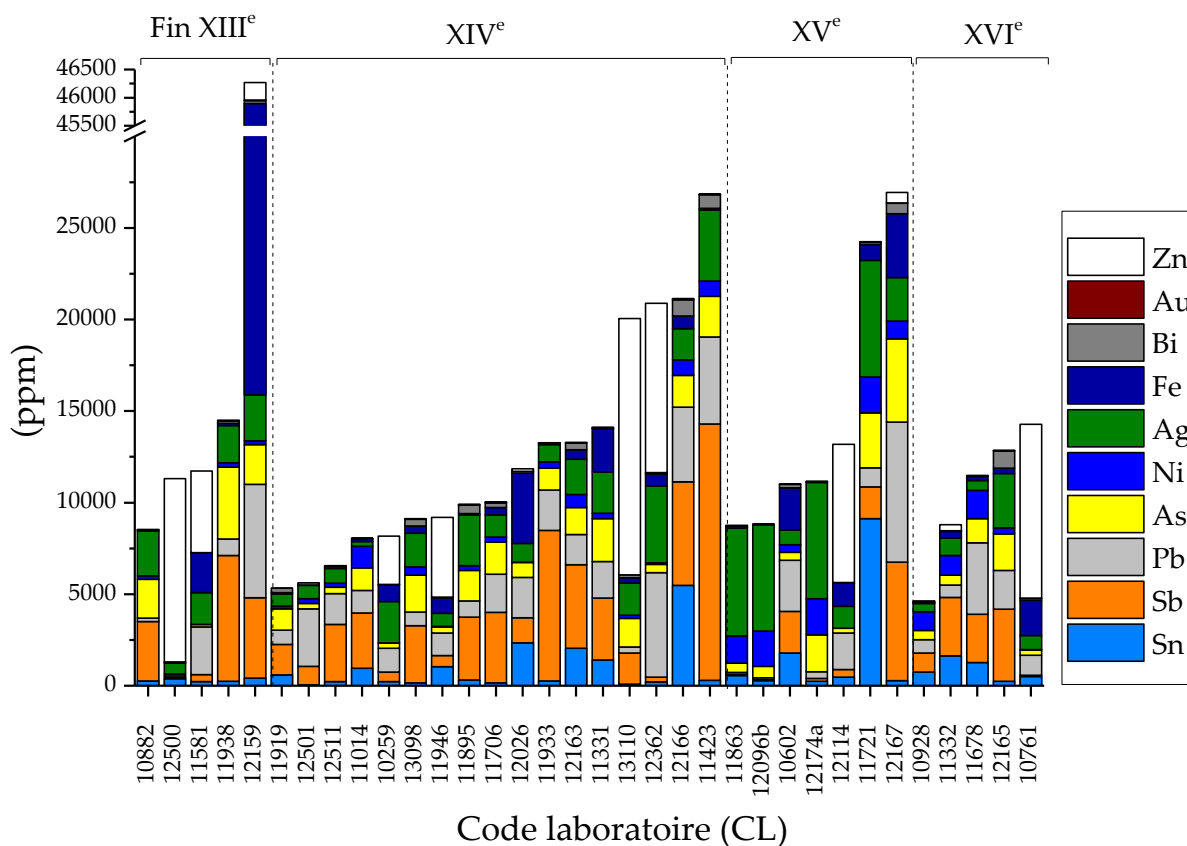


Figure 203 : Teneurs cumulées des éléments-traces mesurés dans les cuivres non alliés, classés suivant la phase chronologique à laquelle ils appartiennent puis par valeurs croissantes.

La distribution des teneurs en fer dans les cuivres non alliés montre que pour la majorité des individus, cet élément ne dépasse pas les 400 ppm (figure 204). Dans le cadre d'une production de cuivre non allié à partir de chalcopryrite, ce constat dénote la séparation efficace du cuivre et du fer. L'artéfact CL 12159 fournit un contre-exemple intéressant puisque sa teneur en fer atteint 3 %. Il s'agit d'un individu découvert dans les niveaux les plus anciens du site (fin du XIII^e siècle) qui s'avère être un indice de la mise en place d'une chaîne opératoire consacrée à l'extraction du cuivre. Il témoigne des toutes premières productions pour lesquelles le procédé, encore en cours d'appropriation par les métallurgistes de Castel-Minier, a conduit à l'incorporation importante de fer. Ce phénomène découle de conditions d'oxydo-réduction particulières, très réductrices et couplées à une température élevée, qui ont permis de transformer l'oxyde de fer en métal qui a été incorporé ensuite dans le cuivre.

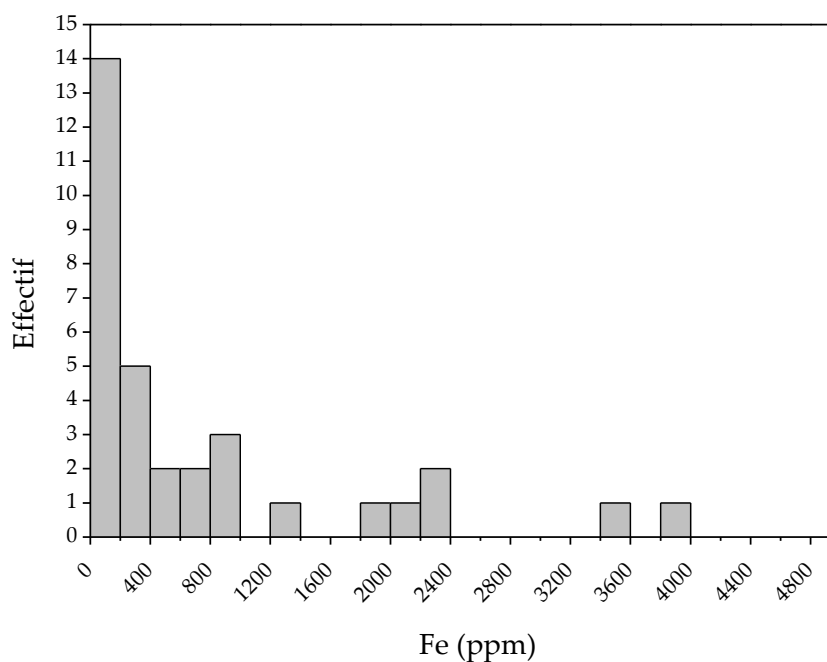


Figure 204 : Distribution des teneurs en fer dans les cuivres non alliés. Un individu contenant 3 % de fer (CL 12159) est en dehors du graphique.

La représentation des teneurs en argent et en nickel, deux métaux qui suivent le cuivre durant les opérations métallurgiques et qui sont susceptibles de discriminer les sources de minerais, permet de distinguer deux groupes (figure 205). Le premier présente des teneurs en nickel faibles comprises entre 10 et 30 ppm tandis que pour le second, elles s'échelonnent de 100 à 2000 ppm. Cette différence peut indiquer une variation du minerai approvisionnant les ateliers qui concerne d'ailleurs toutes les périodes d'activité de Castel-Minier. Quant aux teneurs en argent, elles sont très variables et ne permettent pas de distinguer les cuivres non alliés à l'exception d'un groupe d'individus provenant des niveaux du XV^e siècle du Plat-du-Roi et pour lequel les teneurs en argent et en nickel sont les plus élevées du corpus.

En supposant que les teneurs en argent et en nickel sont conservées depuis le minerai jusqu'au métal, les chalcopyrites archéologiques CL 11809, CL 12148 et l'échantillon provenant de la mine d'Ichedets (dans le district d'Ustou), se rapprochent du corpus métallique étudié selon ces critères (figure 205). Plus précisément, le minerai d'Ichedets est proche du premier groupe, faible en nickel, alors que l'individu archéologique CL 12809 présente plus de similitudes avec le second groupe. Ce

résultat est à considérer avec prudence et devra être confirmé par les campagnes de fouilles futures, mais également par des analyses isotopiques. Néanmoins, il illustre le potentiel minier du district d'Ustou qui a pu alimenter les ateliers de Castel-Minier durant la période médiévale.

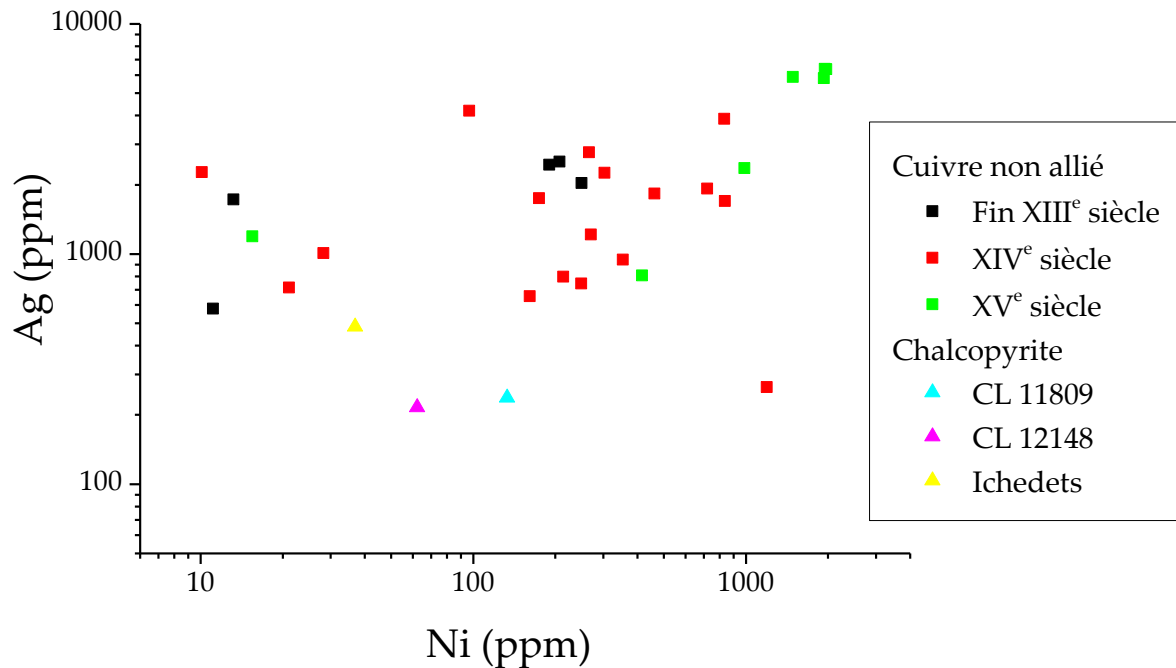
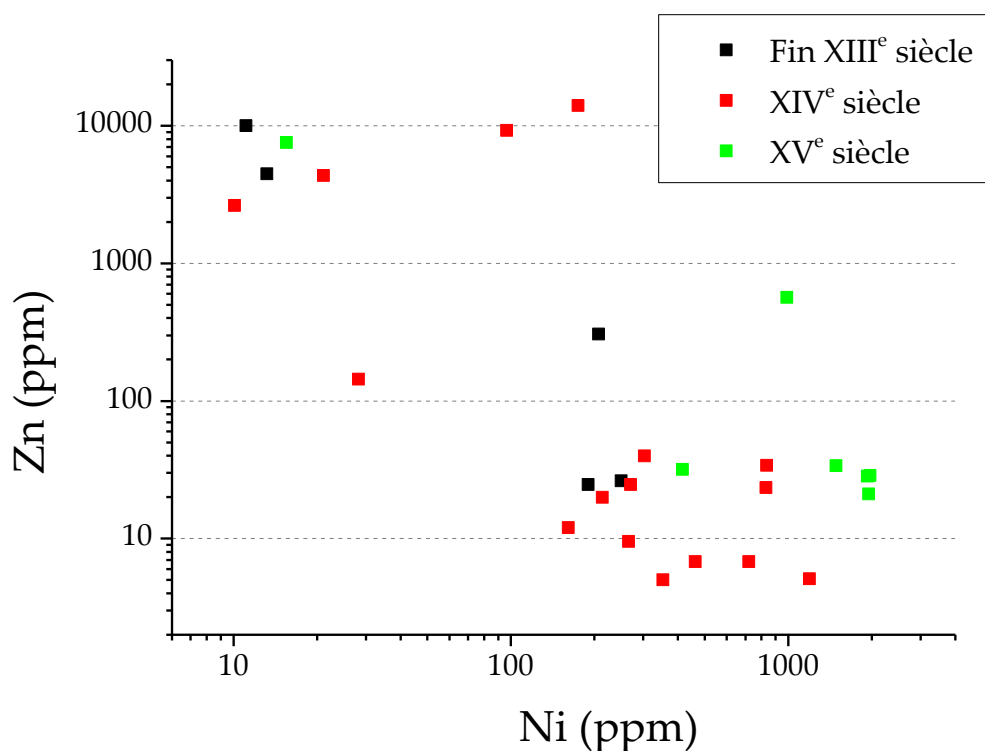


Figure 205 : Représentation des teneurs en argent et en nickel des cuivres non alliés et des chalcopyrites (archéologiques et issues des prospections) pour lesquelles un rapprochement avec les métaux peut être proposé. Pour permettre la comparaison, les teneurs des chalcopyrites ont été recalculées.

Les teneurs en zinc des cuivres non alliés suivent une répartition bimodale (figure 206). Dans le premier groupe, les concentrations sont relativement faibles avec tout au plus quelques dizaines de ppm. Dans le second, elles sont nettement plus élevées et comprises entre 2000 ppm et plus de 1 %. En outre, les cuivres du second groupe présentent la plupart du temps des teneurs en nickel inférieures à 100 ppm. Les teneurs élevées en zinc sont imputables au procédé métallurgique mis en œuvre pour obtenir les cuivres non alliés. Deux phénomènes peuvent expliquer son incorporation dans le métal. D'une part, un grillage partiel qui n'a pas permis d'éliminer cet élément volatil ; d'autre part, des conditions d'oxydo-réduction

particulières qui ont favorisé la transformation des oxydes de zinc subsistants en zinc métallique qui a été incorporé dans le cuivre. Ces conditions devaient être particulièrement réductrices puisque l'oxyde de zinc est moins facilement réduit que l'oxyde de cuivre. Quoi qu'il en soit, et en l'absence de données probantes sur les processus métallurgiques destinés à la production de cuivre non allié à Castel-Minier, les teneurs élevées en zinc de certains artefacts, sauf contamination par un éventuel fondant, sont imputables à la nature du minerai traité. L'hypothèse d'un minerai de cuivre contenant des inclusions de sphalérite est la plus probable.



éléments supérieur à 0,1 tandis que pour la seconde il se situe autour de 0,01. En outre, la contribution de cette dernière diminue à partir du XV^e siècle.

La prise en compte des teneurs en zinc renforce la ségrégation entre ces groupes. Ainsi, la seconde source de minerai a permis l'obtention de cuivres dont les teneurs en zinc sont significatives. Cette particularité semble indiquer l'usage de procédés métallurgiques particuliers pour traiter ces minerais qui impliquent un grillage peu prononcé entraînant la formation de matte. La conversion de cette dernière s'est faite dans des conditions oxydo-réductrices qui ont favorisé l'incorporation de zinc métallique dans le cuivre.

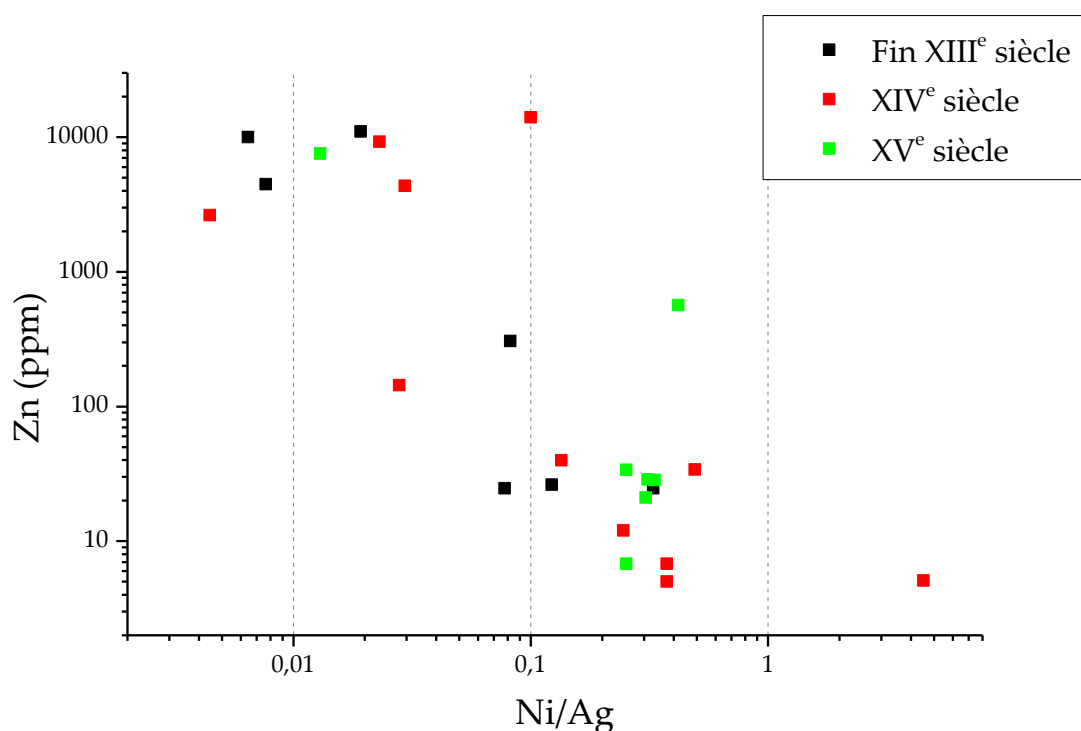


Figure 207 : Représentation du rapport nickel/argent et des teneurs en zinc des cuivres non alliés.

5.3 Le bronze au plomb antimonié, ou *caldarium* : une production opportuniste

5.3.1. Le traitement de la bournonite

5.3.1.1. Une activité spatialisée

L'étude du mobilier archéologique a permis d'identifier la bournonite (CuPbSbS₃) parmi les minerais non-ferreux découverts à Castel-Minier. Cependant, les quantités sont faibles et se limitent à un corpus de trois individus pour une masse totale de 115,4 g. La bournonite est un minerai polymétallique qui contient du plomb, de l'antimoine et du cuivre en quantités inégales. Ainsi, le métal rouge est minoritaire (en moyenne 18 %) tandis que l'antimoine représente environ 1/4 du minerai (26 % en moyenne). Le plomb est le constituant majeur avec une teneur moyenne de 43 % dans le minerai. L'intérêt économique de la bournonite n'est pas à rechercher du côté des éléments-traces qu'elle contient. Leurs teneurs, notamment celle de l'argent, sont très faibles. Les étapes de métallurgie extractive visent donc à extraire tout ou partie des éléments majeurs. A priori, le cuivre semble être le métal le plus attractif et le plus rentable. Toutefois, son extraction suppose d'une part son identification dans le minerai par les métallurgistes et, d'autre part, l'existence d'un procédé métallurgique spécifique permettant de séparer les métaux. La seconde hypothèse considère la récupération de l'ensemble des métaux pour concevoir un alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre.

Les données archéologiques et archéométriques démontrent le traitement effectif de la bournonite à Castel-Minier sur le Plat-du-Roi. C'est dans cet espace qu'ont été découverts deux fragments de bournonite ainsi que plusieurs sous-produits issus du traitement du minerai. À l'exception de quelques scories découvertes sur la plateforme 5 et en l'état des recherches archéologiques, le Plat-du-Roi semble détenir l'exclusivité du traitement de la bournonite. La spatialisation des activités

métallurgiques est encore plus nette lorsque l'on s'intéresse aux données stratigraphiques puisque la quasi-totalité du corpus appartient à l'US 3067/3091. Cet ensemble consiste en une couche de rejets métallurgiques épanchée depuis la muraille M37 au cours du XV^e siècle (figure 208). Son contenu se compose de nombreuses scories cuivreuses et ferreuses, de fragments de bournonite (dont certains sont partiellement fondus) et de plusieurs soles de structures de chauffe. Sa position indique que des activités métallurgiques prenaient place dans l'enceinte castrale, au niveau du Plat-du-Roi et/ou au sommet de la moraine, à proximité de la tour. L'association de scories de fer et de cuivre pose question. L'hypothèse d'un travail du fer et des minerais de cuivre dans un même espace, voire dans un même structure de chauffe telle qu'un foyer de forge, a été avancée⁷⁰⁶.



Figure 208 : Emprise de l'US 3067/3091 dans la pente du Plat-du-Roi et contre la muraille M37.

5.3.1.2. L'étude des déchets métallurgiques : les scories

L'US 3067/3091 est un témoin privilégié de la chaîne opératoire de la bournonite dont il est possible de restituer partiellement les étapes à partir de l'étude

⁷⁰⁶ Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09) Rapport intermédiaire 2015*, SRA Midi-Pyrénées, 2015, p. 91.

archéométrique des sous-produits qu'elle contient. Le corpus de scories cuivreuses forme un ensemble conséquent de 1,2 kg que l'étude archéométrique permet de rattacher à la chaîne opératoire de la bournonite. L'aspect macroscopique des scories est assez homogène. Il s'agit d'individus informes de couleur grise avec des encroûtements verts indiquant la présence de produits d'altération du cuivre (carbonates, chlorures...). On distingue sur certains fragments des reflets vitreux ainsi que plusieurs cordons d'écoulement (figure 209). En revanche, l'appréciation des densités, d'abord qualitative puis quantitative au moyen d'une balance hydrostatique, permet d'établir une distinction très nette entre deux catégories. La première regroupe des individus de faible densité ($2,29\pm 0,15$) tandis que la seconde est composée de scories dont la densité plus élevée ($3,39\pm 0,37$) suggère la présence de métaux, notamment de plomb. La première catégorie représente (en masse), les deux tiers du corpus, soit 790 g.

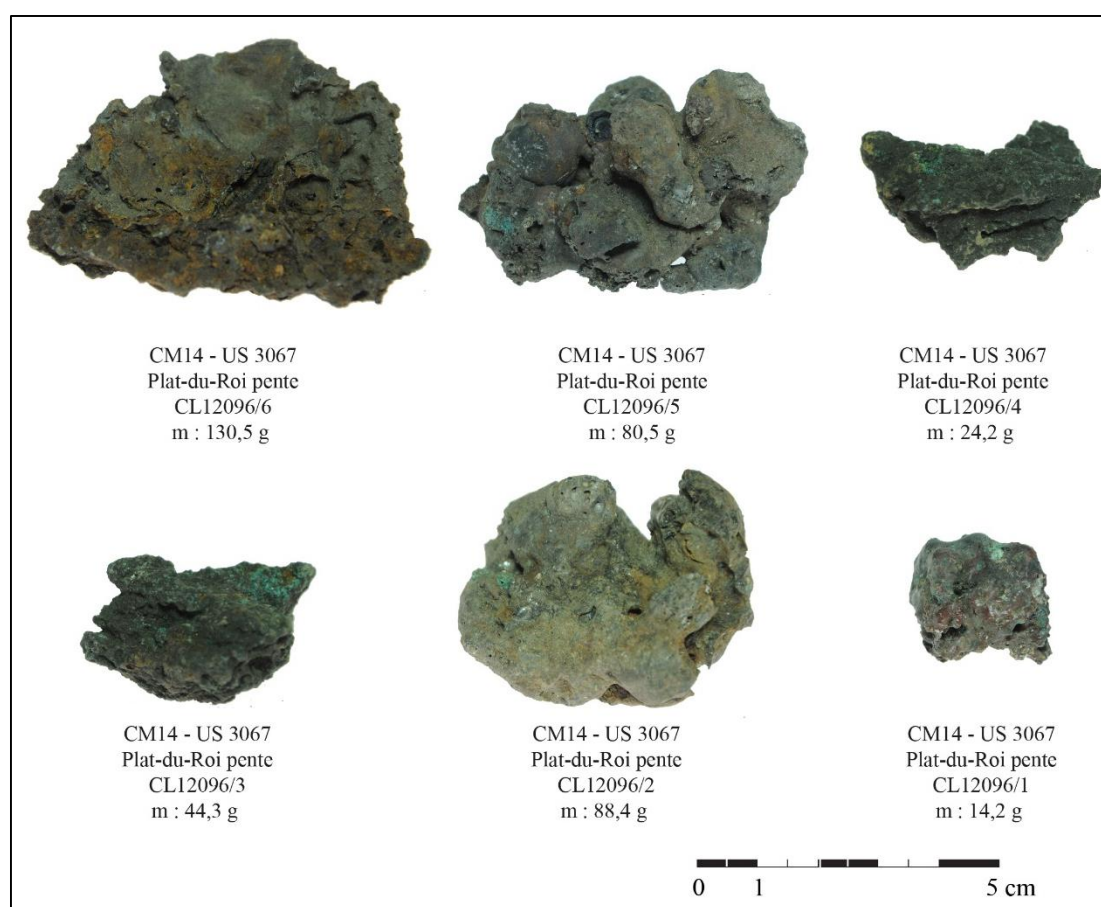


Figure 209 : Échantillons de scories cuivreuses provenant de l'US 3067/3091.

Un échantillon de chaque catégorie a été sélectionné pour une étude plus approfondie et une analyse de composition. Les scories ont été sectionnées, mises en résine et polies. Dans un premier temps, l'étude se limite à une observation macroscopique des échantillons, notamment de leur texture, couleur et morphologie. Dans un second temps, les sections polies ont été observées en microscopie électronique à balayage et certaines zones ont fait l'objet d'analyses semi-quantitatives par EDX. L'observation des coupes permet de distinguer clairement les deux catégories de scories identifiées à partir des mesures de densité. La première catégorie (densité : $2,29 \pm 0,15$) regroupe des individus hétérogènes dont la matrice est vitreuse (figure 210). De nombreux fragments de quartz, issus de la gangue du minerai⁷⁰⁷, sont incorporés dans la matrice. Leurs tailles sont très variables et certains grains atteignent presque un centimètre. Ils présentent des craquelures qui se sont développées à la suite du choc thermique. Certains grains de quartz étaient en cours de transformation et d'incorporation dans la scorie au moment de la solidification. Les scories sont peu compactes : elles contiennent de nombreuses porosités laissées par les gaz qui n'ont pu s'échapper avant la solidification. Enfin, plusieurs individus présentent une ségrégation entre une zone grise et une zone rouge (figure 210).

⁷⁰⁷ L'étude minéralogique des bournonites a permis d'identifier une gangue à base de quartz : *supra* p. 341.

CM14_3067_12096 Catégorie 1

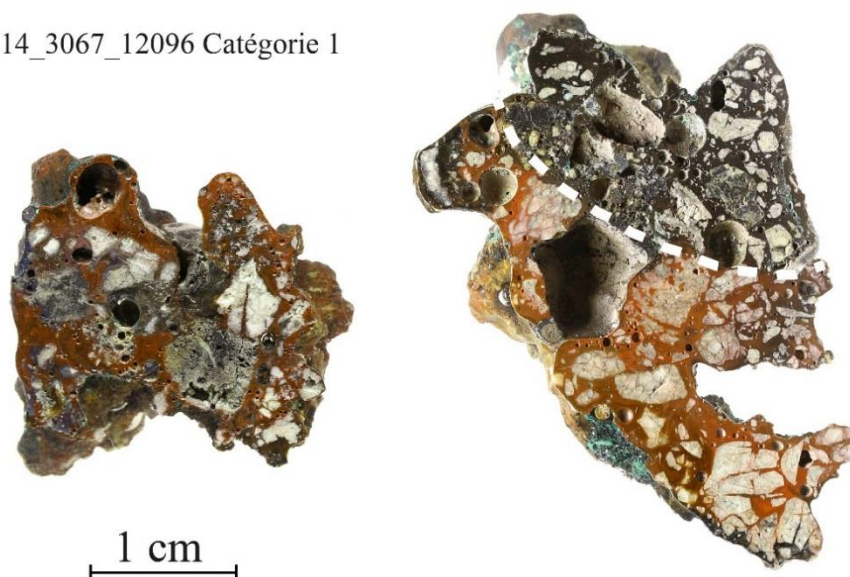


Figure 210 : Sections polies de deux scories de la première catégorie. La ligne en pointillés marque la séparation entre la zone rouge et la zone grise.

Les analyses par MEB-EDX mettent en évidence des matrices vitreuses relativement homogènes, composées essentiellement de silice, ayant incorporé des métaux provenant du minerai : cuivre, antimoine et plomb (tableau 41). Ces derniers ne se répartissent pas de manière uniforme dans la scorie. On note en effet une ségrégation de l'oxyde d'antimoine et de l'oxyde de cuivre entre la zone rouge et la zone grise. Par ailleurs la zone grise est plus riche en oxyde de plomb. La prépondérance de la silice, oxyde acide qui augmente la viscosité, est préjudiciable à la bonne séparation des métaux et de la scorie au cours de la transformation du minerai. À l'exception de la zone grise, les indices de viscosité sont faibles en comparaison des valeurs observées pour les scories de réduction de la galène⁷⁰⁸ ce qui entraîne des viscosité élevées.

⁷⁰⁸ *Supra* p. 387.

	Zone rouge			Zone grise	
	12096_1	12096_2	12096_5	12096-6	12096_2
MgO (%)	-	1,1	2,2	-	-
Al₂O₃ (%)	2,6	2,5	5,4	3,8	2,4
SiO₂ (%)	60,1	55,5	65,2	61,8	49,4
P₂O₅ (%)	1,5	-	-	-	-
K₂O (%)	1,4	1,6	2,2	1,8	1,2
CaO (%)	4,3	3,2	7,1	6,8	3,7
FeO (%)	4,0	3,4	5,7	4,4	3,6
CuO (%)	3,2	3,5	-	2,0	-
As₂O₃ (%)	0,4	-	-	-	-
Sb₂O₃ (%)	-	-	-	-	9,9
BaO (%)	5,8	14,1	-	11,5	5,2
PbO (%)	16,7	15,1	12,1	7,9	24,6
Kv	0,56	0,72	0,42	0,52	0,93

Tableau 41 : Résultats des analyses par MEB-EDX des scories de la première catégorie et valeur de l'indice de viscosité (Kv). La composition globale correspond à la moyenne de trois analyses sur une surface d'environ 1 mm².

La seconde catégorie regroupe les scories les plus denses (densité : $3,39 \pm 0,37$). L'observation des sections polies révèle des différences marquées avec la première catégorie. Les scories sont de couleur grise, homogènes et compactes. L'une d'entre elles inclut en surface de la bournonite partiellement transformée (figure 211). L'observation microscopique fait apparaître une structure vitreuse à l'exception des individus CL 12096_3 et 4 qui présentent une structure cristallisée composée de dendrites de wüstite trapues prises dans une matrice fayalitique. L'incorporation dans la matrice de métaux provenant de la bournonite est moindre que pour la première catégorie : l'antimoine, le cuivre et le plomb n'ont été détectés ensemble qu'à une seule occasion (tableau 42). La présence de soufre dans les scories CL 12096_3 et 4 est notable : c'est un indice significatif pour avancer des hypothèses sur les circonstances de traitement du minerai. Ainsi, il semble que celui-ci n'a pas subi de grillage avant son introduction dans le four. Les inclusions de minerai non grillé dans la scorie et la présence de fragments de quartz de grande taille issus de la gangue s'accordent mal avec une étape de grillage : le choc thermique qui survient pendant cette opération conduit en effet à une décrépitation de la roche et à une réduction de son module.

Enfin, les indices de viscosité sont similaires à ceux des scories de la première catégorie exceptés les individus CL 12096 3 et 4 qui se distinguent par une bonne fluidité due à la présence d'oxydes de fer.

	12702_1	12702_2	12702_3	12096_3	12096_4
Na ₂ O (%)	-	-	2,5	-	-
MgO (%)	-	3,4	8,0	-	2,9
Al ₂ O ₃ (%)	36,5	11,7	13,5	1,4	6,5
SiO ₃ (%)	48,7	46,6	53,6	9,3	29,5
SO ₂ (%)	-	-	-	6,2	3,9
K ₂ O (%)	5,6	6,8	-	0,5	1,5
CaO (%)	3,8	19,5	12,6	2,3	8,6
FeO (%)	-	8,2	9,8	77,7	47,1
CuO (%)	1,0	1,4	-	2,7	-
BaO (%)	-	-	-	-	-
Sb ₂ O ₃ (%)	2,3	-	-	-	-
PbO (%)	2,1	2,5	-	-	-
Kv	0,17	0,72	0,49	7,78	1,67

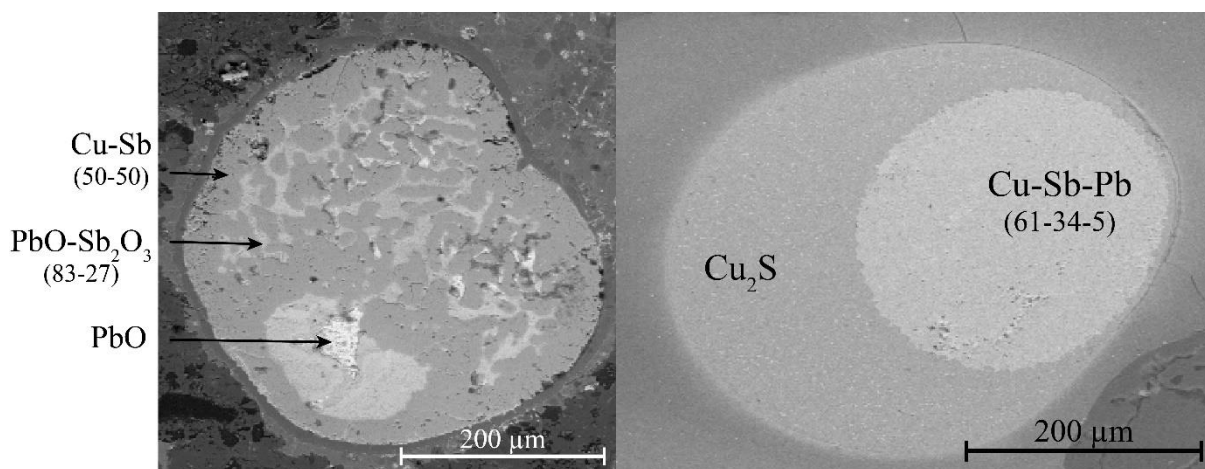
Tableau 42 : Résultats des analyses par MEB-EDX des scories de la seconde catégorie et valeur de l'indice de viscosité (Kv). La composition globale correspond à la moyenne de trois analyses sur une surface d'environ 1 mm².

CM14_3067_12096 Catégorie 2



Figure 211 : Sections polies de deux scories de la seconde catégorie. La ligne en pointillés marque la séparation entre la scorie et la bournonite en cours de transformation.

L'observation microscopique des scories a permis de déceler de nombreuses billes submillimétriques piégées dans les matrices. Elles sont composées de sulfures, d'oxydes ou d'alliages à base de cuivre, d'antimoine et de plomb en proportions variées (figure 212). Les scories de la première catégorie sont celles qui contiennent le plus de billes. Ce constat découle de leur viscosité élevée qui réduit l'efficacité de la séparation gravimétrique des produits au cours du traitement du minerai. Le caractère hétérogène des billes métalliques témoigne de démixtions subies par l'alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre au cours de sa solidification. Le plomb se solidifie en premier tandis qu'une phase cuivre-antimoine – pouvant contenir quelques pour cent de plomb – se forme ensuite. Néanmoins, nos interprétations n'échappent pas aux effets d'échelle. En particulier, les billes métalliques prises dans les scories ne sont pas forcément représentatives de l'alliage obtenu dans la structure de chauffe. Leurs compositions devront être comparées à celles des demi-produits.



5.3.1.3. La question des mattes

Outre les scories, les mattes témoignent également de la transformation de la bournonite. Il s'agit de produits intermédiaires sulfurés issus d'une première fusion du minerai. Les mattes se présentent sous la forme des fragments massifs (figure 213), mais également à l'état d'inclusions dans les scories. L'étude des sections polies révèle l'hétérogénéité de ces produits intermédiaires dont certaines zones sont denses et compactes alors que d'autres contiennent de nombreuses porosités (CL 12490_1, figure 213). En outre, l'homogénéisation de la structure est plus ou moins avancée selon la température à laquelle les mattes ont été soumises et le temps qu'elles ont passé dans la structure de chauffe. Ainsi, certaines mattes sont mêlées de produits scoriacés et de minerai partiellement fondu (CL 12826, figure 213).

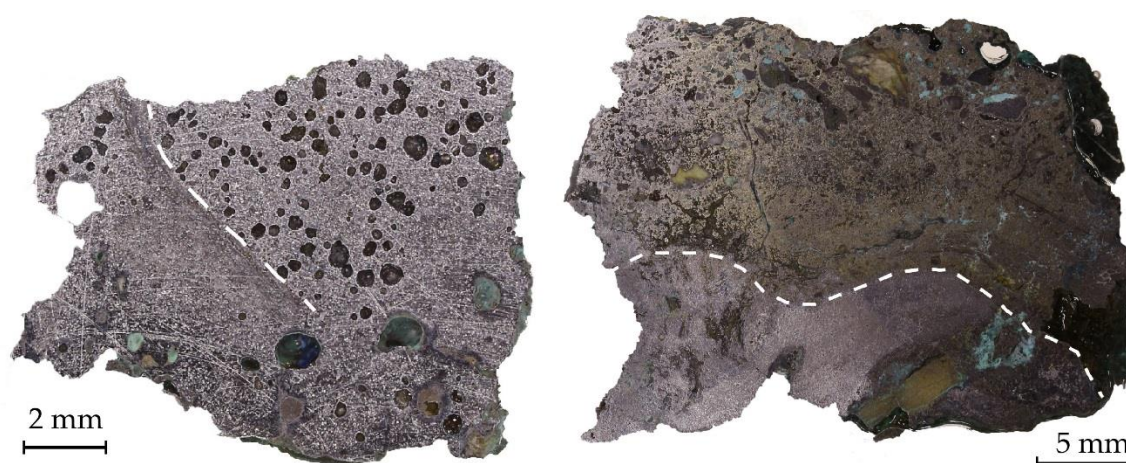


Figure 213 : Sections polies des mattes CL 12490_1 et CL 12826. La ligne en pointillés délimite la zone bulleuse et la zone compacte. On distingue des inclusions de scorie et de gangue dans la partie supérieure de l'individu CL 12826.

L'analyse des phases par MEB-EDX met en évidence une dissociation au moment de la solidification. La matrice est constituée de matte de cuivre-plomb qui présente une ségrégation entre une première phase noire et une seconde grise (CL 12490_1, figure 214). Cette dernière contient plus de plomb et de cuivre et moins de soufre. Une phase blanche, formée de matte de plomb est également visible. Dans certaines zones, la formation de structures eutectiques binaires se produit au cours de la solidification (CL 12490_2, figure 214). La phase noire, riche en cuivre, se solidifie et

rejette le plomb en excès dans son voisinage. La phase blanche, riche en plomb, se solidifie ensuite donnant une structure cristalline formée de bandes alternées. L'intersection des différents fronts de cristallisation forme des grains facilement discernables.

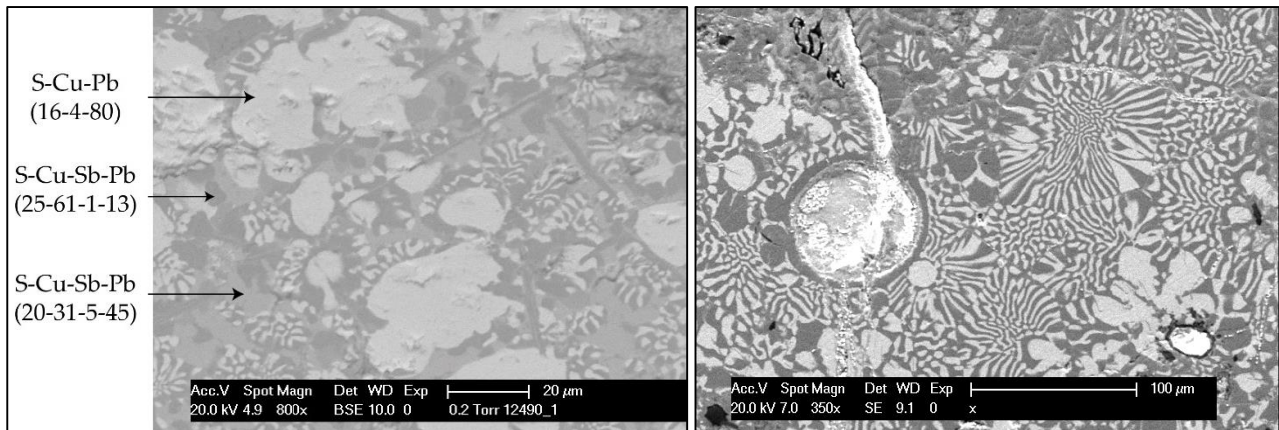


Figure 214: Cliché MEB de la microstructure de la matte CL 12490_1 (gauche) et CL 12490_2 (droite).

À gauche : composition élémentaire des phases noire, grise et blanche. Teneurs en %.

À droite : détail de la structure eutectique formée de bandes alternées blanches (riche en sulfure de cuivre) et noires (riche en sulfure de plomb).

L'analyse globale des mattes par MEB-EDX révèle la très faible part des minéraux issus de la gangue du minerai (figure 215). Les seuls représentants sont le silicium, le calcium et le fer qui forment de petites inclusions scoriacées dans la matte. La teneur en soufre est légèrement inférieure à celle mesurée dans les minerais ce qui indique qu'une partie en a été éliminée sous la forme de dioxyde soit lors d'un grillage partiel, soit à la faveur de conditions oxydantes régnant dans la structure de chauffe. Parmi les métaux provenant de la bournonite, le cuivre présente des teneurs similaires à celles du minerai tandis que l'on constate un appauvrissement en antimoine au profit du plomb (diagramme ternaire, figure 215). L'analyse des scories a montré qu'elles contiennent très peu d'antimoine ce qui permet d'écarter l'hypothèse d'une incorporation de ce métal dans ces sous-produits au moment de la réduction. La différence de teneur en antimoine constatée entre le minerai et la matte pourrait découler de l'extraction préférentielle de ce métal au cours de la réduction. En effet ce

métal qui s'oxyde plus facilement que le cuivre et le plomb a pu être réduit directement sans que la formation d'une matte ne se produise. En outre, parmi les métaux que contient la bournonite, l'antimoine est le moins dense ce qui facilite une éventuelle séparation gravimétrique.

	128026	12490_1	12490_2
Si	1,4	-	1,4
S	9,0	15,3	18,8
Ca	-	-	6,7
Fe	2,2	1,2	1,9
Cu	15,2	14,4	17,8
Zn	-	-	1,6
Sb	19,9	8,0	8,9
Pb	52,4	61,1	43,0

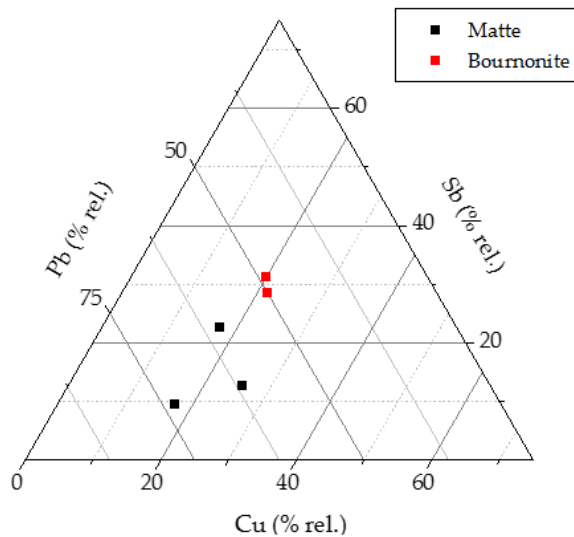


Figure 215 : À gauche : résultats des analyses globales des mattes par MEB-EDX (teneurs en %).
À droite : diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en plomb, antimoine et cuivre dans les mattes et les bournonites.

5.3.1.4. Les structures de chauffe

Les données archéologiques dont nous disposons sur les structures de chauffe utilisées pour traiter la bournonite sont lacunaires. Elles se limitent à un fragment de fond de réacteur que l'analyse archéométrique a permis de rattacher à la chaîne opératoire de traitement de ce minerai (figure 216). Ce mobilier a été découvert dans la pente du Plat-du-Roi, dans des niveaux de démolition qui marquent l'abandon de cet espace. La sole du réacteur a été confectionnée à partir d'un matériau argilo-sableux dans lequel on distingue des inclusions millimétriques de quartz et des fragments de charbons. Certaines zones sont scoriacées à proximité de la surface : l'analyse révèle qu'elles sont composées de silicates de fer et de plomb. Des fragments de minerai en cours de fonte sont visibles à la surface de la sole ainsi que les produits intermédiaires

qui résultent de sa transformation et qui se partagent entre les sulfures et les oxydes (figure 216). Lorsqu'il est détecté, l'antimoine ne dépasse jamais quelques pour cent.

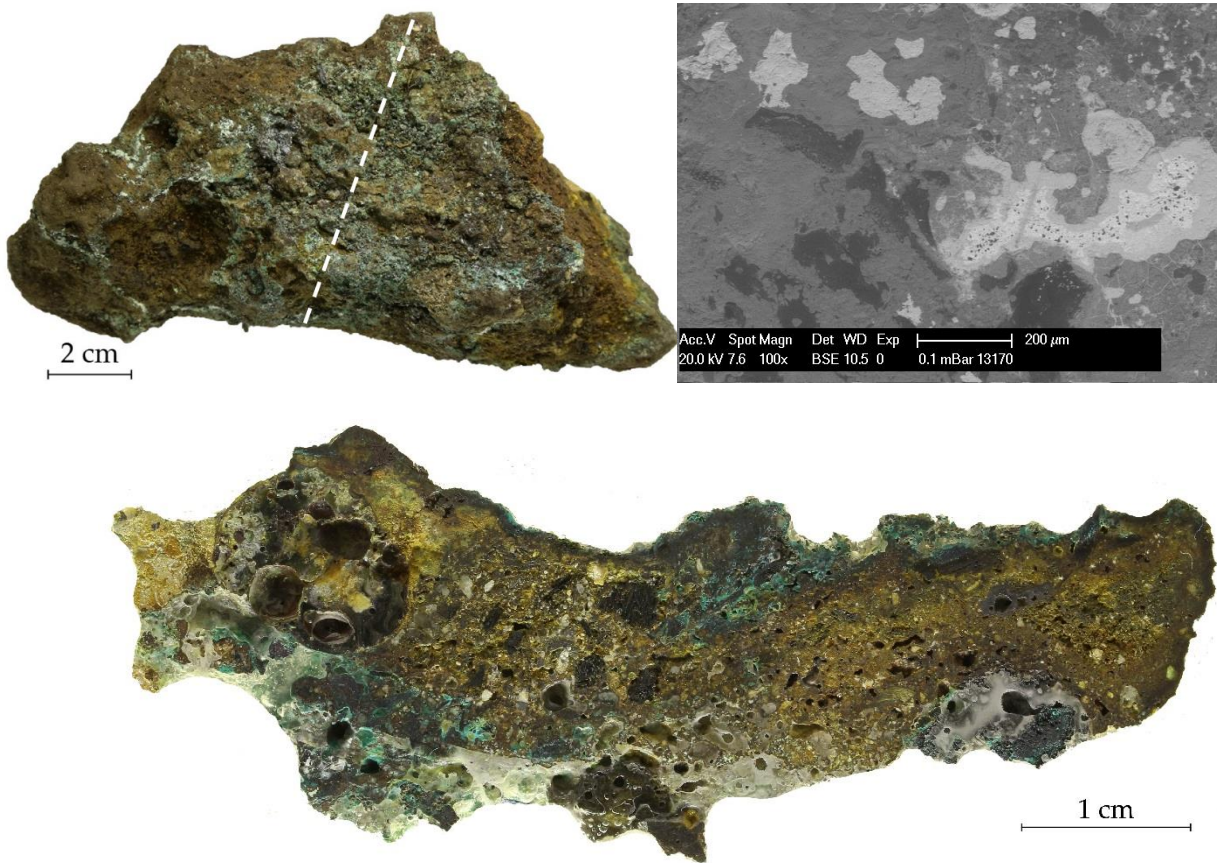


Figure 216 : Fragment de fond de réacteur CL 13170 (gauche) et observation microscopique de la coupe (droite) : matte de cuivre (noir), oxydes et sulfures de cuivre incorporant quelques pour cent d'antimoine (gris foncé), sulfate de plomb (gris clair), oxyde de plomb incorporant quelques pour cent d'antimoine (blanc). En bas : section de la sole dont l'axe de découpe figure en pointillés sur le cliché en haut à gauche : mise en évidence du matériau argilo-sableux et de produits d'altération cuivreux.

5.3.1.5. Apports des expérimentations

Devant le caractère limité des conclusions tirées des données de terrain et des analyses en laboratoire, nous avons entrepris plusieurs séries d'expérimentations pour étudier le comportement au feu de la bournonite et déterminer les paramètres thermodynamiques permettant d'en extraire les métaux. Compte tenu de la faible quantité de minerai archéologique disponible et des difficultés à s'en procurer sur le marché des minéraux, nous avons opté pour quatre réductions à petite échelle en

s'inspirant des procédés développés pour l'essai de minerai par voie sèche⁷⁰⁹. Les opérations métallurgiques se sont déroulées dans un four à moufle.

L'essai de la bournonite ne fait pas l'objet d'un développement spécifique dans les traités métallurgiques de l'époque moderne tel que le *De re metallica* d'Agricola ou encore l'ouvrage spécialisé de Lazarus Ercker⁷¹⁰. En revanche, le comportement de ce minerai au feu et l'extraction des métaux qu'il contient ont été étudiés au cours du XIX^e siècle, en particulier dans les traités d'essai. C'est le cas de l'ouvrage de Pierre Berthier dont la rédaction s'inscrit dans une démarche de classification des minerais et d'élaboration de procédés d'essai adaptés à leur nature⁷¹¹. Berthier classe les minerais de cuivre en quatre classes. La bournonite appartient à la troisième : « les matières cuivreuses sulfurées ». Les minerais de cette classe, après grillage, doivent être réduits avec 3 trois parts de flux noir. Ce produit a été utilisé pour deux des quatre réductions expérimentales dont l'objectif visait à extraire les métaux et non à explorer les modalités du procédé mis en œuvre dans les ateliers d'Aulus. Les problématiques concernaient le comportement de la masse métallique, notamment l'étude des démixtions au cours du refroidissement afin d'améliorer la compréhension de certains artefacts archéologiques. En revanche, la troisième et la quatrième réduction ont été conduites sans usage du flux noir afin d'apprécier la nature des produits obtenus et la présence éventuelle de matte.

L'hypothèse d'un grillage a tout d'abord été testée. Cette opération s'avère délicate puisque la bournonite associe des métaux dont les points de fusion sont très éloignés les uns des autres, s'échelonnant de 325 °C (plomb) à 1083 °C (cuivre). Il faut donc que la température soit suffisamment élevée pour permettre la formation des oxydes de cuivre⁷¹² tout en évitant la volatilisation du sulfure et de l'oxyde

⁷⁰⁹ Gauthier J., « L'essai des minerais au XVI^e siècle... », *op. cit.*, p. 155-167.

⁷¹⁰ Sisco A. G. et Smith C. S., *Lazarus Ercker's Treatise on Ores and Assaying*, University of Chicago Press, Chicago, 1951.

⁷¹¹ Berthier P., *Traité des essais par la voie sèche*, Thomine, Paris, 1834.

⁷¹² Les sulfates de cuivre sont stables autour de 500 °C-600 °C. Au-dessus de 700 °C, les produits thermodynamiquement stables sont les oxydes. Voir Burger E., *Métallurgie extractive protohistorique du cuivre...*, *op. cit.*, p. 21.

d'antimoine. Nos expérimentations ont permis de déterminer la température de grillage optimale qui se situe autour de 750 °C. Préalablement, la bournonite a été concassée et broyée. Cette étape importante permet de diviser finement la matière de manière à augmenter les surfaces d'échange pendant le grillage.

La première réduction est conduite dans un scorificateur dans lequel sont mélangés 20 g de bournonite grillée et 60 g de flux noir. L'essai est réalisé dans un four à moufle et avec une température de travail qui oscille autour de 980 °C. La présence d'un charbon placé à l'avant du moufle permet d'assurer une atmosphère réductrice. Au début de l'opération, on observe un bouillonnement à la surface du scorificateur, correspondant vraisemblablement à la décomposition des carbonates du flux noir. Après 30 minutes de chauffe, le scorificateur est sorti du four et son contenu est coulé. On obtient uniquement un bouton métallique (figure 217) ; la scorie, très peu abondante, adhère aux parois du scorificateur.

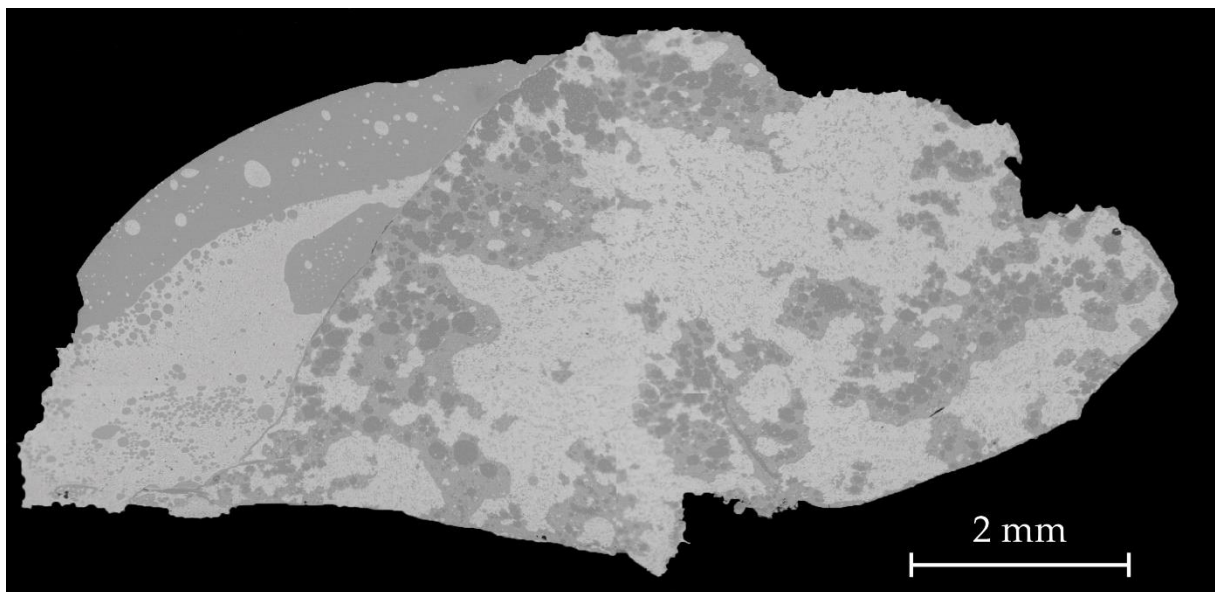


Figure 217 : Image MEB de la section polie du bouton métallique obtenu après la première réduction de bournonite.

L'observation de la section polie du bouton métallique obtenu révèle une structure très hétérogène consécutive aux démixtions intervenues au cours du refroidissement. L'analyse élémentaire par MEB-EDX permet de caractériser les

différentes phases. La phase grise est constituée d'un alliage cuivre-antimoine (spectre 1, figure 218) dans lequel sont piégés des globules de plomb. La phase blanche, riche en plomb, contient des inclusions microscopiques d'un alliage cuivre-antimoine (spectre 2 et 3, figure 218). Enfin, les taches noires dans la matrice métallique sont des mattes constituées d'un mélange de cuivre et de plomb ayant incorporé très peu d'antimoine (spectre 4 et 5, figure 218).

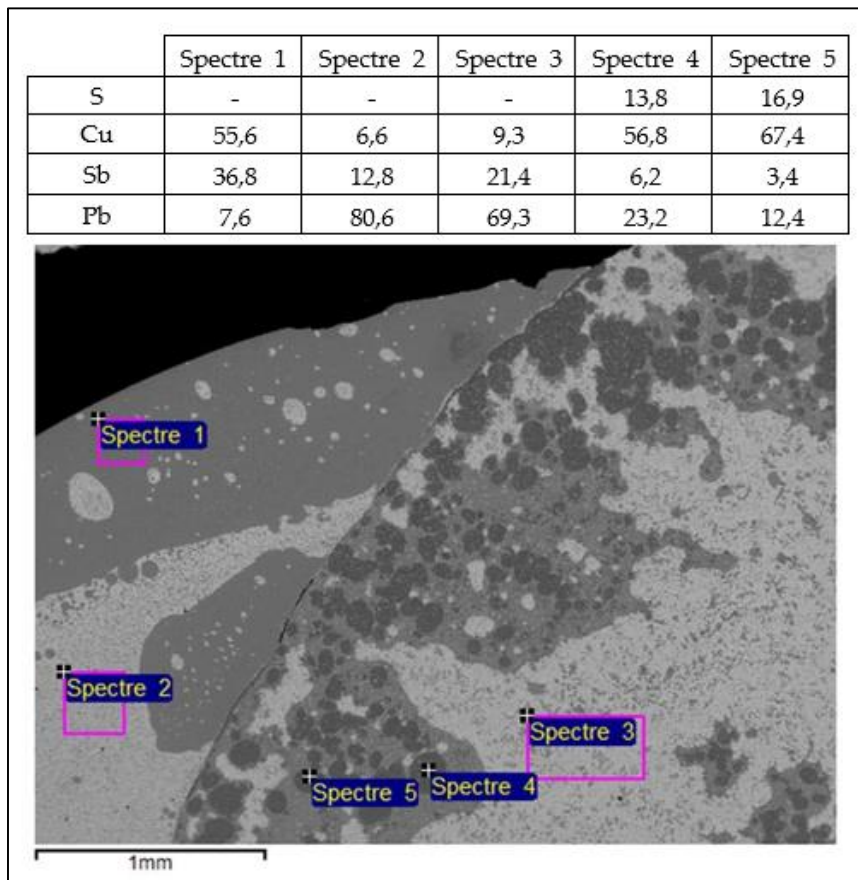


Figure 218 : Analyses par MEB-EDX des phases du bouton métallique obtenu après la première réduction de bournonite. Teneurs en %.

La deuxième réduction a été conduite dans des conditions similaires à la première, notamment en ce qui concerne la composition de la prise et la durée de l'opération. En revanche, la température a été légèrement augmentée et portée à 1000 °C. À l'issue de l'opération, un bouton métallique plus homogène que celui de la première réduction est obtenu. Il se compose de deux phases, l'une blanche, l'autre

grise, d'importance inégale⁷¹³. La première, majoritaire, est composée d'une matrice de plomb dans laquelle sont disséminées des inclusions formées d'un alliage cuivre-antimoine (spectre 2, figure 220). La seconde phase se compose d'un alliage de cuivre et d'antimoine contenant seulement quelques pour cent de plomb (spectre 1, figure 220). Ce métal se rencontre également sous la forme de précipités dans la matrice (spectre 3). Les phases sont bien séparées au sein du bouton métallique avec une répartition de la phase la moins dense, c'est-à-dire l'alliage cuivre-antimoine, à la surface, tandis que la phase riche en plomb, la plus dense, est rassemblée au fond.

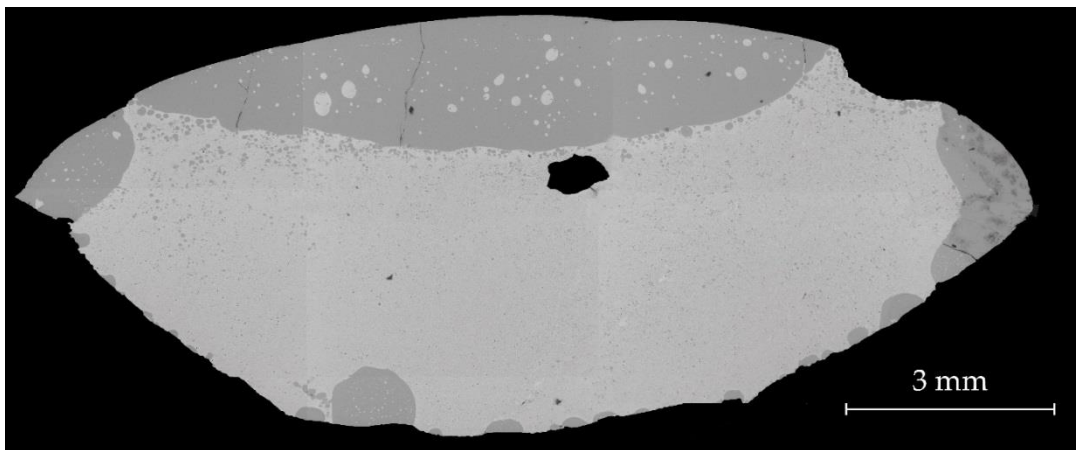


Figure 219 : Image MEB de la section polie du bouton du bouton métallique obtenu après la deuxième réduction de bournonite.

⁷¹³ La coupe observée peut être considérée comme représentative des proportions globales de chaque phase. La disposition de ces dernières est en effet régulière : elle est contrainte par les tensions superficielles.

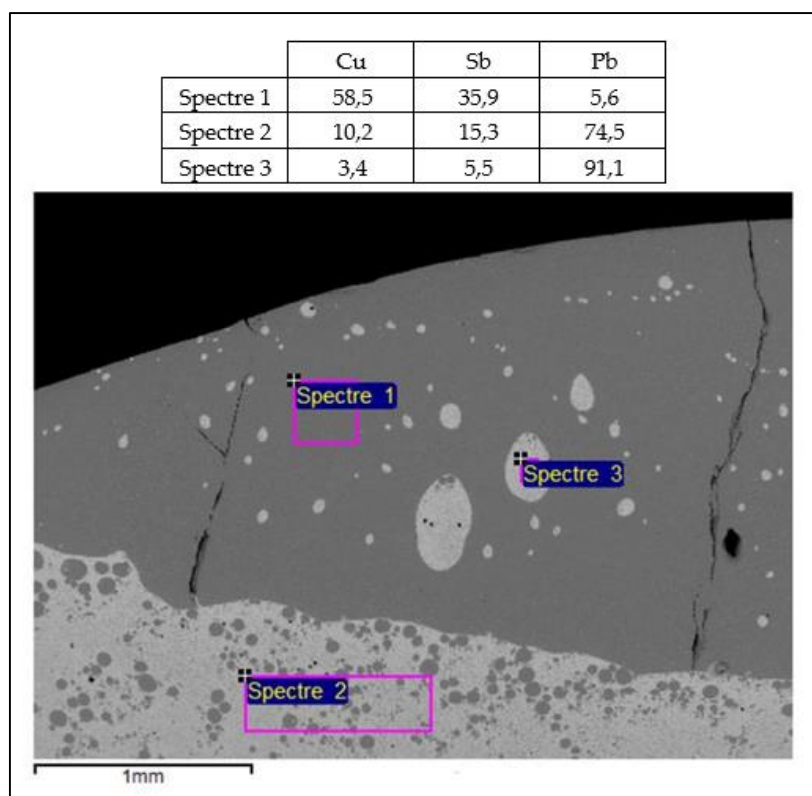


Figure 220 : Analyses par MEB-EDX des phases du bouton métallique obtenu après la deuxième réduction de bournonite. Teneurs en %.

Les deux dernières réductions expérimentales de bournonite ont été conduites sans utilisation de flux et avec du minerai provenant du commerce. En revanche, les paramètres de température et de durée sont identiques à ceux de la deuxième expérimentation. À l'issue de l'opération, dans les deux cas, le bouton obtenu n'est pas métallique comme le démontre sa nature cassante. Il s'agit en réalité d'une matte de couleur grise. L'observation en microscopie électronique révèle une microstructure hétérogène composée de matte de plomb qui forme de fines dendrites allongées (figure 221). Elles ont cristallisé dans une matrice composée de matte associant cuivre, plomb et antimoine et dans laquelle quelques inclusions de matte de cuivre-antimoine se distinguent⁷¹⁴.

⁷¹⁴ On note que cette phase contient en outre de l'arsenic et du zinc qui proviennent du minerai.

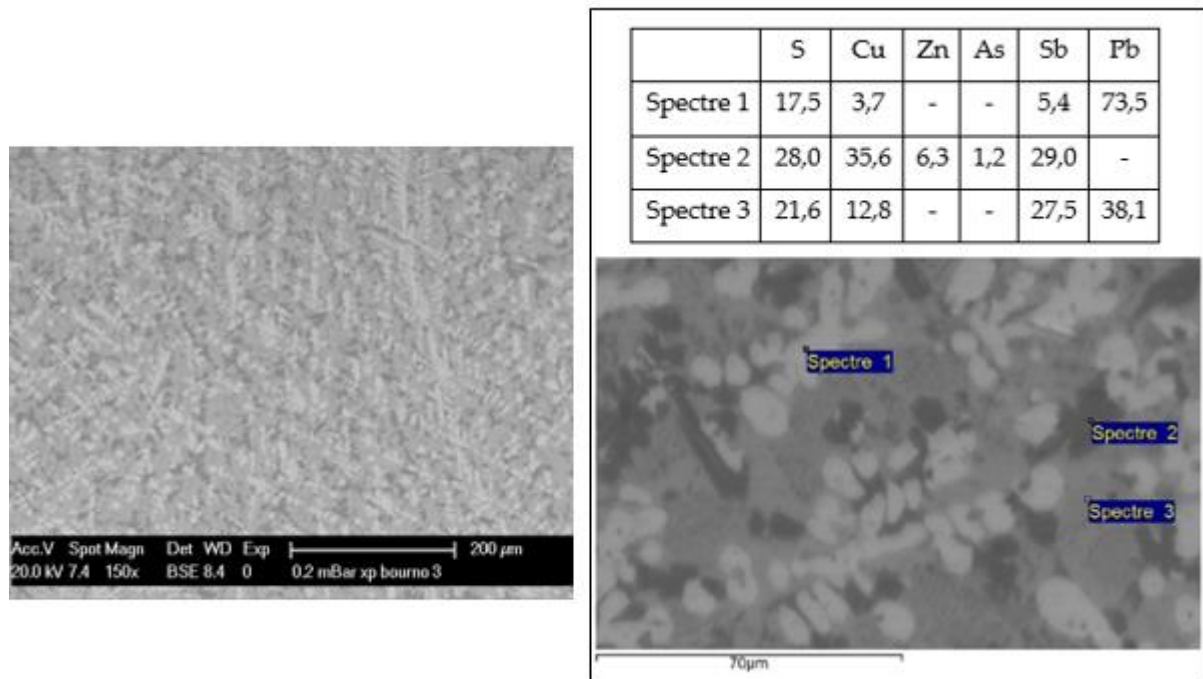


Figure 221 : Image MEB de la section du bouton obtenu à l'issue de la troisième réduction (gauche) : dendrites de matte de plomb (blanc), matte de cuivre-antimoine-plomb (gris), matte de cuivre-antimoine (noir). À droite, résultats de l'analyse élémentaire des phases par MEB-EDX. Teneurs en %.

Bien que les expérimentations aient été conduites à petite échelle et dans une structure de chauffe consacrées à l'essai des minerais, les enseignements n'en sont pas moins fondamentaux pour comprendre le comportement de la bournonite lorsqu'elle est soumise au feu. Ils sont importants dans la cadre d'une démarche archéométallurgique qui se propose de restituer, au moins partiellement, les modalités de l'extraction et les étapes de la chaîne opératoire de traitement de ce minerai qui, par ailleurs, ne sont pas documentées pour la période médiévale. Les résultats obtenus et les interprétations que nous présentons visent à initier une réflexion sur le potentiel et la finalité d'une ressource minérale jusqu'ici négligée dans les recherches d'archéologie minière et dont l'histoire reste à écrire.

Le principal enseignement concerne le grillage du minerai qui s'est avéré particulièrement délicat en raison de la nature polymétallique de la bournonite. Il s'agit néanmoins d'une étape incontournable si l'on veut parvenir à extraire les trois métaux que contient la bournonite. Ainsi, sans recourir à un flux, la production de matte semble inévitable. Toutefois, il est difficile de déterminer à partir des essais à

petite échelle si l'ensemble du minerai est converti en matte ou si une certaine proportion est directement transformée en métal. Quoi qu'il en soit, les phases qui composent la matte sont similaires sur le plan de leur composition élémentaire à celles observées dans les exemplaires archéologiques. En revanche, la microstructure est différente, en particulier pour les mattes expérimentales qui présentent des dendrites, ce qui dénote des conditions de refroidissement différentes.

5.3.1.6. Produits obtenus

L'étude archéométrique du mobilier archéologique et les acquis des expérimentations permettent de restituer une partie de la chaîne opératoire du traitement de la bournonite. Le minerai subit vraisemblablement un grillage mais celui-ci est insuffisant pour permettre d'extraire la totalité des métaux lors de l'opération ultérieure de réduction et une certaine quantité de matte se forme dans le réacteur. Ce produit intermédiaire doit être converti afin d'en extraire les métaux. Cette étape consiste tout d'abord en une chauffe de la matte sous atmosphère oxydante (grillage de la matte), afin d'en éliminer le soufre sous la forme de dioxyde. Elle entraîne également la formation d'oxydes qui sont réduits dans un second temps.

Une fois les étapes de la chaîne opératoire accomplies, un alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre est obtenu. À Castel-Minier cet alliage a été caractérisé à deux reprises grâce aux analyses élémentaires (tableau 43). Il se présente sous la forme de deux demi-produits : un lingot parallélépipédique de 496 g et un fragment de tôle de 1,3 g et 5,7 mm d'épaisseur (figure 222). La partie inférieure du lingot est régulière et ses bords sont lisses. Quant à sa partie supérieure, elle présente une surface irrégulière et très poreuse. Cette morphologie indique une mise en forme par coulée dans un moule ouvert ou dans un avant-creuset à la sortie de la structure de chauffe. Le lingot était mêlé aux scories de fer qui constituent le ferrier 2 tandis que le fragment de tôle a été exhumé sur le Plat-du-Roi, à l'intérieur de l'enceinte castrale. Les contextes de découverte sont datés du XV^e siècle ; ils correspondent à l'abandon de l'espace de

travail sur le Plat-du-Roi et à la fin de l'utilisation du ferrier 2. Dans cette dernière structure, la nature mixte du rejet composé de l'alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre et de scories de fer suggère une fois de plus l'association étroite entre la métallurgie des métaux non-ferreux et la sidérurgie. Ainsi, les métallurgistes ont pu traiter ponctuellement de la bournonite dans les structures de chauffe consacrées à la métallurgie du fer, non pourvues de soufflerie hydraulique et installées au sommet de la moraine. Par ailleurs, les foyers de forge ont pu accueillir certaines opérations métallurgiques requérant des conditions oxydantes telles que le grillage de la matte.

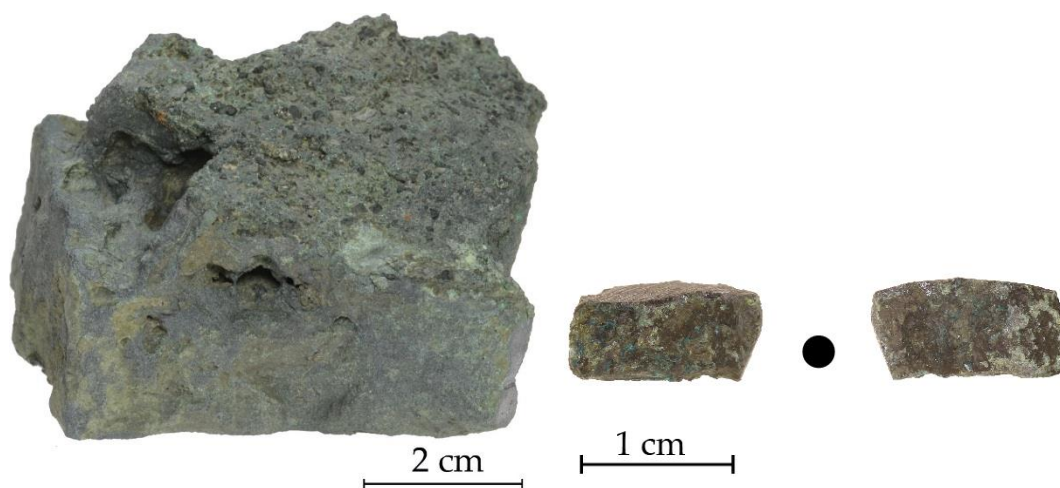


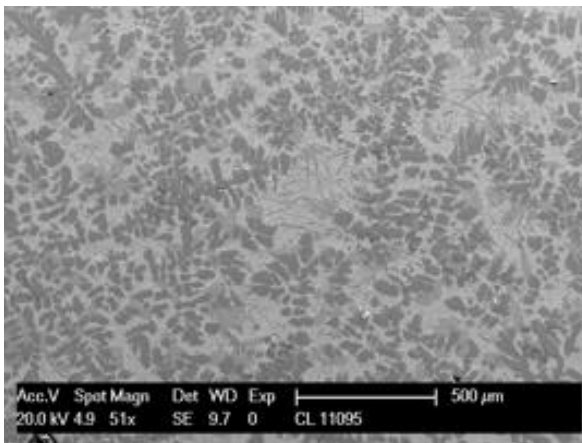
Figure 222 : Demi-produits issus du traitement de la bournonite.
À gauche lingot CL 11095 ; à droite, fragment de tôle CL 12174c. Clichés : J.-C. Méaudre.

CL	Cu	Sn	Sb	Pb	As	Ni	Ag	Fe	Bi	Au	Zn
11095	18,3 %	20	31,8 %	49,6 %	60	200	900	1300	-	-	-
12174c	23,4 %	85	17,3 %	59,2 %	1031	6	102	41	14	-	47

Tableau 43 : Compositions élémentaires déterminées par LA-ICP-MS des alliages plomb-antimoine-cuivre. Sauf mention contraire, les valeurs sont exprimées en ppm.

Les propriétés mécaniques de l'alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre obtenu à partir de la bournonite sont médiocres. Sa faible ductilité ne permet pas une mise en forme autrement que par fonderie. En revanche, l'association en quantités importantes de plomb et d'antimoine, deux métaux dont le point de fusion est relativement bas (respectivement 327 et 631 °C), confère à l'alliage une bonne fusibilité. Plus

précisément, l'étude du diagramme ternaire plomb-antimoine-cuivre permet d'estimer une température de fusion autour de 620 °C⁷¹⁵. L'observation MEB de la microstructure révèle la présence de trois phases dont la formation résulte de la solidification différentielle des métaux (figure 223). L'étude du diagramme de phase et l'exploitation des schémas de réaction de Scheil⁷¹⁶ (figure 223) montrent qu'une phase η se solidifie en premier à 526 °C avec la formation d'un eutectique binaire entre le cuivre et l'antimoine. La phase η se compose de 49,7 % de cuivre et de 50,3 % d'antimoine ; elle a été observée sous la forme de dendrites dans le lingot CL 11095 (figure 223). Le liquide subsistant se solidifie à 249 °C et forme une phase riche en antimoine (Sb) composée de 94,9 % d'antimoine pour 5,1 % de plomb et une phase riche en plomb (Pb) composée de 72,1 % de plomb pour 27,9 % d'antimoine (figure 223).



	Cu	Sb	Pb
Phase (Pb)	-	27,9	72,1
Phase (Sb)	-	94,9	5,1
Phase η	49,7	50,3	-

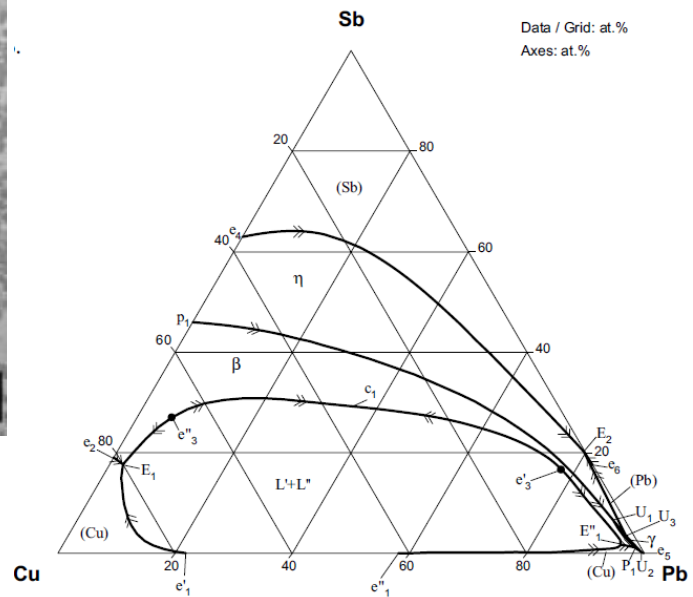


Figure 223 : Gauche : Observation MEB de la microstructure de l'alliage ternaire CL 11095 et compositions des phases déterminées par MEB-EDX (teneurs en %). Matrice riche en plomb, phase (Pb) (blanc) contenant des dendrites de la phase η (noir) et la phase riche en antimoine (Sb) (gris). Droite : Surface de liquidus dans le système ternaire Cu-Sb-Pb d'après Korniyenko K., « Cu-Pb-Sb (Copper-Lead-Antimony) ... », *op. cit.*, p. 404. Unités en pourcentages atomiques relatifs.

⁷¹⁵ Korniyenko K., « Cu-Pb-Sb (Copper-Lead-Antimony) », In Effenberg G. et Ilyenko S. (éd.), *Non-Ferrous Metal Systems. Part 2: Selected Copper Systems*, Springer, Berlin-Heidelberg, 2007, p. 404.

⁷¹⁶ *Ibidem*, p. 403.

L'analyse élémentaire des alliages ternaires plomb-antimoine-cuivre a permis d'établir une filiation claire avec la bournonite pour le lingot (figure 224). En effet, les teneurs en éléments majeurs sont proches de celles observées dans les minerais : le lingot semble donc avoir été obtenu sans passer par une étape de production de matte. En revanche, les différences sont notables pour la tôle CL 12174c qui présente des teneurs en antimoine moindres par rapport aux minerais (figure 224). L'appauvrissement en antimoine se traduit par un enrichissement en plomb tandis que la teneur en cuivre demeure inchangée. La tôle peut donc correspondre à l'alliage métallique obtenu à l'issue de la conversion des mattes.

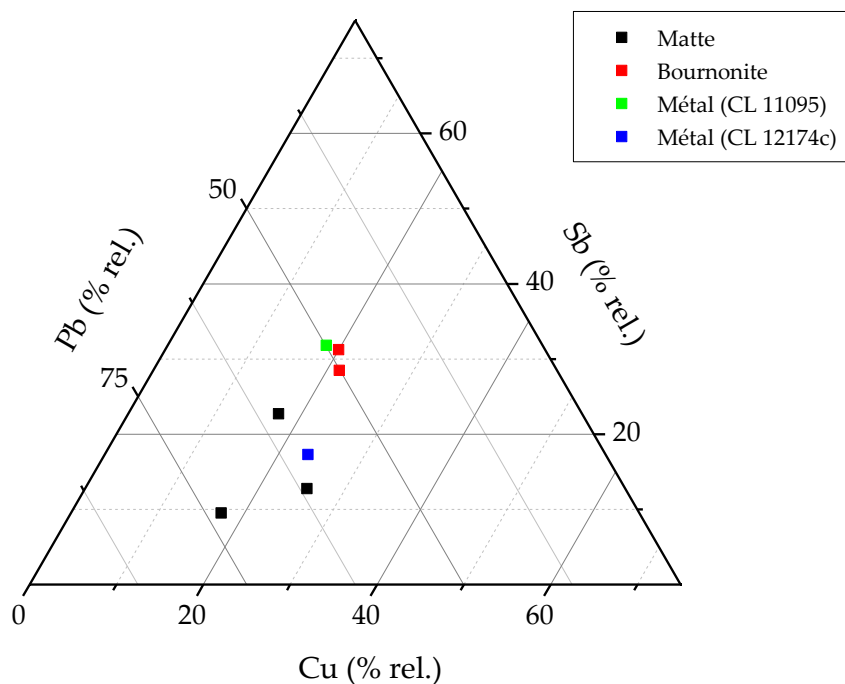


Figure 224 : Diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en cuivre, plomb et antimoine des demi-produits métalliques et des bournonites.

Nous avons émis l'hypothèse d'une production simultanée d'antimoine métallique et de matte pour expliquer la faible proportion de ce métal dans cette dernière et par conséquent dans l'alliage ternaire finalement obtenu (par exemple CL 12174c) à l'issue de leur conversion. La caractérisation d'un petit fragment informe de

1,2 g découvert dans les niveaux d'abandon du Plat-du-Roi donne du crédit à cette hypothèse (tableau 44). L'analyse élémentaire révèle en effet qu'il est composé en majorité d'antimoine et d'une petite quantité de plomb. En outre, il présente des caractéristiques chimiques similaires à celles de la bournonite, en particulier des niveaux d'impuretés extrêmement faibles.

	Sb	Pb	Ni	Cu	Zn	As	Ag	Sn	Te	Bi
CL 12838	98,7 %	1,3 %	-	2,6	-	369,2	-	0,5	2,9	3,3

Tableau 44 : Analyse élémentaire par LA-ICP-MS du fragment informe CL 12838.
Sauf mention contraire, les teneurs sont exprimées en ppm.

Les autres hypothèses qui permettraient d'expliquer l'origine des alliages ternaires, notamment le traitement d'un « cuivre gris » tel que de la tétraédrite non argentifère, sont définitivement écartées lorsque l'on s'intéresse aux rapports isotopiques du plomb. La signature isotopique d'un fragment archéologique de bournonite (CL 10977) est en effet confondue avec celle du lingot constitué d'un alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre (CL 11095) ce qui renforce la filiation déjà suggérée par les analyses élémentaires (figure 225).

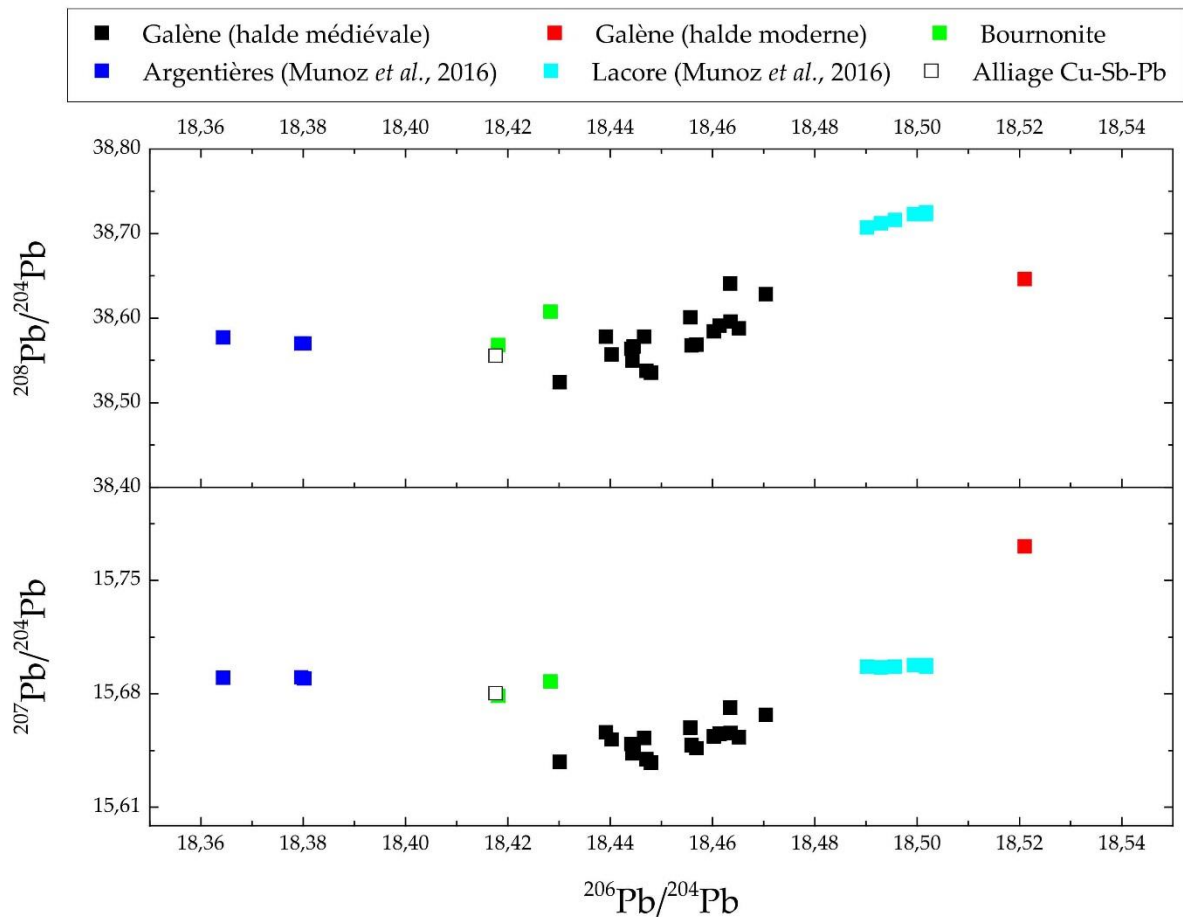


Figure 225 : représentation graphique des rapports isotopiques $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ et $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ en fonction du rapport $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ pour les bournonites archéologiques, l'alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre (CL 11095) et plusieurs gisements de la vallée du Garbet.

5.3.2. La production du *caldarium*

5.3.2.1. Identification de l'alliage

Parmi le corpus de mobilier en alliage cuivreux mis au jour à Castel-Minier, quatre individus se distinguent par des compositions qui ne correspondent pas à celles des grandes familles d'alliages rencontrées par ailleurs sur le site (laitons, bronzes, bronzes au plomb...). Ces artefacts peuvent être désignés comme des bronzes au plomb antimoniés (tableau 45). Ils contiennent également de l'arsenic dont les teneurs varient entre 1,3 et 3,2 %. Par ailleurs, leurs teneurs en argent sont notables, particulièrement pour l'individu CL 11513. Trois alliages sont nickélifères et présentent une standardisation remarquable sur le plan morphologique. Il s'agit de

tôles de 5 mm d'épaisseur dont les surfaces sont lisses et régulières ce qui suggère une production par fonderie dans un moule fermé (figure 227). On observe à l'extrémité de la tôle CL 11107, une diminution de la section et un aspect partiellement fondu. En outre, l'un des individus présente des traces de découpe sur l'une de ses faces (CL 11088, figure 227). Le quatrième demi-produit consiste en un déchet de coulée informe de 1,5 g sur lequel adhère un fragment de charbon. La morphologie des objets du corpus, en particulier celle des tôles, nous a incité à les classer avec les demi-produits. En effet, ils ne montrent pas de caractères externes permettant de leur donner un fonction précise. Quant à leur origine, elle paraît a priori endogène ne serait-ce que par la présence de traces de découpe et l'aspect partiellement fondu de certains artefacts. Le décapage de la couche d'altération qui s'est développée à la surface des tôles fait apparaître un alliage sain de couleur jaune.

CL	11088	11107	11089	11513
Cu	68,5 %	66,0 %	65,0 %	67,4 %
Sn	4,7 %	4,8 %	6,4 %	9,7 %
Sb	10,4 %	12,5 %	11,2 %	13,8 %
Pb	11,3 %	10,3 %	12,7 %	6,8 %
As	2,5 %	3,2 %	2,4 %	1,3 %
Ni	2,2 %	2,7 %	1,7 %	3283
Ag	3114	3517	3287	7100
Fe	301	101	116	268
Bi	447	422	497	105
Au	-	-	-	-
Zn	158	193	171	47

Tableau 45 : Compositions élémentaires déterminées par LA-ICP-MS des bronzes au plomb antimoniés. Sauf mention contraire, les teneurs sont en ppm.

L'examen des profils de concentration obtenus par LA-ICP-MS met en évidence les particularités de la microstructure des bronzes au plomb antimoniés. Ainsi, une partie du plomb est dissoute dans la matrice tandis que l'excédent forme des précipités qui peuvent être rencontrés par le faisceau laser au cours du prélèvement de matière (figure 226, autour de 50 s). Le comportement des éléments-traces au cours de l'analyse

est instructif puisqu'il met en évidence une corrélation entre l'argent, le bismuth et le plomb. En effet, le passage du laser dans un globule de plomb entraîne une augmentation des teneurs en argent et en bismuth alors que les teneurs des autres éléments décroissent. Ce comportement indique qu'une partie de l'argent et du bismuth a migré dans le plomb au cours de la fonte.

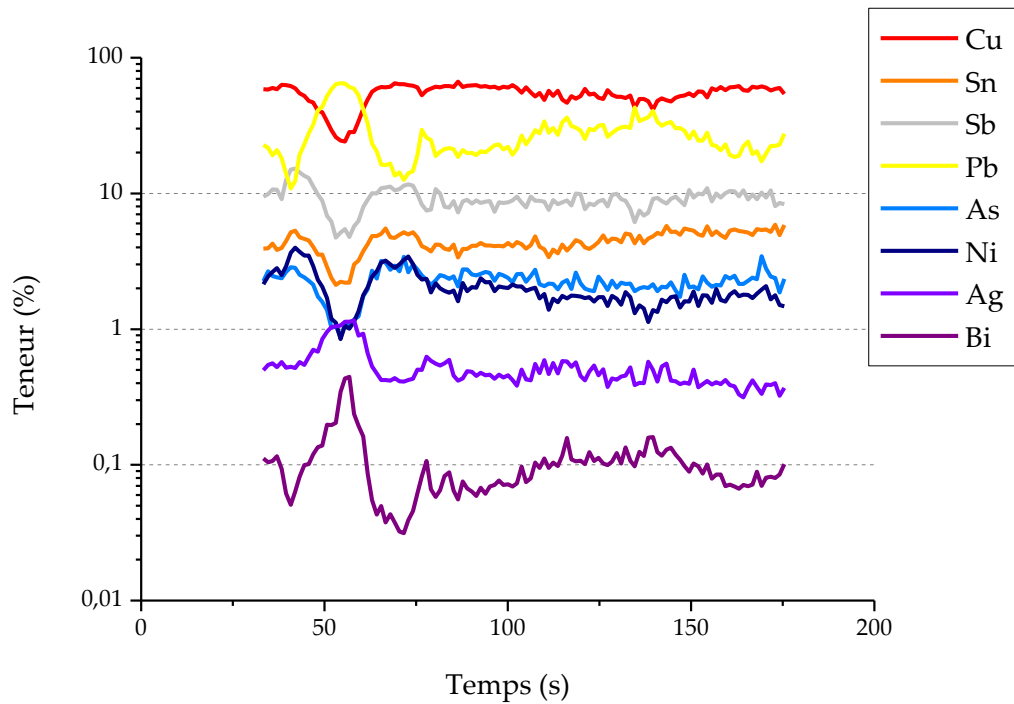


Figure 226 : Profils de concentrations obtenus par LA-ICP-MS pour 8 éléments de la tôle de bronze au plomb antimonié CL 11107.

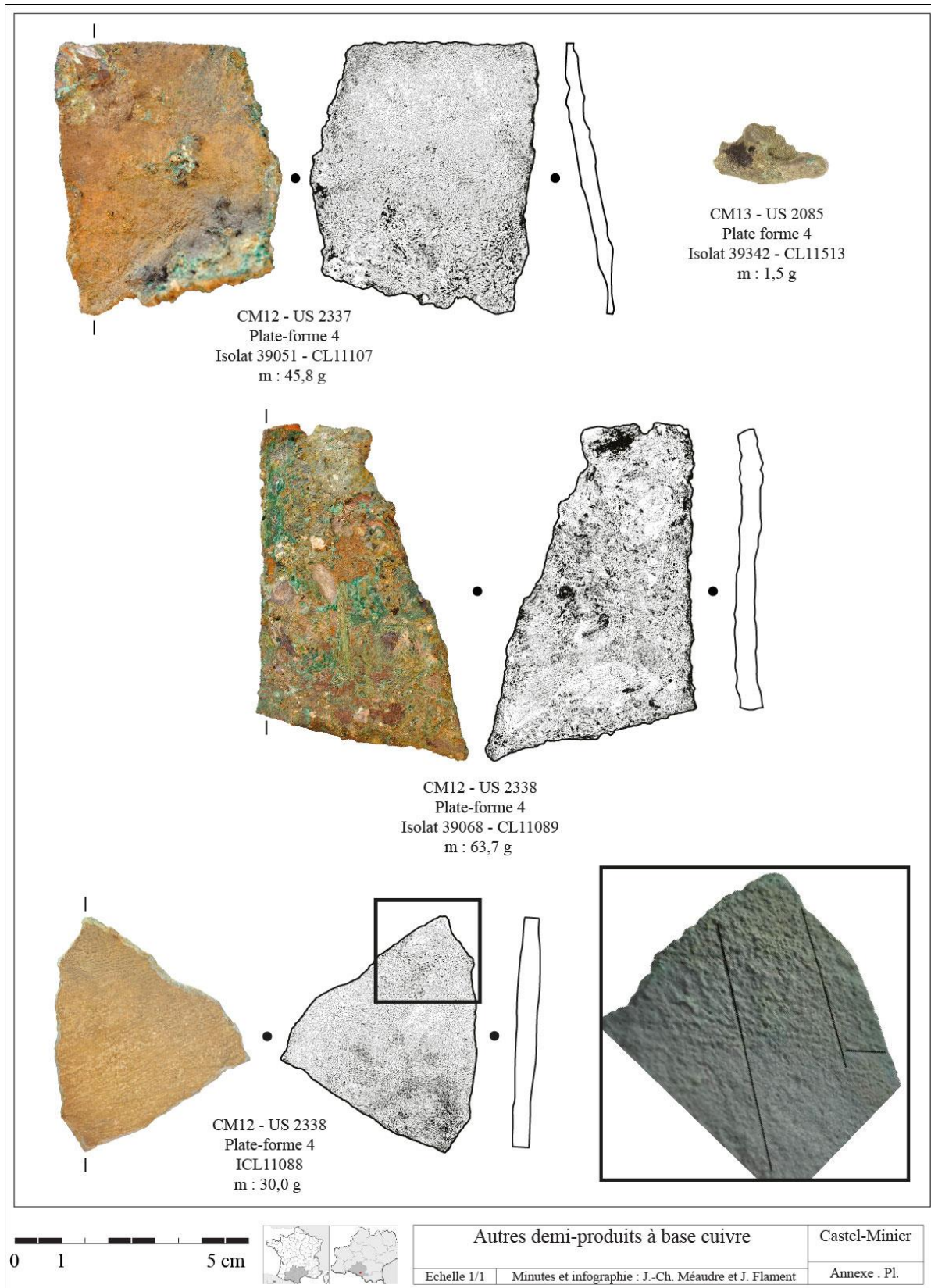


Figure 227 : Planche représentant les échantillons de bronze au plomb antimonié avec détail des traits de coupe sur la tôle CL 11088.

Sur le plan microstructural, les bronzes au plomb antimoniés présentent une structure brute de coulée (figure 228). Cette observation est cohérente avec la composition élémentaire qui suggère une fragilité rédhibitoire pour une mise en forme par déformation plastique. La présence de plomb abaisse considérablement la température de fusion de l'alliage par rapport à un bronze qui n'en contient pas. En outre, sous certaines conditions⁷¹⁷, le plomb améliore la coulabilité et permet de produire des objets de grandes dimensions avec des épaisseurs de paroi faibles. L'étude métallographique révèle la présence de dendrites formées d'un alliage cuivre-antimoine-étain incorporant de l'arsenic et du nickel (figure 228 et tableau 46). L'espace inter-dendritique est occupé par une matrice riche en cuivre contenant quelque pour cent d'antimoine et d'étain. Enfin, le plomb forme des précipités répartis aléatoirement dans la structure.

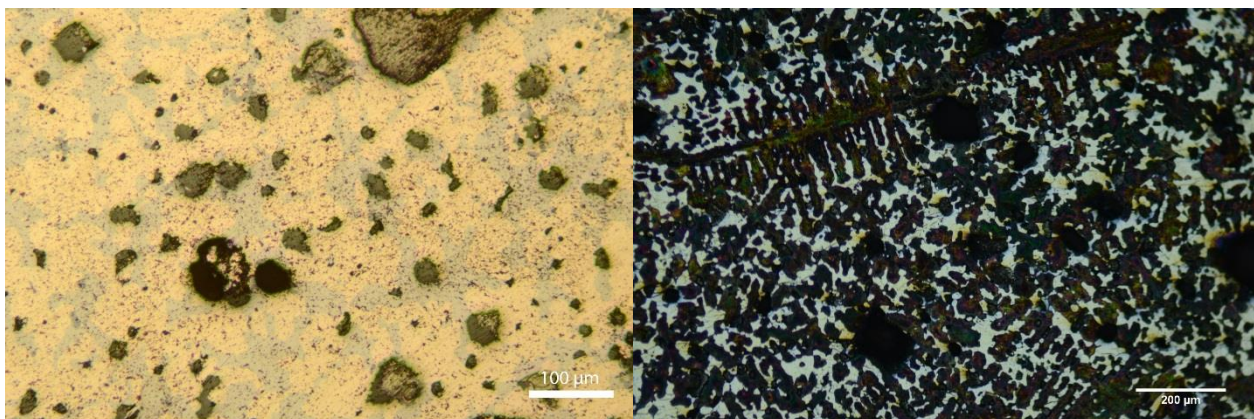


Figure 228 : Observation au microscope optique avant (gauche) et après (droite) attaque au perchlorure de fer du bronze au plomb antimoné CL 11107. À gauche, dendrites formées d'un alliage cuivre-antimoine-étain (gris), matrice riche en cuivre (jaune) et précipités de plomb (noir). À droite, aspect des dendrites après attaque chimique.

	Cu	Sb	Sn	As	Ag	Ni	Pb
Dendrites	52,7	29,2	7,4	4,3	-	6,3	-
Zone inter-dendritique	87,3	4,6	4,1	2,3	-	1,7	-
Globules de plomb	47,6	26,8	5,4	3,5	1,92	5,8	9,0

Tableau 46 : Résultats des analyses MEB-EDX des phases du bronze au plomb antimoné CL 11107. Teneurs moyennes exprimées en % et calculées à partir de trois analyses couvrant environ 1 mm².

⁷¹⁷ Notamment la nature du matériau employé pour concevoir le moule et la température de celui-ci au moment de la coulée.

Tous les bronzes au plomb antimoniés ont été découverts sur la plate-forme 4 dans des contextes d'occupation datés de la fin du XIV^e siècle. La fouille de cet espace n'a pas livré de structures de chauffe qui pourraient indiquer la pratique d'une métallurgie secondaire. Néanmoins, l'aménagement d'un premier canal hydraulique au cours du XV^e siècle a fortement perturbé la plate-forme et la production de bronzes au plomb antimoniés dans cet espace ne peut pas être totalement exclue.

Les compositions élémentaires des bronzes au plomb antimoniés permettent de les rapprocher d'un alliage identifié par Dungworth et Nicholas dans leur étude portant sur la fonte de la grande vaisselle dans l'Angleterre médiévale et moderne⁷¹⁸. Ces auteurs ont réalisé 85 analyses sur des déchets de coulées et des fragments de vaisselle qui révèlent l'utilisation d'un bronze au plomb antimonié pour la confection de chaudrons tout au long d'une période qui s'étend du XIV^e au XVII^e siècle (tableau 47). Ils proposent d'identifier cet alliage au *caldarium* des sources écrites antiques et médiévales⁷¹⁹ qui désigne un alliage cuivreux utilisé pour la fonte d'ustensiles domestiques. Hormis la synthèse sur la vaisselle médiévale et moderne découverte en Angleterre, les études archéométriques conduites sur du mobilier provenant d'autres espaces mettent en évidence l'usage ponctuel de bronze au plomb antimonié. C'est le cas notamment de chaudrons produits dans la vallée de la Meuse au XIV^e et XV^e siècle⁷²⁰.

⁷¹⁸ Dungworth D. et Nicholas M., « *Caldarium? An antimony bronze used for medieval and post-medieval cast domestic vessels* », *Historical Metallurgy*, 38(1), 2004, p. 24-34.

⁷¹⁹ Voir le paragraphe suivant pour la présentation de ces sources.

⁷²⁰ Thomas N., Leroy I. et Plumier J., *L'or des dinandiers...*, *op. cit.*, en particulier catalogue p. 105-110.

CL	11088	11107	11089	11513	Dungworth et Nicholas (2004)
Cu	68,5 %	66,0 %	65,0 %	67,4 %	69,0 %
Sn	4,7 %	4,8 %	6,4 %	9,7 %	4,8 %
Sb	10,4 %	12,5 %	11,2 %	13,8 %	4,9 %
Pb	11,3 %	10,3 %	12,7 %	6,8 %	13,7 %
As	2,5 %	3,2 %	2,4 %	1,3 %	1,2 %
Ni	2,2 %	2,7 %	1,7 %	3283	0,4 %
Ag	3114	3517	3287	7100	0,1 %
Fe	301	101	116	268	0,3 %
Bi	447	422	497	105	n.m.
Au	-	-	-	-	n.m.
Zn	158	193	171	47	0,6 %

Tableau 47 : Compositions élémentaire des bronzes au plomb antimoniés de Castel-Minier et de l'étude de Dungworth et Nicholas (teneur moyenne calculée à partir de 85 individus. Bien que la variation des teneurs de chaque élément au sein du corpus soit présentée sur des histogrammes, les auteurs ne donnent pas l'écart-type de la composition moyenne que nous reproduisons dans ce tableau) ; n.m. : non mesuré.

Si les arguments historiques et techniques sont recevables pour identifier le bronze au plomb antimonié au *caldarium*, il convient au préalable d'examiner les réalités multiples que recouvre ce terme. Le *caldarium* apparaît dans l'*Histoire naturelle* de Pline l'Ancien⁷²¹ où il désigne un alliage peu malléable, impropre au martelage et destiné à la fonte : *caldarium funditur tantum, malleis fragile*. Il peut néanmoins être affiné pour former du cuivre « pur » (*regulare*) : *sed et in ceteris metallis cura distat a caldario ; omne enim diligentius purgatis igni vitiis excoctisque regulare est*. Cette définition est inchangée au VI^e siècle chez Isidore de Séville dans le livre 16 (*De lapidis et metallis*) de ses *Etymologiae*⁷²². Dans la *Mappae Clavicula*, recueil de recettes techniques dont les différentes versions ont été établies entre le IX^e et le XII^e siècle⁷²³, le *caldarium* est mentionné à deux reprises, mais avec des significations différentes. Dans la recette

⁷²¹ Pline l'Ancien, *Histoire naturelle*, livre XXXIV. Texte établi et traduit par H. Le Bonniec, commenté par H. Gallet de Santerre et H. Le Bonniec, Les Belles Lettres, Paris, 1953, p. 140.

⁷²² *Hoc et caldarium quod tantum funditur. Nam malleis fragile est. Siquidem omne aes diligentius purgatis igne vitiis excoctisque regulare efficitur* : Lindsay W. M., *Isidori Hispalensis episcopi Etymologiarum sive Originum. Libri XX*, Oxford University Press, Oxford, 1911, Livre XVI, § xx.

⁷²³ Pour le contexte de compilation de la *Mappae Clavicula* et les différentes versions : Gauthier J., *La fortune des entreprises minières...*, *op. cit.*, p. 76 et suivantes.

consacrée à la fabrication du laiton, il désigne un cuivre ductile qui est martelé pour obtenir des tôles dans lesquelles diffuse le zinc au cours de la cémentation⁷²⁴. Plus loin, dans une recette consacrée à la confection d'un récipient, le terme de *caldarium* est à nouveau employé mais dans un sens qui semble différent et pour le moins difficile à interpréter⁷²⁵. Un alliage cuivre-plomb est d'abord confectionné puis épuré par ajout de divers matériaux (sel, alun, terre de Samos). Le terme *caldarium* semble traduire le caractère martelable de l'alliage une fois épuré. Cette propriété s'accorde mal avec la composition de l'alliage confectionné.

Chez Agricola, le *caldarium* est d'abord décrit dans son encyclopédie des ressources minérales, *De natura fossilium*, publiée en 1546. Le terme caractérise un alliage de couleur sombre, rouge-jaunâtre, facile à fondre mais impropre à une mise en forme par déformation plastique car il se brise sous le marteau⁷²⁶. Il s'agit d'un sous-produit de la métallurgie des cuivres argentifères et notamment du procédé de séparation du cuivre et de l'argent⁷²⁷. Agricola indique le terme allemand qui désigne cet alliage : *Lebetzkupfer*. Il explique clairement qu'il est bâti sur le terme latin *lebes*, qui désigne des chaudrons en bronze. Le lien entre la finalité de l'alliage et sa désignation est sans équivoque.

Dans le *De re metallica*, le *caldarium* apparaît à deux reprises dans le livre 11 consacré à la séparation du cuivre et de l'argent. Le *caldarium* désigne tout d'abord un sous-produit du procédé de concentration de l'argent dans le cuivre par gravité⁷²⁸. Le cuivre (ou la matte cuivreuse) argentifère à traiter est fondu dans un four similaire à

⁷²⁴ *Sumis cuprum productile quod caldarium dicitur, vel es ignitum productum, facis laminas quibus substernis* : Phillipps T. (sir), « Letter addressed to Albert Way, Esq., Director, communicating a transcript of a MS treatise on the preparation of pigments, and on various processes of the decorative arts practiced in the Middle Ages, written in the twelfth century, and entitled Mappae Clavicula », *Archaeologia*, 32, 1847, p. 204.

⁷²⁵ *Ibidem*, p. 205 : *Plumbi 3. j. aeris 3. iij. una conflabis, admiscens Samiam terram, et salem, et alumen liquidum, et sine dissolvi ; simulque ut ceperit purgato medicamine. Si autem est igni productile (id est, caldarium) aceto tingue, et diffunde in quam volueris formam. Fiet enim non minime album.*

⁷²⁶ Bandy M. C. et Bandy J. A., *De natura fossilium (textbook of mineralogy)*. Georgius Agricola, Dover Phoenix Editions, New York, 2004, p. 176.

⁷²⁷ Probablement par liquation et ressuage, *cf infra*.

⁷²⁸ Hoover H. C. et Hoover L. H., *Georgius Agricola. De re metallica...*, *op. cit.*, p. 511-512.

celui employé pour la coupellation et doté d'une sole en cendres. L'argent, dont la densité est supérieure à celle du cuivre, migre vers le fond de la sole. La partie supérieure du bain est prélevée par débordement ; elle est formée d'un cuivre désargenté qui a été partiellement épuré par l'atmosphère oxydante. La partie inférieure est alliée avec du plomb puis prélevée pour être traitée selon le procédé de liquation et ressuage (voir ci-dessous). La partie supérieure contient encore des impuretés telles que de l'antimoine, de l'arsenic, du nickel ou du plomb selon la nature du minerai traité. Elle est retraitée dans un four d'affinage pour produire différentes qualités de cuivre : du cuivre rouge, jaune et du *caldarium*.

Toujours d'après Agricola, la seconde façon d'obtenir du *caldarium* consiste à recycler les sous-produits du procédé de liquation et ressuage : le *Seigerhüttenprozess*, qui permet d'extraire l'argent contenu dans le cuivre au moyen d'une cofusion plombeuse⁷²⁹. Un alliage plomb-cuivre est d'abord confectionné dans lequel l'argent migre du cuivre vers le plomb. Le plomb argentifère est ensuite récupéré au cours de l'étape de liquation qui consiste à chauffer l'alliage au-dessus de la température de fusion du plomb, mais en-dessous de celle du cuivre. Le plomb argentifère s'écoule tandis que le cuivre demeure à l'état solide. Les « carcasses » de liquation sont composées majoritairement de cuivre. Elles contiennent néanmoins une quantité résiduelle de plomb argentifère qui est collectée au cours de l'opération de ressuage conduite à une température plus élevée que pour la liquation. Plusieurs sous-produits sont obtenus à l'issue de cette dernière étape dont des « carcasses » de ressuage qui peuvent être retraitées pour produire différentes qualités de cuivre. Au cours de ce retraitement, un sous-produit métallique appelé *cadmia* (riche en arsenic, zinc, nickel,

⁷²⁹ *Ibidem*, p. 542. Nous donnons ici une description brève du *Seigerhüttenprozess*. Pour une approche approfondie du procédé, voir tout particulièrement : L'Héritier M. et Téreygeol F., « From copper to silver: Understanding the saigerprozess through experimental liquation and drying », *Historical Metallurgy*, 44(2), 2010, p. 136-152 ; Guillot I. et Benoit P., « L'extraction de l'argent des minerais de cuivre au XVI^e siècle : le livre X du *De re metallica* d' Agricola », *Mines et métallurgie, Brussieu-Lyon, 1991*, Benoit P. (éd.), PPHS, Les chemins de la recherche n° 26, Lyon, 1994, p. 107-133.

cobalt, plomb et antimoine selon le minerai traité) est tiré hors du four. Il est allié avec du « cuivre jaune » pour produire du *caldarium*.

Dans son traité sur l'essai des minerais, Lazarus Ercker mentionne à deux reprises le cuivre à chaudrons (*Liebeter Kupffer*) qu'il désigne comme un cuivre impur⁷³⁰.

Selon Dungworth et Nicholas, les bronzes au plomb antimoniés qu'ils ont mis en évidence dans la grande vaisselle domestique fabriquée en Angleterre proviennent de sous-produits du *Seigerhüttenprozess*, procédé métallurgique qu'ils rajeunissent d'ailleurs de trois siècles en croyant le voir à l'œuvre dès le XII^e siècle⁷³¹. À Castel-Minier, en l'état actuel des recherches archéologiques, il est bien difficile d'identifier le procédé ayant permis de traiter les minerais de cuivre argentifères dont deux fragments ont été découverts au cours des fouilles. Néanmoins, et bien que les indices en sa faveur soient maigres, l'hypothèse d'une production de *caldarium* à partir des sous-produits du procédé de liquation et ressuage ne peut être écartée. La seconde hypothèse pour expliquer l'origine du *caldarium* envisage une production à partir de l'alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre issu du traitement de la bournonite. Elle a d'ailleurs été évoquée comme une possibilité par Werner – au même titre qu'un

⁷³⁰ Sisco A. G. et Smith C. S., *Lazarus Ercker's Treatise on Ores and Assaying...*, *op. cit.*, p. 238.

⁷³¹ La plus ancienne mention indiscutable du *Seigerhüttenprozess* apparaît à Nuremberg en 1453 : Suhling L., « Die Technologie des Kupferseigerns in Zentraleuropa im 15. und 16. Jahrhundert... », *op. cit.*, p. 97-106. Cependant, une origine antérieure du procédé n'est pas exclue comme le suggère l'enquête de Philippe Braunstein sur le « Getto » de Venise : Braunstein P., *Les Allemands à Venise (1380-1520)*, École française de Rome, Rome, 2016, p. 532 et suivantes. Le *Seigerhüttenprozess* pourrait y avoir été introduit dans les dernières décennies du XIV^e siècle par des métallurgistes allemands. Pour étayer une datation au XII^e siècle, Dungworth et Nicholas identifient le *Seigerhüttenprozess* à la recette qui fait l'objet du chapitre 63 du livre d'après d'après l'édition de Hawthorne et Smith (1963) de la *Schedula diversarum artium* de Théophile : Dungworth D. et Nicholas M., « *Caldarium...* », *op. cit.*, p. 31. Néanmoins, l'opération décrite par le moine concerne la fonte de minerais mixtes particuliers mêlant cuivre et plomb et provenant probablement des filons du Rammelsberg dans le Harz. Sur cette question, voir une mise au point dans Bartels C., Fessner M., Klappauf L. et Linke F. A., *Kupfer, blei und silber aus dem Goslarer Rammelsberg von dem Anfängen bis 1620*, Deutsches Bergbau-Museum, Bochum, 2007, p. 138 et suivantes.

mélange entre speiss⁷³² et cuivre – pour expliquer l'origine des bronzes au plomb antimoniés médiévaux⁷³³.

5.3.2.2. Production du *caldarium* : bournonite et bronzes recyclés

L'alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre produit à partir de la bournonite est difficilement valorisable. Ses propriétés physiques limitées réduisent fortement son utilisation pour la confection de mobilier en alliages cuivreux qu'il s'agisse de vaisselle ou d'accessoires du costume. En revanche, ce demi-produit peut servir de base à la réalisation d'alliages standardisés, tel que des bronzes au plomb antimoniés, qui sont ensuite utilisés dans le cadre de la production par fonderie de certains ustensiles, notamment la grande vaisselle domestique. Nous avons examiné la faisabilité d'une telle pratique à partir du mobilier archéologique de Castel-Minier. L'une des manières de produire les bronzes au plomb antimoniés qui ont été caractérisés sur le site consiste à confectionner un alliage entre le demi-produit plomb-antimoine-cuivre et des bronzes recyclés sur place. Outre l'étain, les bronzes doivent alors apporter l'arsenic et le nickel afin d'obtenir du *caldarium* semblable aux exemplaires archéologiques. Nous avons sélectionné trois bronzes parmi le corpus archéologique qui satisfont ces conditions et qui en outre contiennent des teneurs en zinc faibles. Il s'agit de deux fragments de tôle (CL 10935 et CL 11743) et d'un déchet de coulée avec une empreinte (CL 12825)⁷³⁴.

Le diagramme ternaire de la figure 229, illustre la possibilité d'une production de *caldarium* à partir de bronzes recyclés et de l'alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre issu du traitement de la bournonite. Plus précisément, il est possible de

⁷³² Le speiss est un sous-produit semi-métallique issu du traitement des minerais sulfurés de type « cuivres gris ». Il concentre plusieurs éléments tels que le fer, le nickel, l'antimoine et l'arsenic sous des formes essentiellement arsénisées voire sulfurées.

⁷³³ Werner O., « Analysen Mittelalterlicher Bronzen und Messinge I », *Archäologie und Naturwissenschaften* 1, 1977, p. 152.

⁷³⁴ *Supra* p. 559 pour l'analyse de ces alliages.

proposer un modèle de dilution. Ainsi, le *caldarium* peut être obtenu à partir d'un alliage composé de 17 à 25 % du demi-produit plomb-antimoine-cuivre que complètent des bronzes recyclés.

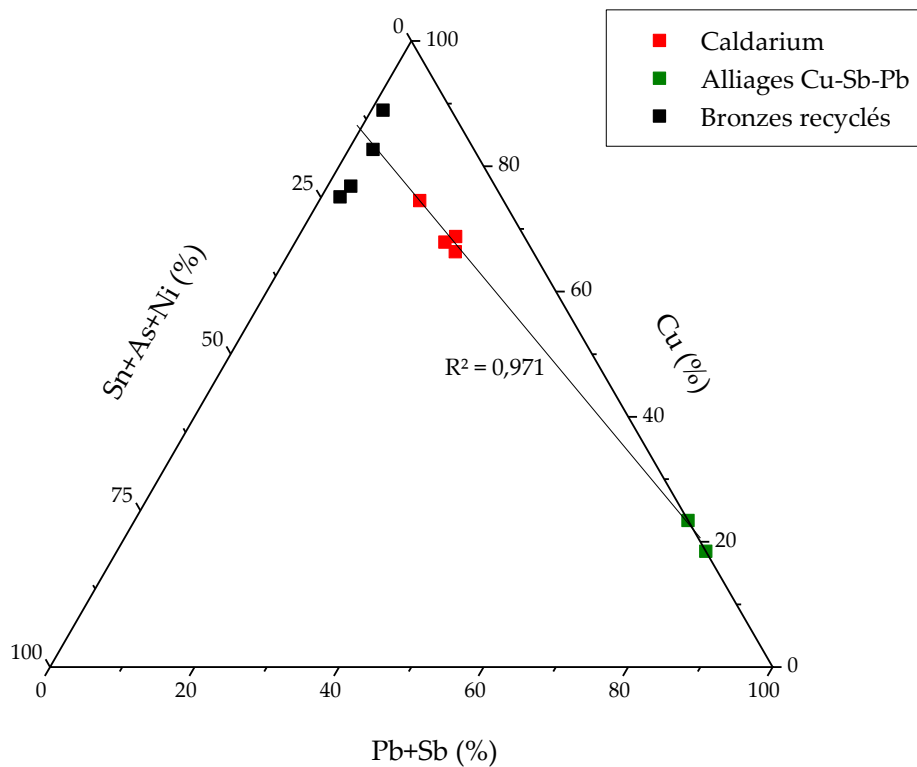


Figure 229 : Diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en cuivre, antimoine+plomb et étain+arsenic+nickel des alliages ternaires issus de la bourmonite, des bronzes sélectionnés et des bronzes au plomb antimoniés (*caldarium*). La régression linéaire illustre le modèle de dilution proposé.

5.3.2.3. Production du *caldarium* : le recyclage des sous-produits de la métallurgie des cuivres argentifères

Malgré la possibilité d'une production de *caldarium* tirant profit d'une matière première locale issue de la bourmonite et du recyclage d'objets en bronze, l'hypothèse d'une confection à partir de sous-produits de la métallurgie des cuivres argentifères ne peut pas être totalement exclue. Cette proposition n'implique pas nécessairement une production exogène du *caldarium* puisque des minerais de la famille des « cuivres gris », représentés par deux fragments de tétraédrite, ont été découverts sur le site.

L'étude des compositions élémentaires des demi-produits en *caldarium* permet d'examiner les modalités d'une telle chaîne opératoire et d'identifier la nature des matières premières métalliques employées.

L'étain que contient le *caldarium* présente des corrélations négatives avec le plomb, l'arsenic et le nickel, ce qui exclut une origine commune (figure 230). L'étain, provient donc d'un bronze incorporé aux résidus de la métallurgie des cuivres argentifères. Ces résidus contiennent du plomb, de l'arsenic et du nickel comme le suggèrent les corrélations entre ces éléments (figure 230).

Le cas de l'antimoine est plus difficile à traiter. Ce métal ne présente pas de corrélation avec le plomb, l'arsenic et le nickel que contiennent les résidus de la métallurgie extractive des cuivres argentifères. Compte tenu des teneurs importantes en antimoine dans le *caldarium*, il est peu probable que le bronze de dilution en soit la principale source. Toutefois, il pouvait en contenir une petite quantité ce qui explique l'absence d'une corrélation avec le plomb⁷³⁵. Ainsi, en supposant que le *caldarium* soit issu d'un alliage entre un bronze et des résidus métallurgiques de la chaîne opératoire des cuivres argentifères, il est possible de déterminer à partir de la figure 230, la composition du bronze utilisé. Lorsque la teneur en plomb est nulle, la teneur en étain vaut 14 %. Inversement, lorsque la teneur en étain est nulle, celle du plomb atteint environ 23 %. Ainsi, le *caldarium* peut être obtenu en alliant des résidus métallurgiques cuivreux – riches arsenic, nickel et antimoine et dont la teneur en plomb est de 23 % – à un bronze dont la teneur en étain est de 14 %. Les proportions sont consignées dans le tableau 48. À partir de ces données, les compositions élémentaires hypothétiques des sous-produits cuivreux utilisés pour confectionner le *caldarium* peuvent être modélisées (tableau 48).

⁷³⁵ Cette éventualité a été écartée dans la suite pour permettre les modélisations. Nous considérons donc que l'antimoine provient exclusivement des résidus métallurgiques issus de la métallurgie extractive des cuivres argentifères.

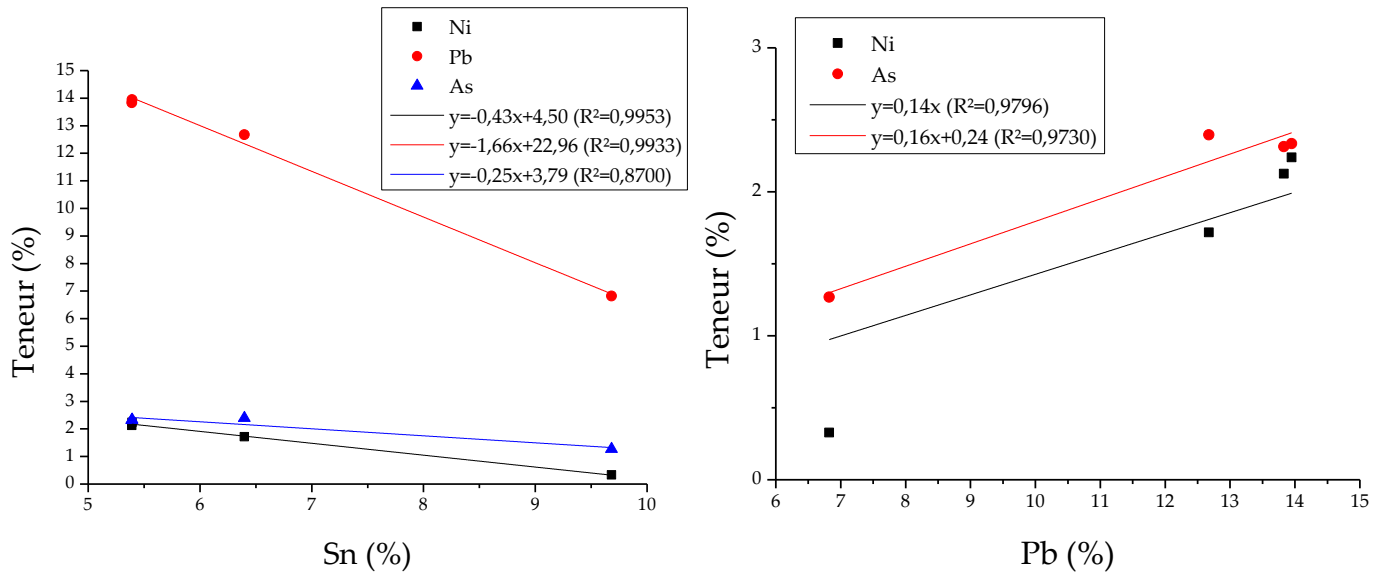


Figure 230 : Représentation des teneurs en nickel, plomb et arsenic en fonction des teneurs en étain pour les demi-produits en *caldarium* (gauche). Représentation des teneurs en arsenic et en nickel en fonction des teneurs en plomb pour les demi-produits en *caldarium* (droite). Mise en évidence des corrélations.

Composition des sous-produits Cu						
Bronze : sous-produit Cu	Cu (%)	Pb (%)	Sb (%)	As (%)	Ni (%)	
11107	1,3 : 2	54,1	22,5	16,2	3,8	3,5
11513	3 : 1,3	27,9	22,1	44,8	4,1	1,1
11089	1,7 : 2	48,4	23,3	20,7	4,4	3,2
11088	1,3 : 2	53,6	22,7	16,3	3,8	3,6

Tableau 48 : Proportions de bronze (à 14 % d'étain) et de sous-produit cuivreux permettant de produire les demi-produits en *caldarium*. Pour chaque artéfact en *caldarium*, la composition hypothétique du sous-produit cuivreux allié avec le bronze est donnée.

Les cuivres argentifères ont-ils fait l'objet d'un traitement effectif sur le site de Castel-Miner ? Peu d'éléments permettent d'aborder cette question. Seuls deux fragments de tétraédrite ont été découverts, dont un seul en stratigraphie. Les seules indices d'une métallurgie consacrée aux cuivres argentifères consistent en deux déchets de coulée qui relèvent de la catégorie des cuivres au plomb (tableau 49). Les teneurs en argent de ces artéfacts sont toutefois modérées en comparaison de celles des tétraédrites archéologiques qui atteignent 14 %. Le même constat peut être fait pour l'antimoine. En outre, les teneurs en plomb sont élevées et ne peuvent pas provenir du minerai, ce qui indique donc l'usage de ce métal dans la chaîne opératoire.

Si ces alliages proviennent bien de la tétraédrite, alors ils témoignent d'une étape intermédiaire de la métallurgie extractive qui a consisté à ajouter du plomb à l'alliage cuivreux argentifère pour y concentrer l'argent. Ce plomb a ensuite été récupéré, vraisemblablement pour être coupellé, mais une partie a néanmoins subsisté dans le cuivre. Le procédé de récupération du plomb n'est pas documenté archéologiquement à Castel-Minier. En revanche, la morphologie de l'individu CL 11148 permet d'avancer l'hypothèse d'une opération métallurgique de type liquation. L'aspect spongieux du fragment informe est très proche des « carcasses » de liquation et de ressuage obtenues expérimentalement par le *Seigerhüttenprozess* (figure 231) et pour lesquelles les analyses élémentaires ont montré qu'il peut subsister des quantités importantes de plomb atteignant plusieurs dizaines de pour cent⁷³⁶.

CL	Cu	Sn	Sb	Pb	As	Ni	Ag	Fe	Bi	Au	Zn
11148	72,2%	98	2,8%	23,5%	1934	5572	4238	1146	338	-	48
13138	65,9%	20	2,0%	30,7%	236	5339	6861	1263	280	-	45

Tableau 49 : Résultats des analyses par LA-ICP-MS des cuivres au plomb. Sauf mention contraire, les teneurs sont exprimées en ppm.

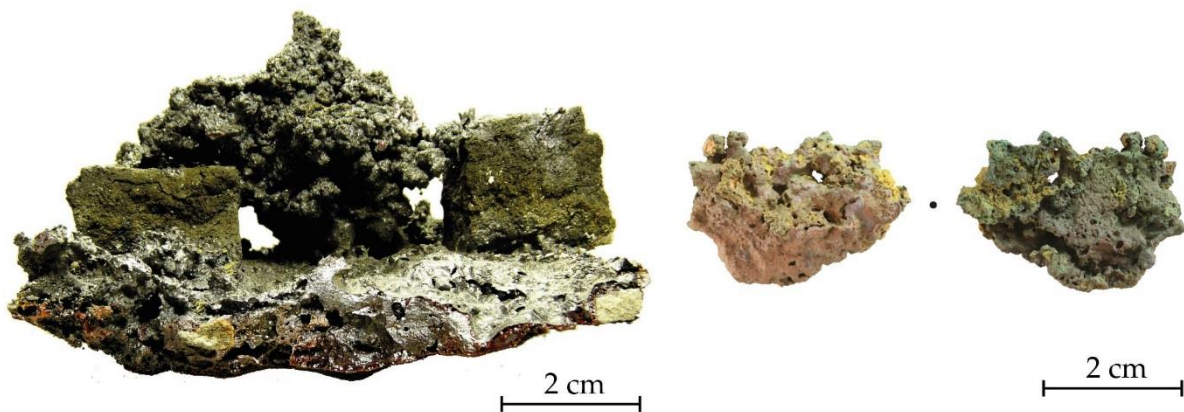


Figure 231 : « Carcasses » de ressuage expérimentale (gauche) d'après L'Héritier M. et Téreygeol F., « From copper to silver... », *op. cit.*, p. 141 et 143. À droite cuivre au plomb CL 11148.

⁷³⁶ L'Héritier M. et Téreygeol F., « From copper to silver: Understanding the saigerprozess through experimental liquation and drying », *Historical Metallurgy*, 44(2), 2010, p. 136-152.

5.3.2.4. Spatialisation des étapes de la chaîne opératoire

L'analyse spatiale du mobilier qui se rattache à la production de *caldarium* à partir de la bournonite et de bronzes recyclés met en évidence l'organisation particulière de la chaîne opératoire avec une spatialisation très nette des étapes de métallurgie extractive et secondaire (figure 232). La découverte de sous-produits issus du traitement de la bournonite (scories et alliages ternaires plomb-antimoine-cuivre) sur le Plat-du-Roi, mais également en rejet dans la pente qui s'ouvre au sud et dans le ferrier 2 témoigne de la pratique d'une métallurgie extractive dans la première moitié du XV^e siècle. La chaîne opératoire de la bournonite est donc circonscrite à la partie méridionale du site de Castel-Minier, sur le Plat-du-Roi et/ou au sommet de la moraine. Cette métallurgie extractive cohabite avec celle du plomb argentifère, mais également avec la sidérurgie.

En revanche, la confection du *caldarium* se déroule dans la partie nord-ouest du site, sur la plate-forme 4 active jusque dans la première moitié du XV^e siècle. Les trois tôles et le déchet de coulée ont en effet été découverts dans les niveaux les plus récents de cet espace. La fouille a également livré un fragment de bronze qui présente une composition compatible avec le modèle de dilution proposé plus haut pour expliquer l'origine du *caldarium*. Il est donc vraisemblable que les bronzes recyclés et les alliages ternaires plomb-antimoine-cuivre étaient fondus ensemble (et dans des proportions bien définies) sur la plate-forme 4 afin de produire des tôles de *caldarium* d'épaisseur standardisée.

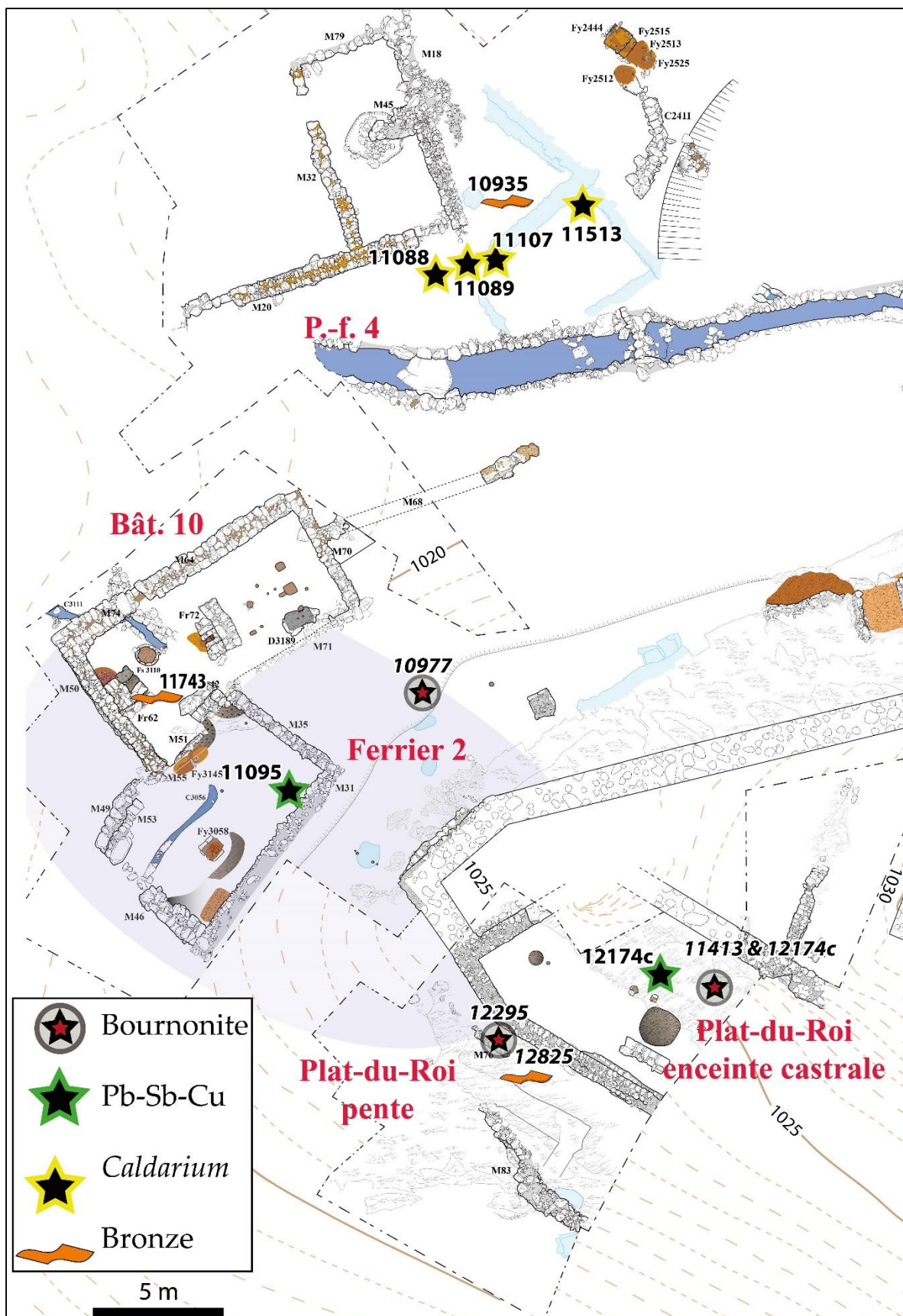


Figure 232 : Distribution du mobilier métallurgique de la chaîne opératoire de la bournonite et du caldarium dans les structures archéologiques. L'emprise du ferrier 2 figure en transparence. Il contient les individus CL 10977 et CL 11095.

5.3.2.5. La production de *caldarium*. Entre pragmatisme, savoir-faire technique et connaissance du marché

Quelle que soit l'origine du *caldarium* découvert à Castel-Minier, il convient à présent d'évaluer l'intérêt économique d'une telle production en essayant d'estimer la valeur de cet alliage sur le marché du cuivre à travers quelques données textuelles⁷³⁷. Le corpus documentaire que forment les manuels de commerce italiens est une source particulièrement précieuse pour l'histoire économique et notamment celles des grandes places commerciales européennes dans les derniers siècles du Moyen Âge. Ces manuels ou *pratica* sont des guides à l'usage des marchands des grandes compagnies commerciales qui décrivent pour chaque ville la nature et le prix des produits échangés⁷³⁸.

La *pratica* du florentin Francesco di Balduccio Pegolotti, datée du milieu du XIV^e siècle, est la plus ancienne mais également la plus prolixe sur les variétés de cuivre et d'alliages cuivreux. Pegolotti décrit les demi-produits selon leur géométrie et leur état de surface, mais également selon leur provenance et les usages auxquels ils sont réservés. Il distingue d'abord le cuivre dur (*rame duro*) et le cuivre doux (*rame dolce*). Le premier à la forme de grands pains ; il est spongieux et grumeleux et correspond à un métal très peu affiné destiné à la fonderie de cloches et de pièces d'artillerie. Les cuivres doux se présentent en masses lisses plus ou moins grandes, en pains ou en tôles. Parmi ceux-ci figure le *rame di Pollana*⁷³⁹. Il s'agit en réalité d'un alliage, comme le suggère sa couleur jaune. Il est utilisé pour la confection de bassins, chaudrons, seaux et vaisselle diverse (*bacini e caldaie e secchie et altre stoviglie*). Viennent

⁷³⁷ Le développement qui suit doit beaucoup aux fructueuses discussions que nous avons eues avec MM. Philippe Braunstein et Marc Bompaire (qui a porté à notre connaissance le passage de Saminiato de' Ricci). Qu'ils trouvent ici l'expression de notre gratitude.

⁷³⁸ Pour une présentation de ces sources : Valérian D., *Les sources italiennes de l'histoire du Maghreb médiéval. Inventaire critique*, Bouchène, Saint-Denis, 2006, p. 105-108.

⁷³⁹ Il s'agit de cuivre produit dans les districts miniers slovaques qui transite par Cracovie, où il est taxé, avant de rejoindre le marché de Bruges (Braunstein P., « Le marché du cuivre à Venise... », *op ; cit.*, p. 80-81).

ensuite les cuivres du district du Harz : *rame di Gossellare* et *rame di Rocca magna*. Ces cuivres sont plus rouges que le *rame di Pollana* et réservés à des travaux plus fins et plus subtils. Leurs propriétés sont semblables à celles du cuivre produit en Toscane, à Massa Marittima. Les cuivres les plus onéreux portent le sceau pontifical (*rame di Papa*) ou celui de Venise (*rame de la bolla di San Marco*) ; il s'agit de métaux affinés, de couleur rouge, et dont la qualité supérieure est garantie par la marque. La qualité de certains cuivres approche celle du cuivre au sceau de Saint-Marc sans pour autant l'égaliser. Ces métaux se distinguent par une couleur moins rouge et un prix moindre ; ils sont qualifiés de *rame del lene*⁷⁴⁰. Enfin, Pegolotti nous informe que le cuivre se rencontre également sous la forme de tôles rectangulaires de 0,68 m par 0,34 m dont la couleur jaune est semblable à celle du laiton. Il s'agit de métal affiné et mis en forme par déformation plastique dans les ateliers vénitiens. La couleur n'est cependant pas suffisante pour juger de la qualité du métal et Pegolotti recommande d'éprouver sa ductilité avec un marteau : s'il casse c'est un cuivre dur ; sinon c'est un cuivre doux.

L'exposé détaillé et didactique du marché du cuivre que donne Pegolotti met en évidence la diversité des sources d'approvisionnement en métal rouge et la variété des combinaisons d'alliages selon les applications. Parmi les cuivre doux, l'aspect et la finalité du *rame di Pollana* suggère une identification à un alliage cuivreux impur qui peut se rapprocher du *caldarium* d'autant plus qu'il est le cuivre doux le moins cher sur le marché de Bruges avec un prix oscillant entre 44 et 46 gros tournois d'argent *al centinaio* contre 65 à 66 gros tournois pour un cuivre affiné à Venise et marqué du sceau de Saint-Marc. Sa couleur jaune est semblable à celle du *caldarium* et son origine géographique suggère une production à partir de minerais sulfurés polymétalliques renfermant du cuivre et de l'argent et qui ont été exploités dans les districts miniers

⁷⁴⁰ Le *rame del lene* est énigmatique. Désigne-t-il une origine géographique et/ou une qualité ? L'identification à la vallée de l'Enns au nord-ouest de la Styrie – dans laquelle des activités minières sont attestées pour cette période – a été proposée : Elbl M. M., « From Venice to the Tuat: trans-saharan copper trade and Francesco di Marco Datini of Prato », In Armstrong L., Elbl I. et Elbl M. M. (éd.), *Money, Markets and Trade in Late Medieval Europe: Essays in Honour of John H.A. Munro*, Brill, Leyde-Boston, 2007, p. 448.

slovaques⁷⁴¹. Néanmoins, la ductilité que confère Pegolotti à cet alliage est contradictoire avec son identification au *caldarium*, aussi il n'est pas possible à partir de ces données de trancher définitivement.

Le manuel du marchand florentin Saminiato de' Ricci livre quelques détails sur les qualités des cuivres qui circulent sur les marchés européens. Saminiato est un Florentin installé à Gênes qui entreprend la rédaction de sa *pratica* en 1396. Son ouvrage est révisé et complété en 1416⁷⁴². Bien qu'il soit moins prolix que Pegolotti, Saminiato, mentionne également la commercialisation à Bruges de cuivre sous la forme de *chaldelli* et *chaldaie*⁷⁴³. Plus tardive, la *pratica* d'Antonio da Uzzano, rédigée entre 1422 et 1440, consigne les tarifs des objets à base de cuivre sur les marchés de Pise et de Sienne⁷⁴⁴. Sur le marché pisan, on trouve pour le même prix du cuivre neuf ou vieux, c'est-à-dire d'une part, un métal intégrant pour la première fois le circuit de consommation après les étapes de métallurgie extractive et d'autre part, un cuivre recyclé. La distinction de prix est à chercher ailleurs : elle porte sur la pureté du métal selon que le cuivre soit affiné (*lavorato*) ou non. À Sienne, l'échelle des qualités est plus diversifiée avec l'existence d'un cuivre spécifiquement destiné aux travaux d'orfèvrerie (*rame lavorato di lavoro da orafi*).

L'étude des manuels de commerce italiens révèle l'étendue du spectre des qualités de cuivre et la complexité à relier chacune de ses nuances au mobilier archéologique et en particulier au bronze au plomb antimonié découvert à Castel-Minier. La *pratica* de Pegolotti est la seule qui, par la précision des descriptions qui se fondent tant sur des critères morphologiques que géographiques et techniques, permet de rapprocher le *caldarium* du *rame di Pollana*.

⁷⁴¹ Rainer S., « Das Slowakische Erzgebirge und seine Denkmäler », In Slotka R. et Labuda J. (éd.), 'Bei diesem Schein kehrt Segen ein'. Gold, Silber und Kupfer aus dem Slowakischen Erzgebirge, Deutschen Bergbau-Museum Bochum, Bochum, 1997, p. 71-96.

⁷⁴² Roover R. de, « Il manuale di mercatura di Saminiato de' Ricci. Antonia Borlandi », *Speculum*, 40(2), 1965, p. 330-332.

⁷⁴³ Borlandi A., *Il manuale di mercatura di Saminiato de Ricci*, Di Stefano, Gênes, 1963, p. 40.

⁷⁴⁴ Pagnini G. F., *Della decima e delle gravezze. Tomo quatro contenente la pratica della mercatura scritta da Giovanni di Antonio da Uzzano nel 1442*, Bouchard, Lisbonne-Lucques, 1765, p. 58 et 83.

Au début du XVI^e siècle, les hypothèses sont mieux étayées grâce aux sources germaniques et notamment aux tarifs des différentes qualités de cuivre qui transitent par le marché de Breslau (Wrocław). Le dynamisme de cette place marchande provient de l'afflux des métaux de Silésie et de Slovaquie, notamment des entreprises minières et métallurgiques de la compagnie des Fugger qui possède d'ailleurs une filiale dans cette ville⁷⁴⁵. Ainsi, le *Libetter Kupfer* est mentionné parmi d'autres qualités de cuivre sur lesquelles nous reviendrons. Ce produit se rapproche de ceux décrits par Ercker et Agricola⁷⁴⁶, ce dernier le mentionnant explicitement comme la matière première à la confection de chaudrons. Cependant, il semble que la réalité du *Libetter Kupfer* soit plus difficile à appréhender. Il pourrait en effet s'agir d'une production issue des mines de Libethen en Slovaquie⁷⁴⁷ (Lubietová).

En définitive, si l'appellation *Libetter Kupfer* peut indiquer la provenance du métal, il nous semble que ce critère géographique recouvre également la notion de qualité si l'on examine sa valeur sur le marché de Breslau. Le *Libetter Kupfer* vaut 3 florins rhénans le *zentner* en 1519⁷⁴⁸. De tous les produits qui circulent sur le marché polonais, le *Libetter Kupfer* est celui qui a le moins de valeur après le cuivre rouge (*Rothkupfer*, 3 florin $\frac{3}{4}$ le *zentner*), les déchets de coulée (*Gegossene Kugeln*, 4 florins le *zentner*), le cuivre forgeable (*Geschmiedete*, 5 florins le *zentner*) et celui en tôle pour la couverture (*Dachkupfer*, 5 florins $\frac{1}{2}$ le *zentner*). Il s'agit donc d'un demi-produit impur issu des sous-produits de la métallurgie des cuivres argentifères qui peut néanmoins être valorisé.

À la lumière des sources écrites, il est établi qu'il existe des débouchés sur les marchés des métaux de l'Europe médiévale pour les bronzes au plomb antimoniés tels

⁷⁴⁵ E. Finks, « Die Bergwerksunternehmungen der Fugger in Schlesien », In Grünhagen C. (éd.), *Zeitschrift des Vereins für Geschichte und Alterthum Schlesiens*, vol. 28, 1884, p. 340.

⁷⁴⁶ *Supra* p. 608.

⁷⁴⁷ Braunstein P., *Les Allemands à Venise...*, *op. cit.*, p. 525 ; Strieder J., « Die Inventur der Firma Fugger aus dem Jahr 1527 », In Bütcher K. (éd.), *Zeitschrift für die gesamte Staatswissenschaft*, H. Laupp'schen Buchhandlung, Tübingen, 1905, p. 50.

⁷⁴⁸ E. Finks, « Die Bergwerksunternehmungen der Fugger... », *op. cit.*, p. 340.

que le *caldarium* de Castel-Minier⁷⁴⁹. La mise en œuvre d'une chaîne opératoire destinée à la confection de cet alliage résulte d'une part des opportunités de l'extraction minière et d'autre part d'un pragmatisme économique. Les découvertes ponctuelles de minerais polymétalliques cuivreux constituent une diversification des ressources approvisionnant les ateliers qui a été exploitée par les métallurgistes. L'évolution de leurs pratiques techniques, qui nécessite la mise en place de procédés métallurgiques différents – aux étapes plus nombreuses et plus complexes – est la conjugaison d'un haut niveau d'expertise, mais également d'une bonne connaissance du marché du cuivre et des profits potentiels engendrés par la production d'un alliage standardisé destiné à la confection de vaisselle domestique : le *caldarium*. Opportunisme, expertise technique et connaissance des débouchés potentiels sur le marché du cuivre se mêlent à Castel-Minier et participent de sa vocation polymétallique.

⁷⁴⁹ Le marché des métaux non-ferreux du sud du royaume de France, et en particulier celui de la région toulousaine est difficile à cerner. Les ustensiles domestiques à base de cuivre y sont néanmoins produits et l'étude des inventaires après décès et des testaments démontre qu'ils sont consommés : Marandet M.C., « L'équipement de la cuisine en Toulousain à la fin du Moyen Âge d'après les inventaires et les testaments », *Archéologie du Midi médiéval*, 1997, p. 269-286.

Conclusion

Lorsque le gisement d'Aulus apparaît dans la documentation écrite en 1319 à l'occasion d'un procès qui oppose ses exploitants au vicomte de Couserans, rien ne permet de connaître les modalités techniques de l'entreprise ni de soupçonner sa nature polymétallique. La *minerie argente* est au centre du débat et seul le métal blanc suscite les convoitises. La diversité des gisements métalliques exploités au Moyen Âge dans les vallées d'Aulus – et de manière plus large dans la vicomté de Couserans – a depuis été démontrée. Nos recherches s'inscrivent dans la continuité de travaux pluridisciplinaires commencés il y a plus de trente-cinq ans. Les études que nous avons menées ne sont pas circonscrites au champ de l'extraction minière : les recherches de terrain entreprises depuis près d'une quinzaine d'années ont permis d'appréhender également le traitement des minerais, c'est-à-dire les étapes minéralurgiques et métallurgiques.

Le site de Castel-Minier, établi dans la vallée d'Aulus à la fin du XIII^e siècle, associe en un même lieu tous les aspects de la production des métaux, depuis l'extraction des minerais jusqu'à l'exportation des demi-produits. Le programme de recherches archéologiques dont il fait l'objet depuis plus d'une décennie a livré de nombreuses structures destinées au traitement des minerais non-ferreux ainsi que des corpus de mobiliers métallurgiques très diversifiés. La pluralité des minerais, des produits intermédiaires et des demi-produits mis au jour a très vite permis de mettre en lumière la vocation polymétallique de Castel-Minier. Ce constat, point de départ de nos travaux de thèse, a engagé une réflexion sur l'association de différentes pratiques métallurgiques au sein d'un même espace. Elle a conduit à la définition d'une problématique centrée sur la notion d'atelier multi-métaux. Pour autant, la démarche que nous avons adoptée ne s'est pas réduite aux aspects techniques de la production des métaux non-ferreux. Bien que l'organisation fonctionnelle de Castel-Minier et la reconstruction des chaînes opératoires qui y sont à l'œuvre forment la contribution majeure de ce mémoire, la compréhension d'un atelier multi-métaux ne peut se passer

d'une étude de l'environnement naturel dans lequel sont ancrées ses activités. En outre, la nature et les volumes des productions sont intimement liés à la demande des marchés des métaux dont les formes et les évolutions doivent être intégrées au raisonnement. À ces éléments du contexte naturel et économique dans lequel s'inscrit Castel-Minier s'ajoutent les dimensions humaine et sociale des activités métallurgiques qui concernent tant le statut des ouvriers œuvrant sur le site que leurs niveaux de compétences techniques.

La méthodologie que nous avons adoptée pour tenir compte de la diversité des sources dont nous avons disposé est résolument pluridisciplinaire. L'étude des sources écrites constitue un point de départ incontournable. Ce sont les fonds d'archives et les traités techniques de l'époque moderne que nous avons exploités dans un premier temps. Nos recherches se sont également portées dans le champ archéologique avec d'une part, notre participation à la fouille de l'atelier de Castel-Minier et l'étude du mobilier métallurgique et d'autre part, la réalisation de prospections minières consacrées aux ressources minérales de la vicomté de Couserans qui ont fait l'objet d'exploitations par le passé. La compréhension des structures et du mobilier archéologique liés aux activités d'extraction des métaux a nécessité le développement de recherches archéométriques dont l'originalité réside dans l'association de plusieurs méthodes d'analyse. La diversité des techniques de caractérisation mises en œuvre permet d'étudier le mobilier à différentes échelles. Chaque méthode utilisée dans notre travail vise à répondre à un questionnement technique, archéologique ou historique qui participe de la reconstruction des chaînes opératoires. Enfin, nos travaux ont bénéficié des apports de plusieurs sessions d'archéologie expérimentale. Cette démarche a profondément nourri nos réflexions tout au long de notre thèse. Les résultats obtenus ont permis de mettre à l'épreuve plusieurs hypothèses techniques. Ils ont également fourni des données sur des étapes techniques qui ne sont pas documentées par l'archéologie et ont suscité de nouvelles pistes de recherche. Enfin, ils ont permis de dépasser le cadre de la fouille archéologique et du laboratoire en

portant les réflexions dans le champ immatériel des savoirs tacites et en contribuant à leur restitution.

Ressources minérales du Couserans médiéval

La raison première de l'implantation d'un atelier multi-métaux à Castel-Minier tient au particularisme minéralogique du Haut-Couserans qui forme la limite orientale des Pyrénées polymétalliques. Au cours d'une histoire géologique longue et complexe, des conditions favorables au développement de gisements métalliques ont été réunies. Les quelques sources écrites disponibles, mais surtout les prospections d'archéologie minière ont permis de mettre en évidence plusieurs espaces miniers qui forment un véritable district au sein du Couserans médiéval. C'est dans la vallée du Garbet que la densité des anciens travaux est la plus forte. Les minéralisations ont principalement fourni de la galène associant parfois de la tétraédrite. Parmi les gisements exploités, celui qui se trouve au contact de Castel-Minier est l'un des plus importants tant du point de vue des volumes extraits que de celui de la richesse et de la diversité des minerais. Outre de la galène argentifère, il a fourni aux Anciens de la tétraédrite, de la chalcopryrite et probablement de la bournonite.

La mine de Castel-Minier a fait l'objet d'une étude minéralogique et géochimique détaillée de manière à caractériser les minéralisations exploitées au Moyen Âge. Les résultats obtenus ont été associés aux données issues des fouilles de plusieurs chantiers d'abattage ainsi qu'aux datations afin de comprendre les dynamiques d'exploitation. Les recherches ont également été étendues à d'autres gisements de moindre envergure situés dans les vallées d'Aulus. Outre, cette première zone d'étude, les deux autres espaces miniers pris en compte se situent dans la région d'Ustou, dans la vallée de l'Alet, et au sud du bourg du Seix (figure 233). Les données dont nous disposions pour notre étude étaient plus limitées. Les anciens travaux miniers se résument fréquemment à de modestes ouvrages de recherche dont la

datation est délicate. De surcroît, ces espaces miniers n'ont pas fait l'objet de fouilles archéologiques susceptibles de documenter des ateliers métallurgiques.

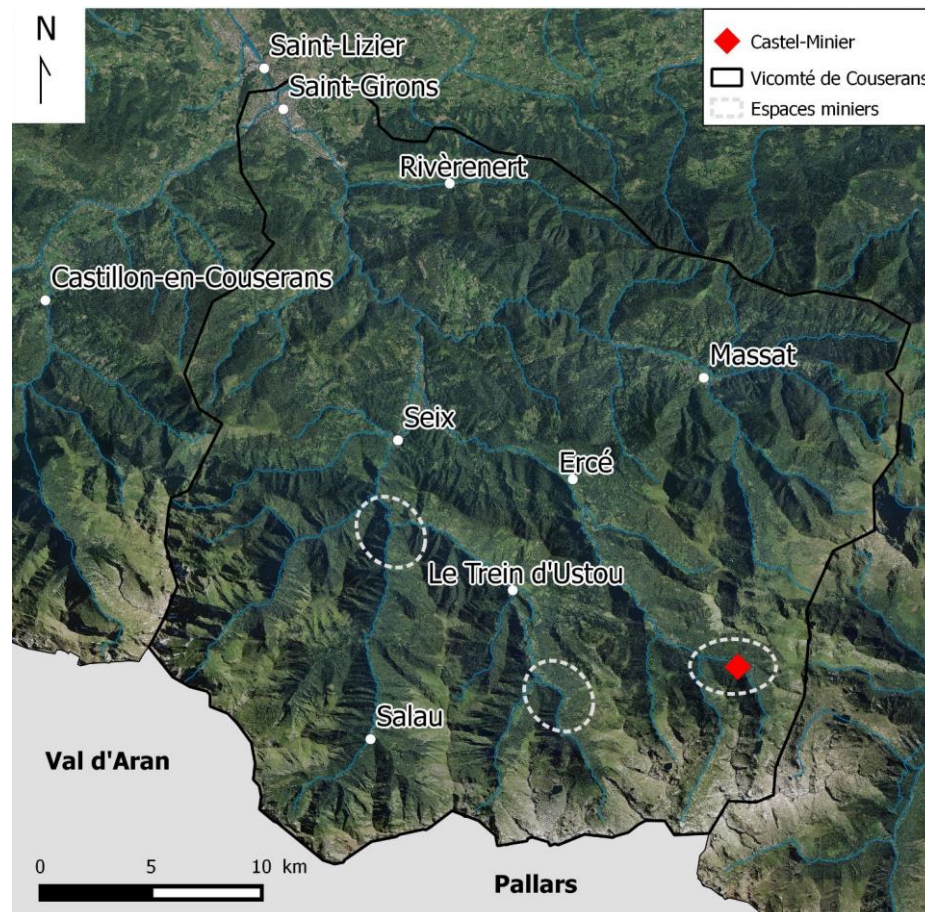


Figure 233 : Espaces miniers prospectés dans la vicomté de Couserans.

La proximité du gisement de Castel-Minier est un critère qui a pu motiver l'implantation des ateliers fouillés. Il ne s'agit que d'une hypothèse et – outre cet aspect pratique qui facilite le transport des pondéreux – il faut également envisager la disponibilité de l'énergie hydraulique, avec la présence attenante du torrent du Garbet, et une topographie favorable. Cependant, d'autres sites contemporains de Castel-Minier sont connus, en particulier l'atelier minéralurgique d'Agneserre⁷⁵⁰. De surcroît,

⁷⁵⁰ L'association de plusieurs ateliers autour d'un même gisement est également attestée au XV^e siècle à la mine de Pampailly avec les martinets du Cosne, de Brussieu et du Vernay : Benoit P., *La mine de Pampailly...*, op. cit., p. 18.

les sources écrites médiévales ne mentionnent pas une installation précise ; elles se réfèrent à la vallée d'Aulus. D'ailleurs, l'érection de l'enceinte castrale, qui est à l'origine du toponyme de Castel-Minier et qui peut indiquer le statut privilégié de ce site, n'est pas antérieure à la fin du XIV^e siècle.

L'approvisionnement en minerais des ateliers de Castel-Minier

L'ampleur du corpus de minerais découverts en contexte archéologique, notamment celui de la galène argentifère, a permis, d'une part, de mener une étude diachronique du potentiel économique des ressources minérales et d'autre part, de s'intéresser aux stratégies d'approvisionnement de l'atelier. Nous avons défini le potentiel économique des minerais livrés aux ateliers comme la combinaison de deux critères : leur teneur en métal et la proportion de gangue qu'ils contiennent. Le premier paramètre a pu être évalué grâce aux analyses élémentaires tandis que le second a été déterminé par la mesure systématique de la densité des roches minéralisées.

La synthèse diachronique qui résulte de l'étude des minerais livre plusieurs enseignements. La galène apparaît tout d'abord comme le principal minerai traité à Castel-Minier de la fin du XIII^e siècle au milieu du XV^e siècle. À partir de l'analyse d'un échantillon significatif et représentatif de la nature des approvisionnements de l'atelier, plusieurs interprétations sur le potentiel économique du minerai peuvent être avancées. À la fin du XIII^e siècle, les teneurs en argent sont moyennes (autour de 1200 ppm) mais elles peuvent atteindre des valeurs significatives (2700 ppm). Les minerais de densité moyenne à élevée se retrouvent de manière indifférenciée dans les espaces de travail. Le XIV^e siècle est marqué par une augmentation sensible de la richesse en argent des galènes dont la teneur moyenne s'établit autour de 1600 ppm. En outre, les ateliers se caractérisent par la présence de minerais de densité élevée, c'est-à-dire exempts de gangue. Dans la première moitié du XV^e siècle, les volumes de minerais mis au jour sont moindres. Il s'agit une fois encore d'individus exempts de gangue avec des teneurs en argent autour de 1600 ppm.

Parmi les ressources minérales transformées à Castel-Minier figurent également les minerais polymétalliques à base de cuivre qui comprennent la tétraédrite, la chalcopryrite et la bournonite. Si la tétraédrite de Castel-Minier est très riche en argent (entre 13,2 et 14,7 %), elle est discrète avec seulement un individu découvert dans un contexte archéologique de la fin du XIII^e-début du XIV^e siècle. En revanche, associée à la galène, elle forme un minerai mixte dont l'intérêt économique est considérable puisque sa teneur en argent globale peut atteindre plusieurs pour cent. Ces minerais sont l'apanage des premières phases d'occupation de Castel-Minier qui embrassent la fin du XIII^e siècle et le début du XIV^e siècle. Le cas de la chalcopryrite est différent puisque ce minerai approvisionne les ateliers sur l'ensemble de la période d'activité de Castel-Minier, soit de la fin du XIII^e siècle au milieu du XV^e siècle. Enfin, la bournonite apparaît comme une ressource disponible ponctuellement dans la première moitié du XV^e siècle.

La synthèse que nous venons de dresser à partir de l'étude des minerais découverts en contexte archéologique met en lumière la vocation polymétallique du site de Castel-Minier et illustre la multiplicité des chaînes opératoires qui y ont pris place successivement ou simultanément. Outre la galène argentifère, qu'elle soit associée ou non avec de la tétraédrite, nous avons ainsi pu identifier plusieurs minerais polymétalliques qui ont fait l'objet de traitements sur ce site. L'analyse élémentaire de ces minerais et l'exploitation des résultats à l'aide d'outils statistiques appropriés ont permis d'établir une filiation avec certains gisements du district minier de Couserans. Nos interprétations sont renforcées par la mesure des rapports isotopiques du plomb d'un échantillon de minerais. Bien que la contribution de la mine de Castel-Minier à l'approvisionnement des ateliers soit significative, elle n'est pas exclusive. Les sources de minerais sont diverses et il faut compter avec d'autres gisements de la vallée du Garbet et très probablement avec l'importante mine des Raspes. Par ailleurs, les travaux de Sainte-Barbe, Lauqueille et Lacore ont ponctuellement alimenté les ateliers métallurgiques (figure 234).

La tétraédrite découverte en contexte archéologique provient de la mine de Castel-Minier comme l'a démontré l'étude isotopique. Il en va de même pour les minerais mixtes galène-tétraédrite dont les échantillons collectés dans la mine présentent une signature géochimique similaire à celle des individus archéologiques. Les minerais mixtes et la tétraédrite ont été mis en évidence dans des quartiers d'abattage anciens, situés à proximité du jour et travaillés au début de l'exploitation, soit à la fin du XIII^e siècle. Cette phase d'activité est donc marquée par la disponibilité de minerais riches en argent et relativement faciles d'accès. À la lumière de ces résultats, nous proposons une interprétation nouvelle des sources écrites relatives au procès entre les exploitants de la mine d'Aulus et le vicomte de Couserans. Le différend pourrait puiser son origine dans la découverte de minerais autrement plus riches que ceux connus au moment de l'élaboration du bail ce qui aurait motivé le vicomte à tenter d'en obtenir une modification voire à reprendre l'exploitation à son compte.

La chalcopryrite transformée à Castel-Minier provient de deux sources. L'une n'a pas pu être caractérisée avec les données dont nous disposons tandis que l'autre est compatible avec la mine de Castel-Minier et le puits 1136 qui surplombe la pâture d'Agneserre (figure 234). Enfin, la signature isotopique de la bournonite est proche de celle du gisement de Castel-Minier ce qui permet de proposer une filiation avec ce gîte.

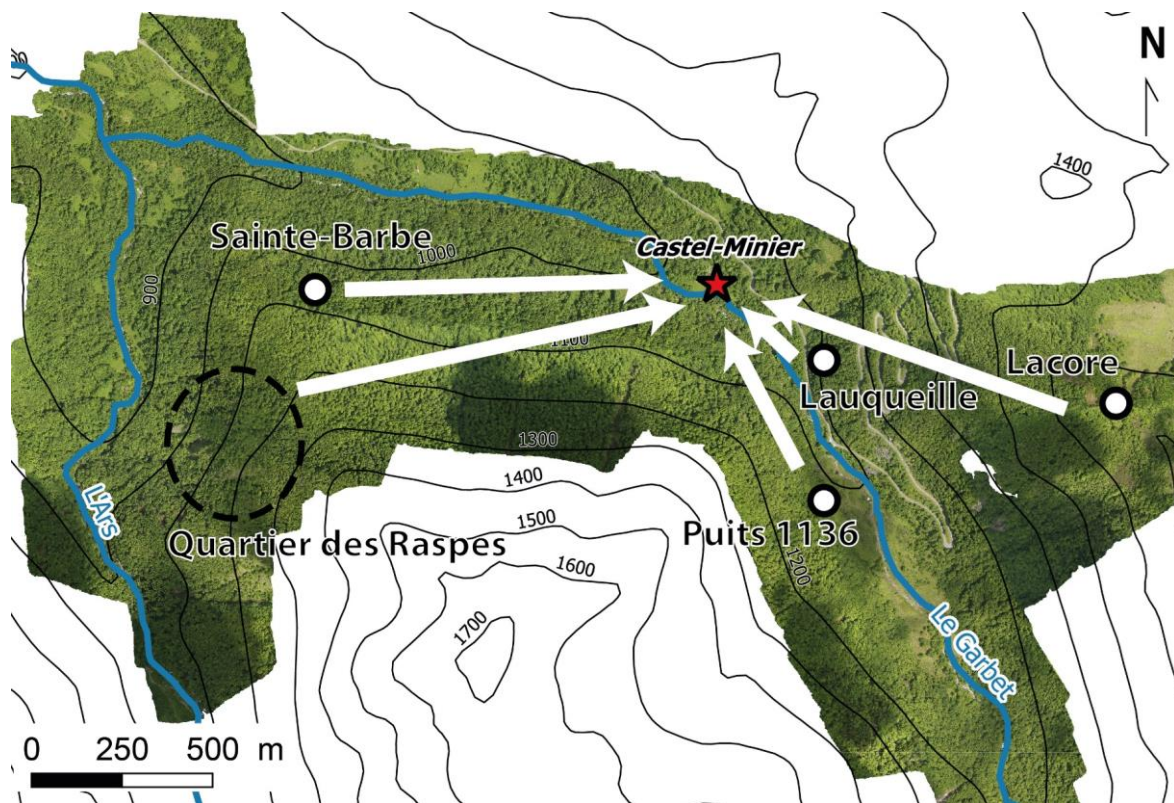


Figure 234 : Gisements des vallées d'Aulus et de l'Ars approvisionnant les ateliers de Castel-Minier.

L'aménagement du site polymétallique de Castel-Minier apparaît donc comme une réponse adaptée à la diversité des ressources minières disponibles dans la vallée du Garbet. À partir de la fin du XIV^e siècle, le site minier et métallurgique peut être envisagé comme une installation centrale recevant les minerais issus de plusieurs sources. Le traitement dès l'origine de la galène argentifère, de minerais mixtes et de la chalcopryrite permet d'avancer l'hypothèse d'une planification de cet atelier multi-métaux dans le cadre d'une valorisation de l'ensemble d'un espace minier. Elle devra être confirmée par les recherches archéologiques, notamment dans le secteur d'Agneserre pour préciser la fonction exclusivement minéralurgique de cet espace.

La mutualisation des moyens de production permet de réduire les risques liés aux aléas de l'extraction minière tout en assurant un meilleur contrôle des demi-produits exportés. Cette part de déterminisme dans l'organisation des ateliers de Castel-Minier se combine à un certain pragmatisme dont ont fait preuve les Anciens pour tirer profit des opportunités minières. Le cas de l'exploitation de la bournonite

est à ce titre exemplaire : offert aux mineurs au gré du développement des travaux d'extraction, ce minerai a été valorisé dans la première moitié du XV^e siècle grâce à la mise en place d'une nouvelle chaîne opératoire. En définitive, planification et opportunisme se conjuguent à Castel-Minier et participent de l'émergence d'un atelier multi-métaux. Outre la production d'argent, de plomb, de cuivre et d'alliages cuivreux, les activités métallurgiques se diversifient davantage avec la production de fer qui débute dans la première moitié du XIV^e siècle.

Les chaînes opératoires

Chacune des chaînes opératoires métallurgiques identifiées a fait l'objet d'une étude détaillée à partir des données archéologiques et archéométriques de manière à préciser les étapes de transformation des minerais. Rappelons que les aspects minéralurgiques ont été intégrés à nos travaux. Toutefois, les modalités de préparation des minerais à Castel-Minier demeurent mal connues faute d'une documentation archéologique consistante. Seul le corpus de meules permet de proposer des hypothèses pour la phase de broyage.

Parmi les chaînes opératoires métallurgiques étudiées figure tout d'abord celle du plomb argentifère et des minerais mixtes associant de la galène et de la tétraédrite (qui ne font pas l'objet d'une séparation). Les étapes de la chaîne opératoire de l'extraction de l'argent peuvent se résumer ainsi :

- La galène argentifère ne subit pas de grillage préalable. Le minerai est transformé en plomb d'œuvre en une seule étape selon le procédé de « grillage et réaction ». Les structures de chauffe susceptibles d'accueillir cette opération sont peu documentées pour la fin du XIII^e siècle : elles se limitent à des foyers circulaires bâtis en argile et répartis sur plusieurs plates-formes. Pour cette période, les minerais transformés sont de deux types selon qu'ils contiennent ou non de la gangue. Dans le premier cas, la transformation du minerai entraîne

la formation de scories qui incorporent des quantités significatives de plomb. À partir de la première moitié du XIV^e siècle, l'organisation de la chaîne opératoire fait l'objet d'une profonde transformation qui se manifeste par la rationalisation des espaces de travail avec l'édification d'un bâtiment consacré à la transformation de la galène. Il accueille un four en granite fonctionnant en ventilation naturelle et dans lequel est produit le plomb d'œuvre. La charge introduite dans le four se compose de minerai de densité élevée et de sous-produits d'affinage de l'argent (casses de coupellation).

- La séparation du plomb et de l'argent est réalisée suivant le procédé de coupellation. Il se déroule dans des structures de chauffe légères aménagées à même le sol. La sole des fours est confectionnée en cendres végétales non lavées. À Castel-Minier, la coupellation est conduite à deux échelles : dans le premier cas, la litharge est absorbée par la sole tandis que dans le second, elle doit être prélevée.
- Les produits de la coupellation consistent en des masses métalliques composées d'un alliage argent-plomb qui doit être affiné. Préalablement, ces masses sont homogénéisées lors d'une refonte dans un creuset. L'alliage coulé est ensuite coupellé sur une sole aux dimensions réduites ou dans une céramique évasée qui reçoit une coupelle en cendre.
- L'argent produit fait l'objet d'un contrôle précis au moyen d'outils métrologiques représentés à Castel-Minier par le godet d'une pile, d'une masse d'une demi-once et un poids marchand de la ville de Toulouse de la même masse.

La restitution de la chaîne opératoire de la chalcopirite est plus lacunaire. En effet, les étapes de métallurgie extractive sont manquantes. Il est néanmoins possible d'étudier certaines modalités techniques de la production de cuivre non allié à partir

de ce minerai. Les demi-produits en cuivre non allié se présentent sous la forme de tôles et de déchets de coulée. Ces derniers témoignent de l'extraction du cuivre à partir de la chalcopirite. Quant aux demi-produits, ils sont issus d'une mise en forme par déformation plastique selon une succession de cycles de recuit et de martelage.

La bournonite est un minerai polymétallique alliant le plomb, l'antimoine et le cuivre qui a fait l'objet d'une valorisation à Castel-Minier dans la première moitié du XV^e siècle. La chaîne opératoire mise en œuvre par les métallurgistes se compose des étapes suivantes :

- Un grillage préalable qui permet d'éliminer une partie du soufre contenu dans le minerai.
- Une étape de réduction qui permet d'obtenir des mattes et dans certains cas de l'antimoine métallique.
- Une phase de conversion de la matte pour obtenir un alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre.

L'alliage ternaire produit à l'issue des opérations métallurgiques constitue la matière première nécessaire à la confection d'un alliage cuivreux particulier dont la composition correspond à celle d'un bronze au plomb antimonié ou *caldarium*. Cet alliage est le fruit d'un mélange entre l'alliage ternaire issu de la bournonite et des bronzes, dont la production est exogène, qui ont été recyclés par les métallurgistes.

La place du recyclage

La question du recyclage a été succinctement abordée ci-dessus au sujet de la production de *caldarium*, il s'agit toutefois d'une pratique faisant partie intégrante des chaînes opératoires des ateliers de Castel-Minier. Elle est particulièrement visible sur le plan archéologique tout au long des étapes du traitement de la galène argentifère.

Conclusion

Ainsi, nous avons montré la réutilisation des soles de coupellation qui subissent un resurfaçage après une première opération de manière à en conduire une seconde. À l'issue de celle-ci, les casses de coupellation sont prélevées. Elles sont mises au rebut ou font l'objet d'un recyclage dans les fours de transformation de la galène. De la même manière, les litharges prélevées lors des opérations de coupellation à grande échelle font l'objet d'une valorisation pour produire du plomb désargenté. Le recyclage des scories plombeuses est aussi pratiqué. Une fois broyées, elles entrent dans la composition des mortiers architecturaux employés sur le site. La composition de certaines scories, proche du verre au plomb, nous incite également à envisager une exportation en vue d'une valorisation.

Les différentes pratiques de recyclage identifiées témoignent de la volonté d'optimiser les procédés techniques d'une part, par exemple avec l'ajout de casses de coupellation pour faciliter la transformation du minerai, et d'autre part, de valoriser l'ensemble des sous-produits disponibles. Les conséquences de cette rationalisation de l'exploitation sont importantes puisqu'elles peuvent introduire un effet de source. L'exemple le plus éloquent à Castel-Minier est donné par les volumes des ferriers dont le contenu n'a pas fait l'objet d'une valorisation. Au contraire, les scories plombifères sont peu nombreuses alors qu'on s'attendrait à les trouver en grand nombre compte tenu des volumes de minerai traités. Leur discrétion témoigne des habitudes de recyclage.

Particularismes et innovations techniques au sein de l'atelier

Les nombreuses chaînes opératoires qui cohabitent à Castel-Minier et dont nous venons de rappeler les grandes lignes ne constituent en aucun cas un modèle universel transposable à d'autres espaces géographiques ou chronologiques, quand bien même des rapprochements gîtologiques permettraient de l'envisager. Nos résultats mettent en lumière, pour chaque minerai, une chaîne opératoire possible, en tout cas celle élaborée par les Anciens selon des critères multiples. Il s'agit tout d'abord des

contraintes naturelles, telle que le type de la roche accompagnant les minerais ainsi que l'accès au combustible ou à l'énergie hydraulique. Les chaînes opératoires mises en œuvre reflètent également les compétences techniques des ouvriers, mais aussi leurs connaissances de la valeur des produits métalliques sur le marché. Pour toutes ces raisons, les procédés que nous avons restitués dans leur complexité et leurs particularités locales sont à la fois illustratifs de l'atelier de moyenne montagne de Castel-Minier et peuvent être mis à contribution pour la compréhension d'autres sites métallurgiques anciens.

Sur le site, les procédés techniques de production des métaux non-ferreux se caractérisent par l'absence d'une soufflerie hydraulique. Cette innovation qui apparaît à la fin du XII^e siècle dans les Alpes lombardes est attestée dans l'espace pyrénéen en 1362 à la mine de cuivre argentifère d'Urrobi dans le royaume de Navarre. L'usage de l'énergie hydraulique a été introduit à Castel-Minier pour la préparation des minerais, notamment pour l'entraînement des meules destinées au broyage. En revanche, il faut attendre l'installation d'un marteau hydraulique au XV^e siècle et l'aménagement d'une mouline au XVI^e siècle, deux outils destinés à la transformation du minerai de fer, pour qu'il soit adapté aux opérations métallurgiques. Ce résultat est important puisqu'il participe au débat sur le rôle de la métallurgie des métaux non-ferreux comme vecteur de la soufflerie hydraulique. L'exemple de Castel-Minier vient nuancer un tel schéma qui a pu être proposé dans d'autres espaces, pour expliquer notamment le développement de la *fusina* lombarde ou des ferrières basques.

L'une des solutions techniques mises en œuvre à Castel-Minier pour assurer la ventilation des structures de chauffe est connue pour le XIV^e siècle dans le cadre de la chaîne opératoire de la galène argentifère : il s'agit du tirage naturel. Pour les périodes antérieures, il n'est pas possible de trancher entre l'usage de la ventilation naturelle ou de soufflets manuels. L'efficacité du tirage naturel a pu être démontrée expérimentalement à partir d'une restitution du four en granite de Castel-Minier destiné au traitement de la galène argentifère. Les températures atteintes dans la

Conclusion

structure de chauffe ont permis la transformation du minerai et la production de plomb d'œuvre. La poursuite des expérimentations permettra d'améliorer la compréhension des procédés techniques qui constitue un prérequis aux réflexions économiques sur les activités métallurgiques de Castel-Minier qui concernent le rendement des opérations et la qualité des productions.

Expertise technique et polyvalence des ouvriers

La coexistence de plusieurs chaînes opératoires métallurgiques à Castel-Minier nous a amené à nous interroger sur la notion de spatialisation des activités et sur la polyvalence des ouvriers. L'analyse spatiale du mobilier a fourni des éléments de réponse. À la fin du XIII^e siècle, le traitement de la galène argentifère n'est pas circonscrit à un espace particulier : il prend place sur une multitude de plates-formes. À partir du XIV^e siècle, une véritable rationalisation des étapes de la chaîne opératoire est engagée avec l'érection d'un bâtiment accueillant la production de plomb d'œuvre tandis que la coupellation se déroule dans deux espaces privilégiés, dissociés du bâtiment et dans lesquels des dépôts considérables de casses de coupellation ont été mis au jour. Une telle spatialisation des activités est également valable pour la production du *caldarium* puisqu'une plate-forme est destinée à sa confection à partir de bronzes recyclés et de l'alliage ternaire issu de la bournonite.

Si l'organisation de certaines chaînes opératoires semble manifester le souci de réserver des espaces particuliers à certains procédés, elle n'entraîne pas un cloisonnement des activités. Ainsi, le traitement de la chalcopryrite intervient dès le début du XIII^e siècle dans les mêmes espaces que ceux destinés à la production de plomb d'œuvre à partir de la galène argentifère. De la même manière, au XIV^e siècle, la mise en forme des tôles en cuivre non allié est en partie réalisée dans un bâtiment dont les activités concernent également la production de plomb d'œuvre. Enfin, au XV^e siècle, l'association étroite de scories issues du traitement de la bournonite et de scories ferreuses semble indiquer le traitement concomitant des minerais ferreux et non-

ferreux sur le Plat-du-Roi voire dans la même structure de chauffe.

L'atelier multi-métaux de Castel-Minier apparaît donc comme une unité métallurgique polyvalente plutôt que comme une juxtaposition d'ateliers monométalliques. Les espaces de travail ont accueilli des activités métallurgiques très diversifiées. Certaines sont pérennes comme le traitement de la galène argentifère alors que d'autres sont mises en œuvre de manière plus ponctuelle, suivant les opportunités de l'extraction minière. La capacité d'adaptation et le pragmatisme dont font preuve les acteurs de l'exploitation de Castel-Minier indiquent sans ambiguïté leur polyvalence et la maîtrise de savoir-faire techniques étendus.

Nature et devenir des productions métalliques

Prérequis au traitement des minerais non-ferreux approvisionnant les ateliers de Castel-Minier, qu'elle soit le fruit d'une transmission de traditions techniques ou d'un enseignement délivré par des experts intervenus de manière épisodique sur le site, la maîtrise des savoir-faire techniques par les ouvriers permet d'assurer des productions métalliques régulières et dont la qualité est conforme aux attentes du marché. Le corpus des demi-produits en alliages cuivreux exhumés au cours des fouilles archéologiques a permis de questionner cette notion de qualité selon une approche mixte associant les analyses élémentaires et les données métrologiques. Ainsi, la standardisation de l'épaisseur des tôles en cuivre non allié est remarquable ainsi que la relative « pureté » du métal dont les niveaux d'impuretés sont faibles. Il en va de même pour la production de *caldarium* dont les tôles présentent une épaisseur régulière et une composition homogène.

La destination des productions métalliques est un des critères influençant leur qualité, au même titre que la nature des minerais dont elles sont issues et les procédés techniques mis en œuvre pour les obtenir. Elle invite donc à s'interroger sur le devenir des métaux et alliages exportés de l'atelier de Castel-Minier. De toutes les productions, celle de l'argent est la plus profitable. Cependant, son niveau de « pureté » est difficile

à appréhender puisque les recherches archéologiques n'ont pas permis de découvrir de demi-produits en argent susceptibles de représenter la production finale des ateliers métallurgiques. Quoi qu'il en soit, sa fonction devait être avant tout monétaire. Le métal blanc quittait les ateliers de Castel-Minier sous la forme de lingots comme l'atteste la relation des prospections de Malus qui mentionne un tel demi-produit d'environ 4 kg (16 marcs) découvert dans les années 1580 par les habitants d'Aulus.

La destination du *caldarium* est toute autre puisque cet alliage est utilisé pour la confection de grande vaisselle domestique, notamment des chaudrons. L'étude des sources commerciales de la fin du Moyen Âge, en particulier italiennes et allemandes, a mis en évidence la circulation d'alliages cuivreux qu'il est possible de rapprocher des bronzes au plomb antimoniés de Castel-Minier. Quant au cuivre non allié, son exportation sous la forme de tôles lui confère une valeur ajoutée non négligeable. Ce demi-produit est particulièrement adapté à certaines techniques de mise en forme telles que l'emboutissage, le cintrage, le pliage... De surcroît, les tôles de cuivre constituent la matière première de la production de laiton. Le choix de la forme sous laquelle sont exportés le cuivre et ses alliages procède donc d'un pragmatisme économique qui vise accroître la rentabilité des productions en exploitant tous les débouchés possibles. Outre l'argent et les alliages cuivreux, le plomb désargenté obtenu grâce au recyclage des sous-produits d'affinage de l'argent fait partie des exportations, il est d'ailleurs taxé par le vicomte de Couserans comme le mentionne Paolo Girardi.

Les volumes des productions métalliques sont difficiles à évaluer pour la période médiévale. À l'échelle de la France médiévale, les certitudes sont rares pour les périodes antérieures au XV^e siècle. À Castel-Minier, si l'on donne du crédit au récit de Girardi, l'atelier aurait extrait 30 000 livres d'argent par an pendant vingt ans à partir de 1315. Cette masse considérable⁷⁵¹ représente une proportion importante de la

⁷⁵¹ La conversion proposée par C. Verna donne 1,2 tonnes par an : Verna C., « Une nouvelle page... », *op. cit.*, p. 217.

production du royaume de France en se fondant sur l'estimation proposée par M.-C. Bailly-Maître et P. Benoit⁷⁵². Ces auteurs avancent l'hypothèse d'une production annuelle d'argent dans le royaume de France qui se serait élevée à quelques tonnes entre la fin du XIII^e et le début du XIV^e siècle.

Les productions polymétalliques de Castel-Minier se caractérisent par leur régularité mais également par leur qualité dont l'adéquation avec les attentes du marché est notable. L'ampleur des productions, notamment celle d'argent, est un critère supplémentaire qui permet de considérer définitivement le site pyrénéen comme un atelier multi-métaux industriel.

Apports des analyses archéométriques à la compréhension du mobilier métallurgique

La restitution de l'organisation fonctionnelle et des chaînes opératoires des ateliers polymétalliques de Castel-Minier n'aurait pas été possible sans une méthodologie particulière combinant des approches et des sources diverses. Parmi celles-ci, nous avons déjà mentionné l'apport considérable des analyses archéométriques réalisées sur le mobilier métallurgique qui permettent de mesurer les éléments majeurs et ceux présents à l'état de traces. L'élaboration de protocoles d'analyses adaptés aux natures diverses du mobilier archéologique et aux problématiques techniques, économiques et historiques est un apport majeur de nos travaux. La caractérisation des matériaux par LA-ICP-MS occupe une place de choix parmi les méthodes mises en œuvre. Les développements que nous lui avons apportés s'appuient sur les acquis antérieurs et sur les possibilités offertes par l'instrumentation de l'IRAMAT-CEB. Nous nous sommes attachés à définir précisément les paramètres d'analyse de manière à obtenir des mesures fiables et reproductibles. Les résultats ont fait l'objet de comparaisons avec ceux obtenus selon d'autres protocoles. Les avantages

⁷⁵² Bailly-Maître M.-C. et Benoit P., « Les mines d'argent dans la France médiévale », *L'argent au Moyen Âge. Actes du 28^e congrès de la Société des historiens médiévistes de l'enseignement supérieur public Clermont-Ferrand*, 1997, Publications de la Sorbonne, Paris, 1998, p. 33 et suivantes.

et limitations de nos méthodes ont été également discutés. De surcroît, l'utilisation d'outils statistiques pour exploiter les résultats fait partie intégrante de nos travaux. Finalement, la méthode d'étude du site minier et métallurgiques de Castel-Minier que nous avons développée constitue un modèle qui peut être transposé à d'autres ateliers.

La mise en œuvre de plusieurs techniques de caractérisation des matériaux a tout d'abord permis une meilleure compréhension des artefacts. Pour certains types de mobilier, notamment à base de cuivre, le recours à l'analyse est indispensable pour identifier la nature des alliages et établir une classification. De la même manière, la distinction entre le plomb d'œuvre et le plomb désargenté repose sur l'analyse des éléments-traces présents dans ces métaux, en particulier l'argent et l'antimoine.

Outre les bénéfices en termes d'identification et de compréhension du mobilier métallurgique, les analyses réalisées dans le cadre de notre thèse contribuent à l'étude du comportement des éléments-traces au cours des étapes d'extraction des métaux non-ferreux. La mise en évidence, sur un corpus significatif, de phénomènes de partitionnement des éléments entre le métal et la scorie au cours de la transformation de la galène argentifère a permis de discuter l'intérêt de l'introduction délibérée d'un mélange de minerai et de roche stérile. L'incidence d'une telle pratique sur les étapes ultérieures de la chaîne opératoire a pu être démontrée. Ainsi, l'incorporation de quantités importantes de plomb dans les scories de Castel-Minier au cours de la réduction de la galène a entraîné un enrichissement du plomb d'œuvre en argent. Ce phénomène profite à l'étape suivante de coupellation par un gain de temps et de combustible. À l'aune de ces résultats, la découverte dans les ateliers de quantités significatives de fragments de minerai mêlés de gangue n'est pas surprenante, elle dénote un choix technique opéré par les métallurgistes pour rentabiliser l'extraction du métal blanc. Il a pour corollaire une perte du plomb disponible dont l'incidence économique mérite d'être discutée. Au regard de la valeur de l'argent, comparée à celle du plomb⁷⁵³, cette disposition technique est rentable et permet de diminuer les coûts

⁷⁵³ Voir les données sur le marché des métaux de Lyon au XV^e siècle publiées dans Benoit P., *La mine de Pampailly...*, *op. cit.*, p. 84 et suivantes.

de production du métal blanc. La chaîne opératoire de la galène argentifère mise en œuvre à Castel-Minier illustre donc de quelle manière le contexte économique participe des choix techniques opérés par les Anciens.

Les analyses élémentaires ont également permis d'étudier le comportement des éléments-traces au cours de la coupellation du plomb d'œuvre. Cette opération métallurgique est susceptible d'affecter des éléments chimiques en fonction des paramètres thermodynamiques. En particulier, l'élimination de certains éléments-traces se produit à des états d'avancement de la coupellation bien définis et qui ont pu être précisément quantifiés. Ces résultats prennent place dans une réflexion plus large qui porte sur la définition et l'utilisation de traceurs chimiques du minerai dans le cadre des recherches sur la provenance et la circulation de l'argent aux périodes anciennes. Ils démontrent l'influence majeure du procédé métallurgique sur la composition en éléments-traces des demi-produits. Plus précisément, selon le niveau d'affinage atteint, la signature chimique du métal est différente. Ainsi, quelques éléments seulement s'avèrent être des traceurs fiables du minerai de Castel-Minier, notamment l'or et dans une moindre mesure le bismuth, le palladium et le rhodium. Pour autant, le bien-fondé de conduire la coupellation à son terme peut être discuté. Une fois encore, c'est l'adéquation avec la demande du marché, et notamment avec les exigences des ateliers monétaires, qui décide de la « pureté » du métal blanc. S'il subsiste quelques pour cent de plomb dans l'argent exporté, alors sa signature chimique peut être très différente d'un métal épuré. Cette variabilité rend délicat l'établissement de la filiation.

Perspectives de recherche

La compréhension du procédé d'extraction de l'argent employé à Castel-Minier et ses implications sur la composition des demi-produits ouvrent des perspectives nouvelles pour étudier la diffusion et de la circulation de ce métal. L'utilisation de l'argent pyrénéen à des fins monétaires est une piste qui a déjà été évoquée. Elle invite à s'intéresser aux sources d'approvisionnement des ateliers monétaires et notamment à la contribution du métal neuf. Celle-ci n'est pas exclusive et il faut compter avec le recyclage d'anciennes espèces monétaires et d'objets artistiques. Les études archéométriques des métaux monnayés peuvent permettre de préciser les stratégies d'approvisionnement et le place qu'y occupent les productions des ateliers métallurgiques.

À la fin du XIII^e siècle, les ateliers monétaires les plus proches de Castel-Minier se situent à Toulouse et à Morlaas (figure 235). Les monnaies qu'ils produisent ont un rôle important dans l'économie des Pyrénées centrales (Comminges, Couserans et pays de Foix)⁷⁵⁴. Au cours du XIV^e siècle, les émissions de Morlaas disparaissent peu à peu des transactions au profit du denier toulousain⁷⁵⁵. À côté du grand centre régional, il convient de signaler également l'éphémère atelier monétaire des comtes de Foix, actif dans les années 1370⁷⁵⁶. Enfin, au début du XV^e siècle, à la faveur des troubles de la guerre de Cent ans, les frères Jean et Mathieu, respectivement comte de Foix et de Comminges, commencent à battre monnaie en 1419 et 1422 dans leurs ateliers de Pamiers et de Salies-du-Salat⁷⁵⁷ (figure 235).

⁷⁵⁴ Bourret C., *Les Pyrénées centrales...*, *op. cit.*, p. 352 et suivantes. Sur les ateliers monétaires du Languedoc, voir également Bompaire M., « Mines et ateliers monétaires en Languedoc au Moyen Âge », *Bulletin de la Société Française de Numismatique*, 57(2), 2002, p. 181-185.

⁷⁵⁵ Higounet C., *Le comté de Comminges...*, *op. cit.*, p. 489 et suivantes.

⁷⁵⁶ Bourret C., *Les Pyrénées centrales...*, *op. cit.*, p. 355.

⁷⁵⁷ Devic C. et Vaissète J., *Histoire générale du Languedoc*, Privat, Toulouse, 1885, p. 1175 ; Beneut G., « Le monnayage de l'atelier de Pamiers au nom de Charles VI », *Revue numismatique*, 6^e série, Tome 5, 1963, p. 120-125.

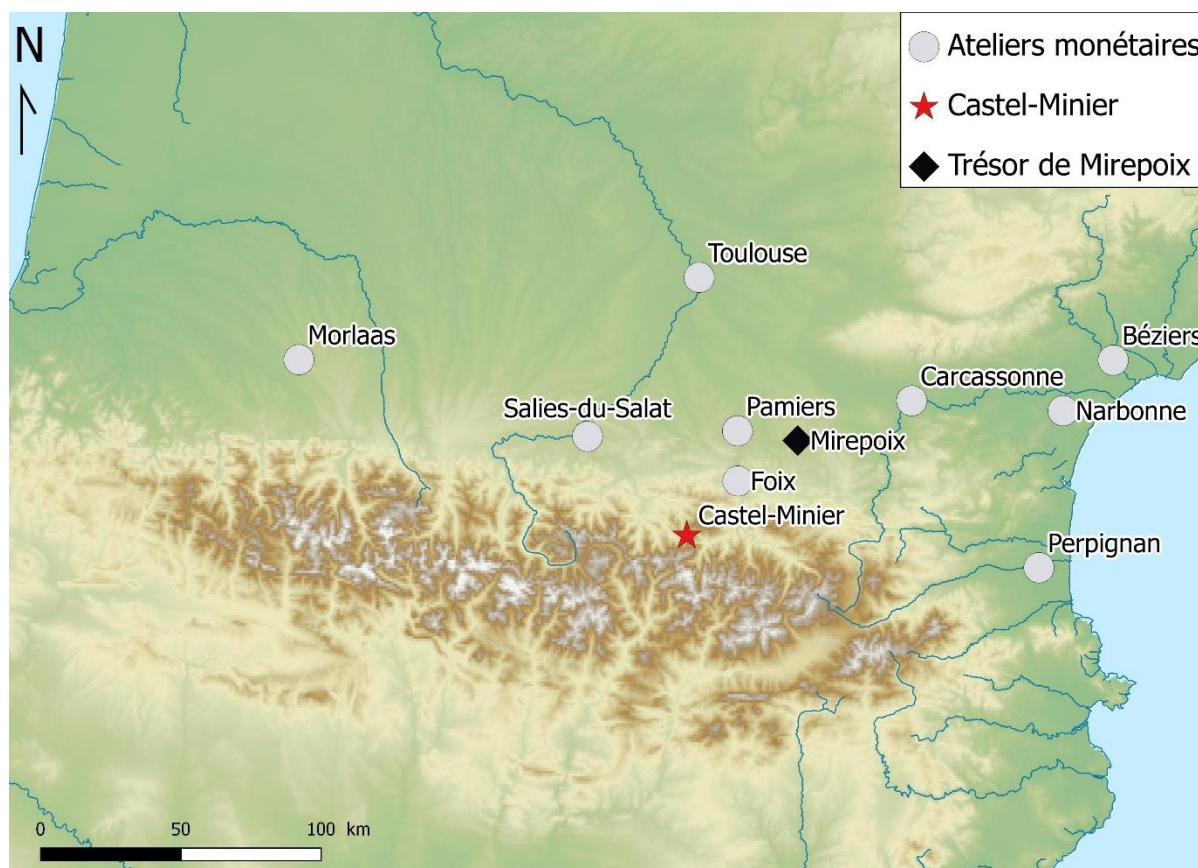


Figure 235 : Localisation des ateliers monétaires médiévaux du Midi de la France et du trésor de Mirepoix.

Lorsqu'ils sont conservés, les comptes des ateliers monétaires du Midi ne consignent que rarement l'origine géographique du métal employé. Ainsi, les comptes de l'atelier monétaire de Toulouse qui nous sont parvenus pour la période 1353-1435 ne mentionnent pas les mines pyrénéennes⁷⁵⁸. Les données numismatiques apportent toutefois des pistes de recherche pour essayer de tracer l'argent de Castel-Minier. Parmi celles-ci, le trésor de Mirepoix (figure 235), aussi dénommé trésor de l'Ariège, est particulièrement instructif. Il s'agit d'un assemblage de 2020 monnaies (420 d'or et 1600 d'argent et de billon qui se partagent entre les émissions royales, féodales et étrangères) et de 14 pièces d'orfèvrerie en argent (dont un fragment) découvert à Mirepoix en 1956⁷⁵⁹ et enfoui vers 1362. Parmi les exemplaires en argent et en billon,

⁷⁵⁸ AN, Z1b 991 et 992 et Verna C., « Une nouvelle page... », *op. cit.*, p. 225 et suivantes.

⁷⁵⁹ L'étude du trésor de Mirepoix a été réalisée par G. Savès ; nous n'en exposons ici que les grandes lignes. Les résultats sont disséminés dans plusieurs publications : Savès G., « Trésor d'orfèvrerie

606 correspondent à des émissions royales françaises avec par ordre d'importance celles de Philippe IV ou V (245), Philippe VI (129) et Jean II (175). La politique monétaire de Jean II est particulièrement intéressante puisqu'il fait frapper en 1357-1358 et en 1359 un monnayage spécial pour le Languedoc dont plusieurs représentants, au type et au titre différents de ceux du monnayage royal existant, figurent dans le trésor de Mirepoix⁷⁶⁰. Les monnaies sont frappées dans les ateliers de Toulouse et de Montpellier. Une partie des émissions toulousaines de la première moitié du XIV^e siècle a pu bénéficier de l'argent pyrénéen et en particulier de celui de Castel-Minier. Cette hypothèse est d'autant plus envisageable que la mine et ses ateliers métallurgiques ont été saisis par le roi au cours du procès qui oppose les exploitants au vicomte de Couserans. La durée et la complexité de la procédure, encore en cours en 1349, témoignent de l'intérêt que portent le souverain et ses officiers (au premier rang desquels figure le sénéchal de Toulouse) à une source de métal neuf susceptible d'approvisionner les ateliers monétaires royaux. Cependant, les sources écrites disponibles sur l'atelier monétaire de Toulouse ne gardent pas trace d'un afflux de métal blanc durant le procès⁷⁶¹. Il faudrait donc envisager une étude archéométrique des émissions toulousaines du trésor de Mirepoix afin d'identifier une éventuelle filiation avec Castel-Minier. Bien que le trésor ait été dispersé entre ses inventeurs puis au cours de plusieurs ventes aux enchères, certaines monnaies sont toujours accessibles et conservent un potentiel fort pour retracer le chemin de l'argent depuis le minerai jusqu'au métal.

Les perspectives de recherche concernent également la production et la diffusion du cuivre et de ses alliages dans le Midi de la France. Les chaînes opératoires du cuivre non allié et du *caldarium* de Castel-Minier mettent en lumière des

méridionale du XIV^e siècle », *Mémoires de la Société archéologique du Midi de la France*, vol. 36, 1971, p. 21-54 ; Savès G., « L'argenterie toulousaine de 1466 à 1550 : son contrôle, sa dotation, ses poinçons », *Revue de Comminges*, vol. 98, 1973, p. 240-260 ; Savès G., « Le trésor de Mirepoix (Ariège) », *Revue de Comminges*, vol. 97, 1984, p. 35-42.

⁷⁶⁰ Savès G., « Trésor d'orfèvrerie méridionale... », *op. cit.*, p. 24.

⁷⁶¹ Bompaire M., « Mines et ateliers monétaires... », *op. cit.*, p. 183.

productions dont les modalités techniques et économiques sont peu documentées dans cette région pour la période médiévale. La contribution des mines pyrénéennes à l'approvisionnement du marché du cuivre et de ses alliages commence à se révéler avec l'exemple de Castel-Minier. La place particulière du cuivre non allié semble trouver un début de confirmation dans les sources écrites catalanes. Elle devra néanmoins être confirmée par la mise en place de programmes de recherches plus larges consacrés à la nature des alliages cuivreux consommés sur les sites d'habitat médiévaux à l'image des travaux engagés pour la Provence médiévale⁷⁶². À ce jour, la synthèse établie pour l'Angleterre à partir de l'analyse de grandes séries de mobiliers en alliages cuivreux demeure une référence pour identifier la nature et la qualité des productions⁷⁶³. Dans notre zone d'étude, plusieurs sites archéologiques du comté de Foix et de la vicomté de Couserans, tels que les châteaux de Montréal-de-Sos et du Mirabat, ont livré du mobilier en alliages cuivreux dont l'étude serait particulièrement pertinente dans l'optique d'établir un schéma diachronique de la circulation et de la consommation des alliages. La contribution éventuelle des productions de Castel-Minier pourrait être également évaluée.

⁷⁶² Thuaudet O., *Les accessoires métalliques du vêtement et de la parure de corps en Provence du XI^e au XVI^e siècle...*, *op. cit.*

⁷⁶³ Blades N. W., 1995, *Copper alloys from English archaeological sites...*, *op. cit.* ; Bayley J., Crossley D. W. et Ponting M., *Metals and Metalworking...*, *op. cit.* ; Pollard A. M., Bray P., Gosden C., Wilson A. et Hamerow H., « *Characterising copper-based metals in Britain in the first millennium AD...* », *op. cit.*



Figure 236 : Localisations des sites d'Urrobi et de Montbolo.

Enfin, l'espace pyrénéen offre un cadre propice à l'extension des recherches sur l'extraction et la transformation des minerais non-ferreux au Moyen Âge. La méthodologie développée dans le cadre de nos travaux de thèse pourrait être transposée à d'autres sites de manière à préciser la place des exploitations pyrénéennes dans l'économie métallurgique médiévale. Nous pensons particulièrement aux sites d'Urrobi et de Montbolo (figure 236), actifs respectivement au milieu du XIV^e siècle et au XV^e siècle et pour lesquels l'exploitation est documentée par les sources écrites. Si le potentiel archéologique de Montbolo devra être confirmé, celui d'Urrobi est assuré. L'intérêt de ce site est majeur puisqu'il marque l'apparition dans l'espace pyrénéen de la soufflerie hydraulique appliquée à la métallurgie des métaux non-ferreux. Il se distingue de Castel-Minier par des activités tournées vers le traitement des minerais de cuivre argentifères et par des traditions techniques différentes imprégnées de l'influence des spécialistes italiens. Seule la multiplication des études de cas, à Urrobi et ailleurs, pourra permettre de retracer l'histoire de l'entreprise minière et métallurgique des métaux non-ferreux dans l'espace pyrénéen médiéval.

Bibliographie

Adamski F., *Ateliers, techniques et artisans du "bronze" en Aquitaine antique de la fin de l'âge du fer à la période gallo-romaine*, thèse de 3^e cycle, Université de Bordeaux 3, 2008.

Ancel B., « Étude du réseau minier », In Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique*, SRA Midi-Pyrénées, 2003, p. 40-80.

Anguilano L., Timberlake S. et Rehren T., « An early medieval lead-smelting bole from Banc Tynddol, Cwmystwyth, Ceredigion », *Historical Metallurgy*, 44(2), 2010, p. 85-103.

Arles A., *Entre monnayage officiel et faux-monnayage. La fabrication de la monnaie au marteau en France (XIII^e - XVII^e siècles). Approche physico-chimique, expérimentale et historique*, thèse de 3^e cycle, Université d'Orléans, 2009.

Arles A., *Rapport d'analyse des tables en plomb de la couverture du chœur de la cathédrale Saint-Pierre de Beauvais*, IRAMAT-CEB, Orléans, 2012.

Arnoux M., *Mineurs, férons et maîtres de forges. Étude sur la production du fer dans la Normandie du Moyen Âge, XI^e-XV^e siècles*, Éditions du CTHS, Paris, 1993.

Asmus B., *Medieval Copper Smelting in the Harz Mountains, Germany*, Deutsches Bergbau-Museum, Bochum, 2012.

Bachmann H.-G., « Early copper smelting techniques in Sinai and in the Negev as deduced from slag investigations », In Craddock P. T. (éd.), *Scientific studies in early mining and extractive metallurgy*, British museum Occasional paper, London, 1980, p. 103-134.

Bachmann H.-G., *The identification of Slags from Archaeological Sites*, Institute of Archaeology, University of London, Occasional publications n° 6, Londres, 1982.

Bachmann H.-G., Lutz C. et Thiemann U., « Schlackenviskositäten », *Archäometallurgie der Alten Welt, Der Anschnitt, Beiheft 7*, 1989, p. 137-140.

Bailly-Maître M.-C., *L'argent. Du minerai au pouvoir dans la France médiévale*, Picard, Paris, 2002.

Bailly-Maître M.-C., « Extraction et traitement d'un minerai d'argent au Moyen Âge (XII^e-XIV^e siècle) », *ArchéoSciences*, 34, 2010, p. 221-233.

Bailly-Maître M.-C., « Le plomb et l'argent dans le Gévaudan médiéval », *ArchéoSciences*, 34, 2010, p. 137-148.

Bailly-Maître M.-C. et Ancel B., « Au carrefour des sources et de la pratique. Le district minier médiéval d'Hierle, Saint-Laurent-le-Minier (Gard, France) », *I codici minerari nell'europa preindustriale: archeologia e storia, Iglesias - Massa Marittima, 4-8 décembre 2008*, Farinelli R. et Santinucci G. (éd.), All'Insegna del Giglio, Sesto Fiorentino, 2014, p. 23-37.

Bailly-Maître M.-C. et Benoit P., « Les mines d'argent dans la France médiévale », *L'argent au Moyen Âge. Actes du 28^e congrès de la Société des historiens médiévistes de l'enseignement supérieur public Clermont-Ferrand, 1997*, Publications de la Sorbonne, Paris, 1998, p. 17-45.

Bailly-Maître M.-C. et Bruno-Dupraz J., *Brandes-en-Oisans. La mine d'argent des Dauphins (XII^e-XIV^e siècles)*, Isère, Alpara, Lyon, 1994.

Bailly-Maître M.-C. et Minvielle Larousse N., *Brandes-en-Oisans. Rapport final 2012-2014*, SRA Rhône-Alpes, Lyon, 2014.

Balcon J., *Compte-rendu de visite à Carboire et à l'Hospice de France les 9 et 10 juillet 1965*, BRGM, Orléans, 1965.

Bandy M. C. et Bandy J. A., *De natura fossilium (textbook of mineralogy). Georgius Agricola*, Dover Phoenix Editions, New York, 2004.

Baraldi E., « Ordigni e parole dei maestri da forno bresciani et bergamaschi : lessico della siderurgia indiretta in Italia fra XII e XVII secolo », *In Braunstein P. (éd.), La sidérurgie alpine en Italie (XII^e-XVII^e siècle)*, École française de Rome, Rome, 2001, p. 163-213.

Bariand P., Cesbron F. et Geffroy J., *Les minéraux : leurs gisements, leurs associations. Tome 3 : minéraux de concentration d'éléments communs et d'éléments rares*, BRGM, Orléans, 1978.

Barnolas A., Chiron J.-C. et Guérangé B., *Synthèse géologique et géophysique des Pyrénées. Volume 1 : Introduction, géophysique, cycle hercynien*, BRGM, Orléans, 1996.

Baron S., L'Héritier M. et Arles A., « Le plomb : de son exploitation à son traçage dans les matériaux archéologiques et l'environnement », *In Dillmann P. et Bellot-Gurlet L. (éd.), « Circulation et provenance des matériaux dans les sociétés anciennes*, Éditions des archives contemporaines, Paris, 2014, p. 175-194.

Baron S., Mahé Le-Carlier C., Carignan J. et Ploquin A., « Archaeological reconstruction of medieval lead production: Implications for ancient metal provenance

studies and paleopollution tracing by Pb isotopes », *Applied Geochemistry*, 24(11), 2009, p. 2093-2101.

Baron S., Tămaş C. G. et Mahé-Le Carlier C., « How Mineralogy and Geochemistry Can Improve the Significance of Pb Isotopes in Metal Provenance Studies », *Archaeometry*, 56(4), 2014, p. 665-680.

Bartels C., Fessner M., Klappauf L. et Linke F. A., *Kupfer, blei und silber aus dem Goslarer Rammelsberg von dem Anfängen bis 1620*, Deutsches Bergbau-Museum, Bochum, 2007.

Bayley J., « Alloy nomenclature », In Egan G. et Pritchard F. (éd.), *Medieval Finds from Excavations in London: 3. Dress Accessories c.1150- c.1450*, HMSO, Londres, 1991, p. 13-17.

Bayley J., « Anglo-Saxon Non-Ferrous Metalworking: A Survey », *World Archaeology*, 23(1), 1991, p. 115-130.

Bayley J., « Early medieval lead-rich glass in the british Isles – A survey of the evidence », *Annales du 17^e congrès de l'association internationale pour l'histoire du verre, Anvers, 2006*, Janssens K., Degryse P., Cosyns P., Caen J. et Van't Dack L. (éd.), Aspeditions, Anvers, 2009, p. 255-260.

Bayley J. et Butcher S., « Romano-British plate brooches. Composition and decoration », *Jewellery Studies*, 3, 1989, p. 25-32.

Bayley J., Crossley D. W. et Ponting M., *Metals and Metalworking: A Research Framework for Archaeometallurgy*, Londres, Historical Metallurgy Society, 2008.

Bayley J. et Eckstein K., « Silver Refining - Production, Recycling, Assaying », *Archaeological Sciences: Proceedings of a conference on the application of scientific techniques to the study of archaeology, Liverpool, juillet 1995*, Sinclair A., Slater E. et Gowlett J. (éd.), Oxbow Monograph 64, Oxford, 1997, p. 107-111.

Bayley J. et Eckstein K., « Roman and medieval litharge cakes structure and composition », *34th International Symposium on Archaeometry, Zaragoza, 3-7 mai 2004*, Pérez-Arantegui J. (éd.), Institución "Fernando el Catolico", Zaragoza, 2006, p. 145-153.

Beauchesne F. et Barrandon J.-N., « Analyse globale et non destructive des objets archéologiques cuivreux par activation avec des neutrons rapides de cyclotron », *Revue d'Archéométrie*, 10, 1986, p. 75-85.

Beauchesne F., Barrandon J.-N., Alves L., Gil F. B. et Guerra M., « Ion beam analysis of copper and copper alloy coins », *Archaeometry*, 30(2), 1988, p. 187-197.

Beck L., Alloin E., Berthier C., Réveillon S. et Costa V., « Silver surface enrichment controlled by simultaneous RBS for reliable PIXE analysis of ancient coins », *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 266(10), 2008, p. 2320-2324.

Beck P. (éd.), *L'innovation technique au Moyen Âge. Actes du VI^e Congrès international d'Archéologie Médiévale, Dijon - Mont Beuvray - Chenôve - Le Creusot - Montbard, 1-5 Octobre 1996*, Errance, Paris, 1998.

Beneut G., « Le monnayage de l'atelier de Pamiers au nom de Charles VI », *Revue numismatique*, 6^e série, Tome 5, 1963, p. 120-125.

Benoit P., « Les techniques minières en France et dans l'empire aux XV^e et XVI^e siècles », *Journal des savants*, 1(1), 1988, p. 75.

Benoit P., « Les mines de Fontenay », *Moines et métallurgie dans la France médiévale, Paris, 13-14 mars 1987*, Benoit P. et Cailleaux D. (éd.), Picard, Paris, 1991, p. 289-298.

Benoit P., *La mine de Pampailly, XV^e-XVIII^e siècles : Brussieu, Rhône, Alpara*, Lyon, 1997.

Benoit P., « Au four et au moulin : innovation et conjoncture », *L'innovation technique au Moyen Âge. Actes du VI^e Congrès international d'Archéologie Médiévale, Dijon - Mont Beuvray - Chenôve - Le Creusot - Montbard, 1-5 Octobre 1996*, Beck P. (éd.), Errance, Paris, 1998, p. 293-301.

Benoit P., Bailly-Maître M.-C. et Dubois C., « Meules rotatives médiévales pour le broyage des minerais », *Techniques et économie antiques et médiévales. Le temps de l'innovation, Aix-en-Provence, 1996*, Garcia D. et Meeks D. (éd.), Errance, Paris, 1997, p. 62-69

Benoit P. et Braunstein P., « Les comptes miniers d'Hurtières en Savoie (1338-1350) », *Mines, carrières et métallurgie dans la France médiévale, Paris, 1980*, Benoit P. et Braunstein P. (éd.), CNRS éditions, Paris, 1983, p. 183-206.

Benvenuti M., Bianchi G., Bruttini J., Buoniconti M., Chiarantini L., Dallai L., Di Pasquale G., Donati A., Grassi F. et Pescini V., « Studying the Colline Metallifere mining area in Tuscany: an interdisciplinary approach », *IES Yearbook*, 2014, p. 261-287.

Bergeron L. Bourdelais P. (éd.), *La France n'est-elle pas douée pour l'industrie ?*, Belin, Paris, 1998, p. 25-41

Berthier P., *Traité des essais par la voie sèche*, Thomine, Paris, 1834.

Berthoud T., Bonnefous S., Dechoux M. et Françaix J., « Data analysis: Towards a model of chemical modification of copper from ores to metal », *In Craddock P. T. (éd.), Scientific studies in early mining and extractive metallurgy, British museum Occasional paper, London, 1980, p. 87-102.*

Bianchi G., Bruttini J. et Dallai L., « Sfruttamento e ciclo produttivo dell'allume e dell'argento nel territorio delle Colline Metallifere grossetane », *Risorse naturali e attività produttive: Ferento a confronto con altre realtà, Viterbe, 27-28 avril 2010, De Minicis E. et Pavolini C. (éd.), Università degli studi della Tuscia, Viterbe, 2011, p. 249-281.*

Bianchi G., Bruttini J., Quirós Castillo J. A., Ceres F. et Lorenzini S. M., « La lavorazione del metallo monetabile nel castello di cugnano (Monterotondo M.MO, GR): lo studio delle aree produttive dei secoli centrali (XI-XII secolo) », *VI^e Congresso nazionale di archeologia medievale, L'Aquila, 12-15 septembre, 2012, Redi F. et Forgione A. (éd.), All'Insegna del Giglio, Sesto Fiorentino 2012, p. 644-649.*

Biringuccio V., *De la pirotechnia*, P. Gironimo Giglio, Venise, 1559.

Blades N. W., 1995, *Copper alloys from English archaeological sites 400-1600 AD: an analytical study using ICP-AES*, thèse de 3^e cycle, University of London, 1995.

Blanchard I., « Technical Implications of the Transition From Silver to Lead Smelting in the Twelfth-Century England », *Boles and Smelting, Actes du colloque the History and Archaeology of lead Smelting, Reeth, 15-17 mai 1992, Willies L. et Cranstone D. (éd.), Historical Metallurgy Society, 1992, p. 9-11.*

Blazy P. et Jdid E.-A., « Métallurgie du Plomb. Procédés classiques et ressources primaires », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : m2264, 2011.

Boe E., « Notariat et Languedoc au Moyen Âge », *Le Gnomon, Revue internationale d'histoire du notariat*, n° 23, 1981, p. 3-71.

Bolòs J. et Sànchez-Boira I., *Inventaris i encants conservats a l'Arxiu Capitular de Lleida (segles XIV-XVI)*, Fundació Noguera, Barcelone, 2014.

Bompaire M., « Mines et ateliers monétaires en Languedoc au Moyen Age », *Bulletin de la société française de numismatique*, 57(2), 2002, p. 181-185.

Bonami C., « Dans la haute vallée de l'Orb les mines de Ceilhes-et-Rocozels au Moyen Âge », *Mines et mineurs en Languedoc-Roussillon et régions voisines de l'Antiquité à nos jours. Actes du XLIX^e congrès de la Fédération historique du Languedoc méditerranéen et du Roussillon, Alès, 22 et 23 mai 1976, Montpellier, 1977, p. 93-105.*

Bibliographie

Bordes F., *Formes et enjeux d'une mémoire urbaine : le premier « livre des histoires de Toulouse » (1295-1532)*, Thèse de 3^e cycle, Université de Toulouse 2 le Mirail, 2006.

Borlandi A., *Il manuale di mercatura di Saminiato de Ricci*, Di Stefano, Gênes, 1963.

Bourgarit D. et Mille B., « Provenance du cuivre et alliages », In Dillmann P. et Bellot-Gurlet L. (éd.), *Circulation et provenance des matériaux dans les sociétés anciennes*, Éditions des archives contemporaines, Paris, 2014, p. 103-131.

Bourgarit D. et Thomas N., « Late Medieval copper metallurgy in France: technical insights into the mass production of copper alloy common wares », *Archaeometallurgy in Europe 2007: Selected papers from 2nd International Conference, Aquileia, 17-21 June 2007*, Giunlia-Mair A., Craddock P., Hauptmann A., Bayley J., Cavallini M., Garagnani G., Gilmour B., La Niece S., Nicodemi W., et Rehren T. (éd.), Associazione Italiana di Metallurgia, Milano, 2009, CD-ROM.

Bourgarit D. et Thomas N., « Late medieval copper alloying practices a view from a Parisian workshop of the 14th century AD », *Journal of Archaeological Science*, 39, 2012, p. 3052-3070.

Bourgarit D. et Thomas N., « Ancient brasses: misconceptions and new insights », *Archaeometallurgy in Europe III, 29 juin-1^{er} juillet 2011, Bochum*, Hauptmann A. et Modaresi-Tehrani D. (éd.), Deutsches Bergbau Museum Bochum, Bochum, 2015, p. 255-262.

Bourret C., « Les relations féodales Couserans Pallars au Moyen Âge. Les vicomtes de Couserans et le comté de Pallars Sobira au XIII^e siècle et au début du XIV^e siècle », *Du Couserans au gave de Pau. Tradition et renouveau. Actes du XL^e congrès d'études régionales, 28-30 juin 1985, Saint-Girons*, Fédération des sociétés académiques et savantes de Languedoc Pyrénées Gascogne (éd.), Y. Maury, 1985, p. 109-128.

Bourret C., *Les Pyrénées centrales du IX^e au XIX^e : la formation progressive d'une frontière*, Pyrégraph, Aspet, 1995.

Boutaric E., « Organisation judiciaire du Languedoc au Moyen Âge [premier article] », *Bibliothèque de l'école des chartes*, 16(1), 1855, p. 201-230.

Braunstein P., « Le marché du cuivre à Venise à la fin du Moyen Âge », In Kellenbenz H. (éd.), *Schwerpunkte der Kupferproduktion und der Kupferhandels in Europa 1500-1650*, Böhlau, Cologne-Vienne, 1977, p. 78-94.

Braunstein P., « L'innovation dans les mines et la métallurgie européenne (XIV^e-XVI^e siècle) », *Bulletin de l'association française des historiens économistes*, 15, 1982, p. 1-17.

Braunstein P., « L'industrie à la fin du Moyen Âge : un objet historique nouveau ? », *In*

Braunstein P., *Travail et entreprise au Moyen Âge*, De Boeck, Bruxelles, 2003.

Braunstein P., *Les Allemands à Venise (1380-1520)*, École française de Rome, Rome, 2016.

Bruley-Chabot G., : « Les fours et foyers culinaires du Haut Moyen Âge », *Medieval Europe Paris, 4e Congrès International d'Archéologie Médiévale et Moderne, Paris, 3-8 septembre 2007*, document en ligne, consulté le 30 août 2017, [<http://medieval-europe-paris-2007.univ-paris1.fr/G.Bruley-Chabot%20poster.pdf>].

Brunet S., « Les mutations des lies et passeries des Pyrénées, du XIV^e au XVIII^e siècle », *Annales du Midi : revue archéologique, historique et philologique de la France méridionale*, tome 114, n° 24, 2002.

Bruttini J., *Minatori e Signorie nelle Colline Metallifere: il sistema produttivo dei metalli monetabili nel Medioevo*, thèse de 3^e cycle, Università degli Studi di Siena, 2014.

Burger E., *Métallurgie extractive protohistorique du cuivre : Étude thermodynamique et cinétique des réactions chimiques de transformation de minerais de cuivre sulfurés en métal et caractérisation des procédés*, thèse de 3^e cycle, Université Pierre et Marie Curie, 2008.

Burnouf J. (éd.), *Archéologie médiévale en France. Le second Moyen Âge (XII^e-XVI^e siècle)*, La Découverte, Paris, 2008.

Calliari I., Magrini M., Zambon A., Guerriero P. et Martini R., « Microstructural and Compositional Characterization of Roman Coins », *X-Ray Spectrometry*, 28, 1999, p. 86-90.

Calvo F. A. et Ballester A., « Lead losses in the slag of a reduction melting furnace », *Erzmetall*, (39), 1986, p. 285.

Cantelaube J., *La forge d'Aulus*, mairie d'Aulus-les-Bains, non daté.

Canti M. G., « Aspects of the chemical and microscopic characteristics of plant ashes found in archaeological soils », *Catena*, 54, 2003, p. 339-361.

Carey C. J., Wickstead H. J., Juleff G., Anderson J. C. et Barber M. J., « Geochemical survey and metalworking: analysis of chemical residues derived from experimental nonferrous metallurgical processes in a reconstructed roundhouse », *Journal of Archaeological Science*, 2014, document en ligne, consulté le 17 mai 2017, [<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0305440314001952>].

Bibliographie

Cazes J.-P., « Quatre poids monétiformes de Toulouse, émission de 1239, trouvés dans l'Aude », *Archéologie du Midi médiéval*, 3(1), 1985, p. 169-170.

Centre d'Information du Cuivre Laitons et Alliages, *Les propriétés du cuivre et de ses alliages*, Paris, Variances, 1992.

Chapelot J. et Fossier R., *Le village et la maison au Moyen Âge*, Hachette, Paris, 1980.

Chateauneuf M. de, « Mémoire sur les différentes espèces de mines qui ont été et sont encore exploitées en Gascogne », In Gobet N. (éd.), *Les anciens minéralogistes du royaume de France*, Ruault, Paris, 1779, p. 232-248.

Chen Z., « Inter element fractionation and correction in LA-ICP-MS », *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 14, 1999, p. 1823-1828.

Chevalier M., *La vie humaine dans les Pyrénées ariégeoises*, Génin, Paris, 1953.

Chevalier M., « Le relief glaciaire des Pyrénées du Couserans », *Revue géographique des Pyrénées et du Sud-Ouest*, tome 25, fascicule 2, 1954, p. 97-124.

Chutas N. I., Kress V. C., Ghiorso M. S. et Sack R. O., « A solution model for high-temperature PbS-AgSbS₂-AgBiS₂ galena », *American mineralogist*, 93, 2008, p. 1630-1640.

Condamin J. et Picon M., « Changes Suffered by Coins in the Course of the Time and the Influence of the results of Different Methods of Analysis. », In Hall E. T. et Metcalf D. M. (éd), *Methods of Chemical and Metallurgical Investigation of Ancient Coinage*, Royal Numismatic Society, 1972, p. 49-66.

Conophagos C., *Le Laurium antique et la technique grecque de production de l'argent*, Ekdotike Hellados, Athènes, 1980.

Contamine P., Bompaire M., Lebecq S. et Sarrazin J.-L., *L'économie médiévale*, Paris, Armand Colin, 1999.

Cook S. R., Banerjea R. Y., Marshall L.-J., Fulford M., Clarke A. et Van Zwieten C., « Concentrations of copper, zinc and lead as indicators of hearth usage at the Roman town of Calleva Atrebatum (Silchester, Hampshire, UK) », *Journal of Archaeological Science*, 37(4), 2010, p. 871-879.

Cooper H. K., Duke M. J. M., Simonetti A. et Chen G., « Trace element and Pb isotope provenance analyses of native copper in northwestern North America: results of a recent pilot study using INAA, ICP-MS, and LA-MC-ICP-MS », *Journal of Archaeological Science*, 35(6), 2008, p. 1732-1747.

Cours-Mach M., « Les relations frontalières entre la ville de Seix en Couserans et le Val d'Aran en Espagne du XVI^{ème} au XIX^{ème} siècles », *Couserans et montagne ariégeoise. Actes du XXX^e congrès d'études régionales, Saint-Girons, 30 mai au 1^{er} juin 1975*, Fédération des sociétés académiques et savantes Languedoc-Pyrénées-Gascogne (éd.), Y. Maury, Saint-Girons, 1976, p. 63-81.

Crawford H., Greenewalt J. et Cahill N., « Gold and silver refining at Sardis », document en ligne, consulté le 12 juillet 2017, [http://www.sardisexpedition.org/en/essays/latw-greenewalt-gold-silver-refining#note_6].

Cuzange L. et Texier A., « Caractérisation des plombs anciens de vitraux », *Corpus vitrearum newsletter*, 47, 2000, p. 43-51.

D'Alauzier L., « Suite des vicomtes de Couserans au XIVE siècle », *Pays de l'Ariège : archéologie, histoire, géographie: actes du XVI^e congrès d'études de la Fédération des sociétés académiques et savantes Languedoc-Pyrénées-Gascogne*, Foix, 28-30 mai 1960, Cocharaux, Auch, 1961, p. 141-144.

D'Assier A., *Souvenirs des Pyrénées. Aulus-les-Bains et ses environs*, Pomiès, Foix, 1884 (3^e édition).

Dahm C., Lobbedey U. et Weisgerber G., *Der Altenberg. Bergwerk und Siedlung aus dem 13. Jahrhundert im Siegerland. Band 1: Die Befunde*, Habelt, Bonn, 1998.

Davasse B., « L'espace forestier de la haute vallée du Garbet (Couserans, Pyrénées ariégeoises). Analyses biogéographique et étude des charbonnières », *PCR Mines, métallurgie et forêts dans les Pyrénées ariégeoises de l'Antiquité au Moyen-Âge*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 1991, p. 137-145.

Davasse B., *Forêts, charbonniers et paysans dans les Pyrénées de l'Est du Moyen Âge à nos jours. Une approche géographique de l'histoire de l'environnement*, GEODE, Toulouse, 2000.

Debroas E.-J., Azambre B., « Des brèches aux lherzolites : la mise en place des lherzolite dans les fossés du Flysch noir albo-cénomaniens de la Ballongue et d'Aulus (zone nord-pyrénéenne, Ariège) », *Géologie de la France*, 1, 2016, p. 3-5.

Deer W. A., Howie R. A. et Zussman J., *An Introduction to the Rock-forming Minerals*, Mineralogical Society, Londres, 2013.

Deraisme A., *Apport de la physique à l'étude du faux-monnayage du III^e siècle après J.-C.*, thèse de 3^e cycle, Université d'Orléans, 2005.

Bibliographie

Derner K., Hrubý P. et Schubert M., « Mittelalterliche Silberproduktion im wettinischen und premyslidischen Regierungsraum: Neue archäologische Untersuchungen », *Der Anschnitt*, 68, 2016, p. 216-241.

Devic C. et Vaissète J., *Histoire générale de Languedoc*, Privat, Toulouse, tome 8, 1879.

Dietrich P.-F de., *Description des gîtes de minerai, des forges et des salines des Pyrénées*, Didot, Paris, 1786.

Disser A., *Production et circulation du fer en Lorraine (VI^e s. av. J.-C. - XV^e s. ap. J.-C.)*, thèse de 3^e cycle, Université de technologie de Belfort-Montbéliard, 2014.

Disser A., Dillmann P., Leroy M., L'Héritier M., Bauvais S. et Fluzin P., « Iron Supply for the Building of Metz Cathedral: New Methodological Development for Provenance Studies and Historical Considerations », *Archaeometry*, 59(3), 2017, p. 493-510.

Domergue C., *Les mines antiques : la production des métaux aux époques grecque et romaine*, Picard, Paris, 2008.

Dorchy L., « The so-called "guild collar of the master of the silversmiths of Ghent". A unicum dedicated to silver ore mining and processing from Late Middle Ages », In Smolnik R. (éd.), *Archaeomontan 2012. Montanarchäologie im Osterzgebirge*, Landesamt für Archäologie Sachsen, Dresde, 2012, p. 279-288.

Doridot A., Robbiola L. et Téreygeol F., « Production expérimentale de laiton par cémentation en creuset ouvert, avec du minerai de zinc, selon les recettes médiévales et modernes », *Archéosciences*, 30, 2006, p. 15-24.

Dubatik C. (alias Dubois C.), *Recherches sur les travaux miniers du Haut Salat. 1^{re} partie : les mines d'Aulus-les-Bains*, Autoédité, Saliens, 1981.

Dubois C., *Recherche, prospection et observation des indices à minerais métalliques des secteurs nord-Arize, Montferrier et Vicdessos, Rapport de mission BRGM*, BRGM, Orléans, 1980.

Dubois C., « Les mines de plomb argentifère et zinc d'Aulus-les-Bains (Ariège) », *Archéologie du Midi médiéval*, tome 17, 1999, p. 187-211.

Dubois C., « Réputation métallifère, administration des mines et spéculateurs dans les Pyrénées centrales », *Revue de Comminges et des Pyrénées centrales*, tome 66, n^o 4, 2000, p. 723-740.

Dubois C., *Les mangeuses d'hommes. L'épopée des mines de Bentallou et de Bulard en Ariège*, Privat, Toulouse, 2015.

Dubois C. et Bailly-Maître M.-C., *Rapport de sondages archéologiques à Castel-Minier, commune d'Aulus-les-Bains (Ariège)*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 1990.

Dungworth D. et Nicholas M., « Caldarium? An antimony bronze used for medieval and post-medieval cast domestic vessels », *Historical Metallurgy*, 38(1), 2004, p. 24-34.

Dupuy J., « La recherche et découverte des mines des montagnes Pyrénées, faite en l'an mil six cens par Jean de Malus Escuyer & Maistre de la monoye de Bourdeaus », In Gobet N., *Les anciens minéralogistes du royaume de France*, Ruault, Paris, 1779.

Dussubieux L., « Laser ablation-inductively coupled plasma-mass spectrometry of ancient copper alloy artifacts », In Glascock, M. D., Speakman R. J. et Popelka-Filcoff R. S. (éd.), *Archaeological chemistry: analytical methods and archaeological interpretation*, American Chemical Society, Washington, 2007, p 336-348.

Dussubieux L., Deraisme A., Frot G., Stevenson C., Creech A. M. Y. et Bienvenu Y., « LA-ICP-MS, SEM-EDS and EPMA Analysis of Eastern North American Copper-Based Artefacts: Impact of Corrosion and Heterogeneity on the Reliability of the LA-ICP-MS Compositional Results », *Archaeometry*, 50(4), 2008, p. 643-657.

Dussubieux L., Golitko M. et Gratuze B. (éd.), *Recent Advances in Laser Ablation ICP-MS for Archaeology*, Springer-Verlag, Berlin, 2016.

Egan G., « The medieval copper alloy foundry excavations in London », *Archaeometallurgy in Europe, Milan, 24-26 septembre 2003*, AIM, Milan, 2003, p. 243-252.

Elbl M. M., « From Venice to the Tuat: trans-saharan copper trade and Francesco di Marco Datini of Prato », In Armstrong L., Elbl I. et Elbl M. M. (éd.), *Money, Markets and Trade in Late Medieval Europe: Essays in Honour of John H. A. Munro*, Brill, Leyde-Boston, 2007, p. 411-459.

Eustathopoulos N., Ricci E. et Drevet B., « Tension superficielle », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : M67 v2, 1999.

Fagniez G., *Documents relatifs à l'histoire de l'industrie et du commerce en France, tome 2*, Picard, Paris, 1900.

Farinelli R. et Santinucci G. (éd.), *I codici minerari nell'europa preindustriale: archeologia e storia, Actes du colloque d'Iglesias - Massa Marittima, 4-8 décembre 2008*, All'Insegna del Giglio, Sesto Fiorentino, 2014.

Finks E., « Die Bergwerksunternehmungen der Fugger in Schlesien », In Grünhagen C. (éd.), *Zeitschrift des Vereins für Geschichte und Alterthum Schlesiens*, vol. 28, 1884, p. 294-340.

Flament J., Mercier F., Dubois C. et Téreygeol F., « Mining archaeology and micro-Raman analysis associated to ESEM-EDX: toward chrono-spatial definition of ores consumption in a Pyrenean medieval workshop (14th-16th c.) », *Archaeometry*, à paraître.

Flament J., Sarah G., Méaudre J.-C. et Téreygeol F., « La métallurgie extractive à Castel-Minier au XIV^e siècle », In Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes, rapport intermédiaire 2016*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2016, p. 37-47.

Fluck P., Florsch N. et Goldenberg G., « La métallurgie du cuivre et du plomb argentifère dans les Vosges centrales (X^e-XVIII^e s.). Approche archéologique et archéométrique », *Mines et métallurgie, Brussieu-Lyon, 1991*, Benoit P. (éd.), PPHS, Les chemins de la recherche n° 26, Lyon, 1994, p. 135-172.

Fluegel A., « Glass viscosity calculation based on a global statistical modelling approach », *Glass Technol.: Eur. J. Glass Sci. Technol. A*, 48(1), 2007, p. 13-30.

Frank Schröder F., « Die montanarchäologischen Ausgrabungen in Niederpöbel (2011–2013) – Befunde und Ergebnisse », In Smolnik R. (éd.), *Archaeomontan 2012. Montanarchäologie im Osterzgebirge*, Landesamt für Archäologie Sachsen, Dresde, 2012, p. 23-165.

Fricker M. B. et Günther D., « Instrumentation, Fundamentals, and application of Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry », In Dussubieux L., Golitko M. et Gratuze B. (éd.), *Recent Advances in Laser Ablation ICP-MS for Archaeology*, Springer-Verlag, Berlin, 2016, p. 1-19.

Garçon A.-F., « Pratique, technique, technologie ? Gros plan sur le projet intellectuel des *De re metallica*, 1530-1556 », *Archéosciences*, 34, 2010, p. 121-126.

Gauthier J., « L'essai des minerais au XVI^e siècle : réduction expérimentale de la galène au four à moufle », In Téreygeol (éd.), *Comprendre les savoir-faire métallurgiques antiques et médiévaux*, Errance, Paris, 2012, p. 155-167.

Gauthier J., *La fortune des entreprises minières : histoire et archéologie de l'essai des minerais par voie sèche en Europe, du haut Moyen Âge au XVIII^e siècle*, thèse de 3^e cycle, Université de Haute-Alsace, 2012.

Gauthier J., *Le carreau Sainte-Barbe. Massif de l'Altenberg, Sainte-Marie-aux-Mines (68)*, SRA Alsace, Strasbourg, 2016.

Gauthier J. et Téreygeol F., « La production de la cendre de bois pour l'affinage de l'argent », In Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes, rapport intermédiaire 2013*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2013, p. 49-54.

Gauthier J., Flament J., Méaudre J.-C., Sarah G., Silenzi F. et Téreygeol F., « L'affinage au sol à moyenne échelle : expérimentations basées sur le corpus de casses de Castel-Minier (XIV^e-XV^e siècles) », In Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes, document final de synthèse (2013-215)*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2015, p. 108-137.

Gauthier J., Téreygeol F., Méaudre J.-C. et Flament J., « La coupellation à la cendre de bois à moyenne échelle », In Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes, rapport intermédiaire 2014*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2014, p. 28-52.

Genna A., *Carte géologique harmonisée de l'Ariège. Notice technique. Rapport final*, BRGM/RP-56473-FR, BRGM, Orléans, 2008.

George L., Cook N. J., Ciobanu C. L. et Wade B. P., « Trace and Minor Elements in Galena: A Reconnaissance LA-ICP-MS study », *American Mineralogist*, 100, 2015, p. 548-569.

Georges-Leroy M., Nuninger L. et Opitz R., « Lidar : technique de détection au service de l'archéologie », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : in215, 2014.

Géraud M., *La céramique du site de Castel-Minier : la fin de l'occupation du site (XV^e-XVI^e s)*, Mémoire de Master 1, Université de Toulouse Jean-Jaurès, 2016.

Géraud M., *La Commingeaise de Castel-Minier (Aulus-les-Bains, Ariège) : étude typologique, technologique et archéométrique*, Mémoire de Master 2, Université de Toulouse Jean-Jaurès, 2017.

Gille B., *Histoire des techniques : Technique et civilisations, technique et sciences*, Gallimard, Paris, 1978.

Girbal B., 2011, *Roman and medieval litharge cakes a scientific examination*, English Heritage: Research Department Report Series, Portsmouth, 2011.

Goldenberg G., « Archäometallurgische Untersuchungen zur Entwicklung des Metallhüttenwesens im Schwarzwald », In Goldenberg G., Otto J. et Steuer H. (éd.), *Archäometallurgische Untersuchungen zum Metallhüttenwesen im Schwarzwald*, Thorbecke, Sigmaringen, 1996, p. 9-241.

Goron L., « La répartition de l'habitat en Ariège. Ses origines et son évolution », *Revue géographique des Pyrénées et du Sud-Ouest*, tome 9, fascicule 1, 1938, p. 46-109.

Gouron A., « L'origine du tribunal du petit-scel de Montpellier », *Actes du XXIX^e congrès de la Fédération historique du Languedoc méditerranéen et du Roussillon*, Mende, 1955, Montpellier, 1956, p. 57-70.

Gowland W., « VI.—Remains of a Roman Silver Refinery at Silchester », *Archaeologia*, 57(1), 1900, p. 113-124.

Gramont X. de, « Les mines d'Aulus (Ariège) », *Bulletin de la société d'histoire naturelle de Toulouse*, 97, 1962, p. 477-498.

Grandemange J., « Le lavage des minerais argentifères au Samson (Saint-Croix-aux-Mines, Haut-Rhin) d'après l'archéologie et les textes », *Mines et métallurgie, Brussieu-Lyon*, 1991, Benoit P. (éd.), PPHS, Les chemins de la recherche n° 26, Lyon, 1994, p. 77-92.

Gratuze B., « Obsidian Characterization by Laser Ablation ICP-MS and its Application to Prehistoric Trade in the Mediterranean and the Near East: Sources and Distribution of Obsidian within the Aegean and Anatolia », *Journal of Archaeological Science*, 26, 1999, p. 869-881.

Gratuze B., « Glass Characterization Using Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry Methods », In Dussubieux L., Golitko M. et Gratuze B. (éd.), *Recent Advances in Laser Ablation ICP-MS for Archaeology*, Springer-Verlag, Berlin, 2016, p. 179-196.

Gratuze B., Blet-Lemarquand M. et Barrandon J.-N., « Caractérisation des alliages monétaires à base d'or par LA-ICP-MS », *Bulletin de la société française de numismatique*, 6, 2004, p. 162-168.

Gratuze B., Foy D., Lancelot J. et Téreygeol F., « Les « lissoirs » carolingiens en verre au plomb : mise en évidence de la valorisation des scories issues du traitement des galènes argentifères de Melle (Deux-Sèvres) », *Échanges et commerce du verre dans le monde antique, actes du colloque de l'AFAV, Aix-en-Provence-Marseille, 7-9 juin 2001*, Foy D. et Nenna M. D. (éd.), Monique Mergoïl, Montagnac, 2003, p. 101-107.

Gratuze B., Giovagnoli A., Barrandon J.-N., Telouk P., Imbert J.-L., « Apport de la méthode ICP-MS couplée à l'ablation laser pour la caractérisation des archéomatériaux », *Revue d'Archéométrie*, 17, 1993, p. 89–104.

Gray A. L., « Solid sample introduction by laser ablation for inductively coupled plasma source mass spectrometry », *Analyst*, 110, 1985, p. 551-556.

Groff H., Bari H., Benoit P. et Brugerolles E., *La mine, mode d'emploi : la rouge mine de Saint-Nicolas-de-la-Croix*, Gallimard, Paris, 1992.

Guerra M. F., Sarthre C.-O., Gondonneau A. et Barrandon, J.-N., « Precious metals and provenance enquiries using LA-ICP-MS », *Journal of Archaeological Science*, 26, 1999, p. 1101–1110.

Guichané R., « L'aménagement hydraulique de la Claise tourangelle et de ses affluents du Moyen-Âge à nos jours », *Revue archéologique du Centre de la France*, 32(1), 1993, p. 109-152.

Guideri S. et Francovich R., « La produzione del rame dai solfuri misti nella toscana medievale », *Paléométtallurgie des cuivres, Bourg-en-Bresse et Beaune, 17-18 octobre 1997*, Frère-Sautot M.-C. (éd.), Éditions Monique Mergoïl, Montagnac, 1998, p. 155-164.

Guillerme A., « Sur l'histoire du plomb au Moyen Âge », *Milieux*, n° 7-8, 1981, p. 58-62.

Guillot F. (éd.), *Fortifications médiévales dans les Pyrénées. Comtés de Foix, Comminges, Couserans, actes du colloque de Foix des 3 et 4 décembre 2011*, In Extenso, Canens, 2013.

Guillot I. et Benoit P., « L'extraction de l'argent des minerais de cuivre au XVI^e siècle : le livre X du *De re metallica* d'Agricola », *Mines et métallurgie, Brussieu-Lyon, 1991*, Benoit P. (éd.), PPHS, Les chemins de la recherche n° 26, Lyon, 1994, p. 107-133.

Guirado M.-P., *L'essai d'argent par voie sèche*, Mémoire de Master 2 MPCA, Université de Bordeaux Montaigne, 2007.

Guirado M.-P., Téreygeol F. et Peyrat F., « Initial experiments on silver refining: how did a cupellation furnace work in the 16th century? », *Historical Metallurgy*, 44(2), 2010, p. 126-135.

Guirado M.-P. et Téreygeol F., « Étude des coupelles d'essais », In Mille P. et Téreygeol F. (éd.), *L'Atelier monétaire royal de La Rochelle*, Presses Universitaires de Rennes, Rennes, 2011, p. 97-99.

Guirado M.-P. et Téreygeol F., « La casse d'un four d'affinage », In Mille P. et Téreygeol

Bibliographie

F. (éd.), *L'Atelier monétaire royal de La Rochelle*, Presses Universitaires de Rennes, Rennes, 2011, p. 99-101.

Hall E. T., « Surface-enrichment of buried metals », *Archaeometry*, 4, 1961, p. 62-66.

Halleux R., « Méthodes d'essai et d'affinage des alliages aurifères dans l'Antiquité et au Moyen Âge », In Morrisson C., Brenot C., Callu J.-P., Barrandon J.-N., Poirier J. et Halleux R. (éd.), *L'or monnayé I. Purification et altération de Rome à Byzance.*, Editions du CNRS, Valbonne, 1985, p. 39-77.

Halleux R., *Les alchimistes grecs*, Les Belles Lettres, Paris, 2002.

Hanusse C., Leenhardt M., Meyer-Rodrigues N. et Vallauri L., « L'apparition des glaçures plombifères et stannifères : exemples français », *L'innovation technique au Moyen Âge. Actes du VI^e Congrès international d'Archéologie Médiévale, Dijon - Mont Beuvray - Chenôve - Le Creusot - Montbard, 1-5 Octobre 1996*, Beck P. (éd.), Errance, Paris, 1998, p. 242-248.

Happ J., Ambert P., Bourhis J.-R. et Briard J., « Premiers essais de métallurgie expérimentale à l'archéodrome de Beaune à partir de minerais chalcolithiques de Cabrières (Hérault) », *Bulletin de la société préhistorique française*, 91(6), 1994, p. 429-434.

Heeb J. et Ottaway B. S., « Experimental Archaeometallurgy », In Roberts B. W. et Thornton C. P. (éd.), *Archaeometallurgy in Global Perspective*, Springer, New York, 2014, p. 161-192.

Hesse P.-J., « La formation d'une administration minière royale dans la France médiévale et au début du XVI^e siècle », *Mines et métallurgie (XII^e-XVI^e siècle). Actes du 98^e congrès national des sociétés savantes, Saint-Etienne, 1973*, Bibliothèque nationale, Paris, 1975, p. 7-22.

Higounet C., *Le comté de Comminges de ses origines à son annexion à la couronne*, L'Adret, Toulouse, 1984.

Hill M. A., Greenlee D. M. et Neff H., « Assessing the provenance of Poverty Point copper through LA-ICP-MS compositional analysis », *Journal of Archaeological Science: Reports*, 6, 2016, p. 351-360.

Hodder I. et Orton C., *Spatial Analysis in Archaeology*, New Studies in Archaeology 1, Cambridge University Press, Cambridge, 1976.

Honoré-Duvergé S., « Notes sur la politique économique de Charles le Mauvais en Navarre », Tiré à part de *Actas del primer congreso internacional de pireneistas del instituto*

de estudios pirenaicos, Saint-Sébastien, septembre 1950, Instituto de estudios pirenaicos, Saragosse, 1952, p. 13.

Hoover H. C. et Hoover L. H., *Georgius Agricola De re Metallica*, Dover, New-York, 1950 (1^{re} édition 1912).

Hrubý P., Hejhal P., Hoch A., Kočár P., Malý K., Macháňová L., Petr L. et Štelcl J., « Středověký úpravnický a hornický areál Cvilínek u Černova na Pelhřimovsku », *Památky Archeologické CIII*, 2012, p. 339-418.

Hrubý P., Hejhal P. et Malý K., « Montanarchäologische untersuchungen in Jihlava-Staré Hory (Iglau-Altenberg, Tschechien) », *Zeitschrift für Archäologie des Mittelalters*, 35, 2007, p. 17-60.

Hrubý P., Malý K. et Schubert M., « Metallurgische Funde aus der Bergbausiedlung in Dippoldiswalde – Roter Hirsch », In Smolnik R. (éd.), *ArchaeoMontan 2015. Montanarchäologie im Osterzgebirge*, Landesamt für Archäologie Sachsen, Dresden, 2015, p. 245-257.

Hughes M. J., Northover J. P. et Staniaszek B. E. P., « Problems in the Analysis of Leaded Bronze Alloys in Ancient Artefacts », *Oxford Journal of Archaeology*, 1(3), 1982, p. 359-363.

Husson F., Josse J. et Pagès J., « Principal component methods - hierarchical clustering - partitionnal clustering: why would we need to choose for visualizing data? », document en ligne, consulté le 6 juin 2017, [http://factominer.free.fr/more/HCPC_husson_josse.pdf].

Isambert F.-A. et Decrusy, *Recueil des anciennes lois françaises*, Belin-Leprieur, Paris, tome 7, 1825.

Izard V., « Minerais, charbons de bois et fers dans les Pyrénées de l'Est : trafic licite et contrebande aux XIV^e-XVI^e siècle », *Circulation des marchandises et réseaux commerciaux dans les Pyrénées, XIII^e-XIX^e siècle, Andorre, 2003*, Minovez J.-M. et Poujade P. (éd.), CNRS-Université de Toulouse Le Mirail, Toulouse, 2005, p. 581-606.

Jeffries T. E., « Laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry », In Janssens K. et Van Grieken R. (éd.), *Comprehensive Analytical Chemistry XLII*, Elsevier, Amsterdam, 2004, p. 313-358.

Joud J.-C., Eustathopoulos N., Bricard A. et Desré P., « Détermination de la tension superficielle des alliages Ag-Pb et Cu-Pb par la méthode de la goutte posée », *Journal de chimie physique*, 170, 1973, p. 1290-1294.

Junghans S., Sangmeister E. et Schroder M., *Studien zu den Anfängen der Metallurgie, Kupfer und Bronze in der frühen Metallzeit Europas*, vol. I, II-2, II-3, II-4, Gebr. Mann Verlag, Berlin, 1960, 1968 et 1974.

Killick D. « From ores to metals », In Roberts B. W. et Thornton C. P. (éd.), *Archaeometallurgy in Global Perspective*, Springer, New York, 2004, p. 11-45.

Kondratiev A., Jak E. et Hayes P. C., « Predicting slag viscosities in metallurgical systems », *Journal of Metals*, 54(11), 2002, p. 41-45.

Korniyenko K., « Cu-Pb-Sb (Copper-Lead-Antimony) », In Effenberg G. et Ilyenko S. (éd.), *Non-Ferrous Metal Systems. Part 2: Selected Copper Systems*, Springer, Berlin-Heidelberg, 2007, p. 396-407.

Kuhn H. R. et Günther D., « Elemental Fractionation Studies in Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry on Laser-Induced Brass Aerosols », *Anal. Chem.*, 75, 2003, p. 747-753.

Kuijpers M. H. G., « The sound of fire, taste of copper, feel of bronze, and colours of the cast. Sensory aspects of metalworking », In Sørensen M. L. S. et Rebay-Salisbury K. (éd.), *Embodied Knowledge. Perspectives on belief and technology*, Oxbow, Oxford, 2013, p. 137-150.

Kurdnáč J., « Recherches archéologiques sur la production d'or en Bohême », *Les techniques minières de l'Antiquité au XVIII^e siècle, Actes du Congrès national des sociétés savantes. Section d'histoire des sciences et des techniques, Strasbourg, 1988*, Éditions du CTHS, Paris, 1992, p. 299-313.

L'Escalopier C. de, *Théophile prêtre et moine. Essai sur divers arts*, Firmin Didot, Paris, 1843.

Lasnier T., *Typochronologie du bâti des fortifications médiévales en haut Couserans : premières études de cas*, mémoire de master 2 d'archéologie, Université de Toulouse le Mirail, 2007.

Lasnier T., *Les fortifications médiévales en Couserans. Rapport de prospection thématique*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2008.

Lassure J.-M. et Villeval G., « Poids monétiformes de Toulouse, de Montauban et d'Orthez », *Archéologie du Midi médiéval*, 2(1), 1984, p. 214-216.

Leroi-Gourhan A., *Le geste et la parole. Technique et langage*, Albin Michel, Paris, 1964.

- Leroy B., « Théorie monétaire et extraction minière en Navarre vers 1340 », *Revue numismatique*, 14, 1972, p. 105-123.
- Leroy M., Merluzzo P. et Mahé-Le Carlier C., *Archéologie du fer en Lorraine - Minette et production du fer en bas fourneaux dans l'Antiquité et au Moyen Age*, Fensch Vallée éditions, Knutange, 2015.
- Leroy S., Cohen S. X., Verna C., Gratuze B., Téreygeol F., Fluzin P., Bertrand L. et Dillmann P., « The medieval iron market in Ariège (France). Multidisciplinary analytical approach and multivariate analyses », *Journal of Archaeological Science*, 39(4), 2012, p. 1080-1093.
- Leroy S., Dillmann P., Disser A., L'Héritier M., Bauvais S. et Fluzin P., « Provenance et circulation des alliages ferreux », In Dillmann P. et Bellot-Gurlet L. (éd.), *Circulation des matériaux et des objets dans les sociétés anciennes*, Éditions des archives contemporaines, Paris, 2014, p. 73-101.
- Lestrade J., *Les Huguenots en Couserans*, H. Champion, Paris, 1883.
- L'Héritier M. et Arles A., *Rapport d'analyse des tuyaux en plomb de la fouille du « Carreau du Temple »*, IRAMAT-CEB, Orléans, 2013.
- L'Héritier M., Arles A., Disser A. et Gratuze B., « Lead it be! Identifying the construction phases of gothic cathedrals using lead analysis by LA-ICP-MS », *Journal of Archaeological Science: Reports*, 6, 2016, p. 252-265.
- L'Héritier M., Baron S., Cassayre L. et Téreygeol F., « Bismuth behaviour during ancient processes of silver lead production », *Journal of Archaeological Science*, 57, 2015, p. 56-68.
- L'Héritier M. et Flament J., *Rapport d'analyse des tuyaux en plomb de la fouille de Vanves « rue d'Issy-rue de Pruvot »*, IRAMAT-CEB, Orléans, 2017.
- L'Héritier M. et Téreygeol F., « From copper to silver: Understanding the saigerprozess through experimental liquation and drying », *Historical Metallurgy*, 44(2), 2010, p. 136-152.
- Lindsay W. M., *Isidori Hispalensis episcopi Etymologiarum sive Originum. Libri XX*, Oxford University Press, Oxford, 1911.
- Lloyd C. D. et Atkinson P. M., « Archaeology and geostatistics », *Journal of Archaeological Science*, 31, 2004, p. 151-165.

Machabey A., *Poids et mesures du Languedoc et des provinces voisines*, Musée Paul-Dupuy, Toulouse, 1953.

Mahé-Le Carlier C., Ploquin A. et Fluck P., « Apport de la géochimie et de la pétrologie à la connaissance de la métallurgie du plomb argentifère au Moyen Âge », *ArchéoSciences*, (34), 2011, p. 159-176.

Malý K., Hrubý P. « Medieval Mines of Brandes en Oisans Polymetallic ores, technogenic sediments, slags (mineralogy and geochemistry) », In Bailly-Maître N. et Minvielle Larousse N. (dir.), *Brandes-en-Oisans. Rapport final 2012-2014*, SRA Rhône-Alpes, Lyon, 2014, p. 51-68.

Manasse A. et Mellini M., « Chemical and textural characterisation of medieval slags from Massa Marittima smelting sites (Tuscany, Italy) », *Journal of Cultural Heritage*, 3, 2002, p. 187-198.

Mank A. J. G. et Mason P. R. D., « A critical assessment of laser ablation ICP-MS as an analytical tool for depth analysis in silica-based glass samples », *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 14, 1999, p. 1145.

Maintenant J., *Montagnes métallifères de Gaule méditerranéenne. Approche archéologique et historique de la production des métaux en Languedoc occidental du début du second âge du Fer à la fin de la période romaine (IV^e s. av. n. è. - V^e s. de n. è.)*, thèse de 3^e cycle, Université de Toulouse 2 Le Mirail, 2014.

Marandet M. C., « L'équipement de la cuisine en Toulousain à la fin du Moyen Âge d'après les inventaires et les testaments », *Archéologie du Midi médiéval*, 1997, p. 269-286.

Marchesi H., Thiriot J. et Vallauri L., *Marseille, les ateliers de potiers du XIII^e s. et le quartier Sainte-Barbe (V^e-XVII^e s.)*, Éditions de la Maison des Sciences de l'Homme, Paris, 1997.

Marcoux E., *Isotopes du plomb et paragenèses métalliques, traceurs de l'histoire des gîtes minéraux. Illustration des concepts de source, d'héritage et de régionalisme dans les gîtes français*, thèse de 3^e cycle, Université de Clermont-Ferrand II, 1986.

Marcoux E., Joubert M. et Lescuyer J.-L., 1991. « Origine des minéralisations stratiformes de la bordure du Canigou (Pyrénées orientales. France) ; apport de la géochimie isotopique du plomb », *C. R. Acad. Sci. Paris*, Ser. II, 312, 1991, p. 281-287.

Marcoux E. et Moelo Y., « Lead Isotope Geochemistry and Paragenetic Study of Inheritance Phenomena in Metallogenesis: Examples from Base Metal Sulfide Deposits in France », *Economic Geology*, 86, 1991, p. 106-120.

Martinón-Torres M., Thomas N., Rehren T. et Mongiatti A., « Some problems and potentials of the study of cupellation remains the case of post-medieval Montbéliard France », *Archéosciences*, 32, 2008, p. 59-70.

Martinón-Torres M., Thomas N., Rehren T. et Mongiatti A., « Identifying materials, recipes and choices some suggestions for the study of archaeological cupels », *Archaeometallurgy in Europe 2007: Selected Papers from the 2nd International Conference, Aquileia, 17-21 June 2007*, Giunli-Mair A., Craddock P., Hauptmann A. et Bayley J. (éd.), Associazne Italiana di Metallurgia, Milan, 2009, p. 435-445.

Mason P. R. et Mank A. J. G., « Depth-resolved analysis in multi-layered glass and metal materials using laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry (LA-ICP-MS) », *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 16(12), 2001, p. 1381-1388.

Mauss M., « Les techniques du corps », *Journal de Psychologie normale et pathologique*, XXXII^e année, 1935, p. 271-293.

Megaw B., « 'Bakenaldwath' and the Medieval Lead Mines », *The Journal of the Manx Museum*, VI, 77, 1960, p. 105-107.

Menant F., « Pour une histoire médiévale de l'entreprise minière en Lombardie », *Annales. Économies, Sociétés, Civilisations*, 1987, p. 779-796.

Menant F., « Aspects de l'économie et de la société dans les vallées lombardes aux derniers siècles du Moyen Âge », In Braunstein P. (éd.), *La sidérurgie alpine en Italie (XII^e-XVII^e siècle)*, École française de Rome, Rome, 2001, p. 3-30.

Mendybaev R. A., Richter F. M. et Davis A. M., « Reevaluation of the åkermanite–gehlenite binary system », *37th Lunar and Planetary Science Conference*, document en ligne, consulté le 3 juin 2017, [<http://www.lpi.usra.edu/meetings/lpsc2006/pdf/2268.pdf>].

Mercier-Bion F. et Téreygeol F., « Suivi de la fusion de la galène de Melle (79) par microspectroscopie Raman », *ArchéoSciences*, 2016, p. 137-148.

Merkel J., « Summary of experimental results for Late Bronze Age copper smelting and refining », *Museum Applied Science Center Journal*, 2(6), 1983, p. 173–179.

Merkel J., « Experimental reconstruction of Bronze Age copper smelting based on archaeological evidence from Timna », In Rothenberg B. (éd.), *The ancient metallurgy of copper*, Institute of Archaeo-Metallurgical Studies, Londres, 1990, p. 78-122.

Métailié J.-P., « Données sur l'histoire des forêts dans la haute vallée du Garbet

Bibliographie

(Aulus) », *PCR Mines, métallurgie et forêts dans les Pyrénées ariégeoises de l'Antiquité au Moyen-Âge*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 1991, p. 131-136.

Mettrier M., « Description des gites minéraux du haut Bassin de la Garonne », *Bulletin de la société de géographie de Toulouse*, 1894, p. 236-258.

Minvielle Larousse N. et Bailly-Maitre M.-C., « Ore grinding in the Middle Ages: the example of Brandes-en-Oisans (France, Isère) », *Bread for the people: The archaeology of Mills and Milling*, Rome, 2009, Williams D. et Peacock D. (éd.), British Archaeological Reports, International Series 2274. Archaeopress, Oxford, p. 217-230.

Mirouse R., *Découverte géologique des Pyrénées occidentales*, BRGM, Orléans, 1988.

Misra M. K., Ragland K. W. et Baker A. J., « Wood ash composition as a function of furnace temperature », *Biomass and Bioenergy*, 4(2), 1993, p. 103-116.

Mödlinger M. et Sabatini B., « A Re-evaluation of inverse segregation in prehistoric As-Cu objects », *Journal of Archaeological Science*, 74, 2016, p. 60-74.

Mondon S., « Les possessions des ordres de Saint-Jean de Jérusalem et du Temple dans le Couserans et le Comminges », *Revue de Comminges*, tome 31, 1916, p. 69-101.

Montmollin D. de, *Pratique des émaux de cendres*, Édition de la Revue de la céramique et du verre, Vendin-le-Vieil, 1997.

Motteau J., « Un atelier d'épinglier », In Galinié H. (éd.), *Tours antique et médiéval, lieux de vie, temps de la ville, 40 ans d'archéologie urbaine*, FERACF, Tours, 2007, p. 106-107.

Moureau S. et Thomas N. « Understanding Texts with the Help of Experimentation: The Example of Cupellation in Arabic Scientific Literature », *Ambix*, 63(2), 2016, p. 98-117.

Mugueta Moreno Í., « Política monetaria en Navarra bajo el reinado de los primeros Evreux (1328-1349) », *En la España Medieval*, 27, 2004, p. 77-104.

Mugueta Moreno Í., « Minería cuproargentífera en el reino de Navarra (siglo XIV) », *Príncipe de Viana*, 66(235), 2005, p. 405-428.

Mugueta Moreno Í., « La primera industrialización en Navarra las ferrerías en la Baja Edad Media », *Huarte de San Juan. Geografía e Historia*, 16, 2010, p. 9-58.

Munoz M., Baron S., Boucher A., Béziat D., et Salvi S., « Mesozoic vein-type Pb-Zn mineralization in the Pyrenees: Lead isotopic and fluid inclusion evidence from the

Les Argentières and Lacore deposits », *Comptes Rendus Geoscience*, 348 (3-4), 2016, p. 322-332.

Munteanu G., Kammenthaler E., Rico C., Fabre J.-M. et Beyrie A., « Géo-archéologie du complexe minier gaulois des Barrencs (Aude, France) », *ArchéoSciences*, 40, 2016, document en ligne, consulté le 20 mai 2017, [<https://archeosciences.revues.org/4839>].

Mussy J., « Note sur les gîtes métalliques de l'arrondissement de Saint-Girons », *Bulletin de la société d'industrie minérale*, 10, 1864-1865, p. 193-255.

Mussy J., « Description de la constitution géologique et des ressources minérales du canton de Vicdessos et spécialement de la mine de Rancié », *Annales des Mines*, 6^e série, tome 14, 1868, p. 57-112.

Mussy J., « Ressources minérales de l'Ariège », *Annales des Mines*, 6^e série, tome 16, 1869, p. 547-594.

Neff H., « Analysis of Mesoamerican Plumbate Pottery Surfaces by Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (LA-ICP-MS) », *Journal of Archaeological Science*, 30(1), 2003, p. 21-35.

Newman W. R., *The Summa Perfectionis of Pseudo-Geber. A Critical Edition, Translation and Study*, E. J. Brill, Leyde, 1991.

Oddy W. A., La Niece S., Stratford N., Craddock P. T. et Hughes M. J., *Romanesque Metalwork: copper alloys and their decoration*, British Museum Publications Ltd, Londres, 1986.

Oliveau S., « Autocorrélation spatiale : leçons du changement d'échelle », *L'Espace géographique*, 39(1), 2010, p. 51-64.

Olivier J., *Archè et Chrèmata en Égypte au IIe siècle avant J.-C. (204 – 81 av. J.-C.). Étude de numismatique et d'histoire*, thèse de 3^e cycle, Université d'Orléans, 2012.

Pagliari L., Dapiaggi M., Pavese A. et Francescon F., « A kinetic study of the quartz-cristobalite phase transition », *Journal of the European Ceramic Society*, 33(15), 2013, p. 3403-3410.

Pagnini G. F., *Della decima e delle gravezze. Tomo quatro contenente la pratica della mercatura scritta da Giovanni di Antonio da Uzzano nel 1442*, Bouchard, Lisbonne-Lucques, 1765.

Pailhès C., « Les cadres institutionnels du Couserans médiéval », *Archives ariégeoises*,

2009, p. 9-61.

Parisot-Sillon C., *Neruus belli. Argent monnayé, guerre et intégration en Occident nord-méditerranéen (c. 200-c. 40 a.C.)*, thèse de 3^e cycle, Université d'Orléans, 2016.

Pasquier F. et Ruffié L.-P.-R.-B., « Massat. Chansons, danse, usages et charte communale », *Bulletin de la société ariègeoise des sciences lettres et arts*, 1886-1888, p. 375-404.

Pasquier F., « Coutumes municipales de Seix en Couserans », *Bulletin de la société ariègeoise des sciences lettres et arts*, 1893, 1891-1894, p. 253-263.

Pastoret E. de, *Ordonnances des rois de France de la troisième race*, tome 19, Imprimerie royale, Paris, 1835, tome 19, p. 105-108 et p. 175-176.

Pernicka, E., « Instrumentelle Multi-Elementanalyse archäologischer Kupfer- und Bronzeartefakte Ein Methodenvergleich », *Jahrbuch Römisch-Germanisches Zentralmuseum*, 31, 1984, p. 517-531.

Pernicka E., « Erzlagerstätten in der Ägäis und ihre Ausbeutung im Altertum: Geochemische Untersuchungen zur Herkunftsbestimmung archäologischer Metallobjekte », *Jahrbuch d. Romisch-Germanischen Zentralmuseums Mainz*, 34, 1987, p. 607-714.

Pernicka E., « Comments on P. Budd, D. Gale, A. M. Pollard, R. G. Thomas and P. A. Williams, 'Evaluating Lead Isotope Data: Further Observations' », *Archaeometry*, 35(2), 1993, p. 259-261.

Pernicka E., « Trace element fingerprinting of ancient copper », In Young S. M. M., Pollard A. M., Budd P. et Ixer R. A. (éd.), *Metals in Antiquity*, Archaeopress. BAR International Series 792, Oxford, 1999, p. 163-171.

Pernicka E., « Provenance Determination of Archaeological Metal Objects », In Robert B. W. et Thornton C. T. (éd.), *Archaeometallurgy in Global Perspective*, Springer, New-York, 2014, p. 239-268.

Peterson D. L., Dudgeon J. V., Tromp M. et Bobokhyan A., « LA-ICP-MS Analysis of Prehistoric Copper and bronze metalwork from Armenia », In Dussubieux L., Goltko M. et Gratuze B. (éd.), *Recent Advances in Laser Ablation ICP-MS for Archaeology*, Springer-Verlag, Berlin, 2016, p. 115-133.

Phillipps T. (sir), « Letter addressed to Albert Way, Esq., Director, communicating a transcript of a MS treatise on the preparation of pigments, and on various processes of

the decorative arts practiced in the Middle Ages, written in the twelfth century, and entitled *Mappae Clavicula* », *Archaeologia*, 32, 1847, p. 183-244.

Pierre F., « Les mines de La Croix d'après le graduel de Saint-Dié : réalité ou décor ?, f° 338 », *Art de l'enluminure*, n° 26, 2008, p. 62-67.

Pitman R. N. « Wood ash use in forestry – a review of the environmental impacts », *Forestry*, 79(5), 2006, p. 563-588.

Pline l' Ancien, *Histoire naturelle*, livre XXXIV. Texte établi et traduit par H. Le Bonniec, commenté par H. Gallet de Santerre et H. Le Bonniec, Les Belles Lettres, Paris, 1953.

Pollard M., Batt C., Stern B. et Young S. M. M., *Analytical chemistry in archaeology*, Cambridge University Press, Cambridge, 2006.

Pollard A. M., Bray P., Gosden C., Wilson A. et Hamerow H., « Characterising copper-based metals in Britain in the first millennium AD: a preliminary quantification of metal flow and recycling », *Antiquity*, 89(345), 2015, p. 697-713.

Pollard A. M., Thomas R. G., Ware D. P. et Williams P. A., « Experimental smelting of secondary copper minerals: Implications for Early Bronze Age metallurgy in Britain », In Pernicka E. et Wagner G. A. (éd.), *Archaeometry '90*, Birkhäuser Verlag, Basel, 1991, p. 127–136.

Py-Saragaglia V., Cunill Artigas R., Métaillé J.-P., Ancel B., Baron S., Paradis-Grenouillet S., Lerigoleur É., Badache N., Barcet H. et Galop D., « Late Holocene history of woodland dynamics and wood use in an ancient mining area of the Pyrenees (Ariège, France) », *Quaternary International*, 2017, sous presse.

Radosavljević S. A., Stojanović J. N., Vuković N. S., Radosavljević-Mihajlović A. S., et Kašić V. D., « Low-temperature Ni-As-Sb-S mineralization of the Pb(Ag)-Zn deposits within the Rogozna ore field, Serbo-Macedonian Metallogenic Province: Ore mineralogy, crystal chemistry and paragenetic relationships », *Ore Geology Reviews*, 65, Part 1, 2015, p. 213-227.

Rainer S., « Das Slowakische Erzgebirge und seine Denkmäler », In Slotta R. et Labuda J. (éd.), *'Bei diesem Schein kehrt Segen ein'. Gold, Silber und Kupfer aus dem Slowakischen Erzgebirge*, Deutschen Bergbau-Museum Bochum, Bochum, 1997, p. 71-96.

Ramage A. et Craddock P. T., *King Croesus' gold: Excavations at Sardis and the History of Gold Refining: Archaeological Exploration of Sardis*, British Museum Press, Cambridge, 2000.

Bibliographie

Rehren T. et Eckstein K., « The development of analytical cupellation in the Middle Ages », *Archaeometry* 98, *Proceedings of the 31st Symposium, Budapest, April 26-May 3 1998*, Jerem E. et Biro K. T. (éd.), BAR International Series 1043 – Central European Series 1, vol. 2, Archaeolingua, Oxford, 2002, p. 445-448.

Rehren T. et Klappauf L., « Ut oleum aquis, Vom Schwimmen des Silbers auf Bleiglätte », *Metalla*, 2, 1995, p. 19-28.

Rehren T., Martínón-Torres M., « Naturam ars imitata: European brassmaking between craft and science », In Martínón-Torres M. et Rehren T. (éd.), *Archaeology, History and Science: Integrating approaches to Ancient Materials*, Left Coast Press, Walnut Creek, 2008, p. 167-188.

Rehren T. et Prange M., « Lead metal and patina: a comparison », *Der Anschnitt* 8, 1998, p. 183-196.

Rehren T., Schneider J. et Bartels C., « Medieval lead-silver smelting in the Siegerland West Germany », *Historical Metallurgy*, 1999, p. 73-84.

Rehren T., Vanhove D., Mussche H. F. et Oikonomakou M., « Litharge from Laurion. A medical and metallurgical commodity from South Attika », *L'antiquité classique*, 68(1), 1999, p. 299-308.

Reynolds P., « The Nature of Experiment in Archaeology », In Harding A. F. (éd.), *Experiment and Design: Archaeological Studies in Honour of John Coles*, Oxbow, Oxford, 1999, p. 156-162.

Rivier C. et Crozet M., « Limite de détection de méthodes d'analyse et termes apparentés », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : p262, 2014.

Rivot M. L. E., *Principes généraux du traitement des minerais métalliques. Traité de métallurgie théorique et pratique*, tome 2, Dalmont et Dunod, Paris, 1860.

Roover R. de, « *Il manuale di mercatura di Saminiato de' Ricci. Antonia Borlandi* », *Speculum*, 40(2), 1965, p. 330-332.

Ross M. et Huebner S. J., « Temperature-composition relationships between naturally occurring augite, pigeonite, and orthopyroxene at one bar pressure », *American Mineralogist*, 64, 1979, p. 1133-1155.

Roussel J., « Carte générale des Mont Pyrénées, et partie des Royaumes de France et d'Espagne par le Sr Roussel ingénieur du roy », 1730, document en ligne, consulté le 17 mai 2017, [<http://gallica.bnf.fr/ark:/12148/btv1b7710039q/f6.ite>].

Ruste J., « Microscopie électronique à balayage - Images, applications et développements », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : P866 V2, 2013.

Samiac F.-J., « Les derniers Comminges de Couserans », *Bulletin de la société ariègeoise des sciences lettres et arts*, 1914, p. 49-60.

Samiac F.-J., « Dénombrement de la vicomté de Couserans en 1540 », *Bulletin de la société ariègeoise des sciences lettres et arts*, 1917-1922, p. 129-137.

Samiac F.-J. et Pasquier F., *Coutumes de Saint-Girons. XIII^e, XIV^e XVI^e, XVII^e siècles*, Gadrat Ainé, Foix, 1924.

Sarah G., *Caractérisation de la composition et de la structure des alliages argent-cuivre par ICP-MS avec prélèvement par ablation laser. Application au monnayage carolingien*, thèse de 3^e cycle, Université d'Orléans, 2008.

Sarah G. et Gratuze B. « LA-ICP-MS Analysis of Ancient Silver Coins Using Concentration Profiles. » *In* Dussubieux L., Golitko M. et Gratuze B. (éd.), *Recent Advances in Laser Ablation ICP-MS for Archaeology*, Springer-Verlag, Berlin, 2016, p. 73-87.

Sarah G. et Téreygeol F., « La préparation des minerais selon la chaîne opératoire carolingienne melloise », *In* Téreygeol F. (dir.), *PCR Paléométaballurgies et expérimentations, rapport intermédiaire 2012*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2012, p. 28-37.

Savès G., « Trésor d'orfèvrerie méridionale du XIV^e siècle », *Mémoires de la Société archéologique du Midi de la France*, vol. 36, 1971, p. 21-54.

Savès G., « L'argenterie toulousaine de 1466 à 1550 : son contrôle, sa dotation, ses poinçons », *Revue de Comminges*, vol. 98, 1973, p. 240-260.

Savès G., « Le trésor de Mirepoix (Ariège) », *Revue de Comminges*, vol. 97, 1984, p. 35-42.

Sayre E. V., Yener K. A., Joel E. C. et Barnes I. L., « Statistical evaluation of the presently accumulated lead isotope data from Anatolia and surrounding regions », *Archaeometry*, 34, 1992, p. 73-105.

Schlanger N., « The chaîne opératoire », *In* Renfrew C. et Bahn P. (éd.), *Archaeology: The Key Concepts*, Routledge, Londres et New York, 2005, p. 25-31.

Bibliographie

Schnabel C., *Traité théorique et pratique de métallurgie cuivre-plomb-argent-or*, Librairie polytechnique Baudry et C^{ie}, Paris, 1896.

Schneider J., « Die Herkunft des Siegerländer Münzsilbers », In Dahm C., Lobbedey U. et Weisgerber G. (éd.), *Der Altenberg. Bergwerk und Siedlung aus dem 13. Jahrhundert im Siegerland. Band 2: Die Befunde*, Habelt, Bonn, 1998, p. 202-215.

Schröder F., « Die montanarchaologischen Ausgrabungen in Niederpöbel (2011–2013)–Befunde und Ergebnisse », In Smolnik R. (éd.), *ArchaeoMontan 2015. Montanarchäologie im Osterzgebirge*, Landesamt für Archäologie Sachsen, Dresden, 2015, p. 23-165.

Schumpeter J., *Theorie der wirtschaftlichen Entwicklung*, Duncker et Humblot, Berlin, 1984 (1^{re} édition 1912).

Scott D. A., *Metallography and Microstructure in Ancient and Historic Metals*, Oxford University Press, Oxford, 1992.

Shapter J. G., Brooker M. H. et Skinner W. M., « Observation of the oxidation of galena using Raman spectroscopy », *International Journal of Mineral Processing*, 60, 2000, p. 199-211.

Shartsis L., Spinner S. et Smock A. W. « Surface tension of Compositions in the Systems PbO-B₂O₃ and PbO-SiO₂ », *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 40, 1948, p. 61-66.

Silenzi F., *Analyses des cendres d'affinage de l'argent : caractérisation élémentaire et structurale de casses de coupellation issues de Castel-Minier (XIV^e-XV^e siècle)*, Mémoire de Master 2 MPCA, Université de Bordeaux Montaigne, 2015.

Sisco A. G. et Smith C. S., *Lazarus Ercker's Treatise on ores and assaying Beschreibung allerfürnemisten mineralischen Ertzt- und Bergwercksarten. Translated from the German edition of 1850*, University of Chicago Press, Chicago, 1951.

Smith G. D. et Clark R. J. H., « Raman microscopy in archaeological science », *Journal of Archaeological Sciences*, 31, 2004, p. 1137-1160.

Smith C. S. et Hawthorne J. G., *Theophilus. On divers arts. The foremost medieval treatise on painting, glassmaking and metalwork*, Dover Publications, New York, 1963.

Smith C. S. et Gnudi M. T., *The Pirotechnia of Vanoccio Biringuccio*, Dover Publications, New York, 1990.

Strieder J., « Die Inventur der Firma Fugger aus dem Jahr 1527 », In Bütcher K. (éd.), *Zeitschrift für die gesamte Staatswissenschaft*, H. Laupp'schen Buchhandlung, Tübingen, 1905.

Ströbele F., Wenzel T., Kronz A., Hildebrandt L. et Markl G., « Mineralogical and geochemical characterization of high-medieval lead–silver smelting slags from Wiesloch near Heidelberg (Germany)—an approach to process reconstruction », *Archaeological and Anthropological Sciences*, 2(3), 2010, p. 191-215.

Suhling L., « Die Technologie des Kupferseigerns in Zentraleuropa im 15. und 16. Jahrhundert. Technische, ökonomische und politische Aspekte », *Mines et métallurgie, Brussieu-Lyon*, 1991, Benoit P. (éd.), PPHS, Les chemins de la recherche n° 26, Lyon, 1994, p. 97-106.

Swinbourne D. R., Yan S., Hoang G. et Higgins D., « Thermodynamic modelling of cupellation: activity of Ag_{0.5} in molten PbO at 1000°C », *Mineral Processing and Extractive Metallurgy*, 112(2), 2003, p. 69-74.

Swinbourne D., Winters A. et Giunti M., « Theory and Practice of Cupellation at Port Pirie Pasminco Smelter », *European Metallurgical Conference, Friedrichshafen, 18-21 septembre 2001*, p. 329-346.

Tămaş C. G., Baron S. et Cauuet B., « Minéralogie et signature isotopique du plomb des minerais auro-argentifères exploités durant l'époque romaine à Alburnus Maior (Rosia Montană, Roumanie) », *ArchéoSciences*, 33, 2009, p. 83-89.

Telouk P., *Développements de la spectrométrie ICP-MS dans les domaines de l'archéologie et de la géologie, Utilisation de l'ablation laser*, Thèse de 3^e cycle, Université de Lyon, 1993.

Téreygeol F., *Les mines d'argent carolingiennes de Melle*, thèse de 3^e cycle, Université Paris I, 2001.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport d'activité archéologique 2003*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2003.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport d'activité archéologique 2004*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2004.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport d'activité archéologique 2005*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2005.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport intermédiaire 2006*, SRA Midi-

Bibliographie

Pyrénées, Toulouse, 2006.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport intermédiaire 2007*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2007.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), document final de synthèse (2006-2008)*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2008.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport intermédiaire 2009*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2009.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport intermédiaire 2010*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2010.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), document final de synthèse (2009-2011)*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2011.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport intermédiaire 2012*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2012.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport intermédiaire 2013*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2013.

Téreygeol F. (éd.), *Comprendre les savoir-faire métallurgiques antiques et médiévaux, Errance*, Paris, 2013.

Téreygeol F., « La métallurgie du plomb et de l'argent entre Melle et Jabali », In Téreygeol F. (éd.), *Du monde franc aux califats omeyyade et abbasside : extraction et produits des mines d'argent de Melle et de Jabali*, Deutschen Bergbau-Museum, Bochum, 2014, p. 133-166.

Téreygeol F., « La préparation des minerais argentifères au haut Moyen Âge : le rôle de l'eau », In Téreygeol F. (éd.), *Du Monde franc aux califats omeyyade et abbasside : extraction et production des mines d'argent de Melle et de Jabali*, Deutsches Bergbau-Museum, Bochum, 2014, p. 93-131.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains), document final de Synthèse 2012-2014*, SRA Midi Pyrénées, Toulouse, 2014.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport intermédiaire 2015*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2015.

Téreygeol F., « L'apogée de la mouline : Castel-Minier au XVI^e siècle », *Les chemins du*

fer en Belledonne, Actes du colloque organisé à Allevard-Arvillard, 22-25 mai 2013, Borlet, Albertville, 2016, p. 105-112.

Téreygeol F., *Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09), rapport intermédiaire 2016*, SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2016.

Téreygeol F., « Production et usages métallurgiques du mercure à la fin du Moyen Âge », *Sciences et techniques au Moyen Age, Saint-Denis, 2011*, Chandelier J., Verna C. et Weill-Parot N. (éd.), Presses universitaires de Vincennes, 2017, p. 387-399.

Téreygeol F. et Arles A. « Mise en forme et provenance des plombs halieutiques. » In Dumont A. et Mariotti J.-F. (éd.), *Archéologie et Histoire du fleuve Charente, Taillebourg-Port d'Envaux : une zone portuaire du haut Moyen Age sur le fleuve Charente*, Éditions Universitaires de Dijon, Dijon, 2013, p. 194-223.

Téreygeol F., Arles A., Foy E., Florsch N. et M. Llubes, « Dosages par fluorescence X portable d'ateliers médiévaux de production des métaux non-ferreux », *ArcheoSciences*, 34, 2010, p. 243-252.

Téreygeol F., Arles A., Sarah G. et Méaudre J.-C. « La réduction de la galène : l'exemple de Melle », In Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes, rapport intermédiaire 2012*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2012, p. 38-56.

Téreygeol F., Dillmann P. et Verna C., « Premières analyses métallographiques des produits sidérurgiques trouvés sur le site médiéval de Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09) », *Archéosciences Revue d'Archéométrie*, 30, 2006, p. 7-14.

Téreygeol F., Flament J., Méaudre J.-C., Sarah G. et Florsch N., « Le moulin à minerai », In Téreygeol F. (dir.), *PCR Paléométallurgies et expérimentations, rapport intermédiaire 2016*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2016, p. 9-15.

Téreygeol F. et Gauthier J., « Le godet d'une pile du XIV^e siècle à Castel-Minier », *Instrumentum*, 38, 2013, p. 44-46.

Téreygeol F., Gauthier J. et Cruz P., « La coupellation à la cendre de bois », In Téreygeol F. (dir.), *PCR Enrichissement des minerais, production et circulation des métaux : expérimentations paléométallurgiques transpériodes, rapport intermédiaire 2013*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2013, p. 55-66.

Téreygeol F. et Guirado M.-P., « Affiner l'argent au four de coupellation : expérimentations autour du *De Re Metallica* d'Agricola », In Téreygeol F. (éd.), *Comprendre les savoir-faire métallurgiques antiques et médiévaux*, Errance, Paris, 2013,

p. 169-188.

Téreygeol F. et Heckes J., « El vent de les manxes i el poder del mall : les eines hidràuliques de la « mouline » del jaciment arqueològic Castel-Minier (XVI^e s., França) », *Boscos de ferro. Actes de les Primeres Jornades de Recerca i Desenvolupament de la Vall Ferrera, Alins, 2010*, Gasquet D. (éd.), Garsineu Edicion, Tresp, 2012, p. 51-63.

Téreygeol F. et Méaudre J.-C., « Le bas fourneau carolingien », *In Téreygeol F. (dir.), PCR paléométallurgies et expérimentations, rapport intermédiaire 2010*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2010, p. 17-25.

Téreygeol F., Sarah G. et Flament J. « La réduction au bas-fourneau », *In Téreygeol F. (dir.), PCR Paléométallurgies et expérimentations, rapport intermédiaire 2014*, SRA Poitou-Charentes, Poitiers, 2014, p. 53-63.

Téreygeol F. et Thomas N., « La coupellation des alliages cuivre-argent : Approche expérimentale de l'essai d'argent par voie sèche », *Revue d'archéométrie*, 27, 2003, p. 171-181.

Ternet Y., Colchen M., Debroas E. J., Azambre B., Debon F., Bouchez J.L., Gleizes G., Leblanc D., Bakalowicz M., Jauzion G., Mangin A. et Soulé J.C., *Carte géologique de la France (1/50 000). Feuille Aulus-les-Bains (1086). Notice explicative*, BRGM, Orléans, 1997.

Thomas N., *Les ateliers urbains de travail du cuivre et de ses alliages au bas Moyen Âge : Archéologie et histoire d'un site parisien du XIV^e siècle dans la Villeneuve du Temple (1325-1350)*, Thèse de 3^e cycle, Université de Paris I, 2009.

Thomas N., Bourgarit D., Verbeek M., Plumier J. et Asmus B., « Commerce et techniques métallurgiques : les laitons mosans dans le marché européen au Moyen Âge (XIII^e-XVI^e siècles) », *L'archéologie au laboratoire, Paris, 27-28 janvier 2012*, Thiébault S. et Depaepe P. (éd.), La Découverte, Paris, 2013, p. 169-182.

Thomas N., Leroy I. et Plumier J., *L'or des dinandiers. Fondateurs et batteurs mosans du Moyen Âge*, Maison du patrimoine médiéval mosan, Bouvignes, 2015.

Thuaudet O., *Les accessoires métalliques du vêtement et de la parure de corps en Provence du XI^e au XVI^e siècle étude archéologique et approche croisée d'une production méconnue*, thèse de 3^e cycle, Aix-Marseille Université, 2015.

Treue W., Kellermann R., Klemm F., Schneider K., Stromer W. von, Wissner A. et Zirnbauer H., *Das Hausbuch der Mendelschen Zwölfbrüderstiftung zu Nürnberg - Deutsche Handwerksbilder des 15. und 16. Jahrhunderts*, Bruckmann, München 1965.

Tuccoo-Chala P., « Un traité de lies et passerries du Moyen Âge à la Révolution : Ossau et Tena », *Annales du Midi : revue archéologique, historique et philologique de la France méridionale*, tome 77, n° 72, 1965, p. 157-177.

Tylecote R. F., Ghaznavi H. A. et Boydell P. J., « Partitioning of Trace Elements Between the Ores, Fluxes, Slags and Metal During the Smelting of Copper », *Journal of Archaeological Science*, (4), 1977, p. 305-333.

Tylecote R.F., *The Early History of Metallurgy in Europe*, Institute of Materials, Londres, 1992 (2^e édition).

Valérian D., *Les sources italiennes de l'histoire du Maghreb médiéval. Inventaire critique*, Bouchène, Saint-Denis, 2006.

Van Elsuwé M., « Géographie des jugeries royales de Gascogne aux XIV^e et XV^e siècles », *Annales du Midi : revue archéologique, historique et philologique de la France méridionale*, tome 81, n° 92, 1969, p. 141-161.

Vaugondy G. R. de, « La partie méridionale du gouvernement de Guienne où se trouvent le Condomois, le pays de Soule, le Labour, l'Armagnac, les Landes, le Bigorre, le Conserans etc ; Gouvernement de Basse Navarre et de Béarn », 1753, document en ligne, consulté le 17 mai 2017, [<http://gallica.bnf.fr/ark:/12148/btv1b7710607t>].

Velasco F., Pesquera A. et Herrero J. M., « Lead isotope study of Zn–Pb ore deposits associated with the Basque-Cantabrian basin and Paleozoic basement, northern Spain », *Mineral. Deposita*, 31, 1996, p. 84–92.

Velde B. et Gratuze B., « Vaisselle, verre plat et petits objets en verre : aspects analytiques », In Bourgeois L. (éd.), *Une résidence des comtes d'Angoulême autour de l'an mil. Le castrum d'Andonne (Villejoubert, Charente)*, CRAHM, Caen, 2009, p. 244-249.

Verein Deutscher Eisenhüttenleute, *Slag atlas*, Verlag Stahleisen GmbH, Düsseldorf, 1995 (2^e édition).

Vergani R., « La métallurgie des non-ferreux dans la République de Venise (XV^e-XVIII^e siècles) », *Mines et métallurgie*, Brussieu-Lyon, 1991, Benoit P. (éd.), PPHS, Les chemins de la recherche n° 26, Lyon, 1994, p. 207-215.

Verna C., *Les mines et les forges des Cisterciens en Champagne méridionale et la Bourgogne du Nord, XI^e-XV^e siècle*, AEDEH/Vulcain, Paris, 1995.

Verna C., « Une nouvelle page de l'histoire des mines d'argent européennes : le cas des Pyrénées centrales (XIV^{ème}-XV^{ème} siècle) », *Bulletin de la société ariègeoise des sciences*

Bibliographie

lettres et arts, 1996, p. 201-232.

Verna C., *Le temps des moulins : fer, technique et société dans les Pyrénées centrales, XIII^e-XVI^e siècles*, Publications de la Sorbonne, Paris, 2001.

Verna C., *Entreprises des campagnes médiévales : innovation, travail et marché (XII^e siècle – vers 1550). L'industrie au village (Arles-sur-Tech, XIV^e et XV^e siècles). Essai de micro-histoire*, thèse d'habilitation à diriger des recherches, Université de Paris 1, 2008.

Verna C., « Innovations et métallurgies en Méditerranée occidentale (XIII^e-XV^e siècles) », *Anuario de estudios medievales*, 41(11), 2011, p. 623-644.

Vieillard F. et Guyotjeannin O. (dir.), *Conseils pour l'édition des textes médiévaux. Fascicule 1 : conseils généraux*, Éditions du CTHS, Paris, 2001.

Walaszek D., Senn M., Faller M., Philippe L., Wagner B., Bulska E. et Ulrich A., « Metallurgical and chemical characterization of copper alloy reference materials within laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry: Method development for minimally-invasive analysis of ancient bronze objects », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 79-80, 2013, p. 17-30.

Walaszek D., Senn M., Wichser A., Faller M., Wagner B., Bulska E. et Ulrich A., « Minimally-invasive Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry analysis of model ancient copper alloys », *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 99, 2014, p. 115-120.

Werner O., « Analysen Mittelalterlicher Bronzen und Messinge I », *Archäologie und Naturwissenschaften*, 1, 1977, p. 144-220.

Werner O., « Analysen mittelalterlicher Bronzen und Messinge », *Berliner Beiträge zur Archäometrie*, 7, 1982, p. 35-174.

White H., *Legge's Mount, the Tower of London, London: Scientific Analysis of the Crucibles*, English Heritage, Portsmouth, 2010.

Willies L. et Cranstone D. (éd.), *The History and Archaeology of lead Smelting : Boles and Smeltmills, Actes du colloque the History and Archaeology of lead Smelting, Reeth, 15-17 mai 1992*, Historical Metallurgy Society, 1992.

Wilson C. A., Davidson D. A. et Cresser M. S., « An evaluation of multielement analysis of historic soil contamination to differentiate space use and former function in and around abandoned farms », *The Holocene*, 15(7), 2005, p. 1094-1099.

Yener K. A., Sayre E. V., Joel E. C. Özbal H., Barnes I. L. et Brill R. H., « Stable lead isotope studies of Central Taurus ore sources and related artifacts from eastern Mediterranean chalcolithic and bronze age sites », *Journal of Archaeological Science*, 18(5), 1991, p. 541–577.

Zubrow E. B. W. et Harbaugh J. W., « Archaeological prospecting: kriging and simulation », *In* Hodder I. (éd.), *Simulation Studies in Archaeology*, Cambridge University Press, Cambridge, 1978, pp. 109–122.

Table des figures

Figure 1 : Localisation des ateliers multi-métaux médiévaux évoqués.....	28
Figure 2 : Localisation de Castel-Minier et des ateliers métallurgiques où l'usage de la soufflerie hydraulique est attesté par les sources écrites ou archéologiques.	39
Figure 3 : Situation de Castel-Minier au sein du Couserans et principales localités citées.	52
Figure 4 : La vallée du Garbet en amont d'Aulus-les-Bains vue depuis la nord. L'ellipse en pointillés marque l'emplacement de Castel-Minier.	52
Figure 5 : À gauche, la prairie de Castel-Minier avec en arrière-plan la grange et la cabane de berger. À droite, la pâture d'Agneserre. Clichés d'après Téreygeol F., « <i>Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique</i> , SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2003.	54
Figure 6 : Topographie de la rive droite du Garbet au début des recherches archéologiques. Modifié d'après Téreygeol F., « <i>Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique</i> , SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2005, p. 58.	56
Figure 7 : Implantations des sondages des campagnes de fouilles de 1990 et 1991. Modifié d'après Téreygeol F., « <i>Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique</i> , SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2005, p. 58.	58
Figure 8 : Plan de masse des fouilles de Castel-Minier. Identification des espaces fouillés.....	61
Figure 9 : Structures archéologiques de la fin du XIII ^e et du début du XIV ^e siècle.....	63
Figure 10 : Structures archéologiques du XIV ^e siècle. Les structures de la phase antérieure et l'emprise du ferrier 2 figurent en transparence.	66
Figure 11 : Structures archéologiques du XV ^e siècle. Les structures des phases antérieures et l'emprise du ferrier 2 figurent en transparence.	68
Figure 12 : Les installations de la mouline (seconde moitié XV ^e -XVI ^e siècles). Les structures des phases antérieures et l'emprise du ferrier 1 figurent en transparence.	69
Figure 13 : La province de Couserans dans le département de l'Ariège.....	72
Figure 14 : Carte topographique et hydrographique du Haut-Couserans.	73
Figure 15 : Carte géologique simplifiée de l'Ariège occidentale redessinée d'après Laforêt C., Monchoux P., Oudin E., et Tollon, F., <i>Inventaire minéralogique de la France n°11. Tome 1 : bassin versant du Salat</i> , BRGM, Orléans, 1983, p. 8.....	79
Figure 16 : Le Couserans médiéval au XIV ^e siècle.....	86
Figure 17 : principaux cols du Couserans.....	95
Figure 18 : Exemples de scorie cuivreuse (gauche, CL 12096) et plumbeuse (droite, CL 12791) avec détail des billes d'oxyde de plomb.	123
Figure 19 : Casse de coupellation (CL 13146). Détail d'une bille de plomb-argent subsistant à la surface. Cliché : J.-C. Méaudre.....	124

Figure 20 : Fragment de creuset en céramique (CL 11059) et détail de la bille métallique qu'il contient. Clichés et dessin : J.-C. Méaudre.	126
Figure 21 : Typologie des structures de chauffe légères : structure circulaire (gauche), foyer quadrangulaire simple à sole en carreaux d'argile (centre) et foyer quadrangulaire double (droite).	128
Figure 22 : fours Fr72 (gauche) et Fr62 (droite) découverts dans le bâtiment 10.	128
Figure 23 : Sections polies des scories (haut) et des billes de plomb (bas) découvertes dans l'argile du four Fr72 après tamisage et séparation hydrogravimétrique.	132
Figure 24 : Localisation des mesures XRF pour les foyers Fy2479 et Fy2482 (teneurs en plomb).	134
Figure 25 : Arbre de décision pour la sélection d'un modèle de prédiction (d'après Hengl T., <i>A Practical Guide to Geostatistical Mapping of Environmental Variables</i> , European Commission Joint Research Centre, Ispra, 2007, p. 31).	136
Figure 26 : Schématisation de la procédure d'estimation spatiale. Modifié d'après d'après Hengl T., <i>A Practical Guide...</i> , <i>op. cit.</i> , p. 9).	137
Figure 27 : Semi-variogramme expérimental de la variable régionalisée « plomb » pour le foyer Fy2479.	137
Figure 28 : Interpolation spatiale par krigeage des teneurs en plomb pour le foyer double Fy2479 et Fy2482 (droite) à partir de mesures XRF ponctuelles (gauche).	141
Figure 29 : Spectre Raman de la sphalérite. Énergie du faisceau : 0,1 mW, temps d'analyse : 60 s.	158
Figure 30 : À gauche, sole de coupellation en cours d'analyse dans la grande cellule (diamètre de la sole : 15 cm). À droite, minerais en cours d'analyse dans la cellule S155 (diamètre des pastilles : 30 mm).	161
Figure 31 : Schéma de principe du système LA-ICP-MS et détails des modes de détection. Modifié d'après la documentation du constructeur : <i>Thermo Scientific ELEMENT XR: Extended Dynamic Range High Resolution ICP-MS</i> , Application Note : 30064, 2007.	163
Figure 32 : Analyse LA-ICP-MS en profil d'un bronze archéologique issu de Castel-Minier (CL 10138). Mise en évidence de l'enrichissement de surface en étain et identification du palier de stabilité qui représente la composition de l'alliage sain.	170
Figure 33 : Sillons laissés par le faisceau laser à l'issue d'un prélèvement dynamique à la surface d'un cristal de galène.	174
Figure 34 : Comparaison des mesures de l'antimoine et de l'argent obtenues à la microsonde et par LA-ICP-MS pour huit galènes archéologiques. Les droites d'erreur à plus ou moins 5 % relatif sont figurées en pointillés.	176
Figure 35 : Métallographie d'un bronze au plomb (gauche, CL 11280) et d'un bronze au plomb antimonié (droite, CL 11107) (attaque FeCl ₃). À gauche, structure granulaire riche en cuivre (phase α) avec phase ($\alpha + \delta$) _{eutectoïde} aux joints de grains	

(gris) et plages de plomb (noir). À droite, structure dendritique riche en cuivre dans une matrice formée d'un alliage cuivre-antimoine-étain (gris).....	181
Figure 36 : Profils de concentration obtenu par LA-ICP-MS des éléments majeurs d'un bronze au plomb de Castel-Minier (CL 11945). Le passage du faisceau laser dans un globule de plomb se répercute sur la concentration instantanée calculée après 100 s d'ablation. Par ailleurs, la fluctuation des teneurs en cuivre et en étain illustre l'hétérogénéité de la matrice.	182
Figure 37 : CL 11552. À gauche, photographie du fragment parallélépipédique et axe de découpe. À droite, agrandissement MEB de la surface découpée et polie avec identification des différents alliages.	183
Figure 38 : Sensibilité moyenne de quelques isotopes mesurés dans l'étalon UE10 en fonction de la fréquence des impulsions et de la fluence du faisceau laser.	186
Figure 39 : Evolution du ratio Cu/Zn des étalons UZ50 et UE10 au cours d'une analyse en profil à différentes fluences. Comparaison avec la valeur théorique. Fréquence : 8 Hz, diamètre du faisceau : 100 μm	187
Figure 40 : En haut : cratère d'ablation de 100 μm de diamètre laissé dans l'étalon UE10. La couche de redéposition est bien visible et forme une couronne noire au voisinage de cratère. En bas : Analyse LA-ICP-MS du voisinage du cratère d'ablation (selon l'axe dessiné sur l'image du haut). La teneur élevée en zinc dans la matière redéposée autour du cratère met en évidence une extraction préférentielle de cet élément qui bénéficie de l'effet de cratère.	189
Figure 41 : Évolution de l'indice de fractionnement du zinc au cours de l'analyse LA-ICP-MS. Influence du diamètre du faisceau laser. Fréquence 8 Hz, fluence 2,9 $\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$	191
Figure 42 : En haut, cratères laissés dans l'étalon de bronze UE11 à l'issue d'une ablation laser (fréquence : 10 Hz, durée : 300 s, fluences (de gauche à droite) : 2,5 ; 2,7 ; 3,0 ; 3,1 $\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$, diamètre du faisceau : 100 μm). En bas, cratères laissés dans l'étalon de laiton UZ53 (fréquence : 10 Hz, durée : 300 s, fluences (de gauche à droite) : 2,5 ; 2,7 ; 3,0 $\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$, diamètre du faisceau : 100 μm	193
Figure 43 : Représentation de la VMA en fonction de la fluence pour les étalons cuivreux (haut) et ajustement d'une courbe logistique pour l'étalon UZ50 (bas).	194
Figure 44 : Comparaison des teneurs élémentaires déterminées par LA-ICP-MS et par activation neutronique pour les principaux éléments qui composent les matrices cuivreuses. Les droites d'erreur à plus ou moins 5 % relatif sont figurées en pointillés.	197
Figure 45 : Détails des travaux miniers de la vallée d'Aulus cités par Jean Dupuy. .	203
Figure 46 : Espaces miniers de la vicomté de Couserans d'après les sources écrites.	205
Figure 47 : Travaux miniers de la zone d'Aulus.	206
Figure 48 : Travaux miniers au sud de Coumebière : Les Argentières et Lacore.	208

Figure 49 : Mine de Lacore, localisation des prélèvements. Plan modifié d'après Ancel B. et Rota C. In Py V. (dir.), <i>Prospection inventaire n° 388. Commune d'Aulus-les-Bains (Ariège)</i> , SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2013, p. 62.	210
Figure 50 : Lauqueille, localisation des prélèvements. Plan d'après Dubatik C., <i>Recherches sur les travaux miniers...</i> , op. cit., p. 53. La galerie G3, à l'est de G2, est hors plan.	212
Figure 51 : Prospections dans le secteur des Playets de Lasmès. Localisation des travaux anciens et détail de la tranchée.	214
Figure 52 : Image MEB en électrons rétrodiffusés d'une inclusion d'ullmannite (gris foncé) dans une matrice de galène (gris clair), entourée de dolomie (noire).	217
Figure 53 : Travaux miniers du versant ouest du Pouech de Gouaff. Topographie obtenue à partir des relevés LIDAR.	218
Figure 54 : Coupe longitudinale est-ouest du filon des Raspes dressée en 1913 par la Société de la Vieille Montagne. En rouge, la localisation de nos prélèvements de minerai. En jaune, l'emprise des travaux anciens.	220
Figure 55 : Gisements prospectés dans la zone d'Ustou.	223
Figure 56 : Vue depuis le ruisseau des Cors en direction de l'ouest : pic de Carboire (droite) et pic de Montagnou (gauche) avec au premier plan les haldes modernes (ellipses en pointillés) et, en incrusation, le profil de la halde principale.	226
Figure 57 : Gisements prospectés dans la zone de Seix.	227
Figure 58 : Comparaison de six éléments-traces pour les échantillons de chalcopryrite issus des prospections.	234
Figure 59 : Le secteur minier de Castel-Minier. D'après Téreygeol F., <i>Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport intermédiaire 2015</i> , SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2015, p. 100.	237
Figure 60 : Plans des minéralisations de la mine de Castel-Minier (rouge) et localisation des différents chantiers étudiés. Document modifié d'après Ancel B., « Étude du réseau minier », In Téreygeol F., <i>Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport d'activité archéologique</i> , SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2003, p. 45.	238
Figure 61 : Localisation des travaux miniers dans la zone orientale du secteur de Castel-Minier.	240
Figure 62 : Plan cumulé du TB19 et du TB21 établi d'après les relevés photogrammétriques. D'après Téreygeol F. <i>Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport intermédiaire 2016</i> . SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2016, p. 14.	245
Figure 63 : Section polie du prélèvement n° 9 observée en microscopie optique (gauche) et au MEB (droite). Inclusions de tétraédrite (Ttr) dans une matrice de galène (Gn) contenant de la cérusite (Cer).	247
Figure 64 : Localisation des prélèvements de minerais dans le gisement de Castel-Minier. Plan des minéralisations d'après Ancel B., « Étude du réseau minier... », op. cit., p.45.	248

Figure 65 : Comparaison de six éléments-traces des chalcopyrites des branches filoniennes du toit (n° 23 et n° 25a) et du mur (TB21_12148a).	251
Figure 66 : Diagramme binaire représentant les teneurs en argent et en bismuth pour les galènes issues de la mine de Castel-Minier. Analyses LA-ICP-MS.	255
Figure 67 : Identification des chantiers du filon du toit au niveau de la cote +23.	258
Figure 68 : Identification des chantiers au niveau de la cote +13.	259
Figure 69 : Identification des chantiers au niveau de la cote 0.	260
Figure 70 : Partie terminale de la galerie des Anciens. Localisation des secteurs étudiés et sections polies des roches prélevées. 2 : pyrite dans une gangue de schiste, 3 : galène dans une gangue de quartz, 4 : sphalérite (avec inclusions de chalcopyrite) dans une gangue de schiste.	262
Figure 71 : À gauche : scènes de lavage du minerai, graduel anonyme, Bohême, fin du XV ^e siècle, illustration extraite de Hrubý P., Hejhal P., Hoch A., Kočár P., Malý K., Macháňová L., Petr L. et Štelcl J., « Středověký úpravnický a hornický areál Cvilínek u Černova na Pelhřimovsku », <i>Památky Archeologické CIII</i> , 2012, p. 363. En haut à droite : concassage du minerai, antiphonaire de Kutná Hora, 1471. En bas à droite : concassage du minerai, graduel de Kutná Hora, 1490.	266
Figure 72 : Graduel de Saint-Dié-des-Vosges, f 338 r., fin XV ^e -début XVI ^e siècle. Concassage et débouillage à la sortie de la mine (gauche), bocardage (centre), passage au tamis incliné et lavage au râble (droite).	268
Figure 73 : À gauche : auge à minerai de Castel-Minier (dimensions : 44×20×10 cm). Dessin extrait de Téreygeol F., <i>Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09). Rapport intermédiaire 2015</i> , SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2015, Annexe II. Pl. 17. À droite : auge à minerai du site de Nierderpöbel (dimensions : 48×28×8 cm d'après Schröder F., « Die montanarchaologischen Ausgrabungen in Niederpöbel (2011–2013) », In Smolnik R. (éd.), <i>Archaeomontan 2015. Montanarchäologie im Osterzgebirge</i> , Landesamt für Archäologie Sachsen, Dresde, p. 122.	274
Figure 74 : Échantillon de galène du dépôt de minerais (US 3172, CL 12806) découvert dans le bâtiment 10.	275
Figure 75 : Histogramme représentant la distribution de la densité des galènes provenant du dépôt du bâtiment 10.	276
Figure 76 : table de concassage découverte dans le travers-banc 0 (gauche) ; halde de concassage sur le Plat-du-Roi : US 3208-3211 (droite).	277
Figure 77 : Localisation de la Prairie-des-Meules sur le plan de la Société de la Vieille Montagne de novembre 1913 (Nord en bas). Au sud le Garbet et au nord-ouest la grange.	279
Figure 78 : Répartition des meules à minerai fluviatiles. Le nombre d'exemplaires découverts figure entre parenthèses.	281

Figure 79 : Exemple de meule allante archéologique vue du dessus et en coupe. Les flèches blanches indiquent les stries concentriques tandis que les traits rouges matérialisent les rainures. Modélisation photogrammétrique : J. Heckes.	284
Figure 80 : moulin à minerai expérimental (gauche) ; meule allante en cours de surfaçage (en haut à droite) ; mouture récupérée à l'issue du broyage (en bas à droite) : la poudre de galène (gris) est bien visible.....	285
Figure 81 : Structure de lavage (US 2386) sur la plate-forme 3.....	289
Figure 82 : Histogramme représentant la distribution de la densité des galènes provenant du dépôt du bâtiment 10 (densités élevées) et de la halde du TB21 (densités faibles).	297
Figure 83 : Représentation des teneurs en argent et en antimoine pour les galènes archéologiques de Castel-Minier. En incrustation : Distribution des teneurs en argent.	302
Figure 84 : Distribution des galènes mises au jour dans des contextes de construction et d'occupation sur le site de Castel-Minier. En transparence, l'implantation de la mouline du XVI ^e siècle.....	312
Figure 85 : Distribution de la galène dans les espaces fouillés appartenant à la première phase.....	314
Figure 86 : Masses de galène dans les contextes archéologiques de construction et d'occupation des structures de la fin du XIII ^e -début du XIV ^e siècle. Pour chacune d'entre elles, la proportion de chaque catégorie de densité est indiquée dans les colonnes ainsi que la moyenne pondérée en argent (symbole □ et échelle logarithmique).	316
Figure 87 : Distribution de la galène dans les espaces fouillés appartenant à la seconde phase. En transparence, l'emprise du ferrier 2 (violet) et les structures de la phase 1 (bleu).	318
Figure 88 : Masses de galène dans les contextes archéologiques de construction et d'occupation des structures du XIV ^e siècle. Pour chacune d'entre elles, la proportion de chaque catégorie de densité est indiquée dans les colonnes ainsi que la moyenne pondérée en argent (symbole □ et échelle logarithmique).	320
Figure 89 : Distribution de la galène dans les espaces fouillés appartenant à la phase 3. En transparence les structures de la phase 1 (bleu) et 2 (vert et orange).	321
Figure 90 : Masses de galène dans les contextes archéologiques de construction et d'occupation des structures de la première moitié du XV ^e siècle. Pour chacune d'entre elles, la moyenne en argent est indiquée (symbole □ et échelle logarithmique).	322
Figure 91 : Distribution de la galène dans les espaces fouillés appartenant à la phase 4. En transparence les structures de la phase 1 (bleu), 2 (vert et orange) et 3 (rouge).	323

Figure 92 : Premier plan de l'ACP réalisée sur le référentiel de galène défini par sept éléments-traces normalisés avec la méthode du <i>logratio</i> . F1 + F2 = 70,2 % de la variabilité.	328
Figure 93 : Premiers plans de l'ACP réalisée sur les galènes de référence et les galènes archéologiques définies par sept éléments-traces normalisés avec la méthode du <i>logratio</i> . F1 + F2 = 56,2 % de la variabilité, F1 + F3 = 53,6 % de variabilité.	330
Figure 94 : Dendrogramme montrant les résultats de la classification ascendante hiérarchique réalisée sur les quatre premières composantes principales de l'ACP. En incrustation, représentation des sauts d'inertie du jeu de données à chaque création de groupe.	332
Figure 95 : Échantillon de la chalcopryrite CL 11809. La couleur rouille indique la présence d'oxydes et d'hydroxydes de fer.	336
Figure 96 : Distribution de la chalcopryrite sur le site de Castel-Minier.	339
Figure 97 : Premier plan de l'ACP réalisée sur le référentiel (défini par six éléments-traces) de chalcopryrites et sur les exemplaires découverts en contexte archéologique.	342
Figure 98 : Observation sur cassure fraîche de deux échantillons de bournonite découverts en contexte archéologique, CL 10977 (gauche) et CL 11413 (droite).	344
Figure 99 : Distribution spatiale des bournonites archéologiques.	345
Figure 100 : Représentation graphique des rapports isotopiques $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ et $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ en fonction du rapport $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ pour les bournonites archéologiques et différents gisements de la vallée du Garbet.	347
Figure 101 : Image MEB de la tétraédrite (Ttr) CL 12698 montrant une inclusion de galène (Gn).	349
Figure 102 : Distribution spatiale de la tétraédrite archéologique.	350
Figure 103 : Graphique ternaire représentant les teneurs relatives en cuivre, argent et antimoine des tétraédrites de Castel-Minier (issues de contextes archéologiques et prélevées dans la mine) et des mines de Lacore et des Argentières (pour ces deux gisements, les données sont tirées de Munoz M., Baron S., Boucher A., Béziat D. et Salvi S., « Mesozoic vein-type... », <i>op. cit.</i> , p. 326).	352
Figure 104 : Représentation graphique des rapports isotopiques $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ et $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ en fonction du rapport $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ pour les tétraédrites archéologiques et différents gisements de la vallée du Garbet.	352
Figure 105 : Observation au microscope optique du minerai mixte galène-tétraédrite CL11868 et analyse d'image. À gauche : inclusions de tétraédrite (gris foncé), de pyrite (jaune) et de gangue (noir) dans une matrice de galène (gris). À droite : détection informatisée des plages de tétraédrite (rouge) afin de quantifier leur surface.	355
Figure 106: Distribution des minerais mixtes galène-tétraédrite sur le site de Castel-Minier.	356

Figure 107 : Mobilier en plomb de Castel-Minier. À gauche : lingot plano-convexe. En haut à droite : plaque de plomb. En bas à droite : plaque de plomb avec traces de martelage.	362
Figure 108 : Histogramme représentant la répartition des teneurs en argent du corpus de plombs et de galènes archéologiques. Pour ces dernières, la teneur en argent est donnée pour un plomb métallique équivalent.	371
Figure 109 : Teneurs en argent des échantillons de plomb du corpus et proportion de plomb d'œuvre dans chaque structure. La zone grisée représente le domaine des plombs d'œuvre.	374
Figure 110 : Représentation graphique des rapports isotopiques $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ et $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ en fonction du rapport $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ pour sept plombs archéologiques et différents gisements de la vallée du Garbet.	376
Figure 111 : scories plano-convexes CL 11261 (gauche) et CL 11515 (droite).	378
Figure 112 : CL 12700_4 (gauche) : exemple de scorie du premier type. Structure hétérogène contenant des zones scoriacées cristallisées, des plages vitreuses et des grains de quartz partiellement fondus. CL 12100 (droite) : exemple de scorie du second type. Scorie noire, dense et cristallisée avec présence de billes de plomb (flèches rouges), porosités et ségrégation de la structure cristalline (ligne jaune en pointillés).	379
Figure 113 : Section polie de la scorie CL 12768 observée au MEB. Les billes de plomb métallique (blanc) sont disséminées dans une matrice cristallisée formée d'augite.	380
Figure 114 : Représentation des teneurs en magnésie en fonction des teneurs en chaux (gauche) et des teneurs en silice en fonction des teneurs en alumine (droite) pour les scories de réduction de la galène (analyses MEB-EDX).	382
Figure 115 : En haut à gauche : CL 12111, akermanite à tendance squelettique et billes de plomb métallique (blanc) ; En haut à droite : CL 12097, fines dendrites de wüstite dans une matrice formée de cristaux anguleux d'akermanite ; En bas à gauche : CL 12117, dendrites trapues de wüstite et cristaux anguleux d'akermanite. En bas à droite : CL12777, billes de plomb (blanc) dans une matrice d'augite.	384
Figure 116 : Évolution des viscosités extrêmes et moyennes du corpus de scories en fonction de la température. Calculs établis d'après le modèle de Bachmann. À partir de la zone hachurée, la séparation du métal et de la scorie devient difficile.	391
Figure 117 : Distribution spatiale du plomb mis au jour dans les structures archéologiques de la fin du XIII ^e siècle.	393
Figure 118 : Distribution du plomb et des alliages plomb-étain dans les espaces du XIV ^e siècle.	396
Figure 119 : Résultats des analyses spatiales par krigeage effectuées à partir des teneurs XRF en zinc, plomb et cuivre obtenues sur le foyer Fy3058.	397
Figure 120 : Distribution des teneurs en oxydes de plomb des scories issues du bâtiment 10.	399

Figure 121 : À gauche, le four Fr72 en cours de fouille. À droite, la réduction matérialisant le creuset.	400
Figure 122 : En haut, bloc de granite présentant une zone scoriacée adhérant à de l'argile rubéfiée. En bas, plan et coupe du four FR72.	402
Figure 123 : Plans et photographies du four de Cvilínek (haut) et du Mont Lozère (bas). D'après : Hrubý P., Hejhal P., Hoch A., Kočár P., Malý K., Macháňová L., Petr L. et Štelcl J., « Středověký úpravnický a hornický... », <i>op. cit.</i> , p. 366 et suivantes ; Bailly-Maître M.-C., « Le plomb et l'argent dans le Gévaudan ... », <i>op. cit.</i> , 34, 2010, p. 142.....	404
Figure 124 : Différents fours de réduction présentés par Biringuccio dans le chapitre 3 du livre 3 de <i>La pirotechnia</i>	406
Figure 125 : Billes de plomb (haut) et sections polies des scories (bas) piégées dans l'argile du creuset du four Fr72.	407
Figure 126 : Haut : Section polie de la scorie CL12700 et identification des cristaux de galène (flèches noires). En bas à gauche : Image MEB d'un fragment de galène dans une scorie ; les pointillés délimitent les zones en cours de transformation. En bas à droite : identification au microscope optique des produits en cours de formation : anglésite (Ang), litharge (Li) et plomb métallique (Pb).	408
Figure 127 : Tas de charbon sur lequel est placé le minerai dans la procédé westphalien (gauche) ; foyer surélevé doté de plans inclinés du procédé polonais (droite). D'après Hoover H. C. et Hoover L. H., <i>Georgius Agricola De re Metallica...</i> , <i>op. cit.</i> , p. 393.	411
Figure 128 : Plan et coupe d'un <i>bole hearth</i> expérimental construit d'après les exemplaires archéologiques découverts à Cwmystwyth. D'après Anguilano L., Timberlake S. et Rehren T., « An early medieval lead-smelting bole... », <i>op. cit.</i> , p. 99.	412
Figure 129 : Granite partiellement fondu (haut) et paroi de four (bas) provenant de la structure Fr72 avec identification des phases. Phase 1 : scorie (silicate de plomb) ; phase 2 : granite partiellement fondu et scoriacé incorporant de l'oxyde de plomb ; phase 3 : granite partiellement fondu.....	413
Figure 130 : Diagramme ternaire représentant la teneur relatives des principaux oxydes des matériaux du four Fr72, de la gangue du minerai et des scories produites.	414
Figure 131 : À gauche, coupe du four expérimental et emplacement des thermocouples S1, S2 et S3. À droite, construction du four expérimental : restitution du massif granitique et application de l'argile (haut) ; aspect final de la structure (bas).	417
Figure 132 : Coulée de plomb à l'issue d'une expérimentation.	418
Figure 133 : Distribution du plomb et des alliages plomb-étain dans les structures du XIV ^e siècle. Les structures de la phase antérieure figurent en transparence.	423

Figure 134 : Lingot CL 10022 découvert dans le canal des XV ^e et XVI ^e siècles.....	426
Figure 135: Distribution du mobilier en plomb dans les niveaux des XV ^e et XVI ^e siècles. Les structures des phases antérieures figurent en transparence.....	427
Figure 136 : Représentation des teneurs en argent et en antimoine des plombs d'œuvre et identification des groupes.....	429
Figure 137 : Histogramme représentant la distribution des teneurs en cuivre des plombs d'œuvre et des galènes. Pour ces dernières, la teneur en argent est donnée pour un plomb métallique équivalent. En incrustation : diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en argent, cuivre et antimoine des plombs d'œuvre. L'ellipse indique les plombs issus du traitement d'un minerai mixte galène-tétraédrite.	431
Figure 138 : Histogramme représentant la distribution des teneurs en bismuth des plombs d'œuvre et des galènes. Pour ces dernières, la teneur en argent est donnée pour un plomb métallique équivalent.....	432
Figure 139 : À gauche : localisation des billes de plomb (flèches rouges) piégées dans les scories CL 12700. À droite : image MEB d'une bille de plomb et résultats de son analyse.....	433
Figure 140 : Représentations binaires établies à partir des résultats d'analyses LA-ICP-MS. En haut à gauche, teneur en oxyde de plomb en fonction de la teneur en oxyde d'antimoine. En haut à droite, teneur en oxyde de plomb en fonction de la teneur en bismuth. En bas, teneur en chaux en fonction de la teneur en oxyde de strontium.	435
Figure 141: Exemple de structure foyère ayant pu accueillir des opérations métallurgique en lien avec la production de plomb d'œuvre. Fy2467 (Plate-forme 2).	441
Figure 142 : Méthode par débordement de la litharge d'après Rehren T., Vanhove D., Mussche H. F. et Oikonomakou M., « Litharge from Laurion. A medical and metallurgical commodity from South Attika », <i>L'Antiquité classique</i> , 68(1), 1999, p. 301. La paternité du schéma revient en réalité à Constantin Conophagos : Conophagos C., <i>Le Laurium antique...</i> , <i>op. cit.</i> , p. 318.....	446
Figure 143 : Casse de coupellation de Castel-Minier (gauche, CL 11247) et plaque de litharge (droite, CL 10940). Clichés : J.-C. Méaudre.	446
Figure 144 : Scène de coupellation dans un graduel anonyme, Bohème, fin du XV ^e siècle (gauche). Représentation de la coupellation dans le graduel de la collégiale de Saint-Dié-des-Vosges, 1494-1515 (droite).....	454
Figure 145 : Différents fours de coupellation décrits par Biringuccio. En haut à gauche : coupole en brique solidaire de la base du four (procédé tyrolien). En haut à droite : coupole en fer. En bas à gauche : couverture de la sole avec des plaques de terre cuite. En bas à droite : disposition de bûches de chêne au-dessus du foyer.	456

Figure 146 : Gravures tirées du <i>De re metallica</i> présentant le four de coupellation. À gauche, vue éclatée du four et détails des différents éléments. À droite, four en cours de fonctionnement.....	457
Figure 147 : Soles de coupellation dans l'atelier de Sardes (gauche) et casse de coupellation (droite ; diamètre : 15 cm). D'après Ramage A. et Craddock P.T., <i>King Croesus' gold: Excavations at Sardis and the History of Gold Refining: Archaeological Exploration of Sardis</i> , British Museum Press, Cambridge, 2000, p. 80 et 90.	462
Figure 148 : Atelier métallurgique de Bakenaldwarth (île de Man). D'après Blanchard I. « Technical Implications of the Transition from Silver... », <i>op. cit.</i> , p. 10. Initialement publié dans Megaw B., « 'Bakenaldwath' and the Medieval... », <i>op. cit.</i> , p. 106.....	464
Figure 149 : Casse de coupellation CL 11227 vue du dessous et de côté (gauche) et casse CL 13130 (droite). Clichés : J.-C. Méaudre.....	466
Figure 150 : Casse de coupellation CL 11251 vue du dessus et de côté. Restitution du diamètre initial de la sole. La flèche rouge représente l'épaisseur utile. Clichés et dessins : J.-C. Méaudre.	467
Figure 151 : Volume utile des casses de coupellation et calcul de la masse de plomb d'œuvre qu'elles pouvaient accueillir. Le code laboratoire de chaque individu figure en haut des colonnes tandis que la structure dont il provient est reportée au bas. Les classes sont individualisées par un code couleur.	468
Figure 152 : Localisation des casses de coupellation dans les espaces fouillés.	470
Figure 153 : Proportion de la masse totale du corpus de casses de coupellation dans les espaces fouillés.....	472
Figure 154 : Section polie de la casse de coupellation CL 11410. Identification de la stratification.....	474
Figure 155 : Représentation des teneurs (renormalisées) en chaux et en oxyde de phosphore pour les casses de coupellation et divers types de cendres. Les points correspondant à la cendre d'os de caprin et d'ovin sont pratiquement confondus. .	476
Figure 156 : Diagramme ternaire représentant les teneurs en alumine, chaux et silice des casses de coupellation, des argiles cuites des foyers, du mobilier céramique et des cendres de bois.....	480
Figure 157 : Sole de coupellation (US 3219) découverte dans la pente du Plat-du-Roi. D'après Téreygeol F., <i>Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09) Rapport intermédiaire</i> , SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, 2016, p. 38.	482
Figure 158 : Coupellation expérimentale. À gauche : structure de chauffe employée : foyer et coupole amovible. En haut à droite : bain métallique en cours d'oxydation. En bas à droite : aspect du foyer après prélèvement de la sole usagée. Illustrations tirées de Gauthier J., Flament J., Méaudre J.-C., Sarah G., Silenzi F. et Téreygeol F., « L'affinage au sol à moyenne échelle... », <i>op. cit.</i> , p. 108-137.	485

Figure 159 : Représentation des teneurs en bismuth et en argent des billes métalliques présentes à la surface des casses de coupellation. L'enrichissement en bismuth indique que la coupellation a débuté.	492
Figure 160 : Teneur en argent des billes métalliques selon leur position sur une casse de coupellation archéologique (gauche) et expérimentale (droite).	494
Figure 161 : Résultats de l'interpolation spatiale des teneurs en argent obtenue par la méthode du krigeage à partir des analyses élémentaires des billes métalliques disséminées à la surface d'une casse de coupellation archéologique (gauche, CL 11248) et expérimentale (droite).....	496
Figure 162 : Diagramme d'Ellingham modifié d'après Pernicka E., « Erzlagerstätten in der Ägäis und ihre Ausbeutung im Altertum : Geochemische Untersuchungen zur Herkunftsbestimmung archäologischer Metallobjekte », <i>Jahrbuch d. Romisch-Germanischen Zentralmuseums Mainz</i> , 34, 1987, p. 631. La zone rouge correspond au domaine de températures dans lequel est conduite la coupellation.....	498
Figure 163 : Évolution des teneurs en arsenic et en antimoine au cours de la coupellation. Les teneurs en argent figurent au-dessus des colonnes : elles permettent d'apprécier l'avancement de la coupellation. Les seuils sont matérialisés par des lignes rouges.	500
Figure 164 : Évolution des teneurs en zinc et en cuivre au cours de la coupellation. Les teneurs en argent figurent au-dessus des colonnes : elles permettent d'apprécier l'avancement de la coupellation.....	502
Figure 165 : Évolution des teneurs en bismuth et en rhodium au cours de la coupellation. Les teneurs en argent figurent au-dessus des colonnes : elles permettent d'apprécier l'avancement de la coupellation. Les seuils sont matérialisés par des lignes rouges.	503
Figure 166 : Évolution des teneurs en palladium et en or au cours de la coupellation. Les teneurs en argent figurent au-dessus des colonnes : elles permettent d'apprécier l'avancement de la coupellation. Le seuil est matérialisé par une ligne rouge.....	505
Figure 167 : Vue en coupe de la casse de coupellation CL 11957 et identification de billes métalliques de différentes tailles (image MEB).	507
Figure 168 : Distribution des billes métalliques dans l'épaisseur d'une casse de coupellation expérimentale (haut) et archéologique (bas, CL 11252). Sur cette dernière, les lignes en pointillés matérialisent les deux soles usagées.....	509
Figure 169 : Coupe du bloc de litharge CL 11244. Les cercles en pointillés indiquent la localisation des billes métalliques.	511
Figure 170 : Typologie des litharges. Culot (CL 11231), plaques (CL 12691, CL 12707 et CL 11897), fragments informes (CL 10924) et empreinte (CL 10831).	512
Figure 171 : Localisation des litharges dans les structures de la fin du XIII ^e siècle... 513	
Figure 172 : À gauche, four Fr62 à sole suspendue et dont un piédroit réemploie un fragment de meule. À droite, hypothétique four de coupellation Fr42 avec en	

incrustation la coulée de litharge. Ces deux structures de chauffe se trouvent dans le bâtiment 10.	515
Figure 173 : Localisation des litharges dans les structures du XIV ^e siècle.	515
Figure 174 : Localisation des litharges dans les structures de la première moitié du XV ^e siècle.	516
Figure 175 : Histogramme représentant la distribution des teneurs en argent dans les litharges.	518
Figure 176 : Histogramme représentant la distribution des teneurs en antimoine, bismuth, cuivre et zinc dans les litharges et les plombs d'œuvre. Pour les besoins de la comparaison, les valeurs données pour les litharges ont été recalculées. Pour le bismuth une litharge et un plomb d'œuvre présentent des teneurs hors du graphique (respectivement 120 et 245 ppm).	519
Figure 177 : Représentation des teneurs en argent et en bismuth des litharges. Le cercle noir contient les litharges prélevées à la fin de la coupellation.	521
Figure 178: Diagramme en barre représentant le rapport Ag/Sb et la teneur en argent correspondante pour les plombs de Castel-Minier. La ligne verticale rouge représente le seuil du plomb d'œuvre (800 ppm).	526
Figure 179 : Planche présentant les alliages plomb-argent découverts à Castel-Minier.	528
Figure 180 : Teneurs en argent des alliages argent-plomb obtenus à l'issue d'une coupellation expérimentale. Les variations de couleur permettent d'apprécier l'hétérogénéité des niveaux d'affinage.	530
Figure 181 : Planche présentant le fragment de creuset CL 11059 et la bille métallique qu'il contient. Clichés et dessins : J.-C. Méaudre.	532
Figure 182 : À gauche, planche présentant la céramique évasée CL 11123 et les billes métalliques qu'elle contient (clichés et dessins J.-C. Méaudre). À droite, confection des soles d'affinage dans le <i>De re metallica</i> d'Argicola (d'après Hoover H. C. et Hoover L. H., <i>Georgius Agricola De re Metallica...</i> , <i>op. cit.</i> , p. 484).	534
Figure 183 : Distribution des alliages plomb-argent, des céramiques métallurgiques et du mobilier métrologique dans les espaces de la fin du XIII ^e siècle et du XIV ^e siècle.	536
Figure 184 : Mobilier métrologique. À gauche: poids marchand monétiforme de la ville de Toulouse. À droite, godet d'une pile dite de Charlemagne. Clichés et dessins : J.-C. Méaudre.	537
Figure 185 : La pesée d'un lingot d'argent à La-Croix-aux-Mines. On distingue les godets d'une pile sur la table et dans le plateau de la balance. D'après Groff H., Bari H., Benoit P. et Brugerolles E., <i>La mine, mode d'emploi...</i> , <i>op. cit.</i> , p. 52.	538
Figure 186 : Planche figurant plusieurs exemples d'objets exogènes. D'après Téreygeol F., <i>Le Castel-Minier (Aulus-les-Bains, 09) Rapport intermédiaire 2015</i> , SRA Midi-Pyrénées, Toulouse, annexe 2, planche 21.	543

Figure 187 : Nombre d'individus de chaque catégorie du corpus (entre parenthèses) et pourcentage de la masse totale.	546
Figure 188 : Exemples d'objets en alliages cuivreux sélectionnés pour l'étude : tôles et déchets de coulée (trois premiers depuis la droite).....	546
Figure 189 : Classification du mobilier cuivreux selon les teneurs relatives en éléments d'alliage. Diagramme ternaire adapté d'après Bayley J., « Alloy nomenclature », <i>op. cit.</i> , p. 14.	551
Figure 190 : Effectifs et masse des catégories d'alliages cuivreux mises en évidence à Castel-Minier.....	552
Figure 191 : Diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en étain, zinc et plomb des alliages cuivreux de Castel-Minier analysés par LA-ICP-MS.	562
Figure 192: Distribution des teneurs en zinc des laitons archéologiques.	563
Figure 193: Distribution des teneurs en étain des bronzes et des bronzes au plomb archéologiques.	564
Figure 194 : Distribution des teneurs en étain des laitons rouges archéologiques (gauche). Représentation des teneurs en zinc et en plomb des laitons rouges (droite).	566
Figure 195 : Répartition du cuivre non allié dans les structures archéologiques de la fin du XIII ^e siècle.....	567
Figure 196 : Résultats du krigeage réalisé à partir des analyses XRF ponctuelles des foyers Fy2482 et Fy2479 pour les teneurs en zinc, plomb et cuivre.	569
Figure 197 : Répartition du cuivre non allié dans les structures archéologiques de la fin du XIV ^e siècle. Les structures de la phase précédentes figurent en transparence ainsi que l'emprise du ferrier 2 qui contient les individus CL 11423, CL 11501 et CL 12511.....	570
Figure 198 : Répartition du cuivre non allié dans les structures archéologiques de la fin du XV ^e siècle. Les structures des phases précédentes figurent en transparence..	571
Figure 199 : Distribution des épaisseurs des tôles en cuivre non allié.	573
Figure 200 : En haut à gauche : section polie de la tôle CL 10928 après attaque au perchlorure de fer. Structure granulaire déformée par martelage. En haut à droite : section polie de la tôle CL 11958 après attaque au perchlorure de fer, structure après recuit. Grains équiaxes et macles thermiques. En bas à gauche : section polie de la tôle CL 12159 sans attaque. Porosité et corrosion de surface. En bas à droite : section polie du déchet de coulée CL 11678 après attaque au perchlorure de fer. Structure granulaire maclée thermiquement, nombreuses porosités et petites inclusions de sulfures (gris).	573
Figure 201: Haut, résultats de nos expérimentations à petite échelle d'après la recette de Lazarus Ercker. Bas, expérimentations conduites par Burger à partir de données issues de contextes préhistoriques. (Cliché d'après Burger E., <i>Métallurgie extractive protohistorique du cuivre : Etude thermodynamique et cinétique des réactions chimiques de</i>	

<i>transformation de minerais de cuivre sulfurés en métal et caractérisation des procédés</i> , thèse de 3 ^e cycle, Université Pierre et Marie Curie, 2008, p. 235).	578
Figure 202 : Rapports entre les éléments-traces et le cuivre pour la chalcoppyrite et le métal obtenu à l'issue de sa transformation dans le cadre de notre expérimentation à petite échelle. Les teneurs de la chalcoppyrite ont été renormalisées après élimination du soufre.	579
Figure 203 : Teneurs cumulées des éléments-traces mesurés dans les cuivres non alliés, classés suivant la phase chronologique à laquelle ils appartiennent puis par valeurs croissantes.	582
Figure 204 : Distribution des teneurs en fer dans les cuivres non alliées. Un individu contenant 3 % de fer (CL 12159) est en dehors du graphique.	583
Figure 205 : Représentation des teneurs en argent et en nickel des cuivres non alliés et des chalcoppyrites (archéologiques et issues des prospections) pour lesquelles un rapprochement avec les métaux peut être proposé. Pour permettre la comparaison, les teneurs des chalcoppyrites ont été recalculées.	584
Figure 206 : Représentation des teneurs en zinc et en nickel des cuivres non alliés.	585
Figure 207 : Représentation du rapport nickel/argent et des teneurs en zinc des cuivres non alliés.	586
Figure 208 : Emprise de l'US 3067/3091 dans la pente du Plat-du-Roi et contre la muraille M37.	588
Figure 209 : Échantillons de scories cuivreuses provenant de l'US 3067/3091.	589
Figure 210 : Sections polies de deux scories de la première catégorie. La ligne en pointillés marque la séparation entre la zone rouge et la zone grise.	591
Figure 211 : Sections polies de deux scories de la seconde catégorie. La ligne en pointillés marque la séparation entre la scorie et la bournonite en cours de transformation.	593
Figure 212 : Exemples de billes observées au MEB dans les scories issues du traitement de la bournonite. Les pourcentages massiques des métaux, oxydes ou sulfures sont indiqués entre parenthèses. À gauche, bille de litharge et plages d'oxydes de plomb et d'antimoine dans un matrice formée d'un alliage cuivre-antimoine. À droite, alliage ternaire cuivre-antimoine-plomb entouré par de la chalcocite.	594
Figure 213 : Sections polies des mattes CL 12490_1 et CL 12826. La ligne en pointillés délimite la zone bulleuse et la zone compacte. On distingue des inclusions de scorie et de gangue dans la partie supérieure de l'individu CL 12826.	595
Figure 214: Cliché MEB de la microstructure de la matre CL 12490_1 (gauche) et CL 12490_2 (droite). À gauche : composition élémentaire des phases noire, grise et blanche. Teneurs en %. À droite : détail de la structure eutectique formée de bandes alternées blanches (riche en sulfure de cuivre) et noires (riche en sulfure de plomb).	596

Figure 215 : À gauche : résultats des analyses globales des mattes par MEB-EDX (teneurs en %). À droite : diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en plomb, antimoine et cuivre dans les mattes et les bournonites.....	597
Figure 216 : Fragment de fond de réacteur CL 13170 (gauche) et observation microscopique de la coupe (droite) : matte de cuivre (noir), oxydes et sulfures de cuivre incorporant quelques pour cent d'antimoine (gris foncé), sulfate de plomb (gris clair), oxyde de plomb incorporant quelques pour cent d'antimoine (blanc). En bas : section de la sole dont l'axe de découpe figure en pointillés sur le cliché en haut à gauche : mise en évidence du matériau argilo-sableux et de produits d'altération cuivreux.	598
Figure 217 : Image MEB de la section polie du bouton métallique obtenu après la première réduction de bournonite.....	600
Figure 218 : Analyses par MEB-EDX des phases du bouton métallique obtenu après la première réduction de bournonite. Teneurs en %.....	601
Figure 219 : Image MEB de la section polie du bouton du bouton métallique obtenu après la deuxième réduction de bournonite.....	602
Figure 220 : Analyses par MEB-EDX des phases du bouton métallique obtenu après la deuxième réduction de bournonite. Teneurs en %.....	603
Figure 221 : Image MEB de la section du bouton obtenu à l'issue de la troisième réduction (gauche) : dendrites de matte de plomb (blanc), matte de cuivre-antimoine-plomb (gris), matte de cuivre-antimoine (noir). À droite, résultats de l'analyse élémentaire des phases par MEB-EDX. Teneurs en %.....	604
Figure 222 : Demi-produits issus du traitement de la bournonite. À gauche lingot CL 11095 ; à droite, fragment de tôle CL 12174c. Clichés : J.-C. Méaudre.	606
Figure 223 : Gauche : Observation MEB de la microstructure de l'alliage ternaire CL 11095 et compositions des phases déterminées par MEB-EDX (teneurs en %). Matrice riche en plomb, phase (Pb) (blanc) contenant des dendrites de la phase η (noir) et la phase riche en antimoine (Sb) (gris). Droite : Surface de liquidus dans le système ternaire Cu-Sb-Pb d'après Korniyenko K., « Cu-Pb-Sb (Copper-Lead-Antimony) ... », <i>op. cit.</i> , p. 404. Unités en pourcentages atomiques relatifs.	607
Figure 224 : Diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en cuivre, plomb et antimoine des demi-produits métalliques et des bournonites.	608
Figure 225 : représentation graphique des rapports isotopiques $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ et $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ en fonction du rapport $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ pour les bournonites archéologiques, l'alliage ternaire plomb-antimoine-cuivre (CL 11095) et plusieurs gisements de la vallée du Garbet.....	610
Figure 226 : Profils de concentrations obtenus par LA-ICP-MS pour 8 éléments de la tôle de bronze au plomb antimonié CL 11107.....	612
Figure 227 : Planche représentant les échantillons de bronze au plomb antimonié avec détail des traits de coupe sur la tôle CL 11088.	613

Figure 228 : Observation au microscope optique avant (gauche) et après (droite) attaque au perchlorure de fer du bronze au plomb antimonié CL 11107. À gauche, dendrites formées d'un alliage cuivre-antimoine-étain (gris), matrice riche en cuivre (jaune) et précipités de plomb (noir). À droite, aspect des dendrites après attaque chimique.	614
Figure 229 : Diagramme ternaire représentant les teneurs relatives en cuivre, antimoine+plomb et étain+arsenic+nickel des alliages ternaires issus de la bournonite, des bronzes sélectionnés et des bronzes au plomb antimoniés (<i>caldarium</i>). La régression linéaire illustre le modèle de dilution proposé.....	621
Figure 230 : Représentation des teneurs en nickel, plomb et arsenic en fonction des teneurs en étain pour les demi-produits en <i>caldarium</i> (gauche). Représentation des teneurs en arsenic et en nickel en fonction des teneurs en plomb pour les demi-produits en <i>caldarium</i> (droite). Mise en évidence des corrélations.	623
Figure 231 : « Carcasses » de ressuage expérimentale (gauche) d'après L'Héritier M. et Téreygeol F., « From copper to silver... », <i>op. cit.</i> , p. 141 et 143. À droite cuivre au plomb CL 11148.	624
Figure 232 : Distribution du mobilier métallurgique de la chaîne opératoire de la bournonite et du <i>caldarium</i> dans les structures archéologiques. L'emprise du ferrier 2 figure en transparence. Il contient les individus CL 10977 et CL 11095.....	626
Figure 233 : Espaces miniers prospectés dans la vicomté de Couserans.	636
Figure 234 : Gisements des vallées d'Aulus et de l'Ars approvisionnant les ateliers de Castel-Minier.....	640
Figure 235 : Localisation des ateliers monétaires médiévaux du Midi de la France et du trésor de Mirepoix.	653
Figure 236 : Localisations des sites d'Urrobi et de Montbolo.	656

Table des tableaux

Tableau 1 : Paramètres des analyses (E)MEB-EDX conduites à l'IRAMAT-CEB.	154
Tableau 2 : Caractéristiques des spectromètres de fluorescence X utilisés.....	156
Tableau 3 : Limites de détection des éléments mesurés dans les galènes. Calcul fondé sur une approche « 3σ ». Sauf mention contraire, les valeurs sont en ppm.	175
Tableau 4 : Limites de détection de la méthode LA-ICP-MS développée pour l'analyse des alliages cuivreux.	195
Tableau 5 : Résultats des analyses élémentaires par LA-ICP-MS des galènes issues des prospections. Sauf indication contraire, les teneurs sont en ppm. Pour chaque gisement, la teneur moyenne a été obtenue à partir de trois analyses réalisées sur un échantillon de minerai.	232
Tableau 6 : Résultats des analyses élémentaires LA-ICP-MS des chalcopyrites issues des prospections. Sauf indication contraire, les teneurs sont en ppm. Pour chaque gisement, la teneur moyenne a été obtenue à partir de trois analyses réalisées sur un échantillon de minerai.	233
Tableau 7 : Résultats des analyses élémentaires LA-ICP-MS des chalcopyrites prélevées dans la mine de Castel-Minier. Sauf indication contraire, les teneurs sont en ppm. Pour chaque prélèvement, la teneur moyenne a été obtenue à partir de trois analyses réalisées sur un échantillon de minerai.....	250
Tableau 8 : Résultat de l'analyse élémentaire MEB-EDX de la tétraédrite prélevée dans la mine de Castel-Minier. Teneur moyenne obtenue à partir de trois analyses réalisées sur un échantillon de minerai.....	252
Tableau 9 : Résultats des analyses élémentaires par LA-ICP-MS des galènes prélevées dans la mine de Castel-Minier. Sauf indication contraire, les teneurs sont en ppm. Se reporter à la figure 64 pour la localisation des prélèvements.....	254
Tableau 10 : Répartition des minerais archéologiques mis au jour à Castel-Minier.	291
Tableau 11 : Caractéristiques des domaines de densité de la galène. Le domaine « intermédiaire » n'a pas de valeurs moyennes puisqu'il est défini par les <i>extrema</i> des domaines « faible » et « élevé ». Les volumes de gangue mêlée aux minerais de chaque catégorie ont été calculés en fixant la densité de la gangue à 2,7. Cette valeur est proche de celle du quartz et de la dolomie qui constituent l'essentiel des gangues des minerais archéologiques.....	297
Tableau 12 : Résultats des analyses par LA-ICP-MS des galènes archéologiques. Sauf mention contraire, les valeurs sont exprimées en ppm.	306
Tableau 13 : Analyses MEB-EDX des gangues de galènes de densité intermédiaire et faible de Castel-Minier.....	308
Tableau 14 : Teneur en argent des galènes issues de sites miniers et/ou métallurgiques médiévaux. Lorsque plusieurs analyses sont disponibles, la valeur moyenne est indiquée entre parenthèses. La teneur en argent élevée de l'échantillon	

de Cvilínek traduit certainement la nature mixte du minerai qui associe de la galène et, en quantité moindre, un cuivre argentifère.....	309
Tableau 15 : Composition élémentaire des chalcopyrites archéologiques déterminée par LA-ICP-MS. Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm.	337
Tableau 16 : Analyse LA-ICP-MS des bournonites archéologiques. Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm.	344
Tableau 17 : Analyse LA-ICP-MS des tétraédrites archéologiques. Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm.	349
Tableau 18 : Résultats des analyses élémentaires globales par LA-ICP-MS des minerais mixtes galène-tétraédrite et quantification de la proportion (en masse) de tétraédrite.	355
Tableau 19 : Catégories morphologiques du corpus des plombs de Castel-Minier. .	361
Tableau 20 : Résultats des analyses LA-ICP-MS réalisées sur le corpus de plombs de Castel-Minier. Sauf mention contraire, toutes les teneurs sont en ppm.	367
Tableau 21 : Teneur en argent des plombs sélectionnés pour l'analyse isotopique. .	375
Tableau 22 : Compositions semi-quantitatives des scories de réduction de la galène déterminées par MEB-EDX.	383
Tableau 23 : Phases cristallines identifiées par DRX et analyses MEB-EDX correspondante.	387
Tableau 24 : Indice de viscosité K_v des scories archéologiques et calcul de la viscosité pour différentes températures.....	390
Tableau 25 : Teneurs de six métaux dans l'argile des foyers de la fin du XIII ^e siècle. Analyses LA-ICP-MS. Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm.	394
Tableau 26 : Nature des charges et des produits des expérimentations et calcul des rendements.	419
Tableau 27 : Teneurs de six métaux dans l'argile du foyer Fy2436. Analyses LA-ICP-MS. Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm.	425
Tableau 28 : Résultats des analyses LA-ICP-MS des scories issues de la transformation du plomb. Sauf mention contraire, les teneurs sont en ppm.....	436
Tableau 29 : Résultats de l'analyse LA-ICP-MS de la galène et des plombs expérimentaux. Sauf mention contraire, les teneurs sont en ppm.....	438
Tableau 30 : Teneurs de six métaux des plombs expérimentaux produits à partir de la galène archéologique CL 12806. Analyses LA-ICP-MS. Sauf mention contraire, les teneurs sont en ppm.....	439
Tableau 31 : Résultats des analyses globales par MEB-EDX des casses de coupellation de Castel-Minier. Les individus suivis d'un astérisque ont été analysés par F. Silenzi (2014). L'argent faisait partie des éléments mesurés, mais n'a jamais été détecté.....	473
Tableau 32 : Composition moyenne des différentes zones des casses de coupellation analysées par MEB-EDX. Données d'après Silenzi (2014) et nos propres mesures. ..	475

Tableau 33 : Compositions élémentaires renormalisées des casses de coupellation et des cendres étudiées.	478
Tableau 34 : Résultats des analyses par LA-ICP-MS des billes métalliques présentes à la surface des casses de coupellation. Sauf mention contraire, toutes les valeurs sont en ppm. Le code laboratoire des billes est souligné lorsqu'il s'agit de plomb d'œuvre.	490
Tableau 35 : Classification morphologique du corpus de litharge de Castel-Minier.	510
Tableau 36 : Résultats des analyses LA-ICP-MS des litharges. Sauf mention contraire, les valeurs sont en ppm. Pour chaque individu, la composition moyenne a été calculée à partir de trois analyses.	523
Tableau 37 : Résultats des analyses élémentaires par LA-ICP-MS des alliages plomb-argent. Sauf mention contraire, les valeurs sont en ppm.	529
Tableau 38 : Résultats de l'analyse LA-ICP-MS de la bille métallique contenue dans le creuset CL 11059. Sauf mention contraire, les valeurs sont en ppm.	531
Tableau 39 : Résultats des analyses LA-ICP-MS des billes métalliques contenues dans le creuset CL 11123. Sauf mention contraire, les valeurs sont en ppm.	533
Tableau 40 : Résultats des analyses par LA-ICP-MS réalisées sur le corpus de mobilier cuivreux. Pour chaque individu, la composition moyenne a été calculée à partir de trois analyses. Sauf mention contraire, les teneurs sont exprimées en ppm.	560
Tableau 41 : Résultats des analyses par MEB-EDX des scories de la première catégorie et valeur de l'indice de viscosité (Kv). La composition globale correspond à la moyenne de trois analyses sur une surface d'environ 1 mm ²	592
Tableau 42 : Résultats des analyses par MEB-EDX des scories de la seconde catégorie et valeur de l'indice de viscosité (Kv). La composition globale correspond à la moyenne de trois analyses sur une surface d'environ 1 mm ²	593
Tableau 43 : Compositions élémentaires déterminées par LA-ICP-MS des alliages plomb-antimoine-cuivre. Sauf mention contraire, les valeurs sont exprimées en ppm.	606
Tableau 44 : Analyse élémentaire par LA-ICP-MS du fragment informe CL 12838. Sauf mention contraire, les teneurs sont exprimées en ppm.	609
Tableau 45 : Compositions élémentaires déterminées par LA-ICP-MS des bronzes au plomb antimoniés. Sauf mention contraire, les teneurs sont en ppm.	611
Tableau 46 : Résultats des analyses MEB-EDX des phases du bronze au plomb antimonié CL 11107. Teneurs moyennes exprimées en % et calculées à partir de trois analyses couvrant environ 1 mm ²	614
Tableau 47 : Compositions élémentaire des bronzes au plomb antimoniés de Castel-Minier et de l'étude de Dungworth et Nicholas (teneur moyenne calculée à partir de 85 individus. Bien que la variation des teneurs de chaque élément au sein du corpus soit présentée sur des histogrammes, les auteurs ne donnent pas l'écart-type de la	

composition moyenne que nous reproduisons dans ce tableau) ; n.m. : non mesuré.
..... 616

Tableau 48 : Proportions de bronze (à 14 % d'étain) et de sous-produit cuivreux permettant de produire les demi-produits en *caldarium*. Pour chaque artéfact en *caldarium*, la composition hypothétique du sous-produit cuivreux allié avec le bronze est donnée..... 623

Tableau 49 : Résultats des analyses par LA-ICP-MS des cuivres au plomb. Sauf mention contraire, les teneurs sont exprimées en ppm. 624

Julien FLAMENT

Les métallurgies associées de la fin du XIII^e siècle au XV^e siècle
L'argent, les cuivres et le plomb à Castel-Minier (Ariège, France)

Résumé :

Les Pyrénées centrales font l'objet, depuis plusieurs décennies, de recherches pluridisciplinaires consacrées aux exploitations minières et métallurgiques médiévales. Dans l'ancienne vicomté de Couserans, les fouilles archéologiques ont permis de mettre au jour le site de Castel-Minier qui s'avère être un témoin majeur des activités d'extraction des minerais et des métaux entre la fin du XIII^e siècle et le XV^e siècle. Le mobilier archéologique mis au jour a permis de mettre en évidence la vocation polymétallique de l'atelier qui se caractérise par la pratique de plusieurs métallurgies qui concernent l'argent, le cuivre et ses alliages et le plomb. Notre travail a pour objectifs d'une part, d'identifier la nature et l'origine des ressources minérales qui approvisionnent le site et d'autre part, de comprendre l'organisation fonctionnelle des différents espaces de travail à travers la restitution des chaînes opératoires.

Nos recherches sont conduites dans une perspective pluridisciplinaire qui associe l'étude des sources écrites et iconographiques, les résultats des fouilles archéologiques mais également les données issues des analyses archéométriques du mobilier. Les résultats obtenus mettent en évidence, outre la transformation de la galène argentifère pour en extraire l'argent, une production de plomb désargenté, de cuivre non allié et de bronze au plomb antimonié, ou *caldarium*. Chaque chaîne opératoire fait l'objet d'une étude détaillée où sont discutées les pratiques techniques mais également les formes et les qualités des productions. L'association de plusieurs activités métallurgiques dans les ateliers de Castel-Minier est l'occasion d'aborder la question de la polyvalence et de l'expertise des ouvriers mais également de discuter leur capacité d'adaptation suivant les opportunités minières et les attentes du marché des métaux.

Mots clés : Pyrénées, Couserans, archéométrie, archéologie, métallurgie, métaux non-ferreux, LA-ICP-MS

Associated metallurgies from the late 13th century to the 15th century
Silver, copper alloys and lead in Castel-Minier (Ariège, France)

Abstract:

For several decades, the central Pyrenees have been the subject of multidisciplinary researches, which deal with medieval mining and metallurgical activities. In the ancient viscounty of Couserans, archaeological excavations unearthed the site of Castel-Minier site, which played a major role in mining and metals production between the late 13th and 15th centuries. The artefacts uncovered have highlighted the polymetallic activities of the workshop, which is characterized by the practice of several metallurgies concerning silver, copper and its alloys and lead. Our work aims, on the one hand, to identify the nature and origin of the mineral resources that supply the site and, on the other hand, to understand the functional organisation of the different workspaces through the restitution of the *chaînes opératoires*.

Our research is carried out from a multidisciplinary perspective, combining the study of textual and iconographic sources, the results of archaeological excavations and data from the archaeometric studies of the metallurgical artefacts. The results show, besides the transformation of argentiferous galena to extract silver, the production of desilvered lead, unalloyed copper and antimony-lead bronze, or *caldarium*. Each *chaîne opératoire* is subject to a detailed study in which technical practices are discussed, as well as the forms and qualities of production. The association of several metallurgical activities in Castel-Minier workshops is an opportunity to address the issue of workers' multi-skilling and expertise, and also to discuss their adaptability according to the mining opportunities and the expectations of the metals market.

Keywords: Pyrenees, Couserans, archaeometry, archaeology, metallurgy, non-ferrous metals, LA-ICP-MS



IRAMAT Centre Ernest-Babelon
3D rue de la Férollerie
45071 Orléans Cedex 2



ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES DE L'HOMME ET DE LA SOCIÉTÉ

Institut de Recherche sur les Archéomatériaux, Centre Ernest-Babelon

UMR 5060, CNRS-Université d'Orléans

THÈSE présentée par :

Julien FLAMENT

Soutenue publiquement le 4 décembre 2017

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université d'Orléans**

Discipline/ Spécialité : Histoire

**Les métallurgies associées
de la fin du XIII^e siècle au XV^e siècle**

L'argent, les cuivres et le plomb à Castel-Minier
(Ariège, France)

Volume II : Annexes

THÈSE dirigée par :

Bernard Gratuze

Directeur de recherches, CNRS, IRAMAT-CEB

Co-encadrée par :

Guillaume Sarah

Florian Téreygeol

Chargé de recherches, CNRS, IRAMAT-CEB

Chargé de recherches, CNRS, IRAMAT-LMC

RAPPORTEURS :

Giovanna Bianchi

Didier Boisseuil

Professeur, Università di Siena

Maître de conférences HDR, Université de Tours

JURY :

Giovanna Bianchi

Didier Boisseuil

Bernard Gratuze

Marcos Martín-Torres

Guillaume Sarah

Florian Téreygeol

Professeur, Università di Siena

Maître de conférences HDR, Université de Tours

Directeur de recherches, CNRS, IRAMAT-CEB

Professeur, University College London

Chargé de recherches, CNRS, IRAMAT-CEB

Chargé de recherches, CNRS, IRAMAT-LMC

**Les métallurgies associées
de la fin du XIII^e siècle au XV^e siècle**

L'argent, les cuivres et le plomb à Castel-Minier (Ariège, France)

Julien Flament

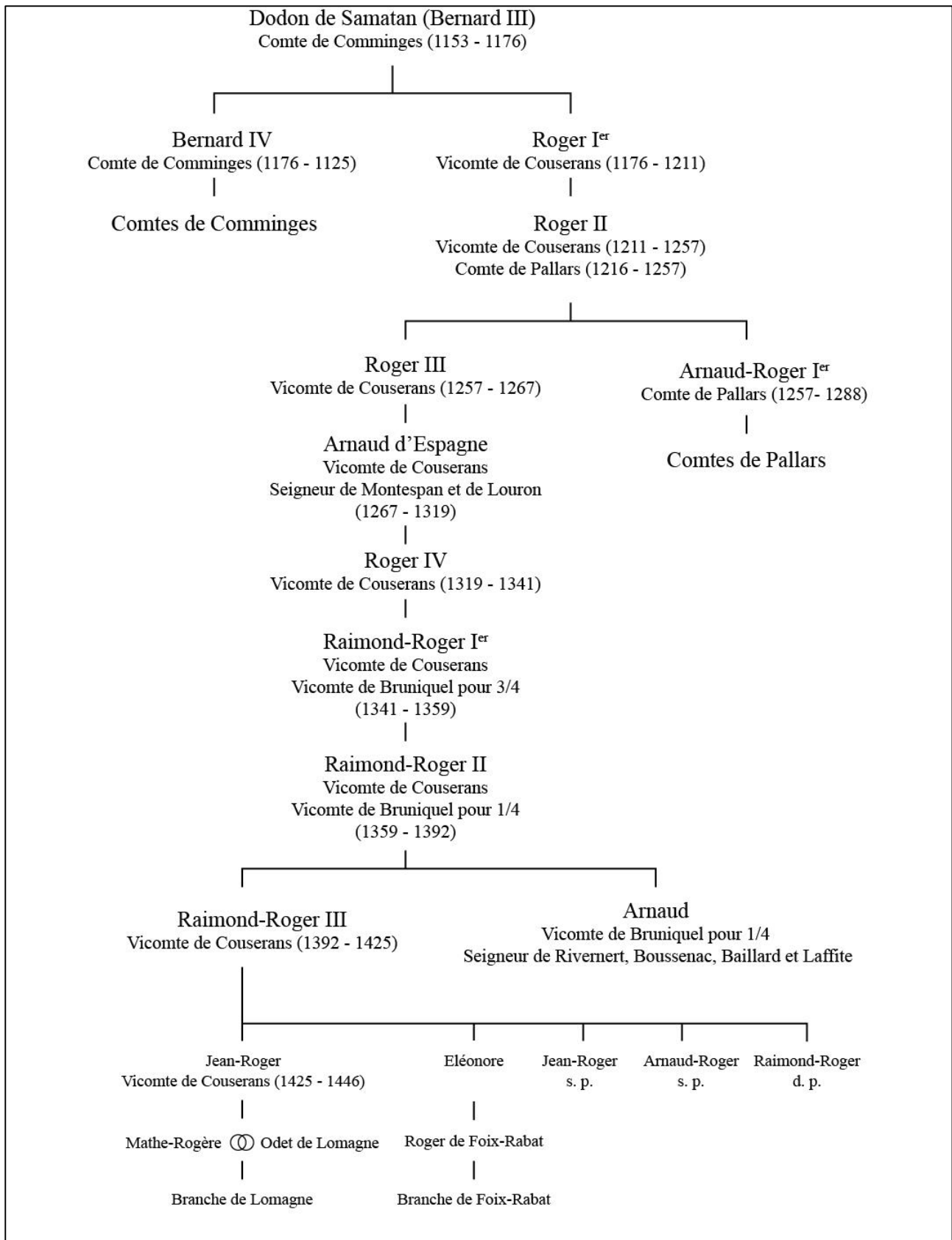
2017

Volume II : Annexes

Sommaire du volume II

Annexe 1 : Généalogie simplifiée de la maison de Couserans.....	7
Annexe 2 : Calcul des limites de détection des méthodes d'analyse LA-ICP-MS	9
Annexe 3 : Compositions élémentaires des matériaux de référence	13
Annexe 4 : Relation entre l'énergie du laser et la fluence.....	17
Annexe 5 : Protocole de préparation des échantillons pour la mesure des isotopes du plomb (pour les analyses réalisées BRGM) et valeurs des rapports isotopiques des objets étudiés.....	19
Annexe 6 : Plombs	23
Annexe 7 : Scories plombifères.....	34
Annexe 8 : Casses de coupellation	38
Annexe 9 : Litharges.....	55
Annexe 10 : Alliages Pb/Ag.....	61
Annexe 11 : Céramiques métallurgiques	63
Annexe 12 : Mobilier métrologique	65
Annexe 13 : Cuivres non alliés	67
Annexe 14 : Bronzes, bronzes au plomb et laitons rouges	71
Annexe 15 : Laitons	74
Annexe 16 : Alliages ternaires Pb-Sb-Cu, antimoine et cuivres au plomb.....	76
Annexe 17 : Scories cuivreuses.....	78
Annexe 18 : <i>Caldarium</i>	81
Annexe 19 : Foyers métallurgiques et domestiques	83
Annexe 20 : Fours du bâtiment 10.....	88
Annexe 21 : Résultats des analyses LA-ICP-MS réalisées sur le corpus de plombs....	93

Annexe 1 : Généalogie simplifiée de la maison de Couserans



Sources utilisées :

- Pailhès C., « Les cadres institutionnels du Couserans médiéval », *Archives ariègeoises*, 2009, p. 9-61.
- Higounet C., *Le comté de Comminges de ses origines à son annexion à la couronne*, L'Adret, Toulouse, 1984.
- Bourret C., « Les relations féodales Couserans Pallars au Moyen Âge. Les vicomtes de Couserans et le comté de Pallars Sobira au XIII^e siècle et au début du XIV^e siècle », *Du Couserans au gave de Pau. Tradition et renouveau. Actes du XL^e congrès d'études régionales, 28-30 juin 1985, Saint-Girons*, Fédération des sociétés académiques et savantes de Languedoc Pyrénées Gascogne (éd.), Y. Mauri, 1985, p. 109-128.
- D'Alauzier L., « Suite des vicomtes de Couserans au XIV^e siècle », *Pays de l'Ariège: archéologie, histoire, géographie: actes du XVI^e congrès d'études de la Fédération des sociétés académiques et savantes Languedoc-Pyrénées-Gascogne, Foix, 28-30 mai 1960*, Cocharaux, Auch, 1961, p. 141-144.
- Samiac F.-J., « Les derniers Comminges de Couserans », *Bulletin de la société ariégeoise des sciences lettres et arts*, 1914, p. 49-60.

Annexe 2 : Calcul des limites de détection des méthodes d'analyse LA-ICP-MS

Les limites de détection d'une méthode analytique permettent de caractériser ses performances. Elles sont devenues un enjeu majeur, notamment lorsque l'analyse s'intéresse aux traces et ultra-traces. Cependant, la diversité des méthodes mises en œuvre pour les déterminer rend parfois les comparaisons impossibles⁷⁶⁴.

Une première notion à distinguer est celle du seuil de décision, valeur significative minimale d'une concentration ou d'un signal net vrai estimé⁷⁶⁵. En comparant le signal net à celui du bruit de fond, on détermine si une valeur est significative. On introduit par conséquent un premier risque, celui de déclarer la concentration ou le signal significatif à tort. On définit ensuite la limite de détection qui est « la concentration ou le signal net pour laquelle la probabilité qu'une valeur de mesure soit inférieure au seuil de décision est égale à β ⁷⁶⁶ ». On a ici introduit un second risque, celui de déclarer une concentration ou un signal non significatif à tort.

La limite de détection en signal doit donc tenir compte de ces deux risques qui peuvent entraîner des erreurs :

- L'erreur de première espèce : déclarer une concentration significative alors qu'elle est nulle. La probabilité d'erreur est notée α .
- L'erreur de deuxième espèce : déclarer à tort une concentration comme non significative. La probabilité d'erreur est notée β .

La limite de détection théorique en signal (LOD_s) s'exprime alors, pour une répartition gaussienne des probabilités et homoscedasticité⁷⁶⁷ :

⁷⁶⁴ Rivier C. et Crozet M., « Limite de détection de méthodes d'analyse et termes apparentés », *Techniques de l'ingénieur*, ref. article : p262, 2014, p. 1-2.

⁷⁶⁵ Signal brut auquel on a soustrait le bruit.

⁷⁶⁶ D'après l'UICPA (Union Internationale de Chimie Pure et Appliquée) citée dans Rivier C. et Crozet M., *Limite de détection...*, *op. cit.*, p. 2.

⁷⁶⁷ Ecart type du signal net à la limite de détection égal à celui du signal du blanc.

$$(1) \text{LOD}_{s(\text{th})} = \sigma_0 \times (z_{1-\alpha} + z_{1-\beta})$$

Avec σ_0 écart type de la réponse du bruit de fond et $z_{1-\alpha}$ valeur critique de la variable centrée réduite.

Dans le domaine expérimental, σ_0 est estimé par s_0 à partir d'une série de mesures (degrés de liberté), ainsi :

$$(2) \text{LOD}_{s(\text{exp})} = s_0 (t_{1-\alpha,v} + t_{1-\beta,v})$$

Avec s_0 l'estimation de σ_0 et $t_{1-\alpha,v}$ le « t de Student » pour une probabilité $1-\alpha$ et v degrés de liberté. Le « t de Student » permet de construire un intervalle de confiance autour de la moyenne expérimentale du bruit de fond.

L'équation (2) introduit une hypothèse forte : la normalité du signal du bruit de fond qui permet d'estimer σ_0 à l'aide de s_0 . Cette normalité peut se vérifier au moyen d'un test. Nous avons utilisé celui de Shapiro-Wilk qui est adapté aux petits effectifs ($n \leq 50$). Pour chaque élément, 30 mesures de bruit de fond sont réalisées, puis une moyenne est calculée sur laquelle on applique un test de normalité dont l'hypothèse nulle H_0 est la suivante : « les échantillons sont issus d'une distribution normale ». Pour ce faire, on calcule la statistique W : le coefficient de détermination entre la série des quantiles générée à partir de la loi normale et les quantiles obtenus empiriquement à partir des données. W est comparée ensuite à W_{critique} pour différents risques⁷⁶⁸ et effectifs. Ces tests ont permis de mettre en évidence la normalité du signal du bruit de fond pour les éléments considérés au cours de l'analyse par LA-ICP-MS.

⁷⁶⁸ Risques de considérer l'hypothèse H_0 vraie à tort.

Dans le domaine expérimental, la limite de détection en signal est généralement exprimée selon une approche « 3σ ». Elle vaut alors :

$$\text{LOD}_{s(\text{exp})} = k \times s_0$$

Avec s_0 l'estimation de σ_0 et k une constante. Cette dernière est généralement fixée à 3. Cette assertion sous-entend donc, d'après les éléments théoriques présentés plus haut, une probabilité d'erreur $\alpha = \beta = 5\%$ et un nombre de degrés de liberté infini. L'estimation s_0 de l'écart type du bruit de fond se calcule à partir d'un certain nombre de mesures du bruit de fond (« réplicats »).

$$\text{LOD}_{s(\text{exp})} = 3 \times s_0$$

Jusqu'à présent, la réflexion s'est portée sur le domaine expérimental et plus particulièrement le sous-domaine du signal net et la limite de détection associée. Le domaine expérimental se compose d'un deuxième sous-domaine, celui des concentrations. C'est dans ce domaine que sont exprimées la plupart du temps les limites de détection. On passe du sous-domaine du signal à celui des concentrations au moyen d'un modèle d'étalonnage qui représente le signal brut en fonction de la concentration (figure 237). La limite de détection s'exprime ainsi :

$$\text{LOD}_{\text{con}(\text{exp})} = \frac{3 \times s_0}{b}$$

Avec b la pente de de la droite d'étalonnage et s_0 l'estimation de l'écart type du bruit de fond.

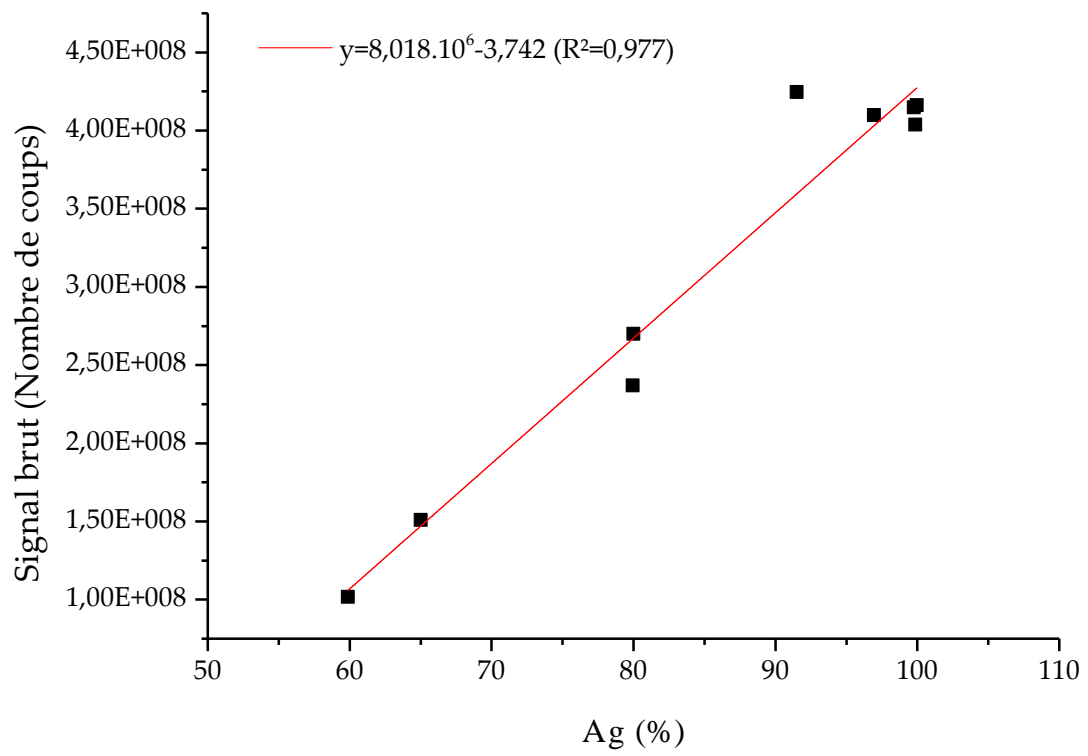


Figure 237 : Droite d'étalonnage de l'argent.

Annexe 3 : Compositions élémentaires des matériaux de référence

Sauf mention contraire, les teneurs sont exprimées en ppm.

Acronymes des fabricants :

CECM : Centre d'étude de chimie métallurgique (France).

Corning : Corning Incorporated (États-Unis)

ICMPE : Institut de chimie et des matériaux Paris-Est (France).

INFM : Institute of Non-Ferrous Materials (Pologne).

MBH : MBH Analytical Limited (Royaume-Uni).

NIST : National Institute of Standards and Technology (États-Unis)

RRL : Rand Refinery Limited (Afrique-du-Sud).

- Matrices silicatées

Fabricants : NIST (NIST 610) et Corning (B et D)

Élément	Nist 610	Corn B	Corn D
Li	484,60	-	-
Be	465,60	-	-
B	351,00	-	-
Na	99100,00	126112,76	8902,08
Mg	465,30	6211,18	23759,27
Al	10800,00	23074,89	28049,75
Si	326906,00	291081,19	259243,68
P	342,00	3578,60	17151,09
Cl	470,00	-	-
K	486,00	8301,51	93807,07
Ca	82797,00	61177,82	105774,73
Sc	441,10	-	-
Ti	434,00	533,48	2277,77
V	441,70	201,66	-
Cr	405,20	-	-
Mn	433,30	1936,18	4259,60
Fe	457,10	2377,95	3636,87
Co	405,00	361,78	180,89
Ni	443,90	777,93	-

Élément	Nist 610	Corn B	Corn D
Cu	430,30	21249,40	3035,63
Zn	456,30	1526,59	803,47
Ga	438,10	-	-
Ge	400,00	-	-
As	317,40	-	-
Se	400,00	-	-
Rb	431,10	-	-
Sr	497,40	160,66	481,99
Y	449,90	-	-
Zr	439,90	-	-
Nb	419,40	-	-
Mo	376,80	-	-
Ag	239,40	-	-
Cd	400,00	-	-
In	441,40	-	-
Sn	396,30	315,06	787,65
Sb	368,50	3842,62	8102,92
Cs	361,00	-	-
Ba	424,10	1074,79	4567,85
La	457,40	-	-
Ce	447,80	-	-
Pr	429,80	-	-
Nd	430,80	-	-
Sm	450,50	-	-
Eu	461,10	-	-
Gd	419,90	-	-
Tb	442,80	-	-
Dy	426,50	-	-
Ho	449,40	-	-
Er	426,00	-	-
Tm	420,10	-	-
Yb	461,50	-	-
Lu	434,70	-	-
Hf	417,70	-	-
Ta	376,60	-	-
Re	37,00	-	-
Au	22,10	-	-
Pb	413,30	5662,83	4456,00
Bi	357,70	-	-
Th	450,60	-	-
U	457,10	-	-

- Matrices plumbeuses

Fabricant : MBH

Elément	83X PR1	83X PR2	83X PR3	83X PR4	83X PR5	83X PR7	83X PR8
Na			26				73
Fe	7					8	
Cu	39	346	551	450	2	1760	660
Ni	4	26	142	30	1,9	15	20
Zn	60	8	11		4	6	
As	287	235	17	10	4	510	1550
Se	10	22	104	40	5	52	64
Ag	1230	537	33	110	3	2900	5050
Cd	932	21	479	80	4,4	4550	2110
In	356	12	69		3	6530	2240
Sn	59	1040	500		6	1890	6030
Sb	48	500	950		2	7950	2590
Te	16	114	21	230	3,5	97	11
Hg		41	103	170	2,7		890
Tl		12	125	20			
Pt	16					47	
Au		8	41	20			82
Bi	551	310	1620	150	88	4790	11860

- Matrices à base d'argent

Fabricants : RRL (RAgA1 à RAg5 et RAgP3 et RAgP7), CECM (EV1 à EV4) et INFM (SF1A).

Elément	RAgA1	RAgA3	RAgA4	RAgA5	EV1	EV2	EV3	EV4	RAgP3	RAgP7	SF1A
Ag	96,94%	91,5%	79,94%	59,89%	75,00%	45,00%	80,00%	65,00%	99,97%	99,77%	99,86%
Cu	3,03%	8,47%	20,03%	40,1%	15,00%	45,00%	18,2%	32,8%	29,9	209	857
Zn					20000	20000	1000	2000	28,7	209	79,1
Sn					20000	20000	1000	2000	27,2	192	
Au					20000	20000	2000	5000	39,4	216	21,9
Pb					20000	20000	10000	10000	26,7	194	21
Bi					20000	20000	1000	2000	24,5	231	53,7
As							2000	1000			41,6
Sb							1000	500	26,7	185	58,1
Fe									17,4	88	42,5
Ni									24,4	181	58,1
Se											45
Pd									25,3	193	
Te									26,1	181	43,9
Pt									26,7	187	20,9

- Matrices plomb-argent

Fabricant : ICMPE

Elément	PbAg1	PbAg2
Fe	140	<100
Ni	133	<50
Cu	17923	29497
Zn	5824	472
Pd	500	100
Ag	48937	394535
In		94,3
Sn	600	100
Sb	1353	538
Au	200	100
Pb	91,15%	57,08%
Bi	2539	

- Matrices à base de cuivre

Fabricants : MBH et IRAMAT-CEB (Etag)

Elément	EtAg	UE10.1	UE11	UE15	UE50	UE53	UZ50	UZ51	UZ52	UZ53	UZHR3	UZHR4	UZHR5
Fabricant	IRAMAT-CEB	MBH	MBH	MBH	MBH	MBH	MBH	MBH	MBH	MBH	MBH	MBH	MBH
Cu	92,6%	82,7%	86,45%	87,1%	84,3%	84,1%	85,45%	83,52%	83,15%	82,45%	65,25%	66,84%	65,25%
Sn	5,4%	14,7%	13,3%	10,75%	8,00%	4,78%	5000	1,52%	1,02%	2050	2300	4000	1050
Pb		3200	300	5000	3,4%	5,95%	2500	1900	1000	250	6500	2200	4700
Zn		3000	<100	1650	3,98%	3,4%	13,2%	14,4%	15,39%	16,82%	23,8%	23,4%	25,55%
Fe		3100	900	1450	720	1600	450	1000	1800	2550	2,75%	1,38%	9100
Ni		9700	<20	2400	1100	10100	1600	1550	800	250	1,01%	5200	1,5%
Mn				50	Traces		830	<100		<10	3,1%	4,3%	2,15%
Al		1000				150	240				3,2%	2,9%	3,85%
Si		350	1050	580	490		1000	100	100	1550	150	600	1600
S		120		250	450	250							
P		1900		2900	1100	90	<10	170	200	550			
Sb		3600	<50	6100	3000	5300							
As				900			1900	850	450	100			
Ag	2,0%												

Annexe 4 : Relation entre l'énergie du laser et la fluence

En fonction du matériau étudié par LA-ICP-MS, l'énergie du faisceau laser utilisé à l'IRAMAT-CEB peut être modifiée de manière à obtenir un prélèvement optimal. Néanmoins, il est uniquement possible d'ajuster l'énergie initiale du faisceau, c'est-à-dire avant qu'il n'emprunte le chemin optique (point 1, figure 238). Cette valeur est spécifique de l'instrument utilisé et dépend des caractéristiques des filtres, lentilles et miroirs intercalés sur le chemin du faisceau laser. La portée d'un tel paramètre est donc limitée et les comparaisons avec les autres systèmes décrits dans la littérature sont impossibles. Afin de contourner cette restriction, l'énergie du faisceau laser a été mesurée au niveau de la cellule d'ablation (point 2, figure 238) au moyen d'un capteur d'énergie Field Max II de la société Coherent. Plutôt que de raisonner sur l'énergie, nous avons choisi de calculer la fluence de manière à s'affranchir du diamètre du faisceau laser. Les mesures ont été réalisées sur une journée d'analyse de manière à apprécier la stabilité du faisceau laser (figure 239). Les résultats ont permis de modéliser la fluence (φ) (en $\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$) comme une fonction linéaire de l'énergie initiale (E_i) du faisceau laser (exprimée en mJ). Les paramètres moyens de cette fonction sont les suivants :

$$\Phi = 0,2862 \times E_i + 1,2559$$

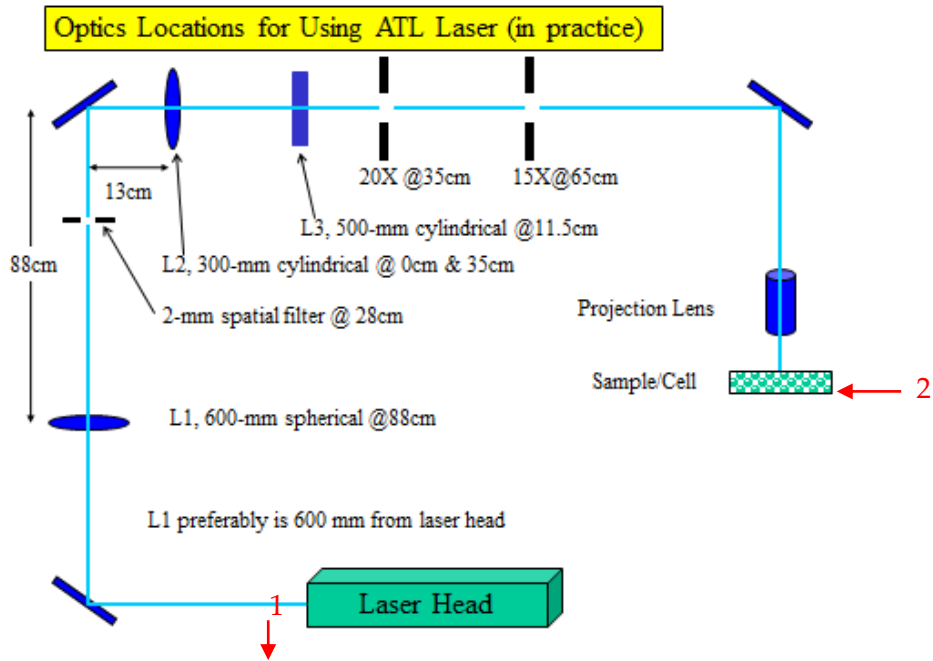


Figure 238 : Chemin optique suivi par le faisceau laser du système de l'IRAMAT-CEB. Document fourni par Australian Scientific Instruments.

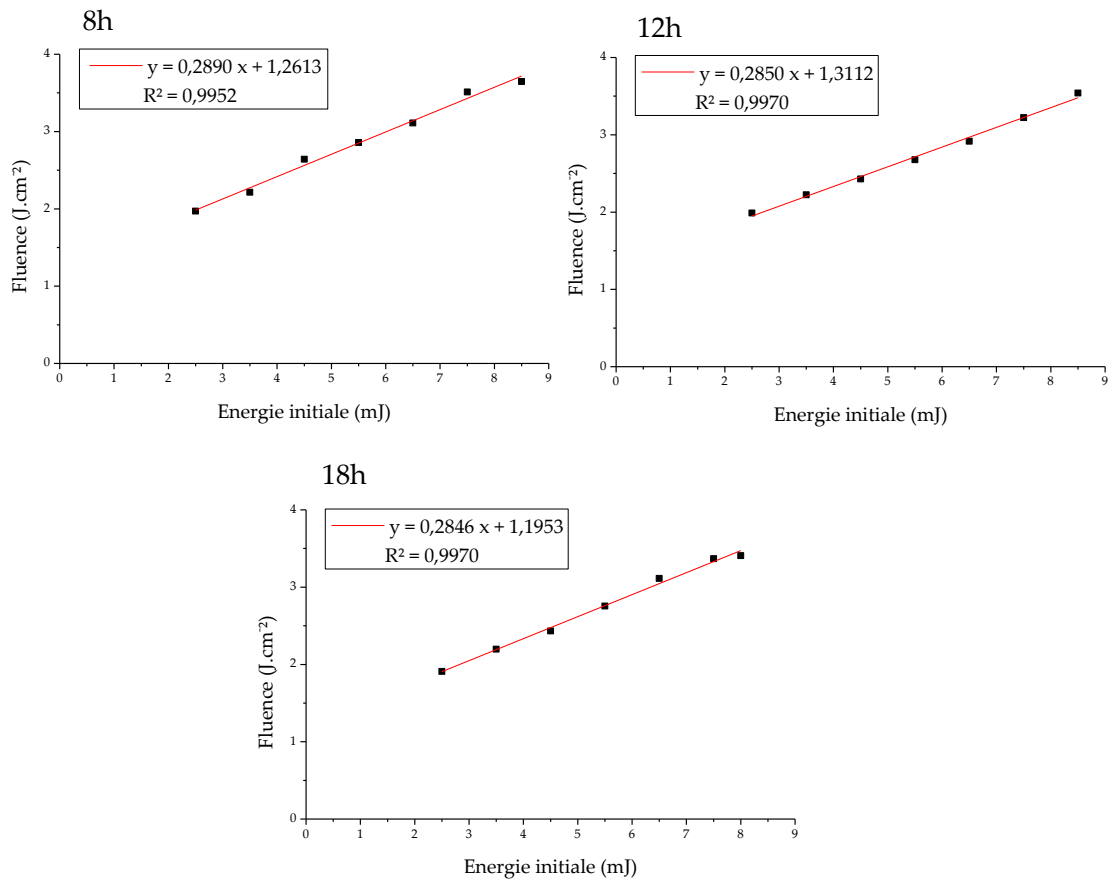


Figure 239 : Relation entre l'énergie initiale du laser et la fluence calculée à différents moments d'une journée d'analyse.

Annexe 5 : Protocole de préparation des échantillons pour la mesure des isotopes du plomb (pour les analyses réalisées BRGM) et valeurs des rapports isotopiques des objets étudiés

Les préparations et purifications (si nécessaire) sont effectuées en salle blanche et les produits utilisés sont tous de qualité « suprapur » ou purifiés par sub-boiling dans nos laboratoires.

Les galènes (après pesée) sont dissoutes dans un bécher en teflon ouvert par quelques gouttes d'HBr concentré. Après évaporation, le résidu est repris par environ 2 ml d'HNO₃ 6N à froid pendant quelques heures, puis dilué par 10ml d'H₂O. En fonction de la quantité de plomb se trouvant dans le bécher, un volume correspondant à 10µg de plomb est prélevé et évaporé à sec.

Les autres échantillons, après pesée, sont mis en solution par un mélange d'acides concentrés (eau régale : 3ml de HCl 6N + 1 ml HNO₃ 7N) dans des béchers fermés, mis sur plaque chauffante pendant 1 nuit. Après évaporation de cette solution, le résidu est repris par 3ml d'HCl 6N en bécher fermé à chaud pendant une nuit. Après évaporation le résidu est repris en HCl 2N et une chimie purificatrice du plomb est effectuée sur résine échangeuse d'ions (AG1X-8) avec récupération du plomb en HCl 6N, solution que l'on évapore et qui est reprise par 3 gouttes d'HNO₃ 14N, que l'on évapore également. Une seconde reprise est effectuée par HNO₃ de sorte à avoir une concentration de 1µg/µl de Pb. 2µl de cette solution (soit 2µg de plomb) sont évaporés à sec.

Pour l'analyse en spectrométrie de masse, le résidu est repris en H₃PO₄ 0,25N afin d'obtenir une solution à 100ng/µl. 2µl de cette solution (soit environ 200ng de Pb) sont chargés sur monofilament de rhénium avec du silicagel et ce filament est porté à 1.3A jusqu'à ce que le dépôt soit sec, puis le courant est augmenté jusqu'à libération des vapeurs de H₃PO₄, et ensuite porté au rouge vif pendant une seconde. Les échantillons sont placés sur un barillet porte échantillon (13 positions) placé dans la

source du spectromètre de masse qui est mise sous pompage jusqu'à obtenir un vide meilleur que 10^{-7} mbar. L'analyse en spectrométrie de masse s'effectue sur un multicollecteur Finnigan MAT262, muni de 9 cages de Faraday mobiles. L'analyse des 4 masses du plomb est donc effectuée en simultané sur quatre cages de Faraday. 10 blocs de 10 scans sont ainsi mesurés, avec une intensité de l'ordre de 3 à 5 volts sur la masse 208. La précision interne sur la mesure est généralement inférieure à 0,01% ($2\sigma_m$) sur tous les rapports. La reproductibilité externe (2σ) est de 0,07% pour le rapport $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$, 0,10% pour le rapport $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ et 0,14% pour le rapport $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$. Le fractionnement instrumental est déterminé par l'analyse répétée du standard NBS982 et est de 0,13%/u.m.a. dans le cadre de cette étude. Les résultats pour les échantillons correspondent aux valeurs moyennes corrigées du fractionnement.

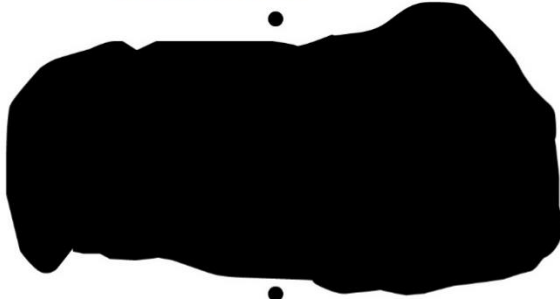
Échantillon	Poids mis en solution (mg)
CL 11683	4,887
CL 12641	3,218
CL 11965	4,494
CL 11842	2,207
CL 11612	2,264
CL 10915	3,061
CL 12153	2,638
CL 10977	6,464
CL 11413	10,463
CL 11088	24,540
CL 11107	11,136
CL 11089	30,298
CL 11095	7,263
CL 10604	2,101
CL 12698	3,656

- Rapports isotopiques du plomb utilisés pour nos travaux :

Type	Code Labo ou gîte/ref. biblio.	206/204	207/204	208/204	208/206	207/206	208/207
Bourmonite	10977	18,4181	15,6768	38,5683	2,0941	0,8512	2,4602
Bourmonite	11413	18,4284	15,6851	38,6074	2,0950	0,8511	2,4614
Caldarium	11088	18,3893	15,6654	38,5405	2,0958	0,8519	2,4602
Caldarium	11107	18,3927	15,6704	38,5550	2,0962	0,8520	2,4604
Caldarium	11089	18,4195	15,7033	38,6640	2,0991	0,8525	2,4621
Galène	10106	18,4557	15,6579	38,6010	2,0915	0,8484	2,4653
Galène	10107-A	18,4635	15,6696	38,6410	2,0928	0,8487	2,4660
Galène	10065-C	18,2191	15,6223	38,2526	2,0996	0,8575	2,4486
Galène	10065-3	18,4569	15,6458	38,5685	2,0897	0,8477	2,4651
Galène	10065-1	18,0497	15,6233	38,1069	2,1112	0,8656	2,4391
Galène	10107-C	18,4441	15,6482	38,5637	2,0908	0,8484	2,4644
Galène	10107-B	18,4446	15,6474	38,5663	2,0909	0,8483	2,4647
Galène	10316-C	18,4704	15,6655	38,6284	2,0914	0,8481	2,4658
Galène	10316-B	18,4480	15,6372	38,5354	2,0889	0,8476	2,4643
Galène	10316-A	18,4560	15,6475	38,5675	2,0897	0,8478	2,4648
Galène	10768-A	18,4614	15,6543	38,5910	2,0904	0,8479	2,4652
Galène	10768-C	18,4603	15,6528	38,5845	2,0901	0,8479	2,4650
Galène	10763	18,4301	15,6376	38,5241	2,0903	0,8485	2,4636
Galène	10766	18,4403	15,6508	38,5571	2,0909	0,8487	2,4636
Galène	10770	18,4444	15,6425	38,5496	2,0900	0,8481	2,4644
Galène	10769-2	18,4636	15,6548	38,5960	2,0904	0,8479	2,4654
Galène	10769-1	18,4471	15,6391	38,5375	2,0891	0,8478	2,4642
Galène	10767	18,4467	15,6519	38,5782	2,0913	0,8485	2,4648
Galène	10758	18,4652	15,6523	38,5877	2,0898	0,8477	2,4653
Galène	CM08	18,4392	15,6552	38,5781	2,0922	0,8490	2,4642
Galène	Les argentières	18,2403	15,6408	38,3251	2,1011	0,8575	2,4503
Galène	Marcoux 1986/Coum Arty	18,382	15,705	38,652	2,103	0,868	2,461
Galène	Marcoux 1986/Argentières	18,068	15,689	38,296	2,120	0,868	2,441
Galène	Marcoux et al. 1991/Lamanière	18,052	15,663	38,150	2,113	0,868	2,436
Galène	Marcoux et al. 1991/Carboire	17,999	15,662	38,209	2,123	0,870	2,4397
Galène	Marcoux et al. 1991/Pierrefitte	18,046	15,671	38,189	2,116	0,868	2,437
Galène	Marcoux et al. 1991/Pierrefitte	18,101	15,704	38,332	2,118	0,868	2,441
Galène	Marcoux et al. 1991/Carmina	17,816	15,610	37,939	2,130	0,876	2,430

Type	Code Labo ou gîte/ref. biblio.	206/204	207/204	208/204	208/206	207/206	208/207
Galène	Marcoux et al. 1991/Argut	18,031	15,680	38,172	2,117	0,870	2,434
Galène	Marcoux et al. 1991/Seintein	18,042	15,684	38,206	2,118	0,869	2,436
Galène	Marcoux et al. 1991/Crabioules	18,091	15,700	38,323	2,118	0,868	2,441
Galène	Marcoux et al. 1991/Arrens	18,095	15,702	38,312	2,117	0,868	2,440
Galène	Velasco et al. 1996/Cinco Villas	18,095	15,702	38,312	2,117	0,868	2,440
Galène	Munoz et al. 2015/Argentières	18,3796	15,6876	38,570	2,09853	0,854	2,459
Galène	Munoz et al. 2015/Argentières	18,3802	15,6869	38,570	2,09842	0,854	2,459
Galène	Munoz et al. 2015/Argentières	18,3644	15,6875	38,577	2,09952	0,854	2,459
Galène	Munoz et al. 2015/Lacore	18,4902	15,6939	38,707	2,09339	0,8488	2,4664
Galène	Munoz et al. 2015/Lacore	18,5018	15,6940	38,723	2,09294	0,8482	2,4674
Galène	Munoz et al. 2015/Lacore	18,4930	15,6935	38,712	2,09334	0,8486	2,4668
Galène	Munoz et al. 2015/Lacore	18,4957	15,6940	38,716	2,09323	0,8485	2,4669
Galène	Munoz et al. 2015/Lacore	18,5018	15,6949	38,725	2,09305	0,8483	2,4674
Galène	Munoz et al. 2015/Lacore	18,4994	15,6948	38,723	2,09319	0,8484	2,4673
Pb-Sb-Cu	11095	18,4177	15,6783	38,5557	2,0934	0,8513	2,4592
Plomb	12153	18,7758	15,8549	39,1422	2,0847	0,8444	2,4688
Plomb	11965	18,9081	16,0192	39,4044	2,0840	0,8472	2,4598
Plomb	13157	18,9125	15,9981	39,7861	2,1037	0,8459	2,4869
Plomb	12641	17,6493	15,6881	37,6058	2,1307	0,8889	2,3971
Plomb	11683	18,7447	15,8965	39,1901	2,0907	0,8481	2,4653
Plomb	10915	17,9208	15,8663	38,1347	2,1280	0,8854	2,4035
Plomb	11842	18,8876	16,0184	39,6921	2,1015	0,8481	2,4779
Plomb	11612	18,8837	15,9451	39,3628	2,0845	0,8444	2,4686
Tétraédrite	10604	18,4728	15,6793	38,6638	2,0930	0,8488	2,4659
Tétraédrite	12698	18,4730	15,6798	38,6662	2,0931	0,8488	2,4660

Annexe 6 : Plombs



CM11 - US 2001
Pré-aux-meules sdg.
CL10945
m : 33,8 g



CM07 - US 2001
Abandon Mouline
Isolat 32028 - CL10022
m : 910,4 g



CM13 - US 3021
Ferrier 2
Isolat 39341 - CL11549
m : 83,9 g



CM13 - US 3021
Ferrier 2
CL11530
m : 22,0 g



Plombs

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

Annexe 6 Pl. 1



CM14 - US 2464
Canal 1450-1600
Isolat 42122 - CL11612
m : 60,0 g



CM12 - US 2168
Canal 1450-1600
Isolat 39104/39105 - CL11226
m : 42,8 g



CM13 - US 2063
Canal 1450 -1500
Isolat 39522 - CL11691
m : 127 g



CM13 - US 2063
Canal 1450 -1500
CL11199
m : 47,55 g



CM14 - US 2122
Marteau 1450-1600
Isolat 42591 - CL11964
m : 11,5 g



Plombs

Castel-Minier

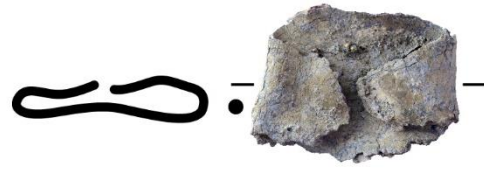
Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

Annexe 6 Pl. 2



CM15 - US 6
TB 21
CL 12640
m : 19,30 g



CM15 - US 2501
Bas foyer
CL12494
m : 7,8 g



CM07 - US 2073
Aire de grillage
CL 10156
m : 4,9 g - Epaisseur comprise entre 1,8 et 3,1 mm



CM16 - US 3214
Plat-du-Roi pente
Isolat 44787 - CL13131
m : 72 g



CM16 - US 3214
Plat-du-Roi pente
Isolat 44911 - CL13191
m : 30,4 g - Ep. max. : 13,8 mm



CM16 - US 3213
Plat-du-Roi pente
Isolat 44813 - CL13158
m : 14,6 g - Ep. max. : 6,15 mm



CM16 - US 3208
Plat-du-Roi pente
CL13139
m : 26 g - Ep. max. : 13 mm



CM 16 - US 3208
Plat-du-Roi pente
Isolat 44655 - CL13148
m : 12,1 g - Ep. max. : 11,15 mm



CM16 - US 3154
Plat-du-Roi pente
Isolat 44715 - CL13115
m : 8,4 g - Ep. comprise entre 2 et 2,5 mm



CM15 - US 3154
PLat-du-Roi pente
CL12706
m : 9,81 g



Plombs		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 6 Pl. 3



CM14 - US 3071
 Plat-du-Roi enceinte castrale
 CL12153
 m : 17,0 g



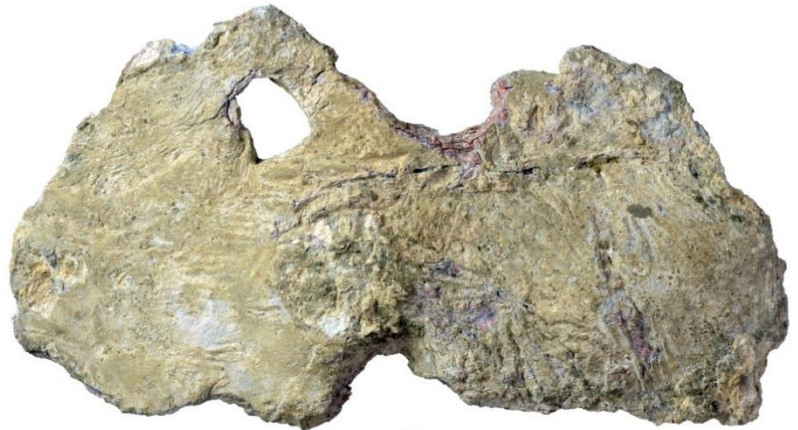
CM14 - US 3074
 Plat-du-Roi enceinte castrale
 CL11840
 m : 25,2 g



CM14 - US 3074
 Plat-du-Roi enceinte castrale
 CL12359
 m : 22,9 g



CM14 - US 3074
 Plat-du-Roi enceinte castrale
 Isolat 42056 - CL12177
 m : 154 g



CM12 - US 2299
 Plate-forme 1
 CL11002
 m : 37,45 g



CM12 - US 2342
 Plate-forme 1
 Isolat 39161 - CL11184
 m : 172,9 g



Plombs		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament	Annexe 6 Pl. 4



CM12 - US 2298
Plate-forme 1
Isolat 39024 - CL12361
m : 32,0 g



CM11 - US 2299
Plate-forme 1
CL10924
Ep. moy. : - m : g



CM13 - US 1010/2302
Plate-forme 2
Isolat 39472 - CL12002
m : 40,7 g



CM13 - US 2427
Plate-forme 3
Isolat 39577 - CL11719
m : 19,1 g



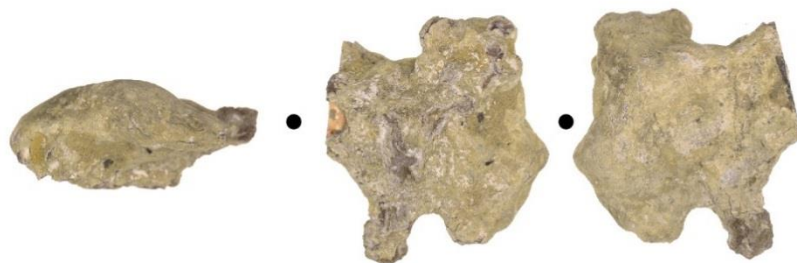
CM13 - US 2090
Plate-forme 3
CL11642
m : 5,3 g



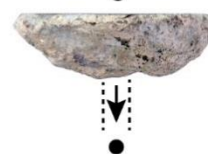
CM13 - US 2427
Plate-forme 3
Isolat 39524 - CL11722
m : 12,2 g



CM15 - US 2504
Plate-forme 4
Isolat 42917 - CL12537
m : 12,1 g



CM11 - US 2084
Plate-forme 4
Isolat 38835 - CL 10915
m : 35,2 g



CM13 - US 2338
Plate-forme 4
CL 11775/5
m : 25,4 g



Plombs

Castel-Minier

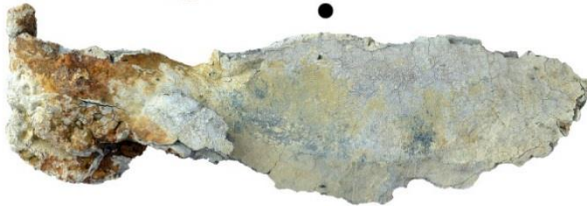
Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

Annexe 6 Pl. 5



CM14 - US 2085
 Plate-forme 4
 Isolat 42032 - CL11955
 m : 662,0 g



CM12 - US 2338
 Plate-forme 4
 Isolat 39055 - CL11073
 m : 37,6 g



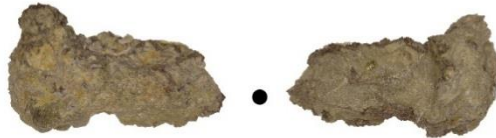
CM14 - US 2393
 Plate-forme 4
 Isolat 39994 - CL11867
 m : 470,0 g



Plombs		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 6 Pl. 6



CM14 - US 2470
Plate-forme 4
Isolat 42018 - CL11935
m : 12,8 g



CM15 - US 2390
Plate-forme 4
CL 11648
m : 20,2 g



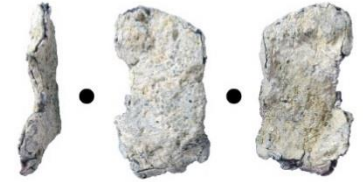
CM11 - US 2414
Plate-forme 4
Isolat 39456 - CL 11694
m : 15,7 g



CM13 - US 2338
Plate-forme 4
CL11777
m : 13,6 g



CM15 - US 2504
Plate-forme 4
CL12822
m : 7,0 g



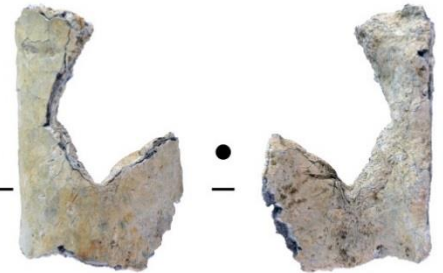
CM13 - US 2338
Plate-forme 4
CL 11775/5
m : 4,4 g



CM14 - US 3063
Plate-forme 5
CL11899
m : 9,3 g



CM14 - US 3066
Plate-forme 5
CL11842
m : 19,2 g



CM15 - US 3066
Plate-forme 5
CL12496
m : 14,01 g



CM14 - US 3015
Plate-forme 5
Isolat 39874 - CL10791
m : 21,0 g



CM15 - US 3001
Plate-forme 5
CL12492
m : 3,6 g



CM11 - US 2396
Bâtiment 2
CL11570
m : 8,5 g



CM13 - US 2421
Bâtiment 3
CL11683
m : 30,0 g



CM12 - US 2327
Bâtiment 3
CL11254
m : 13,1 g



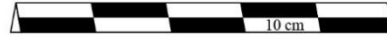
Plombs

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

Annexe 6 Pl. 7



CM15 - US2520
 Bâtiment 3
 Isolat 44001 - CL12704/1 à 12704/3
 m : 55,3 ; 205,6 et 1017,1 g



CM13 - US 2327
 Bâtiment 5
 CL11603
 m : 4,4 g

CM13 - US 2327
 Bâtiment 5
 CL11771
 m : 22,9 g

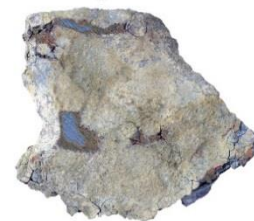
CM13 - US 2407
 Bâtiment 7
 CL11679
 Masse : 33,9 g



CM13 - US 2412
 Bâtiment 7
 CL11772
 Masse : 8,5 g



CM12 - US 2336
 Bâtiment 7
 Isolat 39038 - CL11228
 Masse : 5,8 g



CM13 - US 2358
 Bâtiment 7
 CL11504
 Masse : 11 g - Ep. comprise entre 2,1 et 4,4 mm



Plombs		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament	Annexe 6 Pl. 8



CM13 - US 2412
Bâtiment 7
Isolat 39447 - CL11555
Masse : 431 g



CM13 - US 3022
Bâtiment 8
Isolat 39524 - CL11551
m : 16,1 g



CM07 - US 3009
Bâtiment 9
CL10116
m : 91,1 g



CM14 - US 3042
Bâtiment 10
Isolat 39873 - CL11869
m : 8,6 g



Plombs

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

Annexe 6 Pl. 9



CM14 - US 3084
Bâtiment 10
CL11967
m : 75,0 g



CM15 - US 3171
Bâtiment 10
Isolat 42985 - CL 12516
m : 17,07 g



CM15 - US 3171
Bâtiment 10
Isolat 42986 - CL12517
m : 17,94 g



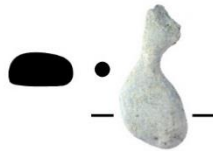
CM14 - US 3084
Bâtiment 10
CL11877
m : 8,2 g



CM14 - US 3115
Bâtiment 10
Isolat 42717 - CL11833
m : 11,5 g



CM14 - US 3084
Bâtiment 10
CL11965
m : 5,3 g



CM15 - US 3172
Bâtiment 10
CL12641/2
m : 3,08 g



CM14 - US 3085
Bâtiment 10
CL12097/1
m : 9,0 g



CM15 - US 3172
Bâtiment 10
CL12714
m : 6,5 g



Plombs		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament	Annexe 6 Pl. 10

Annexe 7 : Scories plombifères



CM14 - US 3123
Plat-du-Roi Plate-forme
CL12160/1
m : 72,1 g



CM14 - US 3123
Plat-du-Roi Plate-forme
CL12160/2
m : 230,0 g



CM14 - US 3074
Plat-du-Roi Plate-forme
CL12111
m : 34,1 g



CM14 - US 3113
Plat-du-Roi Plate-forme
CL12152 (20 individus)
m : 135,1 g



CM14 - US 3071
Plat-du-Roi Plate-forme
CL12168 (14 individus)
m : 111,2 g



CM12 - US 2342
Plate-forme 1
CL11261 (7 individus)
m : 25,3 g



CM12 - US 2298
Plate-forme 1
CL11262/1
m : 32,1 g



CM12 - US 2298
Plate-forme 1
CL11262/2
m : 47,6 g



CM13 - US 2338
Plate-forme 4
CL11671
m : 60,1 g



CM14 - US 3126
Plate-forme 5
CL11993 (11 individus)
m : 52,1 g



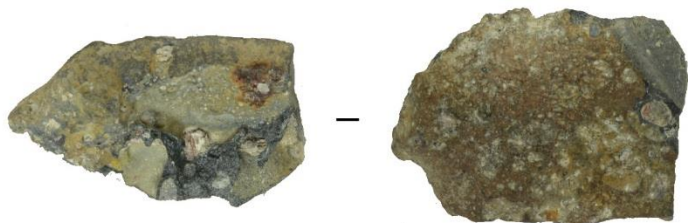
Scories de plomb

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J. Flament

Annexe 7 Pl. 1



CM14 - US 3075
Plate-forme 5
CL11515
m : 25,0 g



CM14 - US 3063
Plate-forme 5
CL11902 (4 individus)
m : 8,3 g



CM12 - US 2333
Bâtiment 2
CL13062
m : 22,3 g



CM14 - US 2464
Bâtiment 7
CL10863
m : 71,2 g



CM14 - US 3115
Bâtiment 10
CL12198 (2 individus)
m : 88,7 g



CM15 - US 3082
Bâtiment 10
CL12768
m : 121,5g



CM14 - US 3084
Bâtiment 10
CL12097 (7 individus)
m : 90,1g



CM15 - US 3178
Bâtiment 10
CL12700
m : 84,2 g



Scories de plomb

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J. Flament

Annexe 7 Pl. 2



CM15 - US 3151
Bâtiment 10
CL12777 (3 individus)
m : 65,4 g



CM14 - US 3079
Bâtiment 10
CL11838 (2 individus)
m : 121,6 g



CM14 - US 3084
Bâtiment 10
CL12100
m : 140,0 g



CM12 - US 2168
Canal XV^e
CL12265 (4 individus)
m : 12,3 g



Scories de plomb

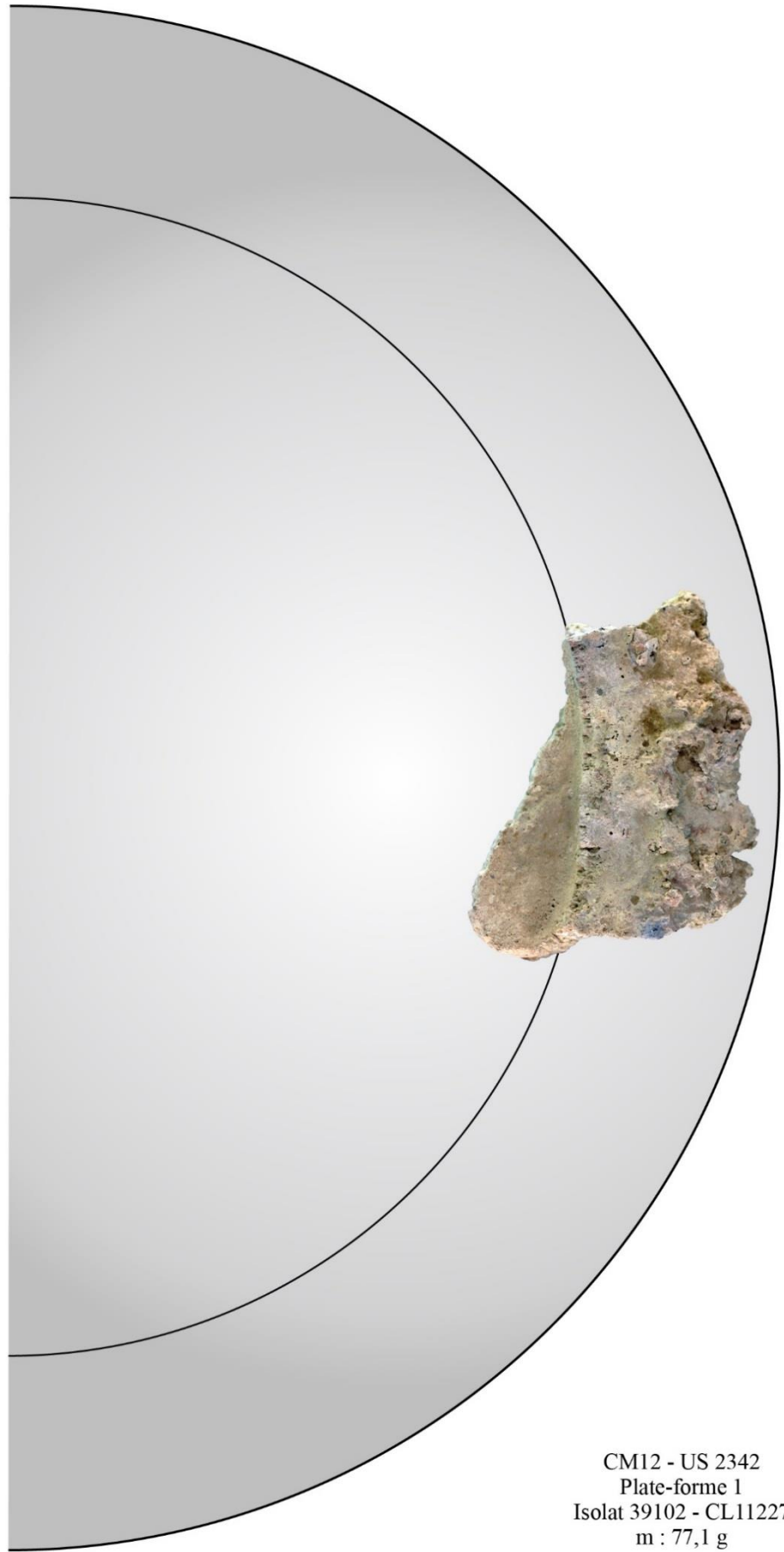
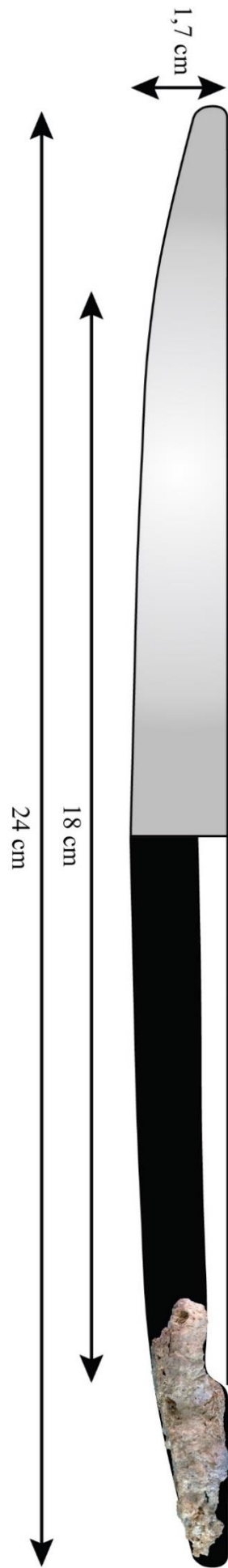
Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J. Flament

Annexe 7 Pl. 3

Annexe 8 : Cassettes de coupellation



CM12 - US 2342
 Plate-forme 1
 Isolat 39102 - CL11227
 m : 77,1 g



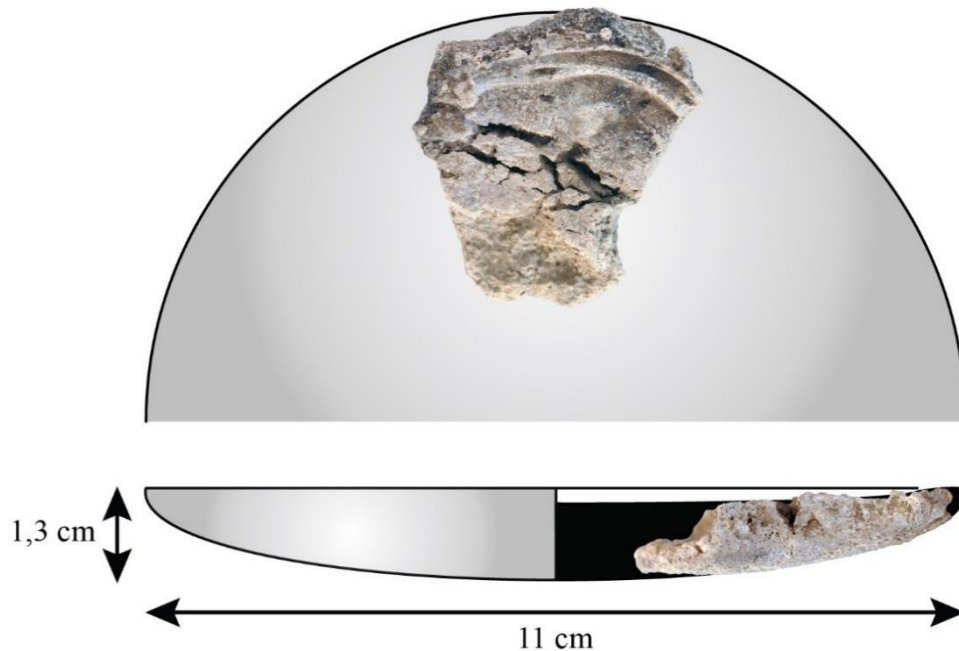
Casses de coupellation

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 8 Pl. 1



CM12 - US 2299
 Plate-forme 1
 CL11004
 m : 28,2 g



CM12 - US 2342
 Plate-forme 1
 Isolat 39102 - CL11229/1 et 11229/2
 m : 13,95 et 28,8 g - Ep. max. : 8,7 et 15,3 mm



CM11 - US 2299
 Plate-forme 1
 CL11269
 m : 101,0 g - Ep. max. : 20,4 mm



Casses de coupellation

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 8 Pl. 2



CM13 - US 2387
Plate-forme 3
Isolat 39374 - CL11494
m : 10,1 g - Ep. max. : 8,2 mm



CM12 - US 2348
Plate-forme 4
CL11234
m : 45,4 g - Ep. max. : 24,8 mm



CM14 - US 3074
Plate-forme 5
CL11995/1 à 11995/4
m : 1,6 ; 7,1 ; 13,6 et 33,8 g - Ep. max. : 8,6 ; 11,0 ; 13,6 et 18,7 mm



CM14 - US 3074
Plate-forme 5
CL11914/1 à 11914/3
m : 15,4 ; 14,5 et 4,4 g - Ep. max. : 15,5 ; 9,5 et 10,6 mm



CM15 - US 3001
Plate-forme 5
CL12661
m : 6 g - Ep. max. : 8,3 mm



CM16 - US 6023
Plate-forme 7
CL13219
m : 27,3 g - Ep. max. : 20 mm



CM14 - US 3014
Ferrier 2
CL11957
m : 9,4 g - Ep. max. : 7,8 mm



Casses de coupellation

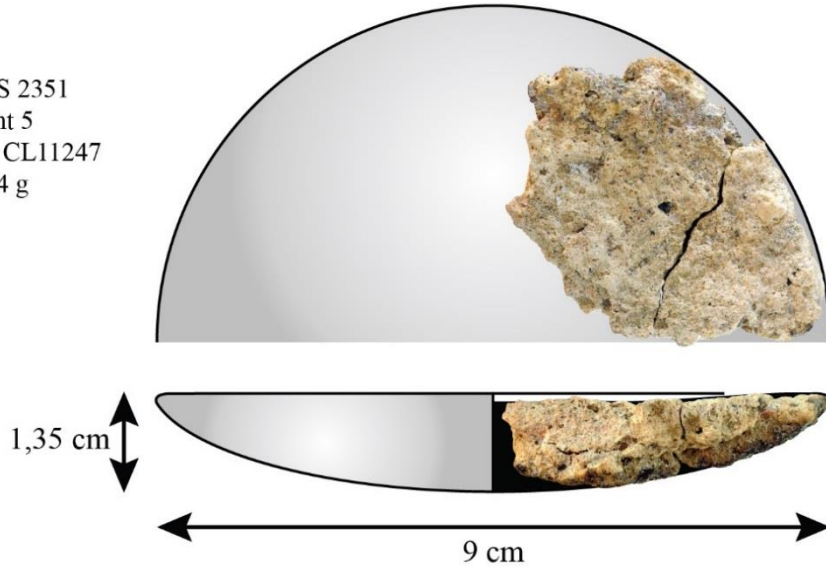
Castel-Minier

Echelle 1/1

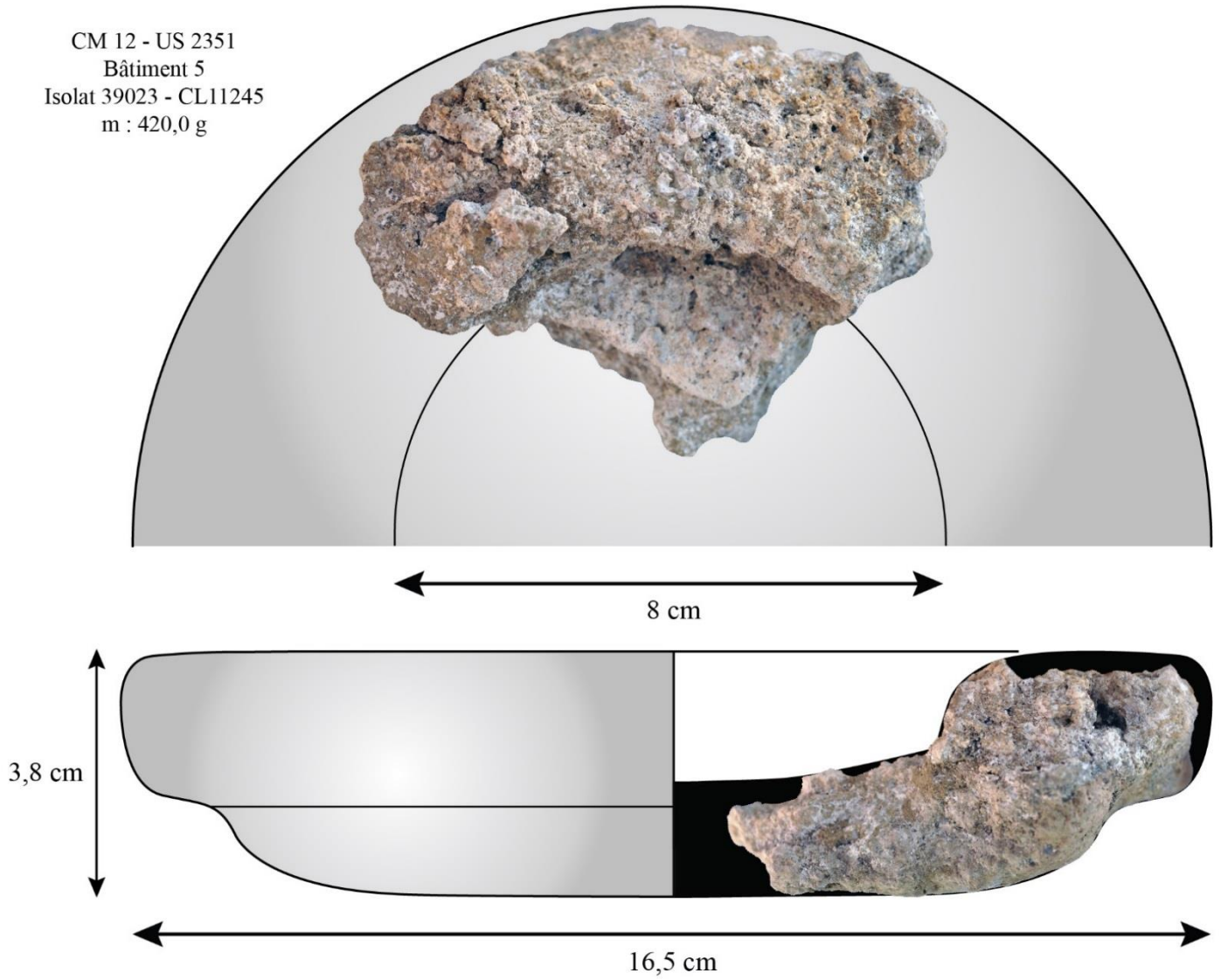
Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 8 Pl. 3

CM 12 - US 2351
 Bâtiment 5
 Isolat 39023 - CL11247
 m : 31,4 g



CM 12 - US 2351
 Bâtiment 5
 Isolat 39023 - CL11245
 m : 420,0 g



Casses de coupellation

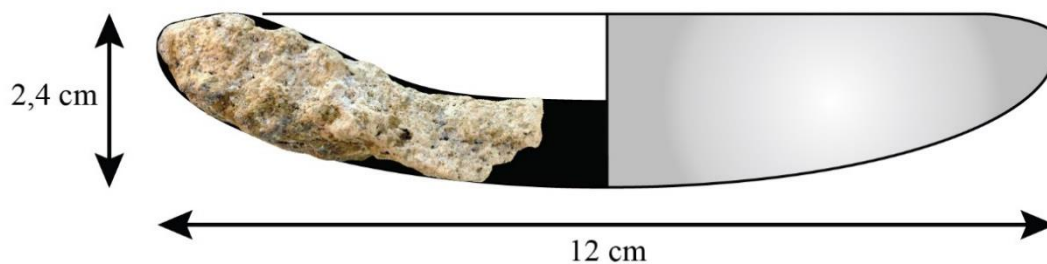
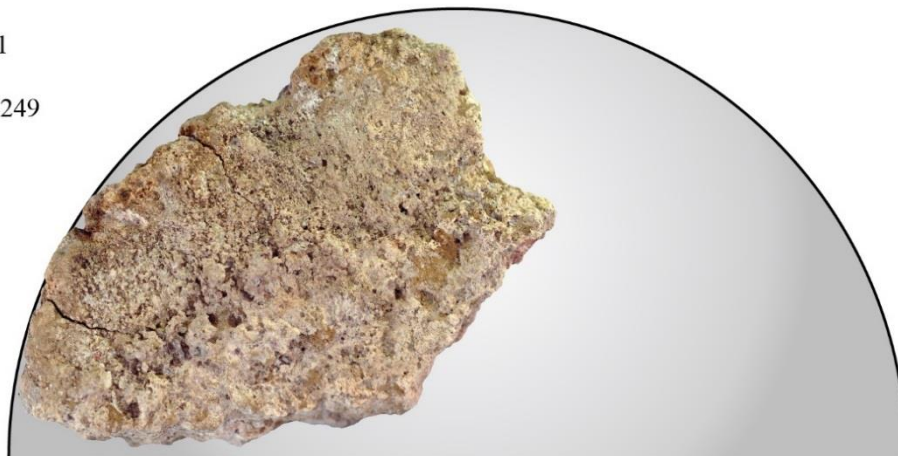
Castel-Minier

Echelle 1/1

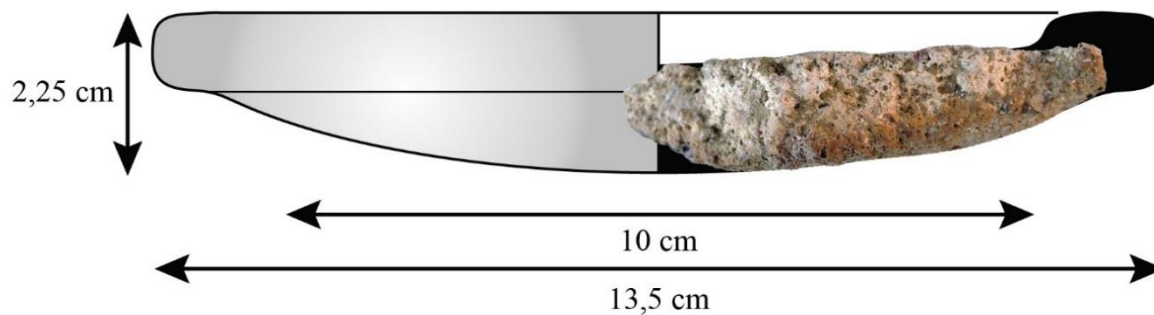
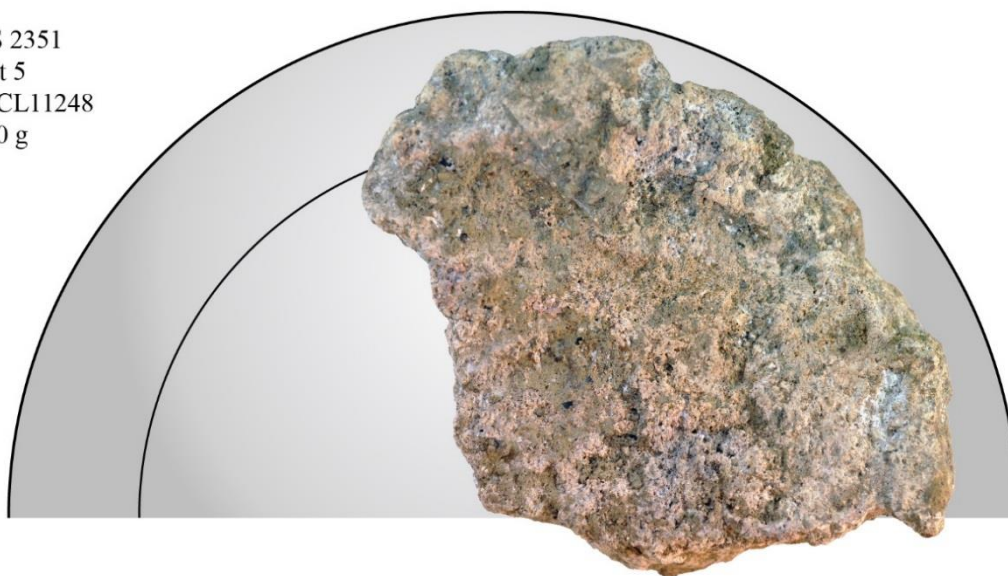
Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 8 Pl. 4

CM 12 - US 2351
 Bâtiment 5
 Isolat 39023 - CL11249
 m : 182,0 g



CM 12 - US 2351
 Bâtiment 5
 Isolat 39023 - CL11248
 m : 182,0 g



Casses de coupellation

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 8 Pl. 5



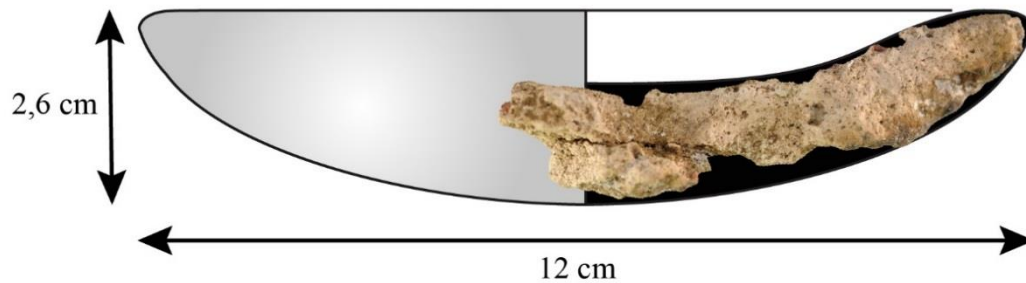
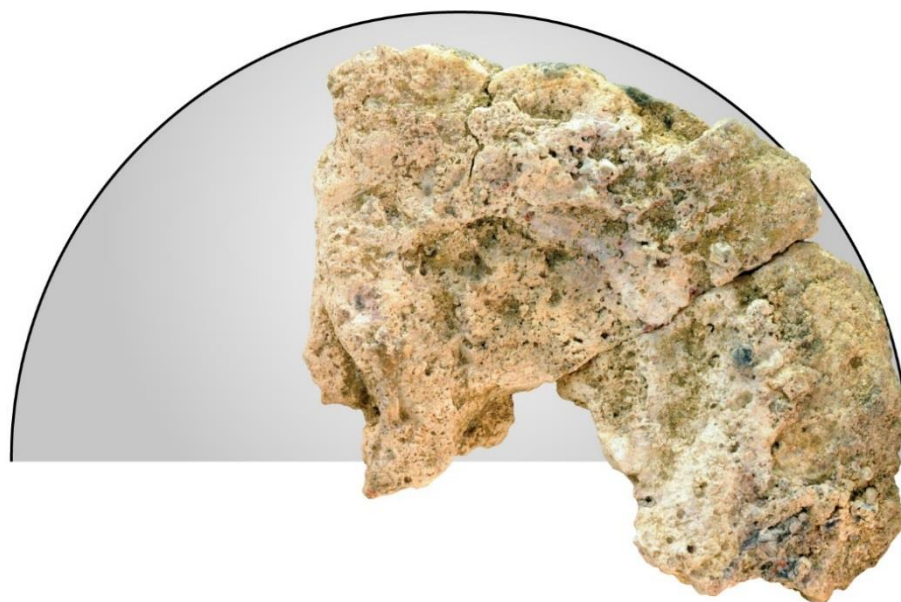
CM12 - US 2351

Bâtiment 5

Isolat 39023 - CL11250/1 à 11250/15

m : 8,7 ; 7,9 ; 6,1 ; 5,2 ; 3,8 ; 3,1 ; 3,6 ; 4,2 ; 0,5 ; 0,95 ; 2,0 ; 2,4 ; 3,3 ; 4,5 et 2,7 g

Ep. max. : 10,5 ; 16,3 ; 16,4 ; 10,9 ; 10,5 ; 14,5 ; 10,2 ; 7,3 ; 3,3 ; 9,0 ; 9,0 ; 9,4 ; 10,1 ; 11,0 et 7,2 mm



CM 12 - US 2351

Bâtiment 5

Isolat 39023 - CL11251

m : 202,6 g



Casses de coupellation

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

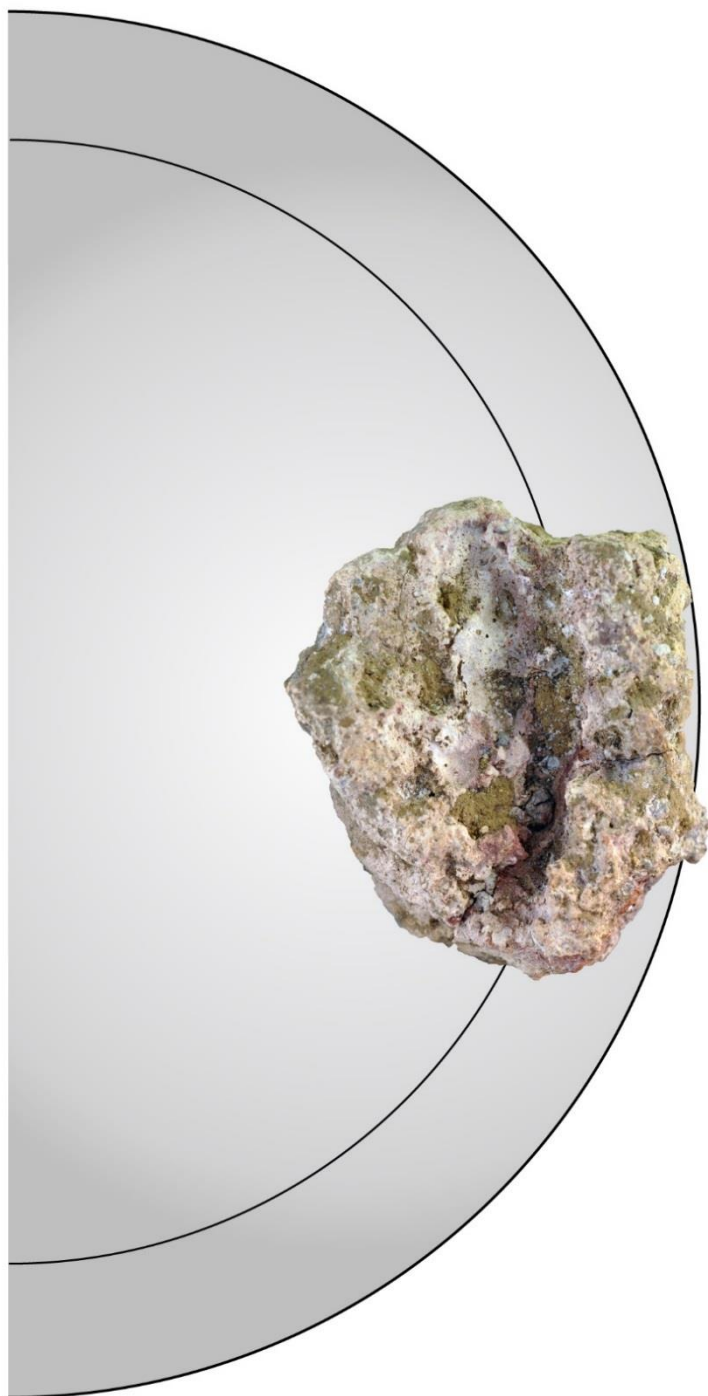
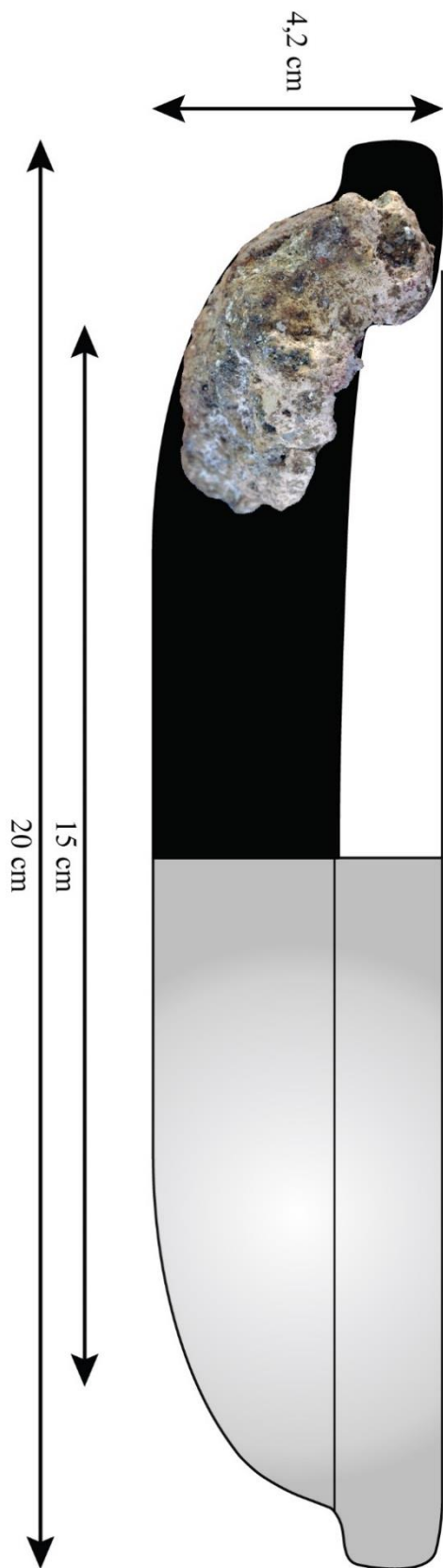
Annexe 8 Pl. 6



CM 12 - US 2351
 Bâtiment 5
 Isolat 39023 - CL11252
 m : 129,2 g



Casses de coupellation		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 8 Pl. 7



CM 12 - US 2351
 Bâtiment 5
 Isolat 39023 - CL11253
 m : 444,3 g



Casses de coupellation

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 8 Pl. 8

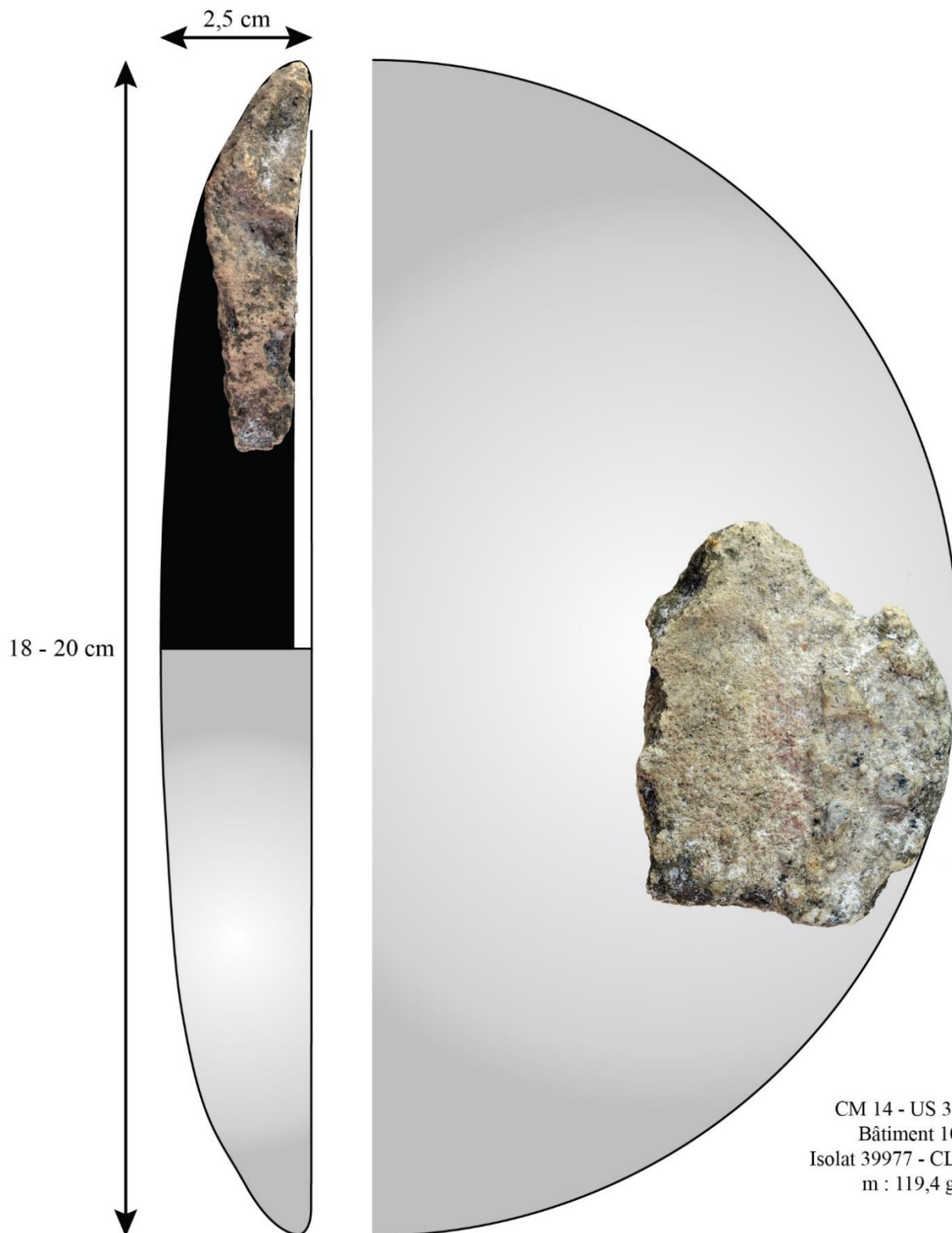


CM12 - US 2351

Bâtiment 5

Isolat 39023 - CL11246/1 à 11246/3

m : 15,5 ; 24,6 et 38,9 g - Ep. max. : 10,6 ; 14,3 et 13,4 mm



CM 14 - US 3082
Bâtiment 10
Isolat 39977 - CL10841
m : 119,4 g



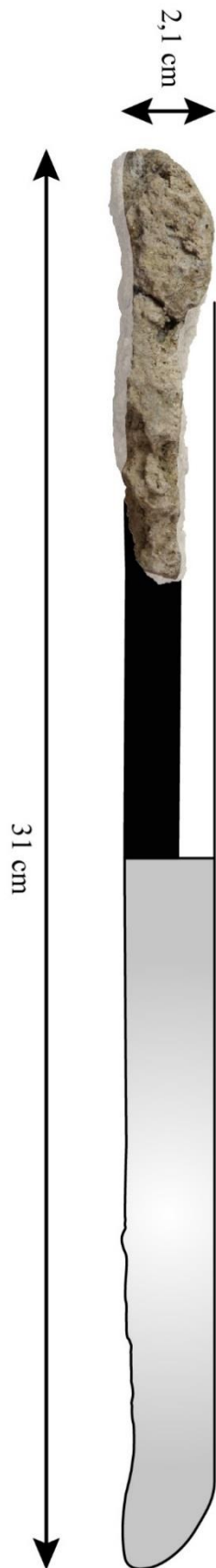
Casses de coupellation

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 8 Pl. 9



CM 16 - US 3154
 Plat-du-Roi pente
 Isolat 44546 - CL13153
 m : 121,0 g



Casses de coupellation

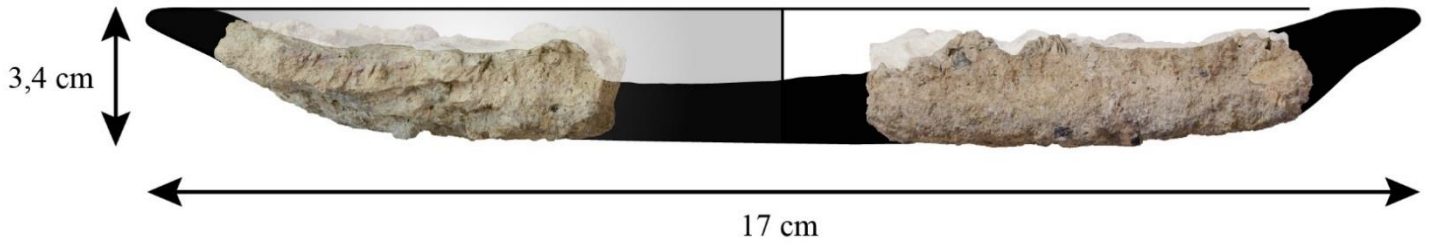
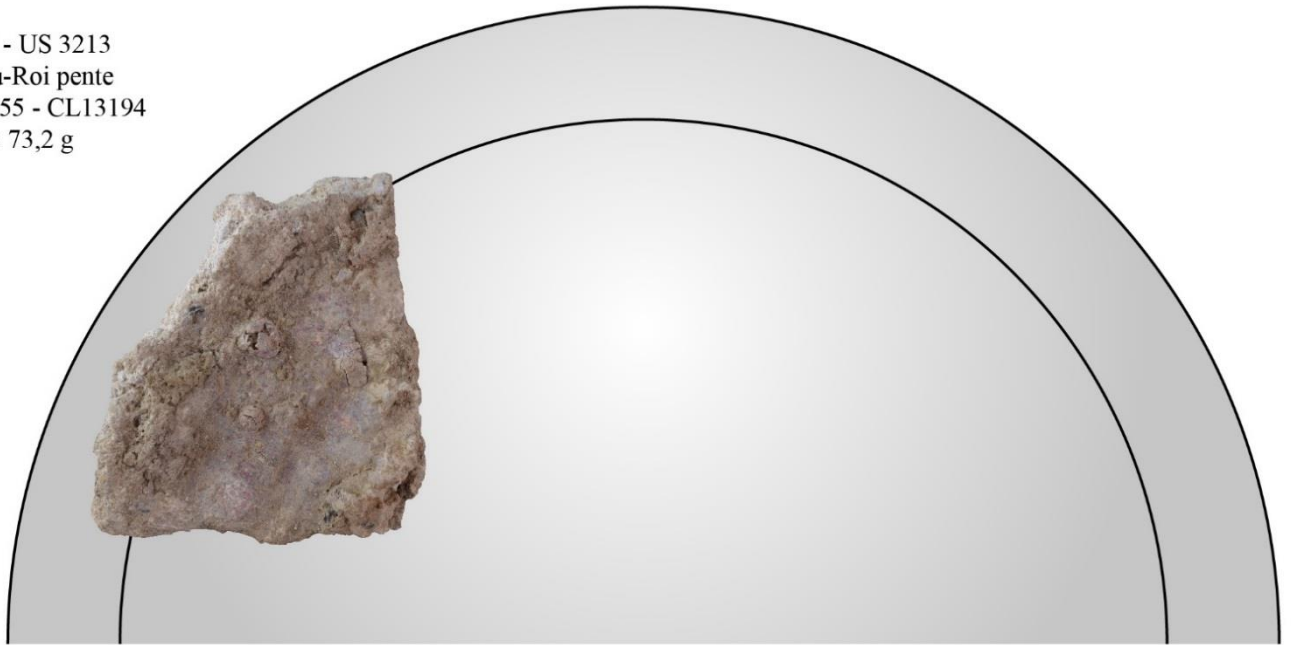
Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 8 Pl. 10

CM16 - US 3213
 Plat-du-Roi pente
 Isolat 44955 - CL13194
 m : 73,2 g



CM 16 - US 3213
 Plat-du-Roi pente
 Isolat 44830 - CL13130
 m : 136,0 g



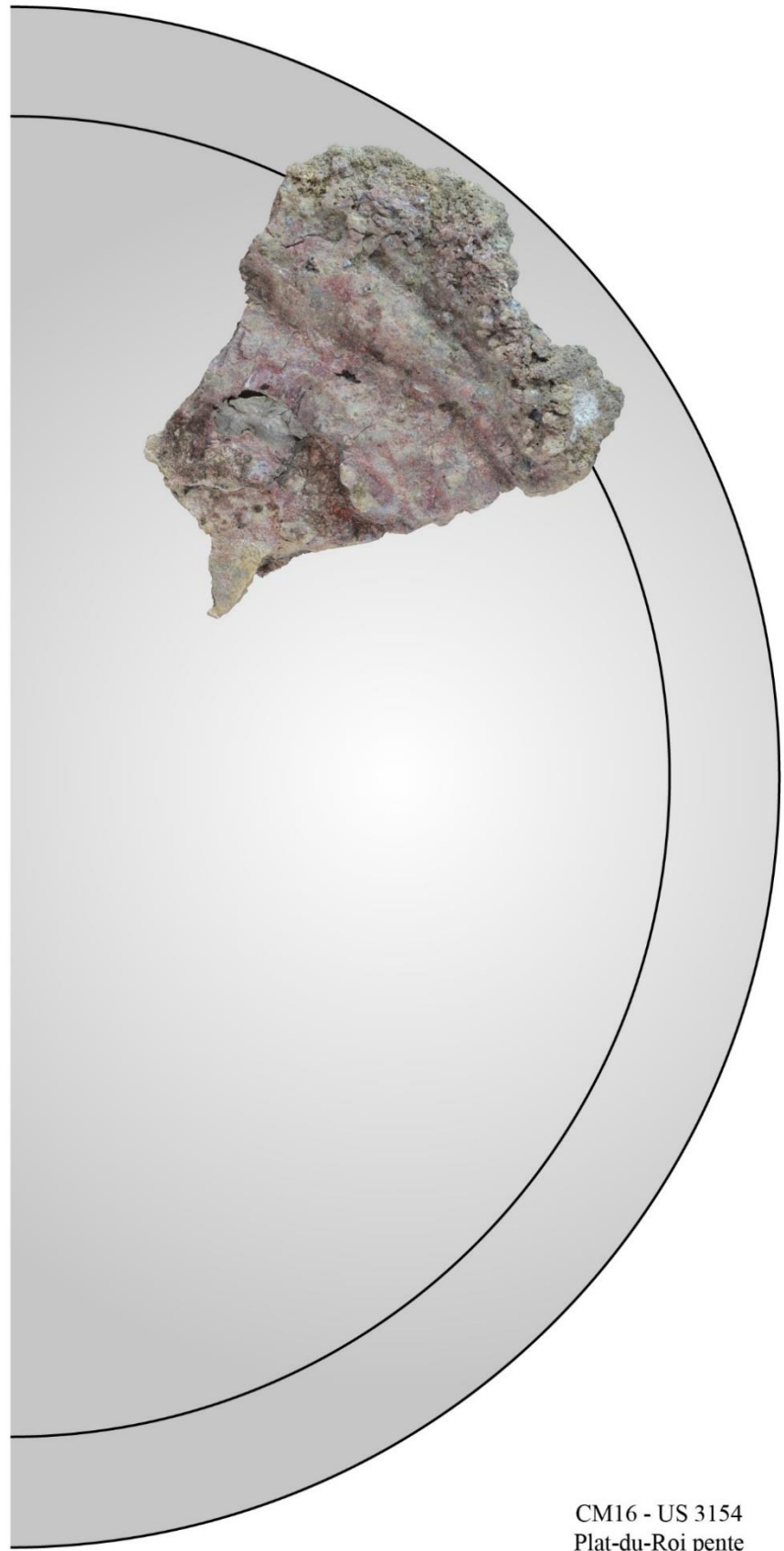
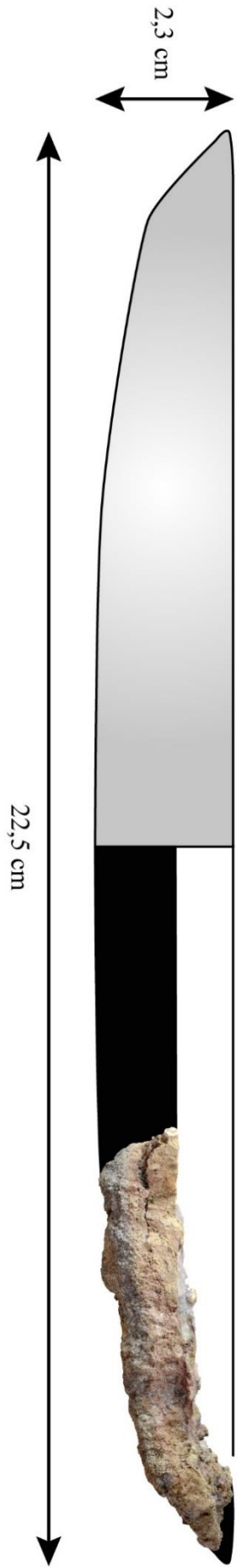
Casses de coupellation

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

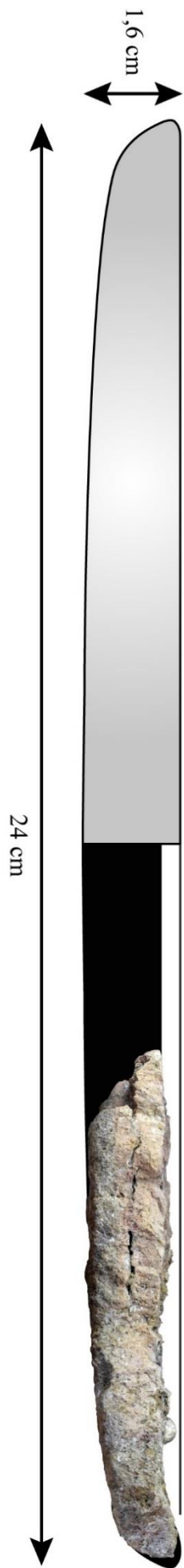
Annexe 8 Pl. 11



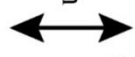
CM16 - US 3154
 Plat-du-Roi pente
 Isolot 44562 - CL13144
 m : 135 g



Casses de coupellation		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 8 Pl. 12



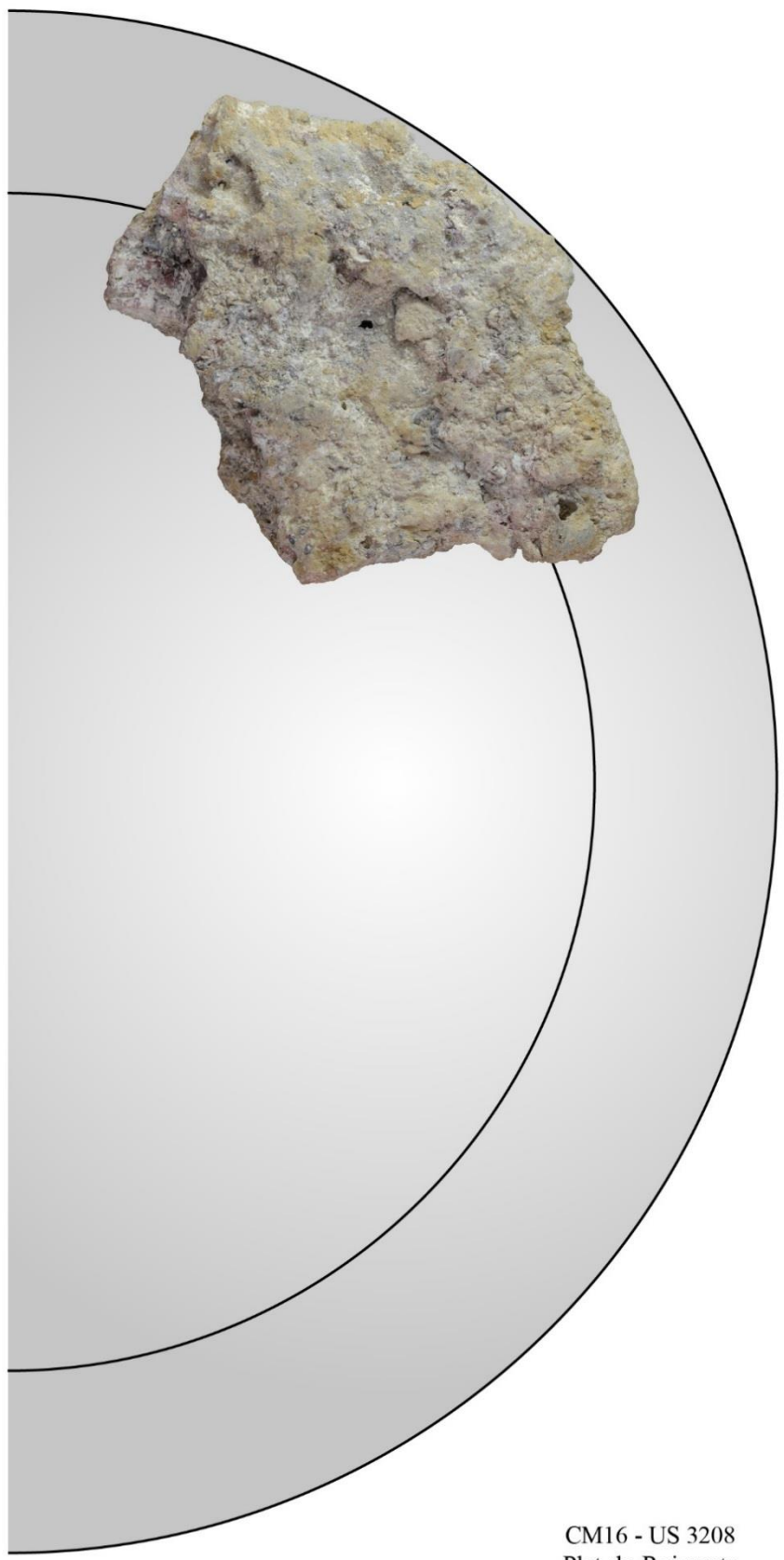
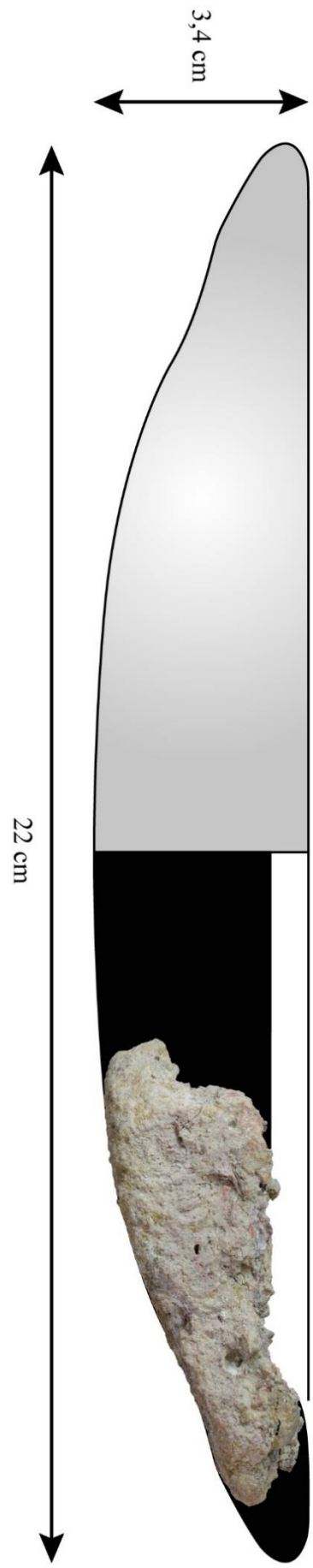
1,6 cm



CM16 - US 3214
 Plat-du-Roi pente
 Isolat 44738 - CL13167
 m : 246 g



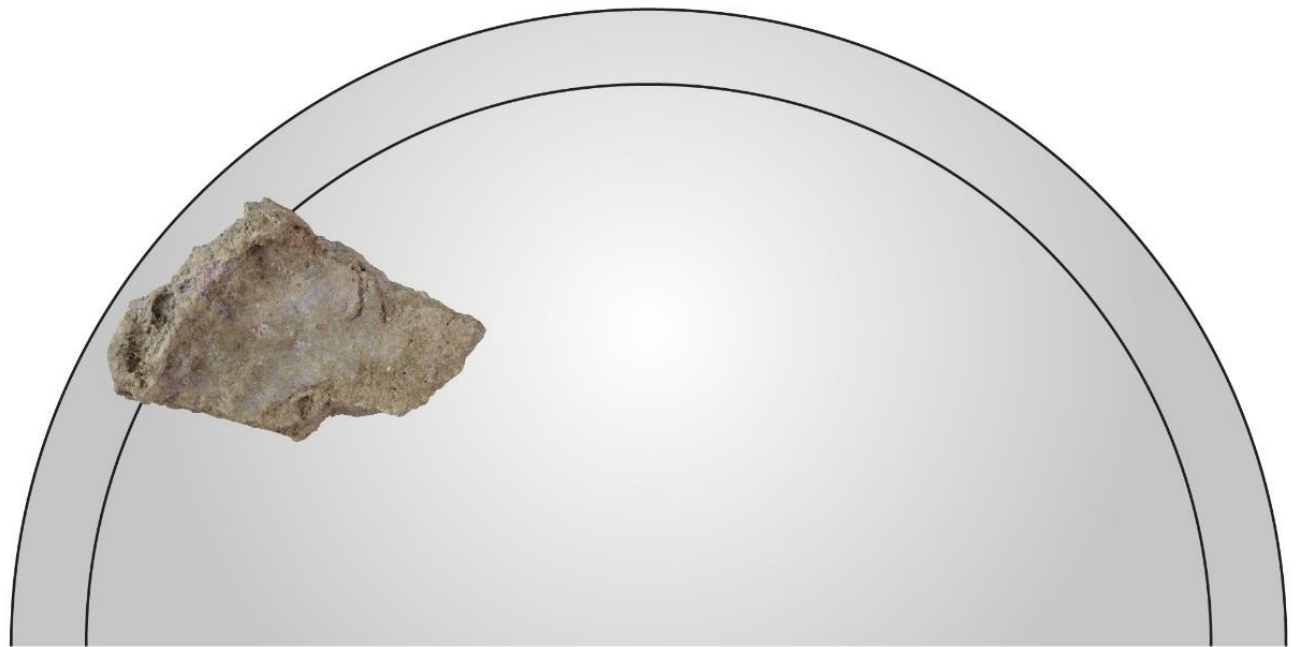
Casses de coupellation		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 8 Pl. 13



CM16 - US 3208
 Plat-du-Roi pente
 Isolat 44652 - CL13133
 m : 265 g



Casses de coupellation		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 8 Pl. 14



22 cm



1,6 cm

CM16 - US 3154
Plat-du-Roi pente
Isolat 44555 - CL13143
m : 43,6 g



CM16 - US 3154
Plat-du-Roi pente
Isolat 44563 - CL13197/1
m : 33,95 g



CM16 - US 3214
Plat-du-Roi pente
Isolat 44914 - CL13198/1
m : 9,8 g



CM14 - US 3074
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL12113
m : 31,2 g - Ep. max. : 13,2 g



CM14 - US 3074
Plat-du-Roi enceinte castrale
Isolat 42708 - CL11546
m : 158,9 g - Ep. max. : 18,5 mm



CM14 - US 3074
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL11511/1 à 11511/3
m : 14,1 ; 4,2 et 3,4 g - Ep. max. : 11,1 ; 9,4 et 7,2 mm



CM15 - US 3194
Plat-du-Roi enceinte castrale
Isolat 44002 - CL 12703/1 et CL12703/2
m : 46,55 et 7,93 g



Casses de coupellation

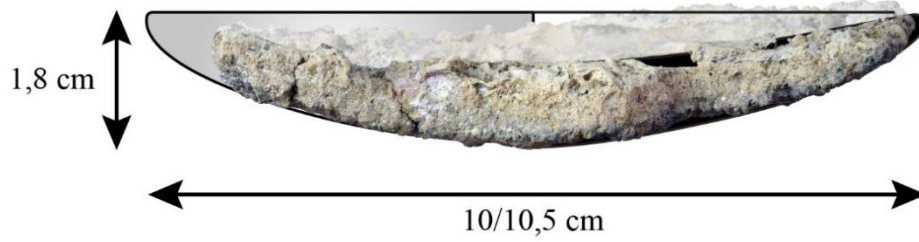
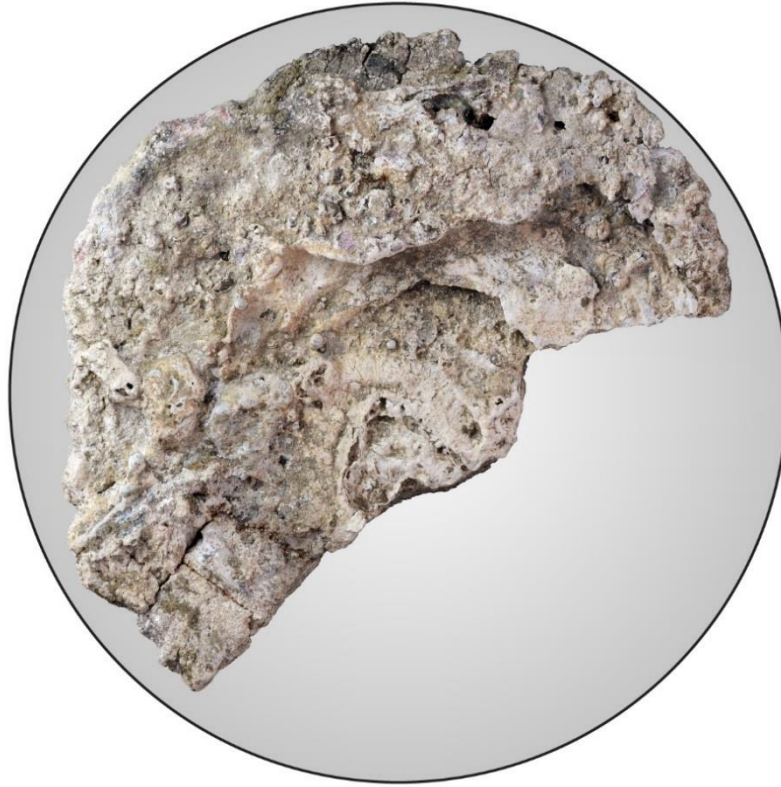
Castel-Minier

Echelle 1/1

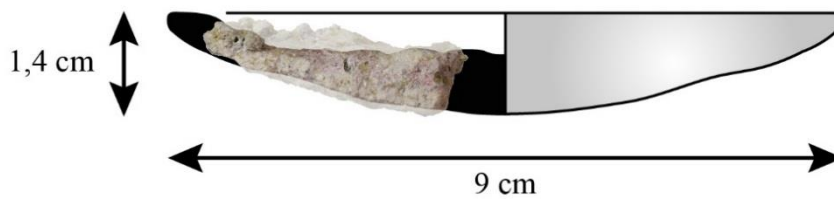
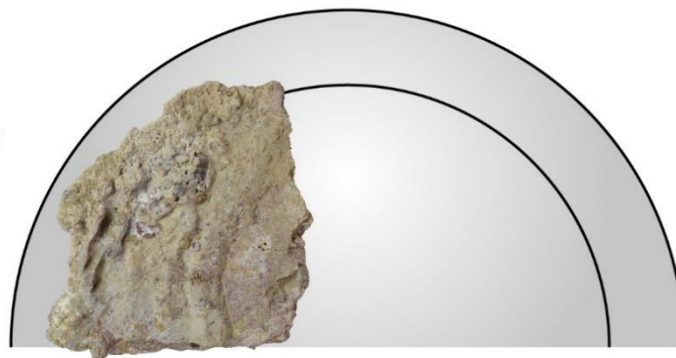
Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 8 Pl. 15

CM16 - US 3214
 Plat-du-Roi pente
 Isolat 44816 - CL13169
 m : 198 g



CM16 - US 3214
 Plat-du-Roi pente
 Isolat 44835 - CL13135
 m : 32,8 g



Casses de coupellation

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 8 Pl. 16

Annexe 9 : Litharges



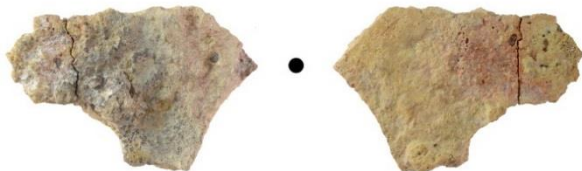
CM16 - US 3214
Plat-du-Roi pente
Isolat 44654 - CL13149
m : 15,5 g - Ep. max. : 15,5 mm



CM16 - US 3214
Plat-du-Roi pente
Isolat 44716 - CL13189
m : 3,8 g - Ep. max. : 8 mm



CM16 - US 3214
Plat-du-Roi pente
Isolat 44958 - CL13193
m : 8,9 g - Ep. max. : 6,1 mm



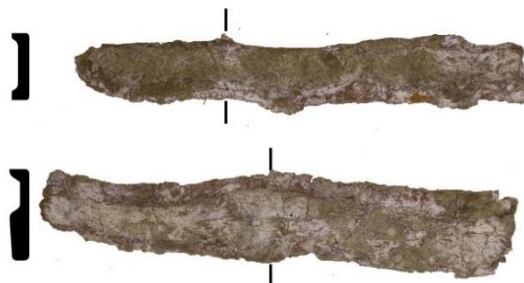
CM16 - US 3214
Plat-du-Roi pente
Isolat 44817 - CL13155
m : 9,5 g - Ep. moy. : 4,3 mm



CM15 - US 3154
Plat-du-Roi pente
Isolat 42844 - CL12707
m : 9,8 g



CM14 - US 3074
Plat-du-Roi enceinte castrale
Isolat 42234 - CL11419
m : 14,5 g



CM14 - US 3074
Plat-du-Roi enceinte castrale
Isolat 39970 - CL11864
m : 68,4 g



CM14 - US 3074
Plat-du-Roi enceinte castrale
Isolat 42716 - CL11469
m : 35,5 g



CM14 - US 3113
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL11992
m : 11,7 g



CM12 - US 2335
Bâtiment 1
Isolat 39034 - CL11231
m : 51,6 g



CM12 - US 2333
Bâtiment 2
CL11212
m : 2,9 g



Litharges

Castel-Minier

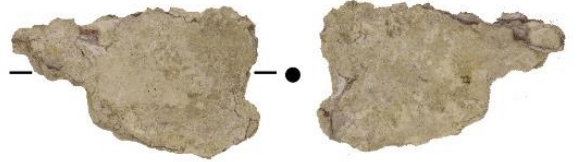
Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre, J. Flament

Annexe 9 Pl. 1



CM12 - US 2333
Bâtiment 2
CL11212
m : 2,9 g



CM13 - US 2421
Bâtiment 3
CL11767
m : 10,3 g



CM13 - US 2405
Bâtiment 3
Isolat 39052 - CL11695
m : 35,3 g

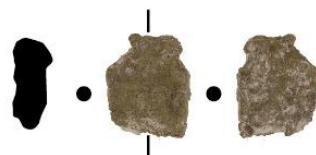


CM15 - US 2520
Bâtiment 3
CL12691
m : 14,6 g

CM12 - US 2316
Bâtiment 6
CL11060
m : 94,9 g



CM14 - US 2462
Bâtiment 7
Isolat 39879 - CL11409
m : 190,9 g



CM12 - M35
Bâtiment 8
CL11259
m : 9,9 g

CM07 - US 3013
Bâtiment 9
CL10131
m : 5,3 g

CM14 - US 3111
Bâtiment 10
CL12115
m : 1,1 g



Litharges

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre, J. Flament

Annexe 9 Pl. 2



CM14 - US 3042
Bâtiment 10
CL11879
m : 15,2 g



CM15 - US 3203
Bâtiment 10
CL12828
m : 25,3 g



CM14 - US 3115
Bâtiment 10
CL12196
m : 1,4 g - Ep. : 5,1



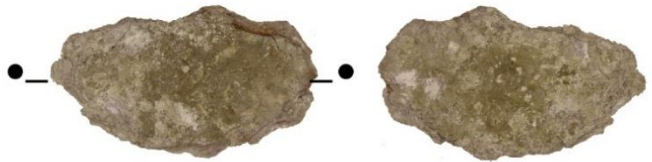
CM14 - US 3151
Bâtiment 10
CL12548
m : 3,5 g - Ep. : 6,8 mm



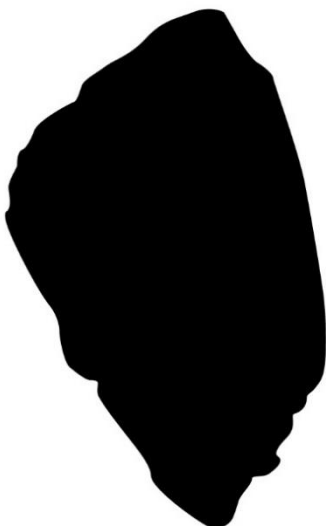
CM11 - M28
Bâtiment 11
CL11268
m : 10,6 g



CM13 - US 2352
Bâtiment 11
CL12357
m : 5,4 g



CM11 - US 2228
Plate-forme 1
CL10940
m : 20,9 g



CM12 - US 2298
Plate-forme 1
Isolat 39029 - CL11244
m : 1000,0 g



Litharges		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre, J. Flament	Annexe 9 Pl. 3



CM12 - US 2342
Plate-forme 1
Isolat 39191 - CL11222
m : 27,1 g



CM12 - US 2298
Plate-forme 1
Isolat 39029 - CL11214
m : 10,6 g



CM11 - US 2299
Plate-forme 1
CL10924
m : 26,5 g



CM13 - US 2449
Plate-forme 3
Isolat 39052 - CL11617
m : 3,3 g - Ep. : 4,8 mm



CM12 - US 2338
Plate-forme 4
CL11239
m : 19,9 g



CM12 - US 2348
Plate-forme 4
CL11232
m : 5,0 g - Ep. moy. : 5 mm



CM13 - US 2337
Plate-forme 4
Isolat 39601 - CL11770
m : 17,0 g



CM13 - US 2504
Plate-forme 4
Isolat 42875 - CL12720
m : 211,0 g



CM14 - US 3066
Plate-forme 5
CL11836
m : 26,5 g - Ep. : 2,1 mm



Litharges		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre, J. Flament	Annexe 9 Pl. 4



CM14 - US 3069
Plate-forme 5
Isolat 39878 - CL10831
m : 158,2 g



CM14 - US 3124
Plate-forme 5
CL11963
m : 119,4 g



Litharges		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre, J. Flament	Annexe 9 Pl. 5

Annexe 10 : Alliages Pb/Ag



CM 16 - US 3213
 Plat-du-Roi pente
 Isolat 44834 - CL13157
 Masse : 9,5 g - Ep. moy. : 6,3 mm



CM 14 - US 3113
 Plat-du-Roi enceinte castrale
 CL11992
 Masse : 11,7 g - Ep. moy. : 4,7 mm



CM 14 - US 3126
 Plate-forme 5
 CL12105
 Masse : 5,7 g



CM 11 - US 2084
 Plate-forme 4
 Isolat 38837 - CL11992
 Masse : 34,2 g



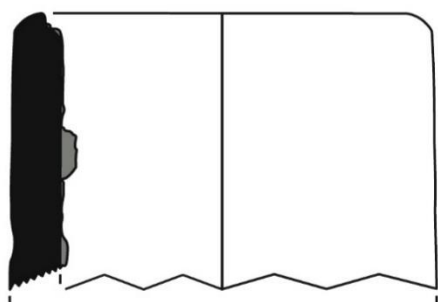
CM 14 - US 2484
 Bâtiment 5
 CL12128
 Masse : 2,6 g - Ep. moy. : 4,1 mm



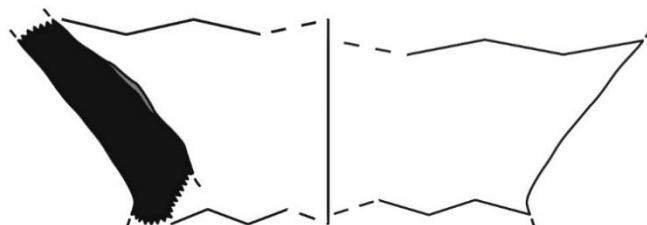
Alliage Pb-Ag en cours d'aafinage		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J. Flament	Annexe 10 . Pl. 1

Annexe 11 : Céramiques métallurgiques

CM12 - US 2316
 Bâtiment 6
 Isolat 39042 - CL11059
 m : 14,8 g



CM12 - US 2338
 Plate-forme 4
 Isolat 39042 - CL11123
 m : 12,9 g



Céramiques métallurgiques

Castel-Minier

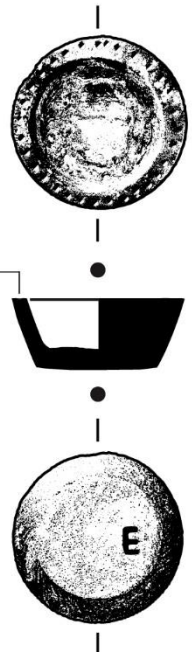
Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 11. Pl. 1

Annexe 12 : Mobilier métrologique

Epaisseur min. du rebord : 1,60 mm
Epaisseur maximale : 3 mm



CM10 - US 2228
Plate-forme 1
Isolat 37040 - CL10651
m : 12,75 g



CM16 - US 3124
Plat-du-Roi pente
Isolat 44806 - CL13095
m : 13,1 g



Mobilier métrologique		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 12 Pl. 1

Annexe 13 : Cuivres non alliés



CM13 - US 2405
Bâtiment 3
Isolat 39409 - CL11581
m : 1,0 g

CM14 - US 2462
Bâtiment 7
CL11895
m : 1,4 g

CM14 - US 3127
Bâtiment 10
Isolat 42119 - CL11933
m : 0,25 g

CM14 - US 3050
Bâtiment 10
CL12166
m : 1,9 g

CM14 - US 3128
Bâtiment 10
CL12163
m : 1,5 g

CM13 - US 2423
Bâtiment 11
Isolat 39501 - CL11706
m : 3,8 g - Ep. : 0,70 mm

CM11 - US 2292
Plate-forme 1
CL10882
m : 0,31 g - Ep. : 0,44 mm

CM13 - US 2442
Plate-forme 3
CL12026
m : 0,07 g

CM10 - US 2280
Plate-forme 3
CL11014
m : 17,0 g

CM09 - US 2207
Plate-forme 3
CL10259
m : 1,8 g - Ep. moy. : 0,70 mm

CM14 - US 2442
Plate-forme 3
Isolat 42058 - CL11946
m : 0,70 g

CM14 - US 2471
Plate-forme 4
CL12362
m : 0,30 g - Ep. : 0,70 mm

CM12 - US 2349
Plate-forme 4
Isolat 39099 - CL11331
m : 0,20 g - Ep. : 0,70 mm

CM14 - US 2453
Plate-forme 4
CL11919
m : 8,5 g - Ep. : 10,0 mm

CM14 - US 3126
Plate-forme 5
Isolat 42117 - CL11938
m : 2,7 g

CM14 - US 3015
Plate-forme 5
CL12159
m : 5,2 g - Ep. moy. : 0,90 mm

CM15 - US 3066
Plate-forme 5
CL12500
m : 5,1 g

CM14 - US 3074
Plat-du-Roi enceinte castrale
Isolat 42235 - CL12167
m : 3,0 g - Ep. : 0,80 mm

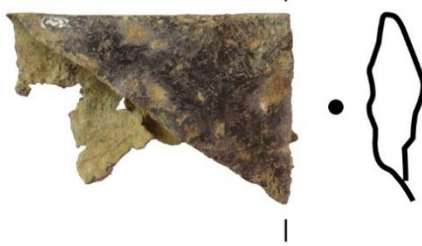
CM14 - US 3072
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL12174a
m : 0,10 g - Ep. : 0,70 mm



Cuivres non alliés		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament	Annexe 13 Pl. 1



CM14 - US 3072
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL11721
m : 3,3 g - Ep. : 0,60 mm



CM16 - US 3213
Plat-du-Roi enceinte castrale
Isolat 44695 - CL13098
m : 4,7 g



CM14 - US 3074
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL12114
m : 0,10 g - Ep. : 0,40 mm



CM14 - US 3067
Plat-du-Roi pente
Isolat 42057 - CL11863
m : 2,8 g



CM14 - US 3067
Plat-du-Roi pente
CL12096
m : 1,10 g
Ep. comprise entre 1,5 et 0,40 mm



CM16 - US 3218
Plat-du-Roi pente
CL13110
m : 0,2 g - Ep. : 0,70 mm



CM04 - sgd. 1 - US 04
CL12311
m : 5,6 g



CM08 - US 2160
Ferrier 1 1350 - 1450
Isolat 34267 - CL10602
m : 40,4 g - Ep. moy. : 0,50 mm



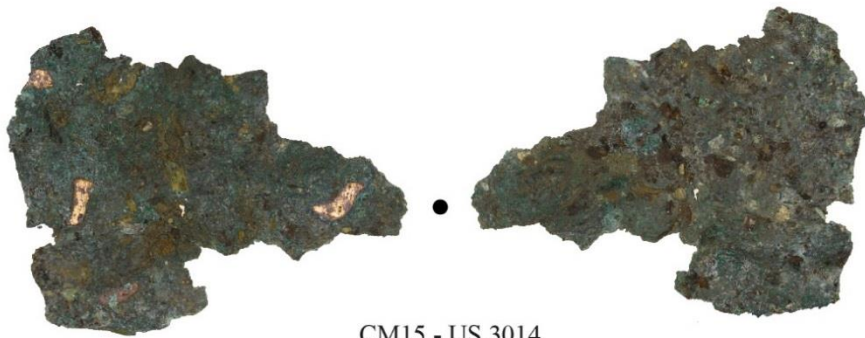
Cuivres non alliés

Castel-Minier

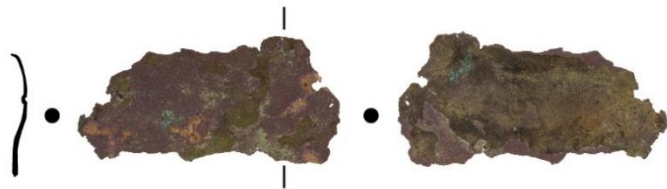
Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

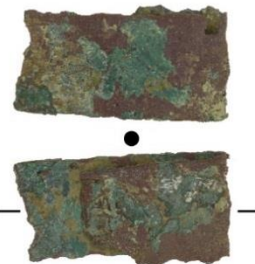
Annexe 13 Pl. 2



CM15 - US 3014
 Ferrier 2
 CL12501
 m : 6,2 g - Ep. : 0,70 mm



CM15 - US 3017
 Ferrier 2
 CL12511
 m : 1,7 g



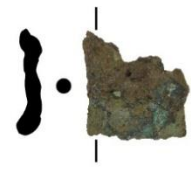
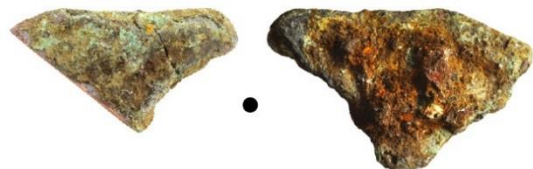
CM13 - US 3021
 Ferrier 2
 CL11423
 m : 5,4 g



CM12 - US 2249
 Ferrier 3 1550 - 1600
 CL11332
 m : 46,2 g



CM14 - US 2473
 Marteau 1549
 Isolot 42046 - CL12165
 m : 4,0 g - Ep. moy. : 0,40 mm



CM13 - US 2063
 Canal 1450 - 1600
 Isolot 39494 - CL11678
 m : 29,3 g

CM11 - US 2033
 Aire de grillage 1500 - 1600
 Isolot 39494 - CL10928
 m : 29,3 g - Ep. : 2,89 mm

CM10 - US 2270
 Bas-foyer 1550-1600
 CL10761
 m : 0,48 g



Cuivres non alliés

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

Annexe 13 Pl. 3

Annexe 14 : Bronzes, bronzes au plomb et laitons rouges



CM15 - US 2519
Bâtiment 2
CL12627
m : 1,3 g - Ep. : 0,66 mm



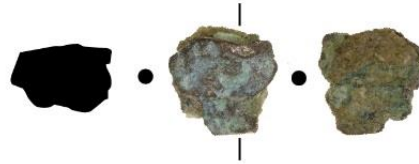
CM12 - US 2333
Bâtiment 2
CL11266
m : 0,90 g



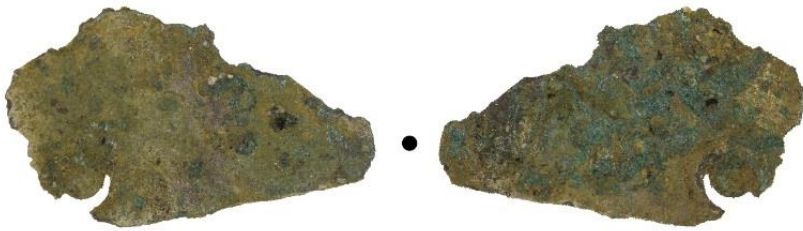
CM15 - US 2526
Bâtiment 3
CL12693
m : 2,5 g



CM15 - US 2526
Bâtiment 3
CL12694
m : 0,87 g - Ep. : 0,45 mm



CM13 - US 3031
Bâtiment 8
Isolat 39040 - CL11552
m : 5,0 g



CM14 - US 3084
Bâtiment 10
Isolat 39978 - CL11743
m : 3,9 g - Ep. : 0,80 mm



CM15 - US 3171
Bâtiment 10
Isolat 42918 - CL12554
m : 6,7 g - Ep. : 0,80 mm



CM13 - US 2358
Bâtiment 11
Isolat 39370 - CL11491
m : 2,0 g - Ep. : 0,42 mm



CM13 - US 2412
Bâtiment 11
Isolat 39448 - CL11499
m : 1,0 g



CM13 - US 2412
Bâtiment 11
Isolat 39445 - CL11650
m : 1,6 g



CM11 - US 2292
Plate-forme 1
CL10953/2
m : 0,80 g



Bronzes, bronzes au plomb et laitons rouges

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

Annexe 14 Pl. 1



CM11 - US 2292
Plate-forme 1
CL10953/1
m : 0,90 g

CM14 - US 2389
Plate-forme 4
CL11893
m : 0,80 g

CM11 - US 2085
Plate-forme 4
CL10935
m : 0,19 g - Ep. : 0,96 mm

CM14 - US 3126
Plate-forme 5
CL11937
m : 3,6 g



CM15 - US 3154
Plat-du-Roi pente
CL12825
m : 45,5 g



CM14 - US 3072
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL12174b
m : 1,0 g



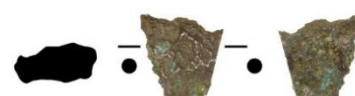
CM14 - US 3078
Ferrier 2
CL12192
m : 2,0 g



CM12 - US 2375
Canal 1400 - 1450
CL11280
m : 9,1 g - Ep. : 10,0 mm



CM13 - US 2363
Canal 1450 - 1600
Isolat 39424 - CL11492
m : 1,0 g



CM12 - US 2369
Marteau 1550 - 1600
CL11096
m : 0,10 g - Ep. : 0,85 mm



CM13 - US 2368
Aire de grillage 1500 - 1600
CL11579
m : 1,0 g - Ep. : 0,47 mm



CM07 - US 2026
Ferrier 1 1350 - 1450
CL10138
m : 0,2 g - Ep. : 0,30 mm



Bronzes, bronzes au plomb et laitons rouges

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

Annexe 14 Pl. 2

Annexe 15 : Laitons



CM13 - US 2063
Canal 1450 - 1600
CL11692
m : 2,0 g



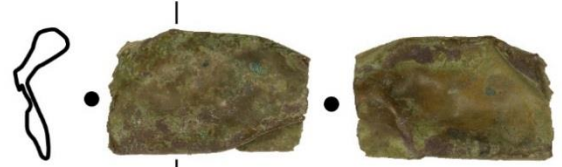
CM12 - US 2335
Bâtiment 1
CL11092
m : 2,1 g - Ep. : 0,81 mm



CM13 - US 2420
Bâtiment 3
Isolat 39453 - CL11424
m : 1,2 g - Ep. : 0,44 mm



CM12 - US 2316
Bâtiment 6
CL11098
m : 1,2 g



CM07 - US 3009
Bâtiment 9
CL10115
m : 3,6 g



CM13 - US 2423
Bâtiment 11
CL11710
m : 0,20 g - Ep. : 0,57 mm



CM13 - US 2352
Bâtiment 11
CL11628
m : 2,1 g



CM13 - US 2425
Bâtiment 11
CL11769
m : 0,80 g



CM13 - US 2412
Bâtiment 11
CL11709
m : 3,5 g



CM14 - US 3015
Plate-forme 5
Isolat 42093 - CL11945
m : 3,7 g



CM11 - US 2292
Plate-forme 1
Isolat 38668 - CL10825
m : 0,36 g - Ep. : 0,96 mm



CM11 - US 2292
Plate-forme 1
CL10824
m : 0,27 g - Ep. : 0,82 mm



CM11 - US 2084
Plate-forme 1
Isolat 38860 - CL10927
m : 1,3 g



CM15 - US 3156
Plate-forme 5
CL12536
m : 0,77 g



CM14 - US 3066
Plate-forme 5
CL11745
m : 1,9 g



CM14 - US 3074
Plat-du-Roi enceinte castrale
Isolat 42118 - CL12178
m : 0,9 g



Laitons

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

Annexe 15 Pl. 1

Annexe 16 : Alliages ternaires Pb-Sb-Cu, antimoine et cuivres au plomb

Alliages ternaires Pb-Sb-Cu



CM14 - US 3072
Plat-du-Roi plate-forme
CL12174c
m : 1,3 g - Ep. : 5,7 mm



CM12 - US 3021
Ferrier 2
CL11095
m : 496,0 g

Antimoine

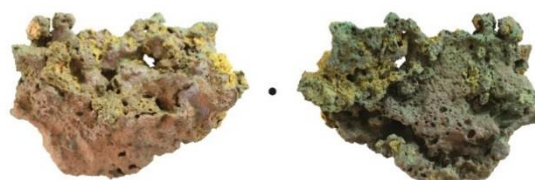


CM15 - US 3149
Plat-du-Roi pente
CL12838
m : 1,2 g

Cuivres au plomb



CM16 - US 3064
Plat-du-Roi pente
Isolat 44468 - CL13138
m : 7,3 g



CM12 - US 2361
Plate-forme 3
CL11148
m : 12,5 g - Ep. max. : 10,7 mm

0 1 5 cm



Alliages Pb-Sb-Cu, cuivres au plomb et antimoine

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament

Annexe 16 Pl. 1

Annexe 17 : Scories cuivreuses



CM10 - US 2280
Plate-forme 3
CL11014
m : 20,2 g (5 individus)



CM15 - US 3066
Plate-forme 5
CL12823
m : 10,0 g (2 individus)



CM14 - US 3126
Plate-forme 5
CL11993
m : 10,3 g (11 individus)



CM14 - US 3066
Plate-forme 5
CL11876
m : 20,5 g (2 individus)



CM14 - US 3126
Plate-forme 5
CL11994
m : 5,2 g (5 individus)



CM14 - US 3063
Plate-forme 5
CL11412
m : 25,0 g (4 individus)



CM14 - US 3072
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL12174
m : 10,0 g (20 individus)



CM15 - US 3072
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL12491
m : 86,8 g (1 individu)



CM15 - US 3064
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL12490/1 et 12490/2
m : 17,1 g (7 individus)



CM15 - US 3064
Plat-du-Roi enceinte castrale
CL12824
m : 3,0 g (10 individus)



CM15 - US 3154
Plat-du-Roi pente
CL12826
m : 8,0 g (5 individus)



Scories de cuivre

Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J. Flament

Annexe 17 Pl. 1



CM16 - US 3212
Plat-du-Roi pente
CL13186
m : 28,2 g (7 individus)



CM15 - US 3067
Plat-du-Roi pente
CL12702/1, 12702/2 et 12702/3
m : 3,5 g, 4 g et 6 g (12 individus)



CM14 - US 3067
Plat-du-Roi pente
CL12096/7
m : 10,3 g



CM14 - US 3067
Plat-du-Roi pente
CL12096/6
m : 130,5 g



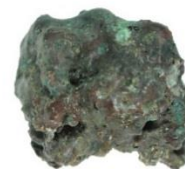
CM14 - US 3067
Plat-du-Roi pente
CL12096/5
m : 80,5 g



CM14 - US 3067
Plat-du-Roi pente
CL12096/3
m : 44,3 g



CM14 - US 3067
Plat-du-Roi pente
CL12096/4
m : 24,2 g



CM14 - US 3067
Plat-du-Roi pente
CL12096/1
m : 14,2 g



CM14 - US 3067
Plat-du-Roi pente
CL12096/2
m : 88,4 g



CM16 - US 3154
Plat-du-Roi pente
Isolat 44688 - CL13195
m : 10,7g (5 individus)



Scories de cuivre

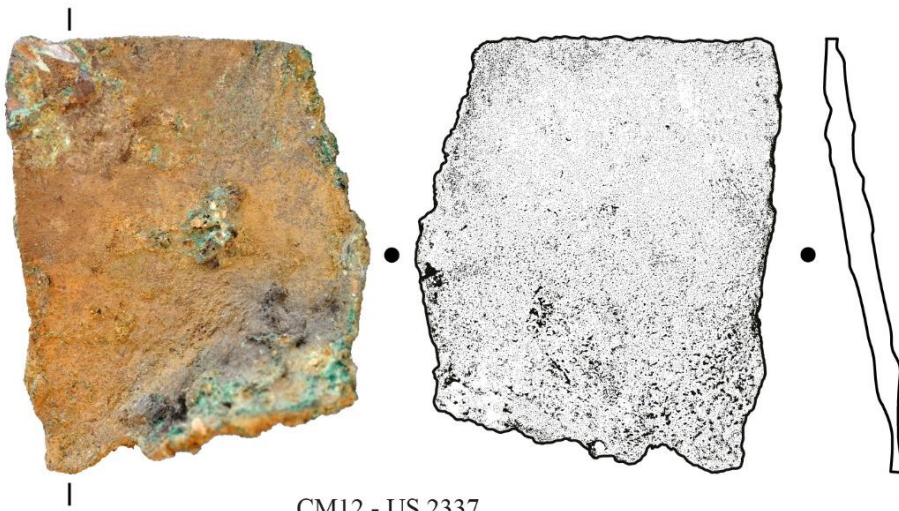
Castel-Minier

Echelle 1/1

Minutes et infographie : J. Flament

Annexe 17 Pl. 2

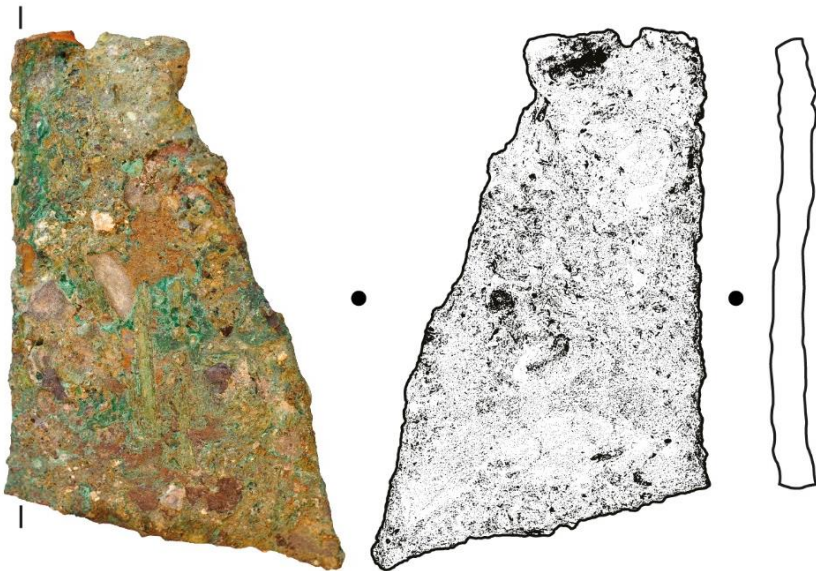
Annexe 18 : *Caldarium*



CM12 - US 2337
 Plate-forme 4
 Isolat 39051 - CL11107
 m : 45,8 g



CM13 - US 2085
 Plate forme 4
 Isolat 39342 - CL11513
 m : 1,5 g

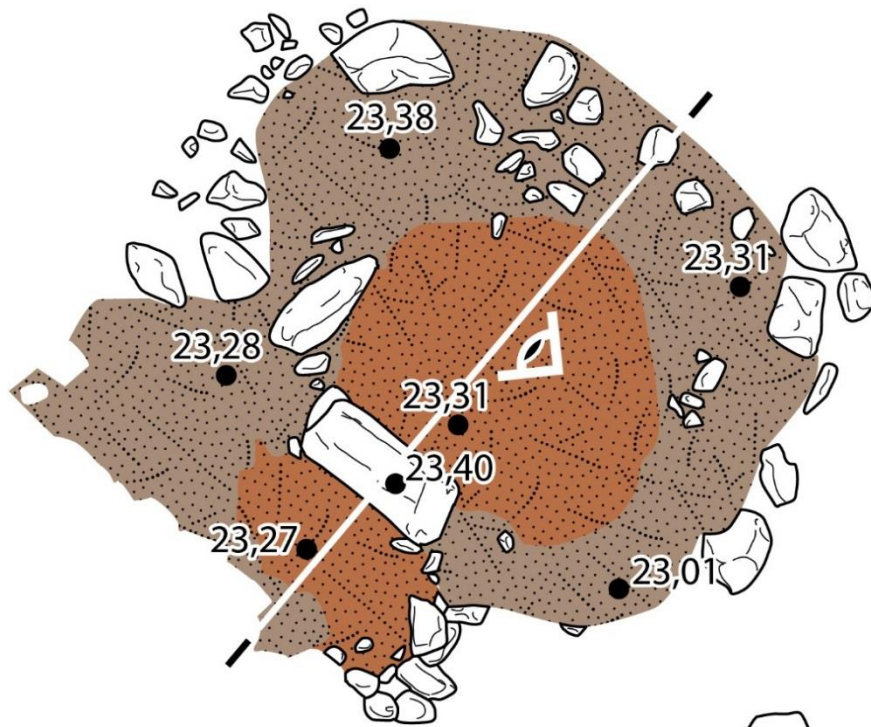


CM12 - US 2338
 Plate-forme 4
 ICL11088
 m : 30,0 g



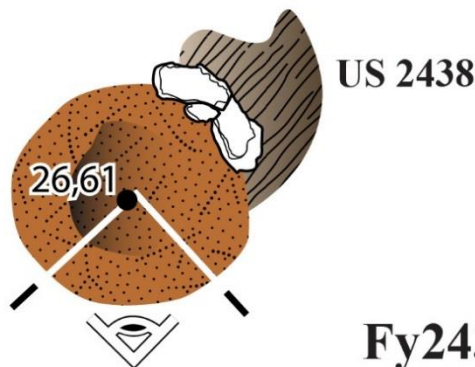
<i>Caldarium</i>		Castel-Minier
Echelle 1/1	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre et J. Flament	Annexe 18 Pl. 1

Annexe 19 : Foyers métallurgiques et domestiques



- US 2467A : argile rubéfiée.
- US 2467B : argile jaune non rubéfiée ou partiellement rubéfiée.
- US 2468 : argile non rubéfiée.
- US 2486 : niveau de pierres sans matrice (galets, schiste et granite).
- US 1010/2302 : niveau argilo-sableux brun-noir avec cailloux pluricentimétriques.

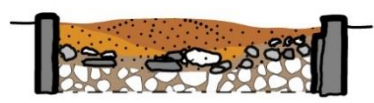
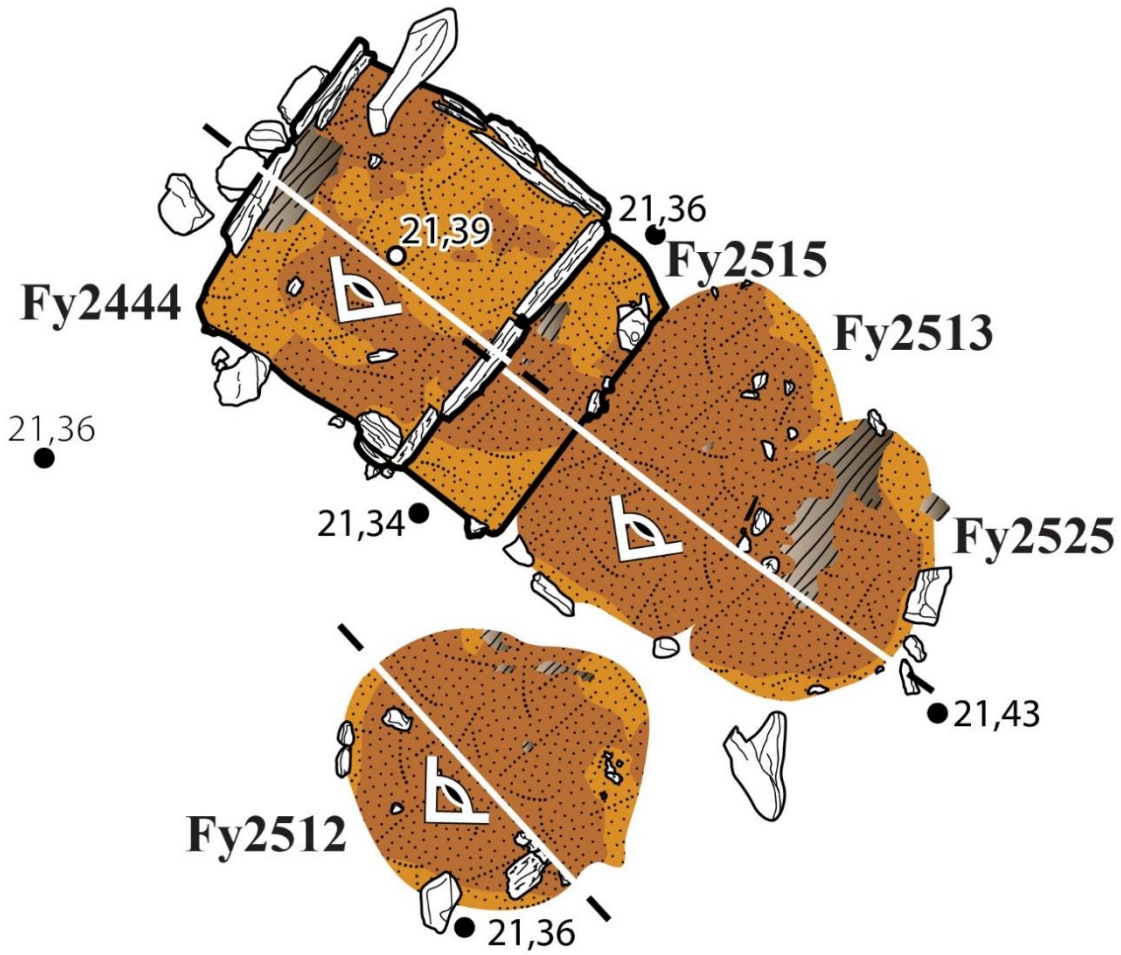
Fy2467 Plate-forme 2



Fy2435 Plate-forme 1



Foyers métallurgiques et domestiques		Castel-Minier
Echelle 1/20	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 19 Pl. 1



Fy2444

Plate-forme 3



Fy2515 - 2513 - 2525

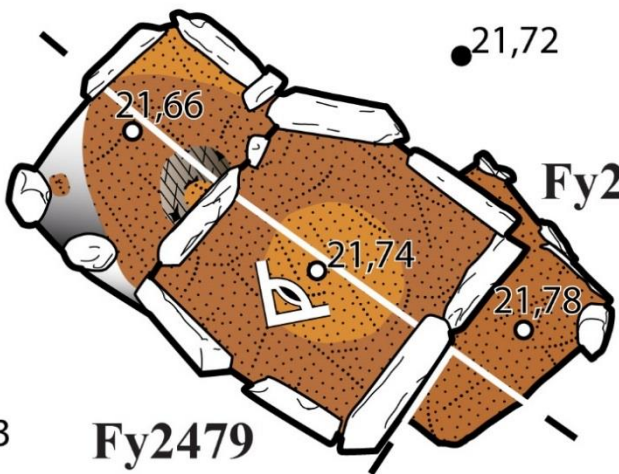
Plate-forme 3



Fy2512

Plate-forme 3

Fy2482



Fy2480

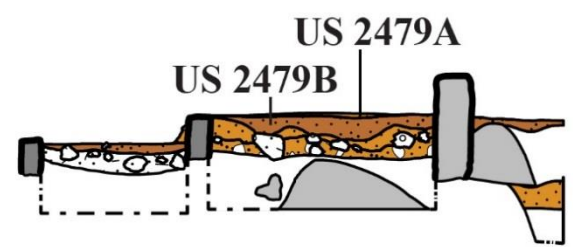
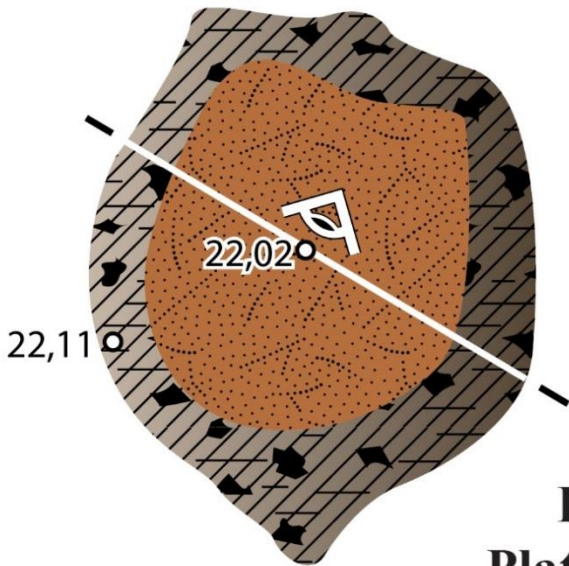


Plate-forme 3

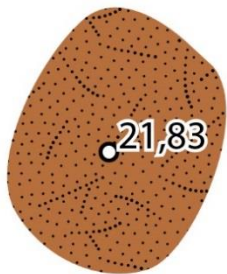
Fy2479



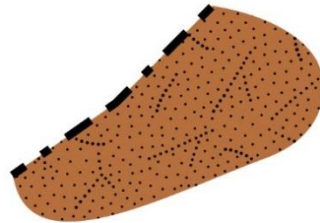
Foyers métallurgiques et domestiques		Castel-Minier
Echelle 1/20	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 19 Pl. 2



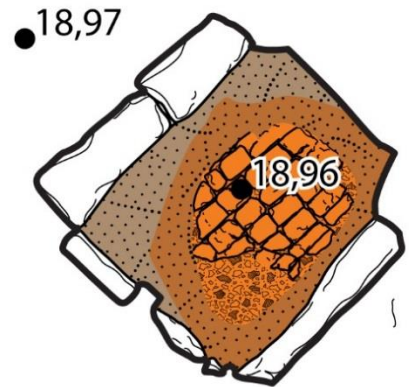
Fy3130
Plate-forme 5



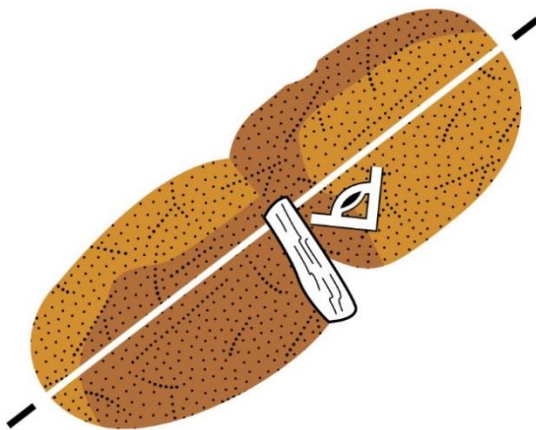
Fy3096
Plate-forme 5



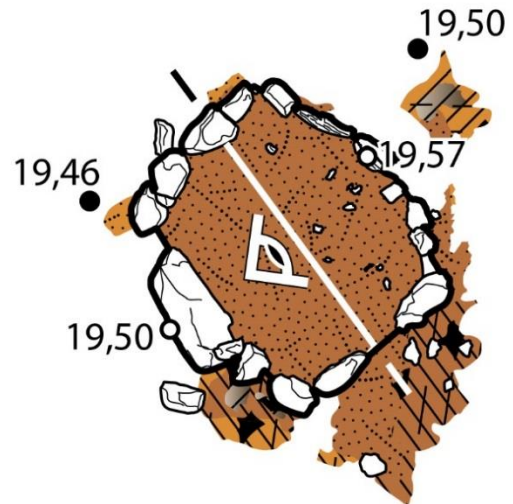
Fy3063
Plate-forme 5



Fy3058
Bâtiment 8



Fy3145
Bâtiment 8

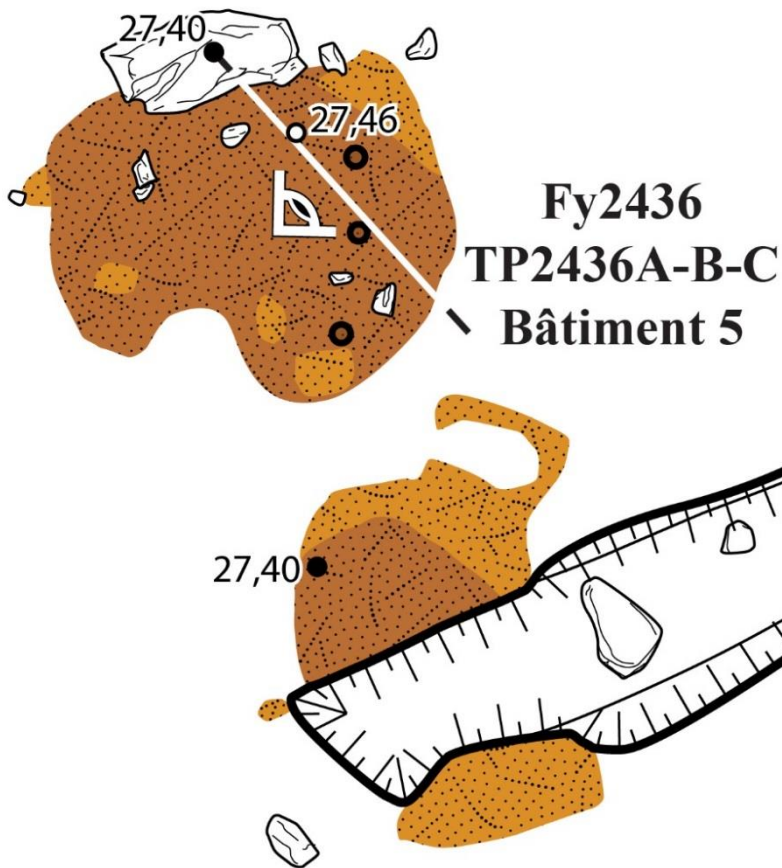
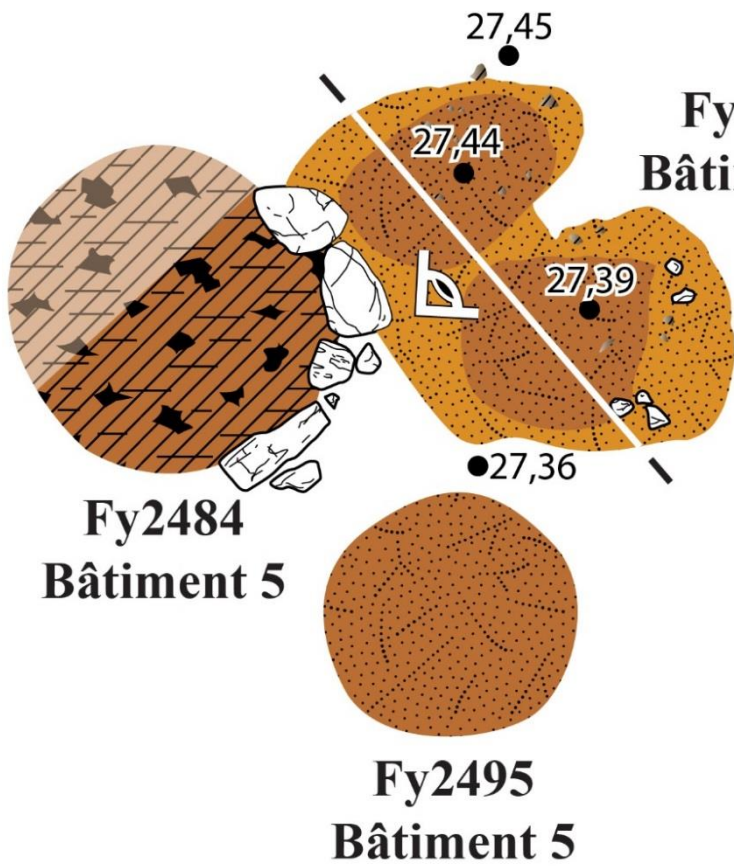


US 2520  US 2520

Fy2526
Bâtiment 3

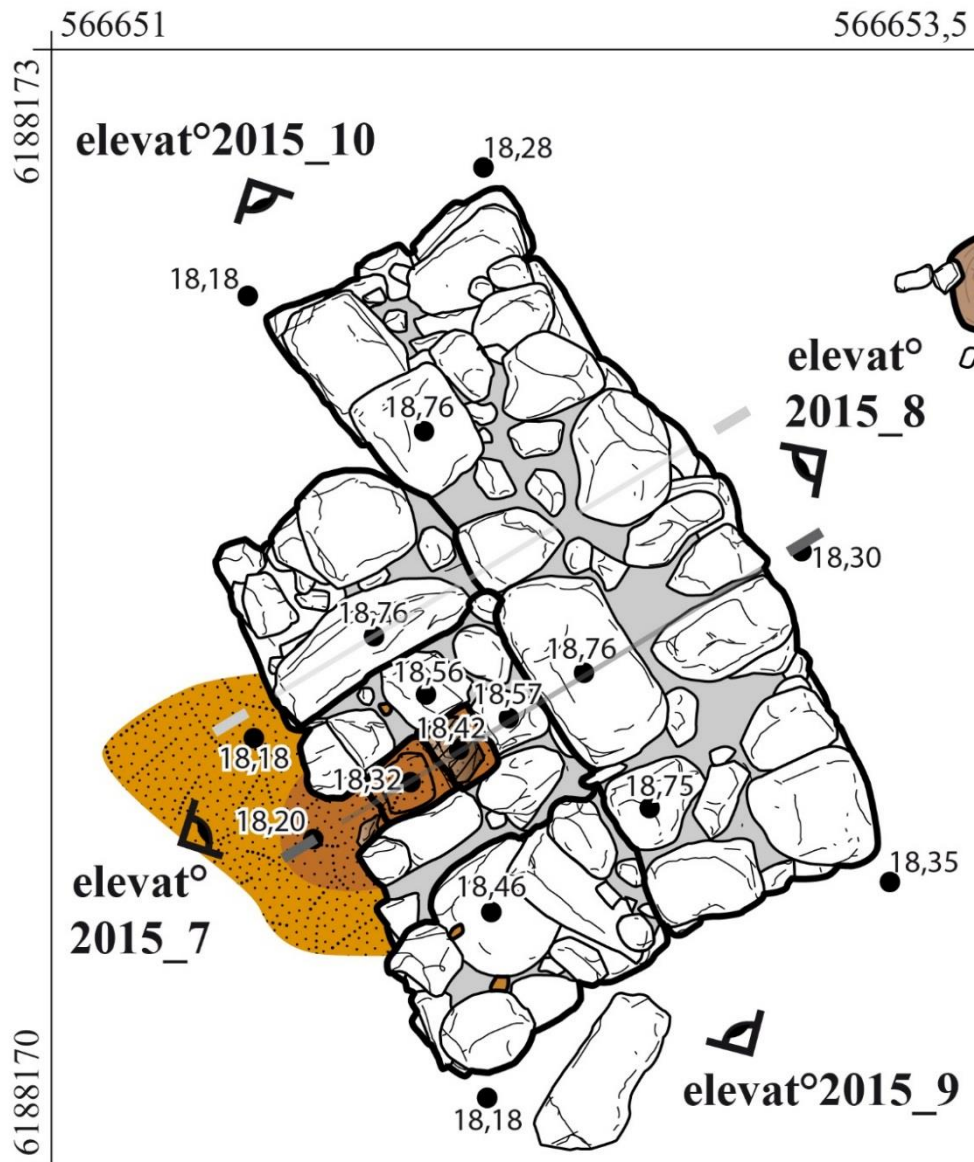


Foyers métallurgiques et domestiques		Castel-Minier
Echelle 1/20	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 19 Pl. 3



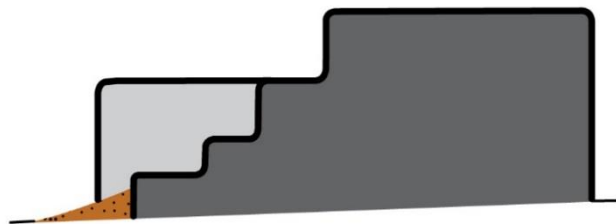
Foyers métallurgiques et domestiques		Castel-Minier
Echelle 1/20	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 19 Pl. 4

Annexe 20 : Fours du bâtiment 10



 US 3178

 US 3179



Four Fr72
Bâtiment 10

Castel-Minier

Echelle 1/20

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 20 Pl. 1

Castel-Minier 2015. Elévations 07, 08, 09 et 10.
Secteur de l'ex-F2, niveau bas.

Four de fusion Fr72 (US 3174).

Echelle 1/20°.

Coordonnées Lambert 93 :

42990 : X = 566651,74 - Y = 6188172,47 - Z = 1018,76.

42991 : X = 566652,88 - Y = 6188170,14 - Z = 1018,80.

44004 : X = 566653,22 - Y = 6188170,96 - Z = 1018,87.

44005 : X = 566652,24 - Y = 6188172,52 - Z = 1018,86.

44006 : X = 566652,05 - Y = 6188170,24 - Z = 1018,82.

44007 : X = 566653,16 - Y = 6188170,81 - Z = 1018,83.

144008 : X = 566652,19 - Y = 6188172,61 - Z = 1018,78.

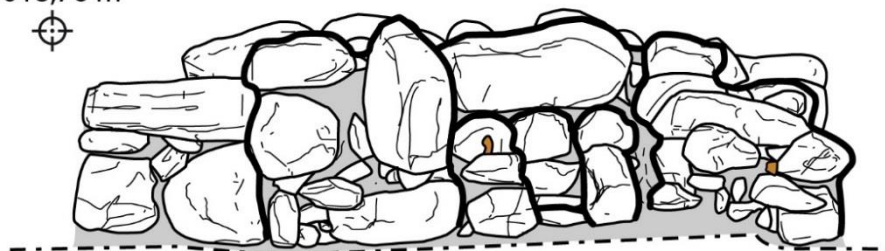
144009 : X = 566651,18 - Y = 6188171,88 - Z = 1018,79.

Minutes : O. Vingolte.

Infographie : B. Buffet, T. Menant et J.-Ch. Méaudre.

A 42990
1018,76 m
⊕

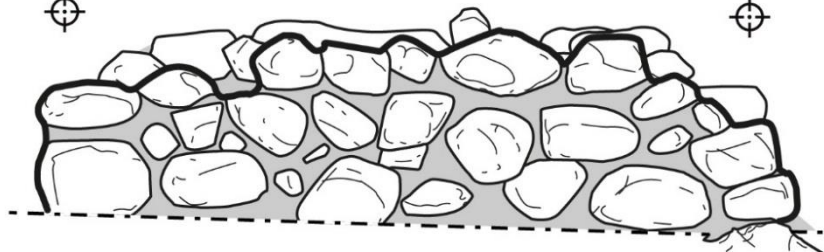
B 42991
1018,80 m
⊕



elevat°2015_7

A 44004
1018,87 m
⊕

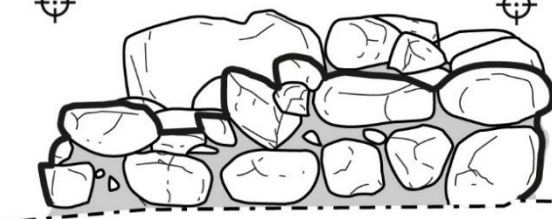
A 44005
1018,86 m
⊕



elevat°2015_8

A 44006
1018,82 m
⊕

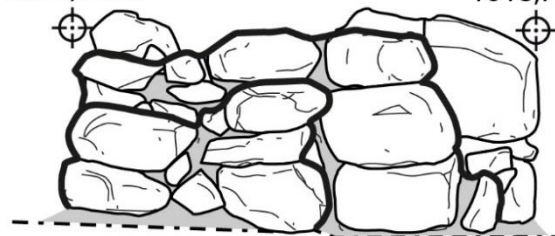
B 44007
1018,82 m
⊕



elevat°2015_9

A 144008
1018,78 m
⊕

B 144009
1018,79 m
⊕



elevat°2015_10



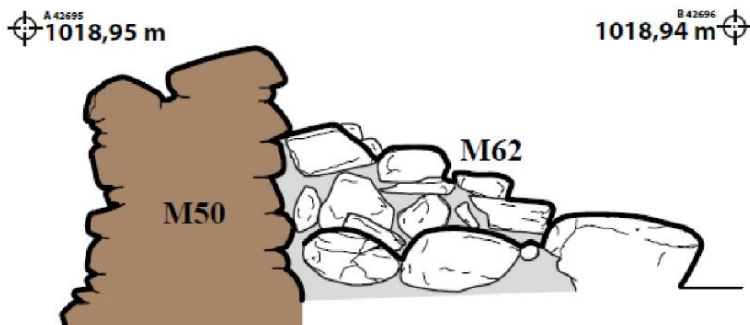
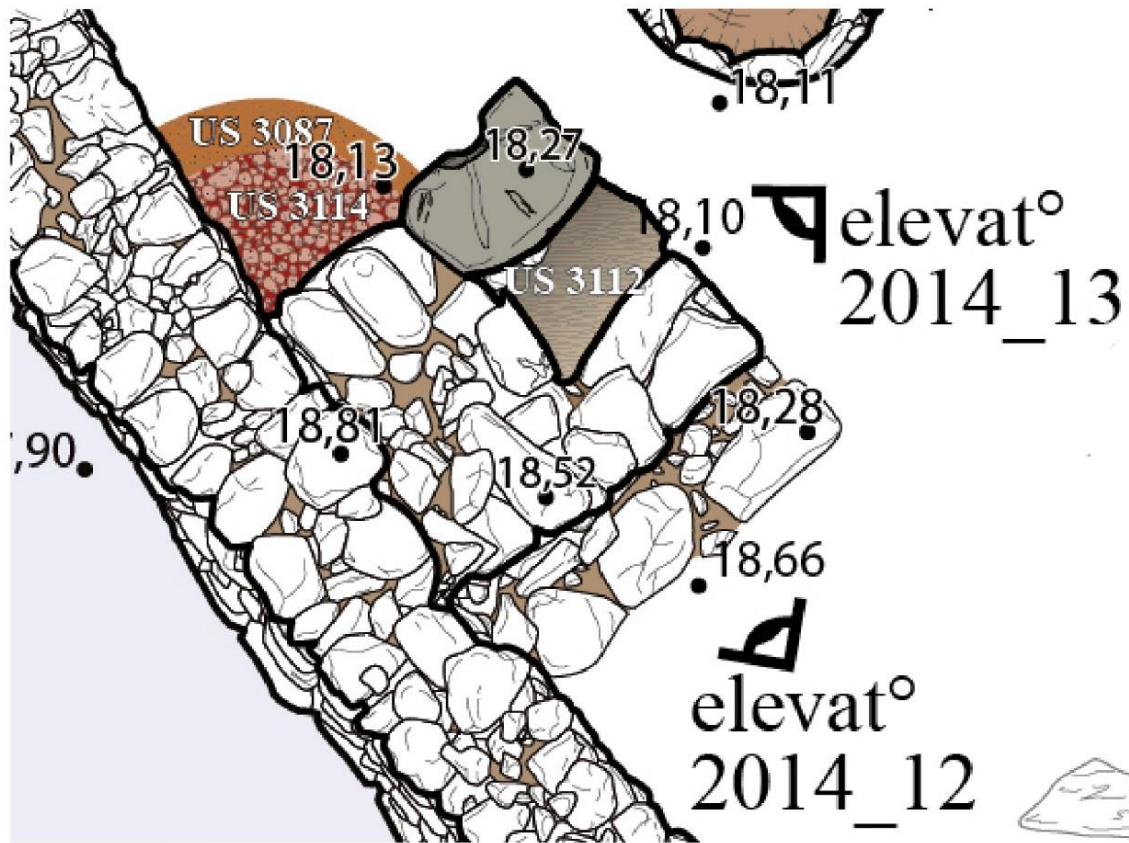
Four Fr72
Bâtiment 10

Castel-Minier

Echelle 1/20

Minutes et infographie : J.-C. Méaudre

Annexe 20 Pl. 2



Castel-Minier 2014. Elévation 12.
 Zone 3. Secteur du F2 niveau bas. M50 (US 3043)
 et M62 (US 3079), vue nord - est / sud - ouest.
 Echelle 1/20°.
 Coordonnées Lambert 93 :
 42695 : X = 566648,16 - Y = 6188167,56 - Z = 1018,95.
 42696 : X = 566649,91 - Y = 6188169,05 - Z = 1018,94.
 Minutes : O. Vingolte.
 Infographie : J.-Ch. Méaudre.

elevat°2014_12

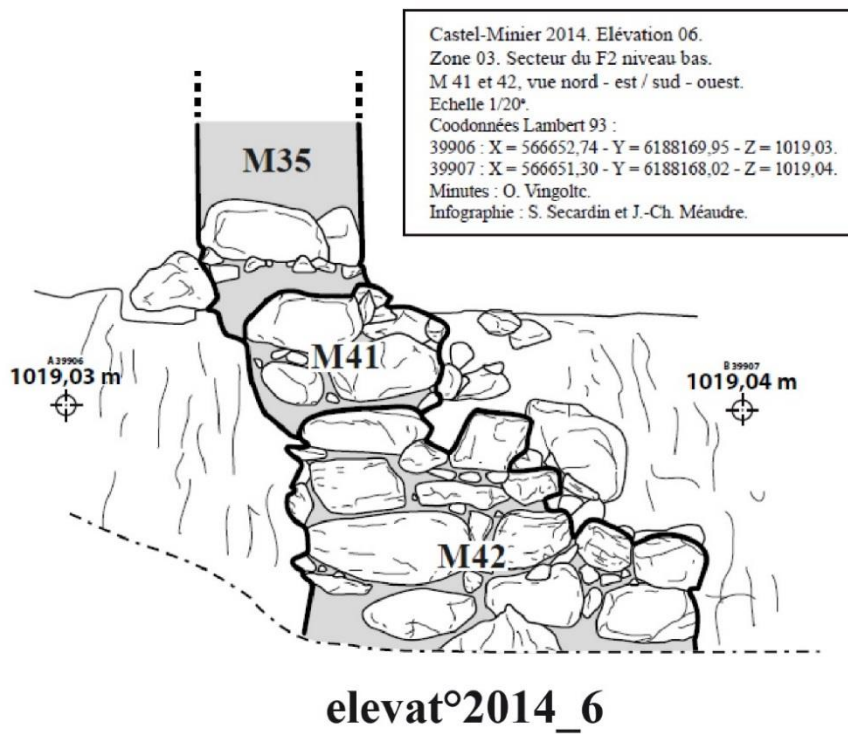
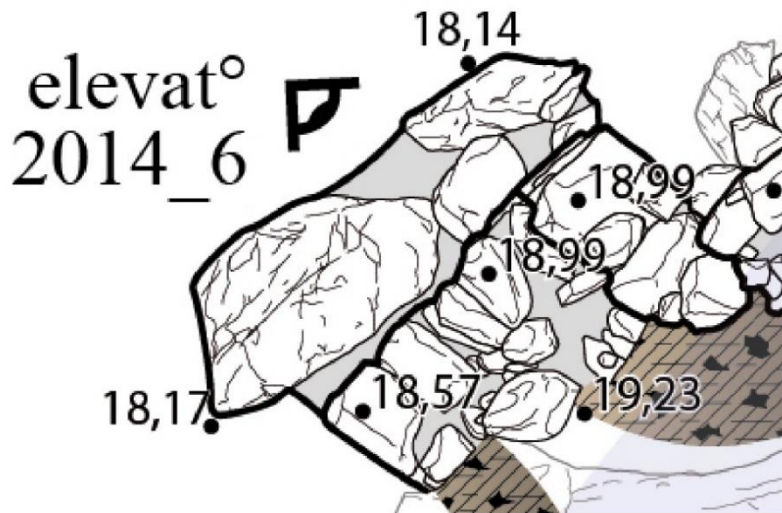


Castel-Minier 2014. Elévation 13.
 Zone 3. Secteur du F2 niveau bas.
 M 62 (US 3079) et M50 (US 3043) ,
 vue sud - est / nord - ouest.
 Echelle 1/20°.
 Coordonnées Lambert 93 :
 42705 : X = 566649,99 - Y = 6188168,66 - Z = 1018,41.
 42706 : X = 566648,76 - Y = 6188169,98 - Z = 1018,44.
 Minutes : O. Vingolte.
 Infographie : J.-Ch. Méaudre et S. Secardin.

elevat°2014_13



Four Fr62 Bâtiment 10		Castel-Minier
Echelle 1/20	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 20 Pl. 3



Four Fr42 Bâtiment 10		Castel-Minier
Echelle 1/20	Minutes et infographie : J.-C. Méaudre	Annexe 20 Pl. 4

Annexe 21 : Résultats des analyses LA-ICP-MS réalisées sur le corpus de plombs

Sauf mention contraire, les valeurs sont données en ppm.

CL	Masse (g)	Structure	Fait	Pb	Ag	Sb	Cu	Bi	Tl	Ni	Zn	As	Pd	Cd	In	Sn	Te	Pt	Au	Description
10022	910,4	Abandon Mouline	Abandon	99,8%	225	951	757	19	2,3	5,5	421	-	-	0,6	-	75	0,1	-	-	Lingot
10156	4,9	Aire de grillage 1500-1600	Sol d'occupation	99,8%	206	506	896	10	3,0	9,1	-	11	-	-	-	-	-	-	-	Flan
12494	7,8	Bas-foyer 1550-1600	Construction	99,7%	181	2963	292	7,6	2,7	-	4,0	15	-	-	-	18	-	-	-	Plaque recourbée
12516	17,0	Bât. 10	Couverture effondrée	99,6%	125	2701	642	9,5	2,4	-	13,8	-	-	-	-	-	-	-	-	Plaque traces découpe
11869	8,6	Bât. 10	Démolition	99,9%	151	1094	211	18	2,8	5,1	2,1	6,9	-	-	-	8,5	0,1	-	1,0	Bille
11967	75,0	Bât. 10	Démolition	99,7%	178	1308	1648	7,2	2,2	46	-	14	-	-	-	-	-	-	0,8	Coulure
11833	11,5	Bât. 10	Sol d'occupation	99,4%	284	4086	1137	10	2,4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1,4	Coulure
12097	9,0	Bât. 10	Abandon	99,5%	384	4340	561	9,4	2,8	-	-	59	-	-	-	20	-	-	1,1	Bille
12517	17,9	Bât. 10	Couverture effondrée	99,7%	400	1524	1384	9,3	2,5	64	2,9	23	-	-	2,5	43	-	-	0,1	Masselotte
11965	5,3	Bât. 10	Trou d'enclume	99,8%	560	-	1794	9,0	2,3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Coulure
11877	8,2	Bât. 10	Démolition	99,4%	592	4327	1453	9,6	2,5	11	-	8,8	-	-	-	0,7	-	-	-	Rondelle
12641	7,7	Bât. 10	Amas de minerai	99,9%	732	-	619	11	2,9	6,3	-	-	-	-	-	-	0,1	-	22	Coulure
12714/2	2,0	Bât. 10	Four	99 %	1778	4053	1136	12	2,9	5,2	-	21	-	-	-	0,8	-	-	0,1	Coulure
12714/3	2,0	Bât. 10	Four	98,9 %	2060	4933	3475	13	2,9	33	-	21	-	-	-	3,0	-	-	0,1	Coulure
12714/1	2,0	Bât. 10	Four	98,4 %	2525	5495	4995	18	3,1	64	1,6	8,1	-	-	-	2,7	0,1	-	0,2	Coulure
11570	8,5	Bât. 2	Fosse	99,9%	233	2,9	932	12	2,4	3,7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Plaque traces découpe
11683	30,0	Bât. 3	Sol d'occupation	99,9%	273	-	813	12	2,5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Empreinte
12704/3	1017,1	Bât. 3	Sol d'occupation	99,7%	385	1217	1145	8,1	2,8	6,8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Empreinte
12704/2	205,6	Bât. 3	Sol d'occupation	99,7%	474	1356	1177	8,3	2,8	11	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Empreinte
12704/1	55,3	Bât. 3	Sol d'occupation	99,7%	479	1271	1100	9,0	2,8	8,5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Informe
11771	22,9	Bât. 5	Sol d'occupation	99,7%	1367	1683	7,7	11	2,4	-	1,8	-	-	40	-	1,4	-	-	-	Coulures

CL	Masse (g)	Structure	Fait	Pb	Ag	Sb	Cu	Bi	Tl	Ni	Zn	As	Pd	Cd	In	Sn	Te	Pt	Au	Description
11254	13,1	Bât. 5	Sol d'occupation	99,4%	4084		1930 2,6	12	2,9	-	3,8	-	-	-	-	-	-	-	0,1	Informe
11603	4,4	Bât. 5	Sol d'occupation	99,4%	5418	-	770	245	3,0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0,1	Coulure
11504	11,0	Bât. 11	Terrassement	99,7%	173	2112	671	11	3,0	2,6	-	5,5	-	-	-	-	-	-	-	Plaque
11772	8,5	Bât. 11	Terrassement	99,8%	183	1386	671	12	2,3	1,9	-	16	-	-	-	-	-	-	-	Plaque
11679	33,9	Bât. 11	Terrassement	99,8%	246	1372	-	31	2,5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Bille
11555	431,0	Bât. 11	Terrassement	99,8%	280	1026	537	12	3,0	1,6	-	20	-	-	-	1,3	-	0,9	-	Empreinte
11228	5,8	Bât. 11	Terrassement	99,9%	341	-	1064	20	2,5	3,6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Coulure
11551	16,1	Bât. 8	M31	99,6%	453	2088	1034	11	2,5	-	3,4	5,7	-	-	-	0,6	-	-	-	Plaque
11199	47,6	Canal 1450-1600	Fondation	99,6%	262	2588	1003	11	2,9	14	-	-	-	-	0,5	-	-	-	-	Tige
11691	127,0	Canal 1450-1600	Fondation	99,7%	421	2516	500	8,8	2,9	-	-	7,3	-	-	-	-	-	-	-	Empreinte
11612	60,0	Canal 1450-1600	M2	99,6%	2210	-	1939	14	2,3	-	-	-	-	-	-	0,9	-	-	-	Lingot
11226	42,8	Canal 1450-1600	Abandon	99,1%	8650	-	541	8,0	2,7	1,7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Coulure
10116	91,1	Castrum	Bâtiment 9	99,6%	267	3020	505	21	2,4	-	-	11	-	0,7	3,8	1277	-	-	-	Plaque
11530	22,0	Ferrier 2	Amas	99,9%	106	598	180	12	2,6	-	4,6	9,1	-	-	-	-	-	-	-	Plaque
11549	83,9	Ferrier 2	Amas	98,1%	312	2019	103	65	2,9	6,3	-	12	-	-	64	1,7%	0,1	-	0,4	Plaque
11964	11,5	Marteau 1550-1600	Sol d'atelier	99,0%	1114	8000	657	9,4	2,7	-	9,1	25	-	-	-	-	-	-	-	Plaque traces découpe
10924a	699,0	P.-f. 1	Démolition	99,7%	324	2493	375	14	2,3	-	-	50	-	0,7	-	1,3	-	-	-	Plaque
11002	37,5	P.-f. 1	Démolition	99,7%	372	1458	1225	15	3,0	3,5	-	6,1	-	-	-	-	-	-	-	Masselotte
11184	172,9	P.-f. 1	Démolition	99,4%	469	4833	616	8,9	2,9	-	-	47	-	-	-	-	-	-	-	Plaque
12361	32,0	P.-f. 1	Démolition	98,5%	1110 0	3261	615	8,3	2,7	-	10	15	-	-	-	-	-	-	0,3	Informe
12002	40,7	P.-f. 2	Sol d'occupation	99,7%	533	1356	827	11	2,8	5,7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Empreinte
11719	19,1	P.-f. 3	Sol d'occupation	87,5%	129	29	12,4 %	6,3	1,9	1,8	129	11	33	2,1	2,2	6,5	-	0,9	-	Masselotte
11642	5,3	P.-f. 3	Sol d'occupation	99,5%	467	3127	918	36	2,4	4,0	-	22	-	-	-	-	-	-	-	Plaque
11722	12,2	P.-f. 3	Sol d'occupation	99,8%	638	687	561	14	2,3	3,2	4,9	-	-	-	-	2,4	-	-	-	Flan
12822	7,0	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,9%	151	76	834	9,1	2,9	6,8	-	-	-	-	-	24	-	-	-	Fusaïole
11955	662,0	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,8%	240	975	630	11	2,9	3,4	-	5,8	-	-	-	-	-	-	-	Lingot

CL	Masse (g)	Structure	Fait	Pb	Ag	Sb	Cu	Bi	Tl	Ni	Zn	As	Pd	Cd	In	Sn	Te	Pt	Au	Description
11867	470,0	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,7%	263	2033	814	9,0	2,9	2,4	-	21	-	-	-	4,6	-	-	-	Masselotte
11073	37,6	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,8%	309	1336	577	9,7	2,9	-	-	32	-	-	-	0,4	-	-	0,1	Plaque recourbée
11775_1	120,0	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,8%	361	1187	635	13	2,7	4,4	-	17	-	-	-	-	-	-	-	Empreinte
12648	20,2	P.-f. 4	M 44	99,6%	386	3572	334	7,0	2,8	-	-	21	-	-	-	-	-	-	-	Informe
11775_2	120,0	P.-f. 4	Sol d'occupation	98,0%	444	3799	1,4%	16	2,7	751	3,1	541	4	-	-	0,5	-	-	-	Informe
11694	15,7	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,5%	600	3109	1411	9,5	2,3	5,6	9,6	21	-	-	-	-	-	-	-	Plaque
11935	12,8	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,2%	751	6048	1132	7,9	2,3	20	8,8	39	-	-	-	1,5	-	-	-	Coulure
12537	12,1	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,6%	1250	2588	424	9,9	2,5	-	1,1	20	-	-	-	-	-	-	-	Masselotte
10915	65,1	P.-f. 4	Sol d'occupation	99,4%	4043	175	1693	25	2,4	2,6	-	-	-	0,9	-	2,6	-	-	-	Informe
11777	13,6	P.-f. 4	Sol d'occupation	98,4%	9709	5,4	6267	14	3,2	2,7	1,1	-	1,4	0,6	-	-	-	-	-	Coulure
11899	9,3	P.-f. 5	Foyer	98,1%	216	1437	1,7%	7,4	2,7	-	26	139	-	-	-	2,1	-	-	-	Informe
12496	14,0	P.-f. 5	remblais	99,7%	504	1701	744	10	2,4	2,7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Plaque recourbée
10791	21,0	P.-f. 5	abandon	99,5%	554	2513	1880	6,9	2,8	5,8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Plaque recourbée
11842	19,2	P.-f. 5	remblais	85,1%	872	4492	14,1 %	7,7	2,3	-	2505	24	24	-	0,5	2,7	-	-	-	Informe
12492	4,6	P.-f. 5	Pelouse	99,5%	3237	1138	428	6,7	2,6	-	91	-	-	2,7	-	19	-	-	0,1	Plaque
12153	17,0	Plat du Roi enceinte castrale_1	M59	99,8%	1280	7,2	830	31	2,7	-	1,00	-	-	-	-	-	-	-	-	Informe
12359	22,9	Plat du Roi enceinte castrale_2	Sol d'occupation	99,7%	523	1594	712	8,9	2,7	3	37	7,7	-	-	0,8	-	-	-	-	Empreinte
12177	156,0	Plat du Roi enceinte castrale_2	Sol d'occupation	99,3%	566	5557	624	11	2,8	2,4	-	47	-	-	-	-	-	-	-	Masselotte
13158	14,6	Plat du Roi Pente_1	remblais	99,9 %	190	700	495	6,1	2,2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Plaque
13131	72,0	Plat du Roi Pente_1	occupation	99,7 %	193	2075	458	7,0	2,3	-	1,9	-	-	-	-	-	-	-	0,1	Empreinte
13191	30,4	Plat du Roi Pente_1	occupation	99,7 %	336	1462	883	4	2,2	12,9	1,1	-	-	-	-	-	-	-	-	Plaque
13148	12,1	Plat du Roi Pente_1	halde/occupation	99,7 %	351	1790	741	4,6	2,2	4,5	46	-	-	-	-	-	-	-	-	Informe
13115	8,9	Plat du Roi Pente_1	remblais	99,6 %	370	2891	418	4,5	2,3	-	28,6	-	-	-	-	-	-	-	-	Plaque
13139	27,4	Plat du Roi Pente_1	halde/occupation	99,7 %	1530	-	1074	12,7	2,2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	Informe

CL	Masse (g)	Structure	Fait	Pb	Ag	Sb	Cu	Bi	Tl	Ni	Zn	As	Pd	Cd	In	Sn	Te	Pt	Au	Description
11840	25,2	Plat-du-Roi enceinte castrale_2	occupation	98,2%	478	2277	255	84	2,5	-	1,3	11	-	-	55	1,5%	0,1	-	0,9	Tige
12706	9,8	Plat-du-Roi pente	remblais	98,7%	554	1241	223	71	2,4	-	0,1	9,2	-	-	24	1,0%	0,1	-	0,8	Plaque
12640	19,3	TB21	US6	99,9%	53	732	174	8,9	2,4	14	-	14	-	0,8	-	128	-	-	0,1	Rondelle

Julien FLAMENT

Les métallurgies associées de la fin du XIII^e siècle au XV^e siècle
L'argent, les cuivres et le plomb à Castel-Minier (Ariège, France)

Résumé :

Les Pyrénées centrales font l'objet, depuis plusieurs décennies, de recherches pluridisciplinaires consacrées aux exploitations minières et métallurgiques médiévales. Dans l'ancienne vicomté de Couserans, les fouilles archéologiques ont permis de mettre au jour le site de Castel-Minier qui s'avère être un témoin majeur des activités d'extraction des minerais et des métaux entre la fin du XIII^e siècle et le XV^e siècle. Le mobilier archéologique révèle la vocation polymétallique de l'atelier qui se caractérise par la pratique de plusieurs métallurgies qui concernent l'argent, le cuivre et ses alliages et le plomb. Notre travail a pour objectifs d'une part, d'identifier la nature et l'origine des ressources minérales qui approvisionnent le site et d'autre part, de comprendre l'organisation fonctionnelle des différents espaces de travail à travers la restitution des chaînes opératoires.

Nos recherches sont conduites dans une perspective pluridisciplinaire qui associe l'étude des sources écrites et iconographiques, les résultats des fouilles archéologiques mais également les données issues des analyses archéométriques du mobilier. Les résultats obtenus mettent en évidence, outre la transformation de la galène argentifère pour en extraire l'argent, une production de plomb désargenté, de cuivre non allié et de bronze au plomb antimonié, ou *caldarium*. Chaque chaîne opératoire fait l'objet d'une étude détaillée où sont discutées les pratiques techniques mais également les formes et les qualités des productions. L'association de plusieurs activités métallurgiques dans les ateliers de Castel-Minier est l'occasion d'aborder la question de la polyvalence et de l'expertise des ouvriers mais également de discuter leur capacité d'adaptation suivant les opportunités minières et les attentes du marché des métaux.

Mots clés : Pyrénées, Couserans, archéométrie, archéologie, métallurgie, métaux non-ferreux, LA-ICP-MS

Associated metallurgies from the late 13th century to the 15th century
Silver, copper alloys and lead in Castel-Minier (Ariège, France)

Abstract:

For several decades, the central Pyrenees have been the subject of multidisciplinary researches, which deal with medieval mining and metallurgical activities. In the ancient viscounty of Couserans, archaeological excavations unearthed the site of Castel-Minier, which played a major role in mining and metals production between the late 13th and 15th centuries. The artefacts uncovered have highlighted the polymetallic activities of the workshop, which is characterized by the practice of several metallurgies concerning silver, copper and its alloys and lead. Our work aims, on the one hand, to identify the nature and origin of the mineral resources that supply the site and, on the other hand, to understand the functional organisation of the different workspaces through the restitution of the *chaînes opératoires*.

Our research is carried out in a multidisciplinary perspective, combining the study of textual and iconographic sources, the results of archaeological excavations and data from the archaeometric studies of the metallurgical artefacts. The results show, besides the transformation of argentiferous galena to extract silver, the production of desilvered lead, unalloyed copper and antimony-lead bronze, or *caldarium*. Each *chaîne opératoire* is subject to a detailed study in which technical practices are discussed, as well as the forms and qualities of production. The association of several metallurgical activities in Castel-Minier workshops is an opportunity to address the issue of workers' multi-skilling and expertise, and also to discuss their adaptability according to the mining opportunities and the expectations of the metals market.

Keywords: Pyrenees, Couserans, archaeometry, archaeology, metallurgy, non-ferrous metals, LA-ICP-MS



IRAMAT Centre Ernest-Babelon
3D rue de la Férollerie
45071 Orléans Cedex 2

