



**I.O.S.U.D. UNIVERSITATEA DIN PITEȘTI**  
Școala Doctorală Interdisciplinară  
Domeniul de doctorat: Ingineria Materialelor



**UNIVERSITÉ BORDEAUX  
MONTAIGNE**  
École Doctorale Montaigne Humanités  
(ED 480)

# **Analyse multiéchelle de la céramique ancienne par des méthodes d'ingénierie en science des matériaux. Études de cas sur les céramiques daciennes, des amphores romaines et des productions traditionnelles**

**- Résumé Thèse de Doctorat -**

**Sous la direction de :**

Prof. Univ. Dr. Ing. Mărioara ABRUDEANU

Prof. Univ. Dr. Rémy CHAPOULIE

**Présentée par :**

Ing. Laura TEODORESCU

**Pitești  
2022**



## Matériel scientifique lié à cette thèse

---

Articles:

- 1. Teodorescu, Laura**, Ben Amara, A., Cantin, N., Chapoulie, R., Ducu, C., Ciucă, S., Tulugea, C., Terteci, C., Abrudeanu, M., 2021. Characterization of Archaeological Artefacts Using Methods Specific to Materials Science: The Case Study of Dacian Ceramics from 2nd c. BC to 1st c. AD. *Materials* 14, 3908. <https://doi.org/10.3390/ma14143908>
- 2. Teodorescu, Laura**, Cantin, N., Ben Amara, A., Chapoulie, R., Roux, V., 2022. Mineralogical transformations due to salt whitening agent in modern Hebron ceramics. *Journal of Archaeological Science: Reports* 41, 103303. <https://doi.org/10.1016/j.jasrep.2021.103303>

## PRÉFACE

---

Les artefacts en céramique sont l'un des objets les plus étudiés par l'archéologue, car ils peuvent être trouvés en grande quantité dans la majorité des sites archéologiques, notamment ceux datant de la période néolithique (Tite, 2008). L'étude de ces objets a donc été essentielle à l'interprétation archéologique d'un site, d'une région et d'une époque. Les techniques analytiques développées dans le domaine de la science des matériaux sont largement appliquées à l'étude des objets d'art et d'archéologie anciens, afin d'obtenir des informations sur la composition et la structure des matériaux utilisés (Montana et al., 2011; Sciau et Goudeau, 2015).

Afin d'obtenir ces informations, une approche à plusieurs niveaux est nécessaire pour analyser les matériaux. Les domaines à examiner doivent être choisis en fonction des objectifs. Une sélection appropriée de techniques permet l'étude de la composition et de la structure de composants spécifiques. Plusieurs méthodes sont spécialement appliquées pour étudier les différents types de poterie du passé.

L'un des principaux sujets de cette thèse est l'identification et la caractérisation de la céramique produite en Roumanie pendant la période dace, en utilisant les méthodes et les techniques des sciences de l'ingénieur. Cette recherche nécessite la maîtrise des techniques analytiques et, surtout la définition d'une méthodologie adéquate pour chaque type de céramique en fonction de la problématique archéologique.

La complexité de l'étude des matériaux céramiques sera mise en évidence, ainsi les informations concernant l'emploi des matières premières, le processus de fabrication, les conditions de cuisson et la provenance des objets.

1. Ainsi, la thèse regroupe **deux objectifs importants** tels que :
2. 1. Créer une approche méthodologique appropriée dans l'étude des poteries daces et promouvoir leur étude puisque l'archéométrie est un domaine en développement continu en Roumanie.
3. 2. Répondre à la question : quelles méthodes techniques analytiques des sciences des matériaux peuvent apporter une réponse aux différentes questions archéologiques ?

Pour répondre à ces questions, il a fallu explorer l'applicabilité des techniques traditionnelles et innovantes et créer une méthodologie constructive dans l'analyse de la céramique. Au cours de ma thèse, j'ai commencé par une étude de cas les céramiques daciennes d'Ocnița-Buridava, puis deux autres corpus définis ont été ajoutés, avec une problématique clairement exposée :

- Un cas concerne la diffusion d'amphores à huile adriatique dans la région du Danube à l'époque romaine,
- L'autre cas traite d'un procédé particulier de fabrication de céramique dans la Palestine d'aujourd'hui. Ce cas vise à comprendre le rôle du sel comme agent de blanchiment et à mieux comprendre les transformations de la matière céramique lors de sa fabrication.

Cela nous a permis d'en savoir plus sur la céramique et d'appliquer les bonnes techniques et méthodologies pour étudier la céramique de Roumanie, dont les enjeux archéologiques étaient moins bien définis mais dont l'étude était très prometteuse.

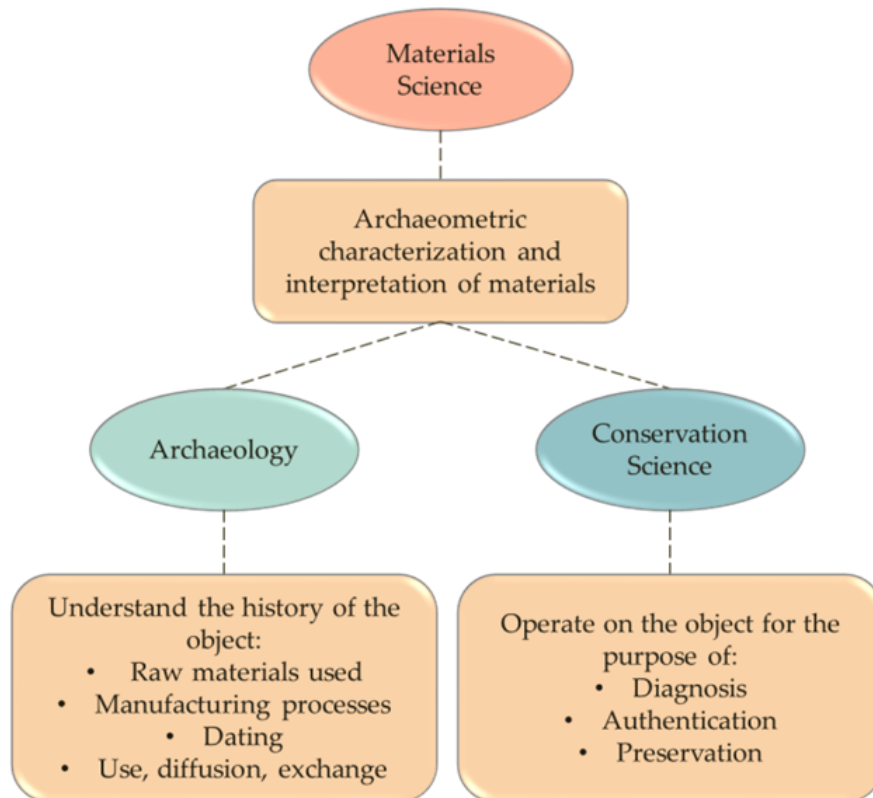
Le manuscrit de cette thèse est divisé en **six chapitres**.

## **Chapitre I - L'ÉTAT ACTUEL DE LA RECHERCHE ARCHÉOMÉTRIQUE**

Dans la dernière partie du XXe siècle, une discipline scientifique a émergé, définie au sens large comme l'application de principes et de méthodes physiques, chimiques, biologiques, géologiques ou mathématiques pour la caractérisation d'objets et de matériaux archéologiques liés au patrimoine culturel. Le terme largement utilisé pour cette discipline est "Archaeometry", qui a été utilisé depuis la fondation de la revue internationale de recherche "Archaeometry" en 1958 à Oxford, en Angleterre. L'archéométrie est largement utilisée comme terme alternatif pour "Science Archéologique" ou "Science en Archéologie" (Artioli, 2010).

Les artefacts sont des objets fabriqués ou modifiés par l'homme à un moment et à un endroit précis. Ils peuvent fournir divers témoignages sur la façon dont la population ancienne incorporait différents types de matériaux dans la vie quotidienne, ainsi que sur les techniques utilisées pour leur fabrication. Leur analyse nécessite une interaction entre des spécialistes tels que des archéologues, des conservateurs, des historiens de l'art et des scientifiques de différents domaines. Les artefacts en céramique ont été étudiés sous différents points de vue : aspects minéralogiques et chimiques, artistiques, esthétiques et d'utilisation. En particulier, de nombreuses recherches archéologiques ont été consacrées à l'étude de la composition chimique et minérale des poteries anciennes afin d'identifier, l'origine, la matière première et le procédé de fabrication, la datation, et d'avoir une perspective sur l'histoire et la culture humaine (Stefan et Mazare, 2001). Il est important de souligner que chaque technique analytique possède des avantages ainsi que des limites, de sorte qu'une large compréhension des techniques disponibles est nécessaire pour tirer parti de l'éventail complet des outils analytiques modernes (Edwards et Vandenabeele, 2016).

L'étude des artefacts nécessite l'intégration d'une multitude de sciences, en particulier la physique, la chimie et la science des matériaux (**Fig. 1**), connues également sous le nom de méthodes archéométriques.



**Fig. 1** Domaines d'application des analyses archéométriques (modifié d'après Artioli, 2010)

### Archéomatériaux céramiques

Parmi les découvertes archéologiques, la céramique, et en général les artefacts en céramique, sont les objets les plus étudiés par la communauté des archéologues, gens d'art et de science liés à ce domaine (Sciau et Goudeau, 2015). La poterie la plus ancienne (une statuette appelée Vénus de la Dolni occidentale, découverte en République tchèque) date du 25e siècle environ avant J.-C., mais la technologie des récipients en céramique a des origines extérieures en Asie orientale vers le 12e siècle avant J.-C., ce qui indique que la poterie était une activité bien connue à cette époque (Vandiver et al., 1989; Bougard, 2011).

Dans l'étude de la céramique, les aspects les plus importants sont:

- Identification des matières premières utilisées (ainsi que leur origine géologique)
- Processus de mise en forme
- Conditions de tir
- Glaçage et coloration (le cas échéant)
- Chronologie
- Domaine d'utilisation

## **Techniques d'investigation et de caractérisation des objets en céramiques**

L'archéométrie fait référence à chaque spécialité qui utilise des méthodes de caractérisation physico-chimique pour comprendre la nature et l'évolution dans le temps des matériaux d'art et archéologiques.

L'objet à l'étude doit nécessairement être un matériau physique, artistique ou archéologique, et quelle que soit l'origine de l'objet, peu claire ou discutable, quelle que soit sa taille ou sa complexité, l'objet doit être relié à l'activité humaine.

Dès lors, comprendre la nature de l'objet, c'est découvrir non seulement sa nature physico-chimique, mais aussi révéler le processus humain qui l'a produit, connaître le contexte social. Pour cela, l'archéométrie utilise toutes les techniques et méthodes disponibles, développées dans les disciplines scientifiques les plus diverses et spécialisées (Tykot, 2004).

Le pont entre la céramique ancienne et la science et l'ingénierie des matériaux (défini comme un domaine interdisciplinaire axé sur la découverte et la conception de nouveaux matériaux), peut sembler inexistant. Or, le fondement de la science des matériaux passe par l'étude de la microstructure, des phases cristallographiques et des défauts des matériaux en relation avec leurs propriétés, directement applicables aux matériaux du patrimoine (Sciau et Goudeau, 2015).

Après avoir défini les problématiques, les éléments et étapes importants spécifiquement impliqués dans l'analyse archéométrique des matériaux archéologiques qui doivent être pris en compte sont les suivants :

- préparation des échantillons
- choix des techniques et méthodes d'analyse
- durée et coût des enquêtes
- interprétation des résultats et tirer des conclusions

Plusieurs facteurs sont nécessaires pour comprendre le fonctionnement et les limites des techniques analytiques disponibles. La plupart des techniques analytiques utilisent un échantillon pour étudier le matériau d'intérêt, qu'il s'agisse d'un minéral naturel ou d'un composé synthétique, présent sous différents états : liquide, gazeux, solide, amorphe et cristallin (Greene et al., 2010; Tian, 2016).

Ainsi, il existe différentes manières d'analyser les corps céramiques. Par exemple, certaines méthodes d'analyse élémentaire employées pour les caractérisations céramiques sont: Spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif (IPC-MS), Spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie (EDX/EDS), Spectrométrie de fluorescence des rayons X (SFX). Ces méthodes sont largement utilisées pour déterminer les éléments majeurs et mineurs dans la matrice céramique.

Les analyses chimiques des éléments majeurs, mineurs et traces permettent de regrouper les poteries fabriquées à partir d'une même matière première. Ils peuvent également permettre de distinguer les groupes en étudiant les corps céramiques fabriqués à partir de différentes matières premières. Comme il existe une variabilité dans la composition chimique des différentes sources, pour les études de provenance, l'analyse doit être effectuée sur un grand nombre d'échantillons,

qui sont ensuite regroupés à l'aide de méthodes statistiques (Tite, 2008). Cependant, dans cette thèse, une autre façon de déterminer la provenance d'une céramique a été utilisée en comparant des échantillons de céramique découverts à différents endroits avec d'autres céramiques provenant d'un certain site de production, en tant que groupe de référence (voir Chapitre IV - L'étude de cas de l'atelier d'amphores d'huile d'olive d'Istrie Aux provinces du Danube à l'époque romaine) (Maritan, 2004 ; Ricci, 2016).

La composition chimique et minéralogique des minéraux présents dans la matrice céramique permet également de déterminer des caractéristiques telles que les conditions de cuisson et les matières premières utilisées, de caractériser un certain atelier de caractériser l'activité d'un atelier et d'examiner la technologie de fabrication. La connaissance du processus de fabrication permet de reconstituer l'histoire technique des anciens potiers et d'évaluer leur capacité à produire et à fabriquer une spécialisation ainsi qu'un échange culturel (Ricci, 2016).

Le domaine de l'ethnoarchéologie (voir Chapitre V - L'action du sel dans le processus de fabrication de la céramique d'Hébron) se définit comme une sous-discipline de l'archéologie associée à l'anthropologie, offrant de manière globale une observation directe de la fabrication, de la forme, de l'utilisation et de la signification des artefacts fabriqués par des populations actuelles. Ainsi, l'ethnographie améliore l'interprétation des données archéologiques en apportant plus d'informations et d'explications (Stiles, 1977 ; Cantin et Mayor, 2018).

La plupart du temps, ces études sont plus axées sur la détermination des conditions de cuisson que sur les méthodes de mise en forme, permettant d'estimer la température de cuisson d'origine à l'aide de la détection de différentes phases minéralogiques.

La minéralogie céramique est généralement étudiée à l'aide d'un microscope optique pour des analyses pétrographiques, de la diffraction des rayons X (DRX), de la microscopie électronique à balayage associée à la microanalyse par énergie dispersive de rayons X (MEB-EDX), de l'analyse thermogravimétrique et l'analyse thermogravimétrique couplée (ATG/DSC), la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) et spectroscopie Raman. Les effets des conditions de cuisson peuvent également être analysés et observés sur la morphologie et la microstructure du produit final. Ces caractéristiques sont examinées par MEB, microscopie pétrographique et analyse de la porosité (Shepard, 1985 ; Duminuco et al., 1998; Cultrone et al., 2001; Maritan et al., 2006; Ricci, 2016).

### **Objectifs spécifiques de la thèse**

Comme mentionné précédemment, l'archéométrie est un domaine en développement continu en Roumanie. Ainsi, les objectifs du travail de thèse sont :

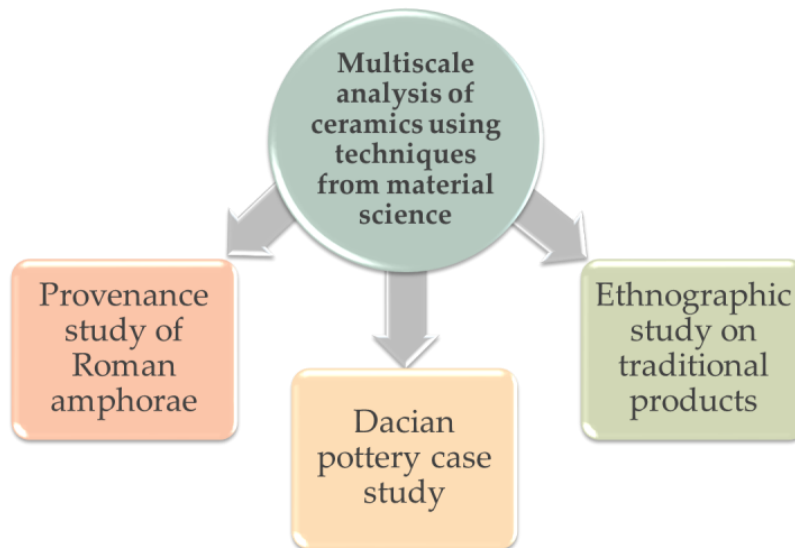
- La caractérisation des artefacts en utilisant des techniques spécifiques d'ingénierie des matériaux.
- Établir la composition des objets en céramique, leur structure et associer les technologies de fabrication utilisées.

Au départ, la recherche s'est concentrée sur les questions concernant le choix (ou la sélection) des matières premières et la technique de fabrication des anciens potiers daciens et à créer une première base de données archéométriques concernant la région de Buridava. Comme le corpus était limité, une deuxième étude de cas a été ajoutée concernant la provenance des récipients en



céramique, les amphores Dressel 6B d'Istrie. L'étude de cas se concentre sur le développement de la méthodologie analytique pour l'analyse des amphores, en utilisant un XRF portable.

Au-delà de l'approche méthodologique, l'objectif archéologique était d'étudier l'exportation des amphores Dressel 6B du centre de production initial (Loron) vers d'autres sites suivant la région du Danube.



**Fig. 2** Plan de la thèse de recherche

Enfin, afin de formuler une méthodologie appropriée pour comprendre la complexité du matériau céramique, un dernier cas a été ajouté, basé sur une étude ethnographique (**Fig. 2**). Ce dernier cas concerne la production de céramique moderne.

Il est basé sur une étude ethnographique ; le point de départ de notre recherche était de développer une méthodologie multi-approche afin de répondre aux questions de l'archéologue, telles que : comment le sel influence-t-il la couleur d'un corps en céramique ? Quels types de changements physico-chimiques se produisent dans les céramiques d'Hébron ? Afin d'élargir nos connaissances, dix-huit briques expérimentales ont été fabriquées en laboratoire, en variant le pourcentage de sel et les températures de cuisson.

### **Plan de recherche expérimentale**

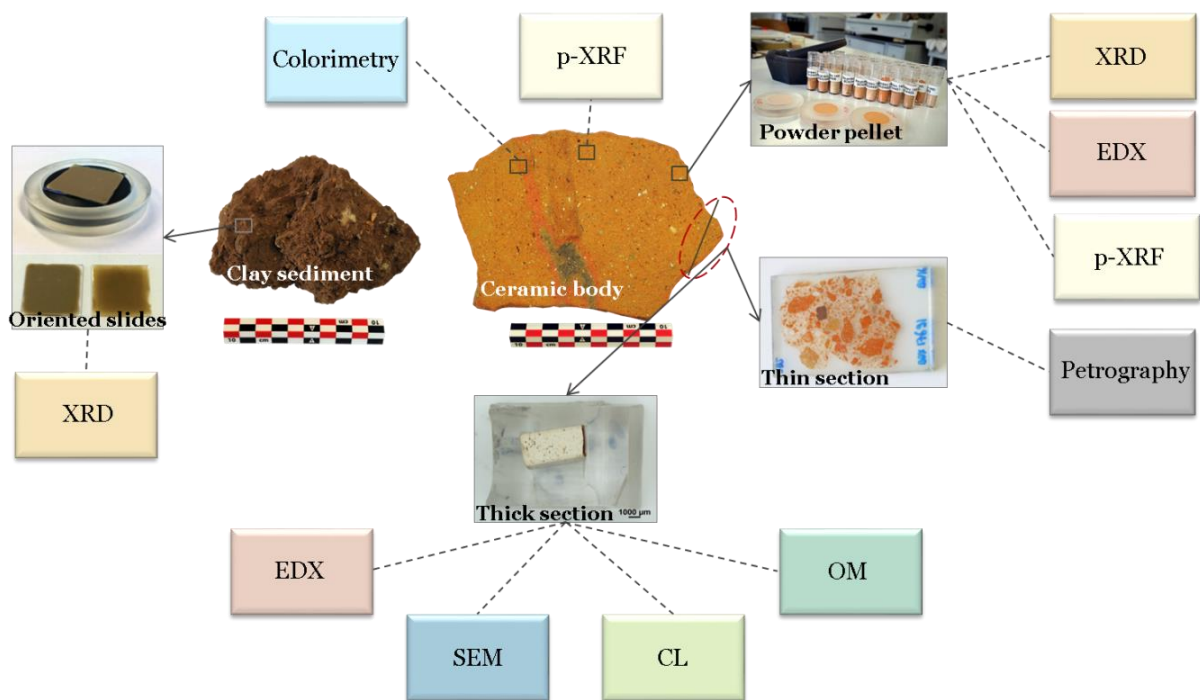
Après les étapes préliminaires, les céramiques ont été analysées avec une variété de méthodes disponibles en laboratoire.

Le choix des méthodes utilisées dépendait de la problématique ou de la question spécifique posée à chaque série d'échantillons de corps.

Les jalons définis pour le programme expérimental ont été choisis afin d'obtenir les informations souhaitées sur la céramique (**Fig. 3**), telles que :

- La mesure de la couleur
- L'étude de la texture
- L'analyse des différents composants de la céramique
- L'étude des changements minéralogiques lors de la cuisson, à l'intérieur d'un corps céramique.

Le principe des dispositifs sera brièvement présenté dans le chapitre suivant (Chapitre II - Une approche analytique multi-échelle) ainsi que les paramètres expérimentaux correspondants (puisque'ils sont toujours les mêmes). L'étude de la texture des corps céramiques sera réalisée principalement sur des sections polies.



**Fig. 3** Analyse multi-échelle utilisée pour cette recherche de thèse et la préparation des échantillons

## Chapitre II - UNE APPROCHE ANALYTIQUE MULTI-ÉCHELLES

Comme indiqué de manière générale dans le chapitre précédent, le domaine des études céramiques est vaste et complexe, permettant d'obtenir des informations sur : un certain territoire et ses géo-sources, la technologie de production, l'évolution du style morphologique des corps céramiques, et le socio- les dynamiques économiques liées à l'échange (ou au commerce) des biens.

Ainsi, pour répondre à ces différentes problématiques, généralement trois conditions doivent être prises en compte considérées pour procéder à l'échantillonnage :

- Conclusion de l'étude archéologique du territoire et / ou du site archéologique et achèvement de l'analyse morphologique et stylistique de la collection de céramiques,
- Formulation et mise en œuvre des questions de recherche archéométrique,
- choix du protocole expérimental (Gliozzo, 2020).

De plus, pour des critères d'échantillonnage appropriés, il convient de prendre en compte les conditions suivantes :

- Est-ce que la collection d'échantillons est *représentative*, selon la chronologie, la matière première et les technologies de fabrication utilisées
- Une autre exigence doit garantir la *fonctionnalité* de la stratégie d'échantillonnage. Par exemple, l'échantillonnage doit toujours rester suffisamment flexible pour permettre à la recherche d'être élargie si de nouvelles questions peuvent apparaître dans le processus d'analyse.
  - La dernière condition préalable à prendre pour une stratégie d'échantillonnage est de vérifier l'adéquation entre les types d'échantillons prélevés et les techniques analytiques utilisées.

Ces techniques peuvent être **non-destructives**, **micro-destructives** ou **destructives** (Gliozzo, 2020).

De plus, la préparation des échantillons est l'un des points les plus importants pour obtenir des données de qualité. Un premier aspect est de se focaliser sur la zone d'intérêt qui sera après analyse. Un deuxième aspect est d'être conscient que certaines méthodes d'analyse nécessitent une forme différente de l'échantillon.

La majeure partie de la préparation des échantillons est divisée en deux types : les lames "épais" qui sont étudiés par observations à la lumière réfléchiée et les échantillons "minces", qui sont étudiés par observations à la lumière transmise (Tian, 2016).

Avant d'étudier un échantillon en laboratoire, un numéro de référence doit être attribué. Dans le cas du laboratoire de Bordeaux, il s'agit d'attribuer une référence commençant par le préfixe BDX (BorDeauX) et suivi d'un numéro d'inventaire. Les échantillons ont ensuite été photographiés afin de conserver, sous forme d'image, l'état de l'objet au moment de son entrée dans le laboratoire. Comme mentionné ci-dessus, il faut considérer que pour accéder à différentes analyses, différentes préparations d'échantillons sont nécessaires.

Par exemple, **les lames épaisses** sont adaptées pour étudier la texture du corps céramique et pour spécifier la composition chimique, grâce à l'utilisation de MEB-EDX, CL (CathodoLuminescence) et OM (Microscopie optique).

Pour l'analyse pétrographique, **des lames minces** sont nécessaires, car la lumière polarisée doit traverser la coupe afin de déterminer la composition minéralogique cela en raison des propriétés optiques des minéraux.

Les tessons étant généralement hétérogènes, la poudre peut être préparée. Ensuite, les pastilles de poudre pour les mesures p-SPX et MEB-EDX sont produites afin de faire face à l'hétérogénéité des échantillons en les homogénéisant après les avoir broyés. Enfin, **les lames orientées** sont préparées pour les minéraux argileux, afin de permettre l'identification précise des minéraux argileux par DRX.

### Chapitre III – LE CAS DE LA POTERIE DACIENNE

Ce chapitre traite du sujet principal de cette thèse, une étude de cas de la céramique dace. L'objectif de cette recherche était d'explorer la relation entre la composition de la céramique et le processus de fabrication. Pour cela, j'ai caractérisé des poteries chimiques et minéralogiques issus d'un corpus d'échantillons de céramiques fourni par le musée départemental d'Argeş et le musée départemental "Aurel Sacerdoţeanu" de Vâlcea.

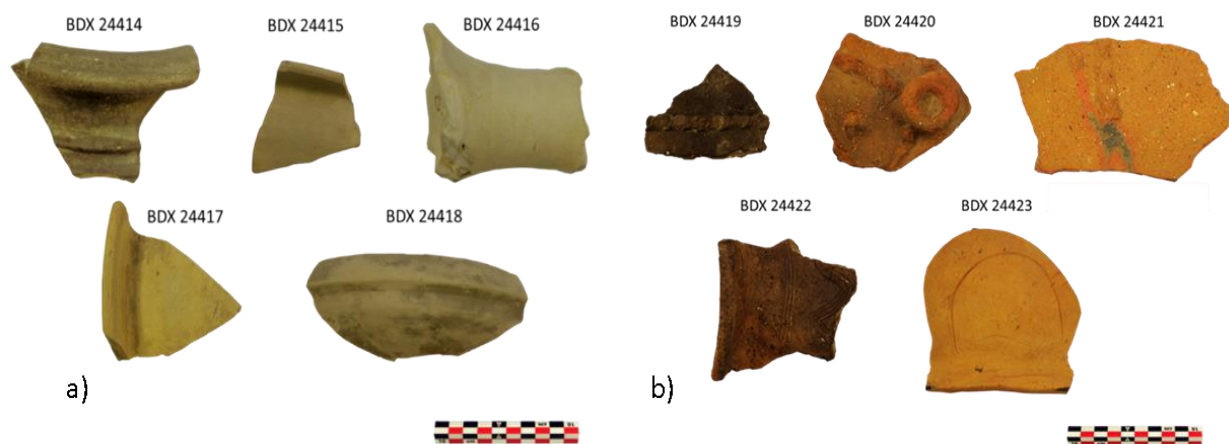
Les découvertes archéologiques ont mis en évidence le rôle et le statut de la colonie dace dans le commerce avec le monde romain, ainsi que l'existence d'un possible centre de pouvoir dynastique. La région était bien connue pour sa richesse en sel depuis la préhistoire.

Les inscriptions latines, les nombreux artefacts romains et la chronologie confèrent à Buridava un statut particulier, même au 1er siècle av. JC (Berciu, 1967, 1981; Berciu et Iosifaru, 1980).

Même si la ville dace était d'une grande importance pour la région, après la conquête romaine, la ville dace a commencé à perdre son prestige (Crişan, 1993).

Dans les recherches de cette thèse, dix fragments de céramique différents ont été sélectionnés (**Tableau 1**) (**Fig. 4**).

Ils proviennent de vases incomplets, découverts lors des fouilles, datant de la culture de La Tène. La datation des céramiques a été faite par l'archéologue, par des méthodes de datation typologique et stratigraphique.



**Fig. 4** Fragments de céramique faite sur la roue (a) et fragments de céramique faite à la main (b), donnés par le Musée de Rm. Vâlcea "Aurelian Sacerdoţeanu", Musée départemental d'Histoire Vâlcea.

Ces échantillons ont été triés sur la base d'observations macroscopiques (morphologie et topographie de la surface et fractures fraîches), de la couleur de la pâte céramique, de la

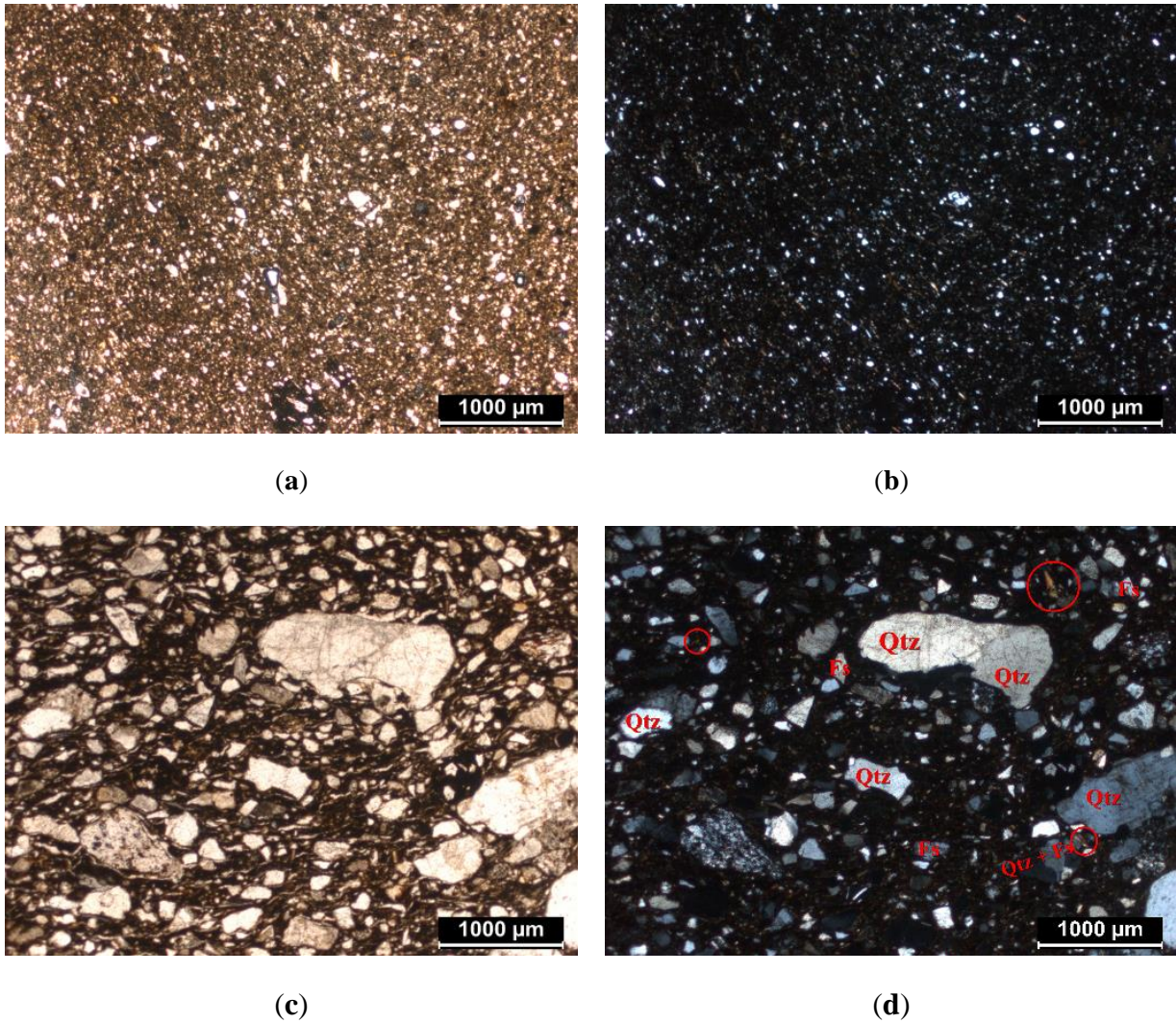
granulométrie et de la proportion d'inclusions en fonction de leur technique de fabrication (Teodorescu et al., 2021).

Tableau 1 **Contexte détaillé et caractéristiques des tessons étudiés dans cette recherche**  
(YD - Année de découverte, Tr. - Numéro de tranchée)

Groupe technologique	ID d'échantillon	Contexte Archéologique	Catégorie	Type d'objet
Fabriqué à la roue	BDX 24414	YD. 1975, Tr. XXVE	Fine	Cruche
	BDX 24415	YD. 1976, Tr. XXIX		Bol de fruits
	BDX 24416	YD. 1975, Tr. XXVF		Bol de fruits
	BDX 24417	YD. 1968, Tr. Xa		Bol
	BDX 24418	YD. 1974, Tr. XXVD		Bol
Fait à la main	BDX 24419	YD. 1975, Tr. XXVF	à gros grain	Bol
	BDX 24420	YD. 1974, Tr. XXVD		Bol
	BDX 24421	YD. 1968, Tr. Xa		Bol
	BDX 24422	YD. 1974, Tr. XXVD		Bol
	BDX 24423	YD. 1975, Tr. XXVF		Bol

Les informations sur la microstructure des céramiques sont d'abord obtenues par analyse au microscope polarisant. Des analyses pétrographiques ont été réalisées sur les 10 lames minces. L'analyse pétrographique a permis d'observer la granulométrie et la répartition des inclusions, permettant d'émettre de premières hypothèses sur les techniques de fabrication. Au microscope, on observe que tous les corps céramiques sont principalement composés de quartz, de feldspaths, de micas (biotite et muscovite), d'amphiboles et de vides (pores).

Les échantillons au tour (du BDX 24414 au BDX 24418) présentent une matrice fine et compacte. Tous ces échantillons sont riches en inclusions très fines, dont la taille ne dépasse pas 40  $\mu\text{m}$  (**Fig. 5**, a - b). La distribution granulométrique des composants non plastiques présente une texture unimodale. On peut supposer que la matière première argileuse a été spécialement purifiée ou sélectionnée. La présence de vides est faible, démontrant la compacité de la céramique. La porosité vue au microscope indique une combustion contrôlée et lente dans des fours spéciaux, correspondant à un four à deux chambres découverts à Buridava Dacica (Anghel, 2002, 2011). En revanche, les tessons fabriqués à la main contiennent des roches métamorphiques et des roches plutoniques acides. Ils présentent une matrice grossière, avec des inclusions dont la granulométrie atteint environ 2 mm (**Fig.**, c - d). La distribution granulométrique des inclusions présente une texture trimodale et la porosité observée est principalement représentée par des vides allongés. Généralement, ces vides sont les pores primaires, répartis de manière aléatoire dans le corps céramique. Ils se forment lors du processus de modelage, lorsque de fines couches d'eau et/ou d'air sont emprisonnées entre les couches d'argile (Ionescu et al., 2007).

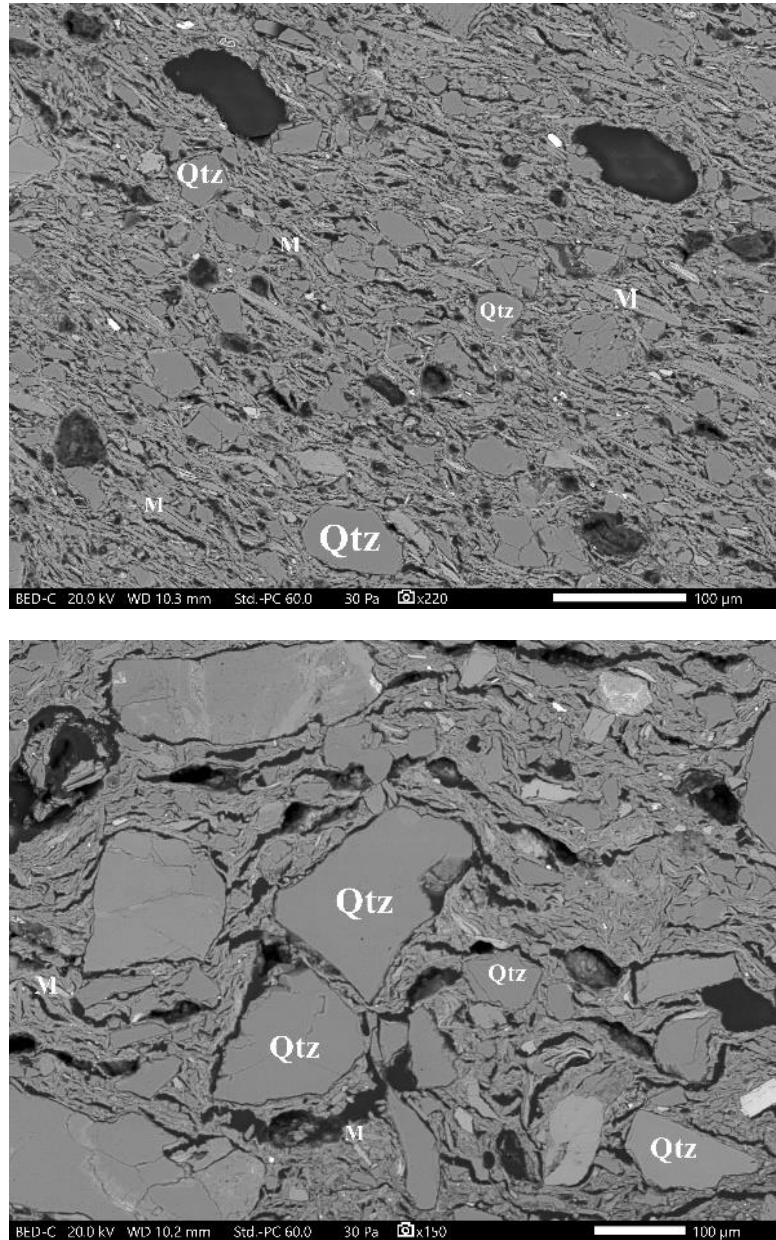


**Fig. 5** Observations pétrographiques : observation de la matrice de BDX 24418 ((a) lumière polarisée plane ; (b) lumière polarisée croisée) ; observation de la matrice de BDX 24419 ((c) lumière polarisée plane ; (d) lumière polarisée croisée). Les minéraux identifiés sont principalement du quartz (Q), des feldspaths altérés (Fs) et du mica (indiqué dans le cercle)

La cathodoluminescence (**CL**) a permis d'avoir une vision globale de l'ensemble des céramiques. L'imagerie CL obtenue sur de grandes surfaces de coupes, a aidé à discriminer les minéraux et à fournir des indices sur le traitement thermique appliqué.

Les analyses minéralogiques qualitative et quantitative par diffraction des rayons X (**DRX**) ont été effectuées sur poudre pour identifier les minéraux dans le corps céramique, à l'aide du logiciel TOPAS, pour quantifier les phases minérales.

L'imagerie **MEB** a permis d'observer la micro-texture des échantillons sur des coupes épaisses polies, et **MEB-EDX** a permis de quantifier les éléments majeurs et mineurs ( $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{SO}_3$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{MnO}$ , et  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) à partir de matrice argileuse et pastilles de poudre. La composition chimique a été obtenue par quantification à partir de la moyenne de 4 zones de  $0,58 \text{ mm}^2$  chacune. Tous les résultats ont été exprimés en % wt d'oxyde.



**Fig. 6** Images MEB-BSE montrant le quartz (Qtz) et mica (M) inclusions, (a) échantillon BDX 24414 et (b) échantillon BDX 24421 ; grossissement 100 µm

Les données ont été obtenues en mode Low - Vacuum (20 Pa), donnant des résultats équivalents à ceux acquis en mode High - Vacuum (Eméry, 2012). Les corrections standard ont été effectuées à l'aide de la norme interne du logiciel. Les contenus ont été calculés à partir des normes de composés synthétiques et de minéraux naturels, la limite de détection pour la plupart des éléments était d'environ 0,1 % en poids.

A ce stade de l'étude, et à partir du nombre limité d'échantillons, j'ai constaté des différences de texture, de compositions chimiques et minéralogiques entre les céramiques selon leur technique

de fabrication. Des sédiments argileux fins (éventuellement obtenus en enlevant une grande partie des inclusions) ont été choisis pour fabriquer la céramique au tour, et des sédiments argileux grossiers pour fabriquer la céramique à la main. Pour toutes les céramiques, la température de cuisson est relativement inférieure à 900°C, en accord avec leur porosité (**Fig.**). Ces premières investigations ont permis la génération de données archéométriques qui permettront de démarrer la création d'une base de données pour de futures comparaisons lorsque des données supplémentaires auront été enregistrées.

## Chapitre IV - ÉTUDE DE CAS DE L'ATELIER D'AMPHORAE À HUILE D'ISTRIE DANS LES PROVINCES DU DANUBE À L'ÉPOQUE ROMAINE

L'étude des amphores du nord de l'Adriatique à l'époque romaine a éveillé un intérêt particulier de la part de différentes spécialistes telles que les archéologues, les historiens et les archéomètres. Plusieurs décennies de recherche sur les sites de production et de consommation des amphores Dressel 6B permet aujourd'hui d'accéder à une large base de données et bibliographie.

En Istrie (Croatie actuelle), un tableau général a été dressé concernant la production et la distribution de Dressel 6B de Fažana et Loron (Bulić, 2020 ; Cipriano, 2020 ; Machut et al., 2020; Marion et Tassaux, 2020; Szakmány, 2020).

Ainsi, la présente étude visait à développer une méthodologie analytique de fluorescence X portable (VANTA-OLYMPUS - Série C), afin d'obtenir des réponses concernant la diffusion des amphores à huile d'Istrie.

Au-delà de l'approche méthodologique, l'objectif archéologique était d'étudier l'exportation des amphores Dressel 6B du Centre de production initial (Loron, dans l'actuelle Croatie) vers d'autres sites suivant la région danubienne (**Fig.**).



**Fig. 7** Diffusion d'amphores à huile d'Istrie Dr 6B. Carte dessinée par Y. Marion (Marion et Tassaux, 2020)



Une sélection de trente-trois échantillons représentatifs du type amphore Dr 6B réalisée par Yolande Marion (Chercheuse associée au Centre Ausonius - Bordeaux), a été analysée. (Fig. ). Ils ont été prélevés sur différents sites afin de comparer leurs compositions et d'estimer leur production d'origine (Istrie ou pas ?) et d'établir une route commerciale, car les amphores pouvaient circuler soit par voie fluviale soit par voie terrestre.



**Fig. 8** Amphore type Dressel 6B (Machut, 2013)

Ainsi, une liste de trente-trois prélèvements d'amphores a été dressée, regroupant différentes localisations : dix-huit échantillons ont été donnés par le Musée National de Zagreb (Croatie), cinq échantillons proviennent du Musée de Sisak (Croatie), deux échantillons du Musée de Sirmium (Serbie) et huit échantillons du Viminacium Study Center (Serbie).

Selon les timbres, rares sont les amphores analysées qui ont été produites en Istrie. Voici les timbres retrouvés dans l'atelier de Loron: Crispinill..., Calvia Crispinilla et IMP.AVG. GER– titre de l'empereur Domitien et dans l'atelier de Fažana : LAEK B et LESBI et un autre TRAVL ET CRIS sur le territoire du Tergeste). Les autres ont été produits dans le nord-est de l'Italie - APIC et, probablement, COSTINI et L. TRE OPTA. Les autres timbres (OFF (Hedera?) CI, DAP.AT.P.F, ANT. (Hedera?) MAERIS, M.MAESII, T. FLA. TALANI, COCCEIVSII, TI SECANDIDVS) sont inconnus en Adriatique.

J'ai d'abord commencé par tester tous les paramètres de l'appareil. Pour ce faire, nous avons choisi quelques échantillons standards qui nous ont permis d'avoir une valeur de référence, de tester la fiabilité de l'appareil et de connaître la précision de la mesure.

Chaque échantillon a été analysé sur coupes croisées (softs polis à 35 µm) sur une surface d'essai de 10 mm de diamètre. Pour les échantillons très fins, une collimation à un spot de faisceau de 3 mm de diamètre était nécessaire.

Il convient toutefois de noter que le rayonnement incident XRF a normalement une pénétration limitée, de sorte que les éléments les plus abondants à la surface sont principalement détectés, ce qui peut être très différent de la composition globale d'un échantillon (Ceccarelli et al., 2016).

Lors de l'utilisation de poudre d'échantillon, des granulés ont été obtenus à l'aide du granulateur Carver 4350 L, à partir de 95% de poudre mélangée à 5% de cire Hoecht C.

La précision des résultats a été estimée à partir de mesures effectuées avec la norme internationale SARM69 (MINTEK, certifiée) sur poudre ainsi que sur les étalons internes de laboratoire représentés par trois types différents de corps céramiques. Les étalons internes ont été préalablement analysés avec la méthode ICP-AES (en laboratoire de Caen), avec différentes concentrations en éléments majeurs, exprimées en pourcentage d'oxydes (MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, K<sub>2</sub>O, CaO, TiO<sub>2</sub>, MnO, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) et oligo-éléments (Ba, Sr, V, Zr, Rb, Y, Zn, Cr, Ni) exprimé en parties par million:

- Une faïence très homogène (BDX 21063),
- Une amphore avec très peu d'inclusions (BDX 16854),
- Une poterie ethnographique éthiopienne avec de nombreuses inclusions réparties de manière homogène (BDX 17729).

Toutes les valeurs de référence de ces normes utilisées sont représentées dans le **Tableau 2**

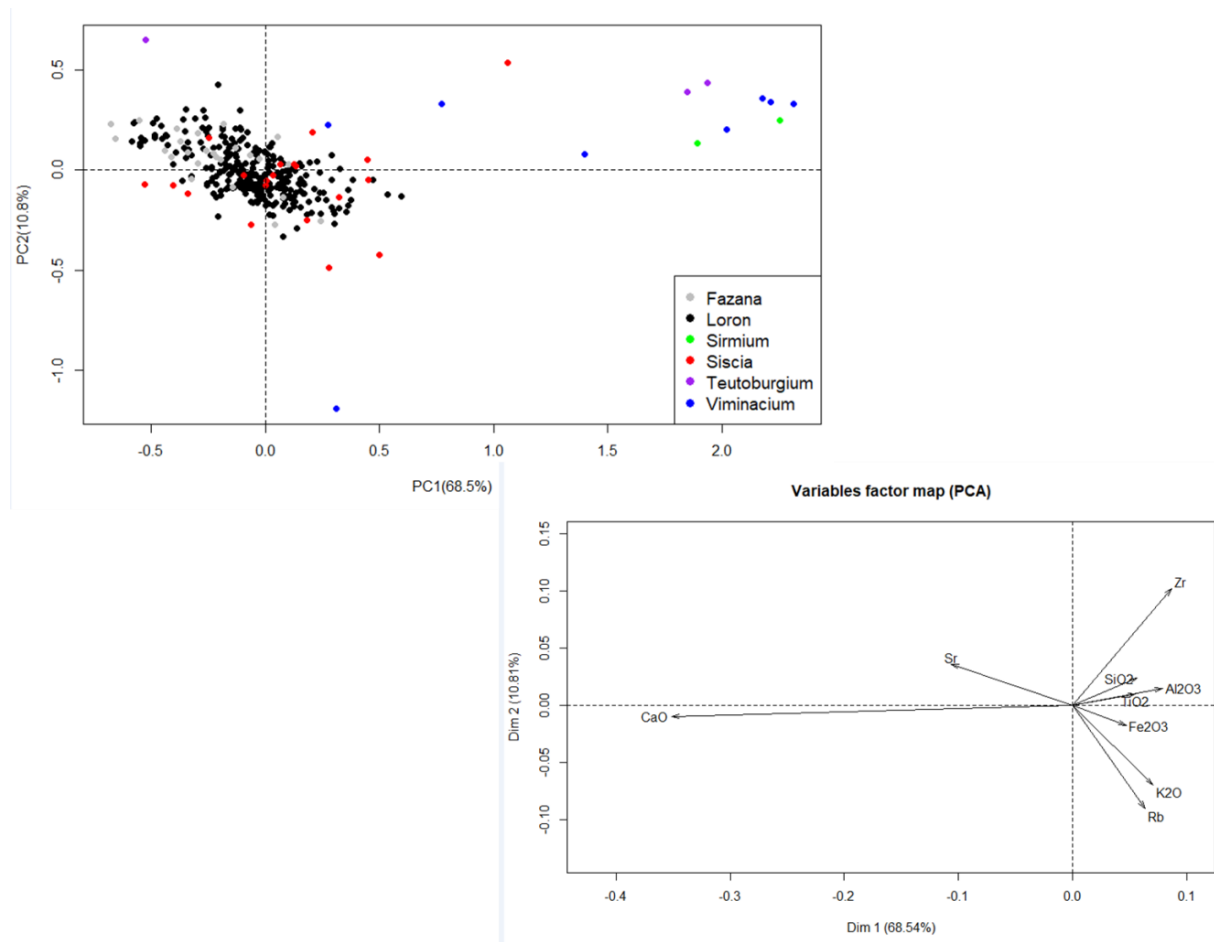
**Tableau 2** Valeurs de référence de trois normes de laboratoire et d'une norme internationale. Les éléments majeurs et mineurs sont donnés en pourcentages massiques et exprimés en oxydes ; les éléments traces sont donnés en parties par million normalisées à 100 % (<l.d. – inférieure à la limite de détection)

Échantillon	Type	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	MnO
BDX 21063	ICP-AES	70.75	26.32	0.78	0.38	0.61	0.22	<l.d.	0.88	0.01
BDX 16854	ICP-AES	60.46	15.37	7.04	0.93	9.8	2.38	1.04	2.81	0.18
BDX 17729	ICP-AES	65.78	18.14	10.61	1.04	0.58	0.87	<l.d.	2.44	0.35
SARM69	MINTEK	69.23	14.97	7.46	0.81	2.46	1.92	0.82	2.04	0.13

Échantillon	Type	Ba	Sr	V	Zr	Rb	Y	Zn	Cr	Ni
BDX 21063	ICP-AES	143	65	61	42	114	22	98	31	35
BDX 16854	ICP-AES	383	246	145	145	148	28	n.d	n.d	n.d
BDX 17729	ICP-AES	262	56	90	1171	112	115	n.d	n.d	n.d
SARM69	MINTEK	583	113	163	282	69	30	71	232	55

De plus, les tests ont été suivis d'autres étapes telles que la sélection des mesures de temps pour les échantillons, la reproductibilité des mesures et bien sûr la décision de faire les mesures en mode GeoChem, qui est un étalonnage interne de l'appareil en usine. L'étalonnage a été assuré à l'aide de dizaines de SRM d'une large gamme géochimique (Frahm, 2018).

Par ailleurs, la méthodologie a été appliquée sur les échantillons d'amphores, sur des fractures douces polies. Avec l'aide de PCA, il a été possible de créer des groupes et de mieux observer la répartition des échantillons (**Fig.**).



**Fig. 9** Diagramme de dispersion et diagramme multivarié comparant les données obtenues, de chaque site archéologique

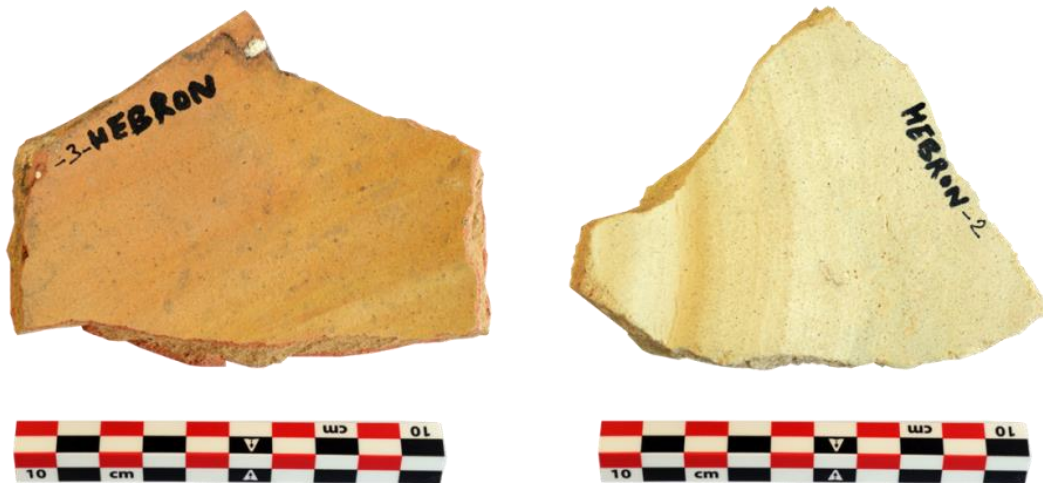
De plus, puisque dans ce cas il y a une étude de provenance avec un groupe de référence avec lequel je peux comparer les résultats, la détection des valeurs aberrantes dans l'espace multivarié a été appliquée en utilisant une méthode statistique nommée Mahalanobis Distance (MD), et le logiciel R. Ainsi, l'approche statistique qui a été utilisée a permis de répondre à la question de la provenance des corps d'amphores. Un seul échantillon (BDX 25423) sur trente-trois, pourrait correspondre à la production Loron.

Dans l'ensemble, la présente étude de cas montre que le p-XRF peut être un outil puissant pour une approche analytique préliminaire dans le cas d'échantillonnages d'amphores et peut fournir une classification initiale basée sur la composition élémentaire, aidant à affiner et à prioriser la sélection d'échantillons.

Néanmoins, il convient de souligner le fait que pour avoir une meilleure vision des données et mieux relier toutes ces informations, des analyses et mesures complémentaires, telles que la pétrographie, DRX et MEB-EDX, sont à prendre en compte.

## **Chapitre V - L'ACTION DU SEL DANS LE PROCESSUS DE FABRICATION DE LA CÉRAMIQUE D'HÉBRON**

Ce chapitre montre la complexité concernant l'étude des matériaux céramiques, soulignant mieux les changements physico-chimiques qui peuvent se produire dans un corps céramique. Pour cela, une étude de cas sur les poteries d'Hébron a été choisie, montrant les effets et l'influence de la roche saline (NaCl) sur la couleur et les transformations minéralogiques en particulier dans les corps céramiques riches en Ca. Pour mener cette recherche, de la matière première d'argile et des tessons de pot ont été collectés à partir de la production moderne d'Hébron. (Fig. ).



**Fig. 10** Tessons collectés par l'archéologue M-me V. Roux de Préhistoire et Technologie, UMR 7055, CNRS, Université Paris Nanterre, représentant les tessons "roses" (image de gauche) et tessons "blancs" (image de droite)

Le sel a longtemps été utilisé par les potiers sous diverses formes car ils connaissaient les différents effets produits sur leurs céramiques, notamment un effet blanchissant (Brooks et al., 1974). La question des propriétés physico-chimiques induites par la présence de sel continue d'intriguer, car plusieurs études scientifiques ont été menées pour mieux comprendre l'effet de l'halite dans la production de céramique, d'un point de vue analytique. Par exemple, Rye (1976) a mis en évidence des vides cubiques bien visibles dans des sections minces, qui ont été interprétés comme des pseudomorphes de cristaux de sel. Les effets produits lors de la cuisson par la présence de chlorure de sodium dans un corps céramique riche en Ca (obtenu à partir d'un matériau argileux riche en carbonate) sont nombreux et variés (Combès et Louis, 1967; Bearat et al., 1989)

Une enquête ethnographique a été récemment menée à Hébron, Territoires palestiniens par Mme Valentine Roux. Elle a observé et décrit les traditions des potiers Hebron utilisant le sel comme adjuvant dans le processus de fabrication pour un effet blanchissant; cette particularité dans la fabrication de la céramique a également été observée dans des ateliers éloignés de la Palestine, comme dans la région de Jodhpur, en Inde. Les potiers indiens utilisent de l'argile directement salée, en y ajoutant de la sciure de bois et du granit ou du gravier concassé. Finalement, ils obtiendront un pot blanc à forte porosité. Apparemment, le secret des potiers pour obtenir une jarre qui garde l'eau fraîche est de préparer une pâte poreuse et perméable pour que l'eau percole à travers les parois d'argile (Roux, 2015).

Dans son étude, elle a découvert que les potiers utilisaient quatre matières premières pour produire des récipients utilitaires : les sédiments d'argile jaune (notés YC), les sédiments d'argile rouge

(terra rossa) (notés RC), le sable et le sel. (Fig. ). La proportion volumique utilisée dans la préparation céramique est de 2/3 d'argile jaune et 1/3 d'argile rouge. Le sable représente 1/6 du volume total. Les potiers ont observé que l'ajout de l'argile rouge donne plus de plasticité au mélange, afin d'éviter que l'argile ne se rétracte trop vite en séchant et d'éviter ainsi les accidents lors de la cuisson.



**Fig. 11** Matières premières : sédiments d'argile jaune et rouge et sable (image de gauche) ; calage de l'argile avec un moulin à carlin (image de droite). A ce stade, le sel est ajouté au matériau argileux (photographies de V. Roux)

Dans cette étude, les échantillons consistent en quatre tessons modernes et quatre matières premières (qui sont utilisées par les potiers d'Hébron dans leur fabrication), collectés à Hébron. De plus, pour élargir notre compréhension de l'effet de blanchiment et des paramètres impliqués dans le mécanisme du processus de cuisson, dix-huit échantillons expérimentaux ont été préparés, en utilisant les mêmes argiles utilisées par les potiers d'Hébron. Ces échantillons ont été placés sur un récipient en aluminium et laissés sécher à l'air à température ambiante pendant 48 heures. Chacun d'eux était composé de 20 g de sédiments argileux (préalablement désagrégés), auxquels du sel était ajouté dans des proportions différentes : 0 %, 2 % et 5 % d'argile totale en poids. En raison de l'effet d'absorption différent, le sédiment rouge a été mélangé avec 10 ml d'eau et le sédiment jaune avec 15 ml.

Avant d'analyser les tessons et les briques expérimentales, la distribution granulométrique des matières premières a d'abord été mesurée à l'aide du granulomètre laser LA-950, HORIBA, afin de caractériser leurs propriétés et d'évaluer la plasticité de l'argile. Les échantillons de matières premières ont été traités avec de l'eau oxygénée et de l'hexamétaphosphate de sodium. Ils ont été dilués avant pipetage à 300 ml, et placés dans l'échantillonneur granulométrique.

La couleur des corps céramiques a été étudiée et contrôlée à l'aide d'un spectrophotomètre portable Konica Minolta CM-2600D (360-740 nm) avec une résolution spectrale de 10 nm et une zone analytique de 10 mm diamètre. L'illuminateur standard était le ? D65 utilisant un observateur

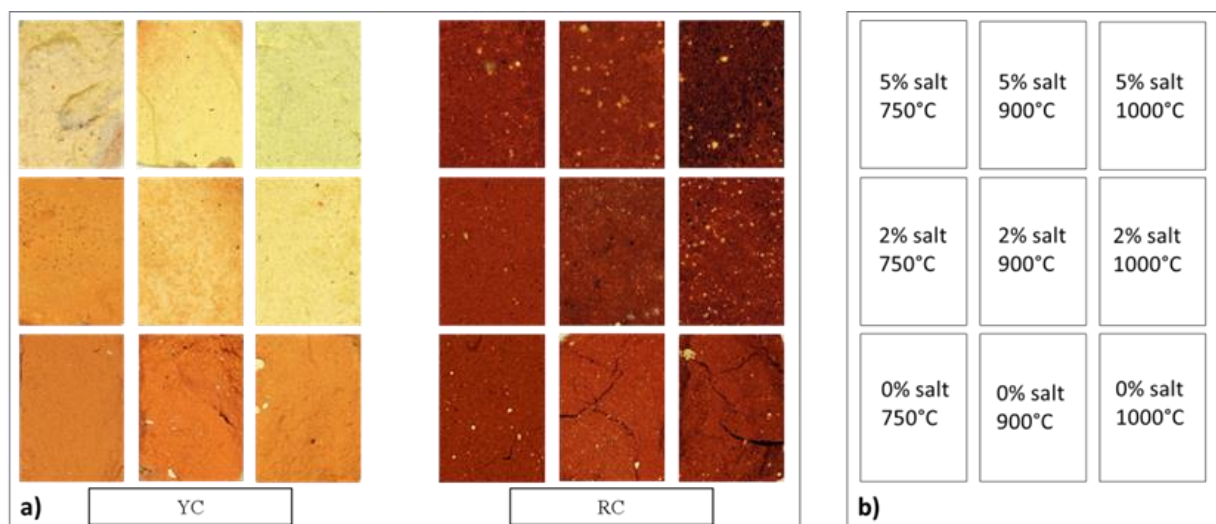
standard CIE 1964 10°. L'étalonnage a été effectué avec une référence noir et blanc réglée sur le mode SCI (réflexion spectrale incluse).

**La Cathodoluminescence (CL)** a ensuite été utilisée pour fournir des données sur la forme et la taille des inclusions, la taille/distribution des grains et les espaces poreux dans la section polie des échantillons cuits.

**Les mesures DRX** ont été réalisées sur des échantillons de poudre pour identifier les constituants minéraux des matières premières et des briquettes cuites et pour connaître l'orientation des gisements afin de discriminer les espèces minérales argileuses. De plus, un raffinement de Rietveld a été appliqué en utilisant le logiciel TOPAS, pour quantifier les phases minérales. Pour l'analyse des minéraux argileux sur lames orientées, il a d'abord fallu éliminer les carbonates sans attaquer les phases argileuses. Pour cela, une solution d'acide faible avec un tampon à pH 5 a été utilisée. Les lames orientées ont ensuite été soumises à de l'éthylène glycol et à des traitements thermiques à 350°C et 550°C, selon Bouchet et al. (2000).

**Les images MEB** obtenues au microscope JEOL - IT500 HR ont facilité les observations de la micro-texture des tessons et des briquettes modernes en lames épaisses, ainsi que l'évolution des transformations minérales à la cuisson. L'acquisition des spectres MEB-EDX s'est faite sur des coupes épaisses polies des corps céramiques et sur des pastilles pressées obtenues à partir de la poudre des échantillons. Tous les résultats ont été exprimés en % wt d'oxydes (normalisés à 100 %), permettant de quantifier les éléments majeurs et mineurs (Na<sub>2</sub>O, MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, SO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>O, CaO, TiO<sub>2</sub> and Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), tandis que Cl a été exprimé en simple %wt.

Finalement, l'étude a confirmé le rôle de l'halite (roche salée) dans le blanchiment des céramiques à haute teneur en CaO. En effet, des mesures colorimétriques effectuées sur des briques expérimentales à différentes teneurs en sel, ont montré une perte significative de la composante rouge à mesure que la concentration en sel augmentait, ainsi qu'une perte de la composante jaune à un degré moindre. Ces pertes colorimétriques sont associées à une diminution de leur saturation. Dans le même temps, la clarté a considérablement augmenté.



**Fig. 12** a) Surface colorée d'échantillons expérimentaux fabriqués à partir de sédiments d'argile jaune (YC) et rouge (RC) ;  
 (b) le protocole utilisé par échantillon (teneur en sel et température de cuisson)

Ces facteurs permettent de caractériser empiriquement l'effet blanchissant observé visuellement et confirment le rôle principal du sel dans ce processus, au-delà du seul effet de la température.

Les changements de phase minéralogique enregistrés dans les briques expérimentales ont également été mis en évidence par différentes méthodes. Les images de cathodoluminescence ont montré ces changements dans le matériau. Les résultats qualitatifs et quantitatifs de la XRD ont permis de documenter l'évolution des proportions de ces différentes phases, en fonction de l'augmentation de la teneur en sel et de la température de cuisson. En fait, le processus d'altération des minéraux argileux pour former de nouveaux silicates de calcium semble se dérouler à une température plus basse en présence de sel que ce que l'on pensait généralement.

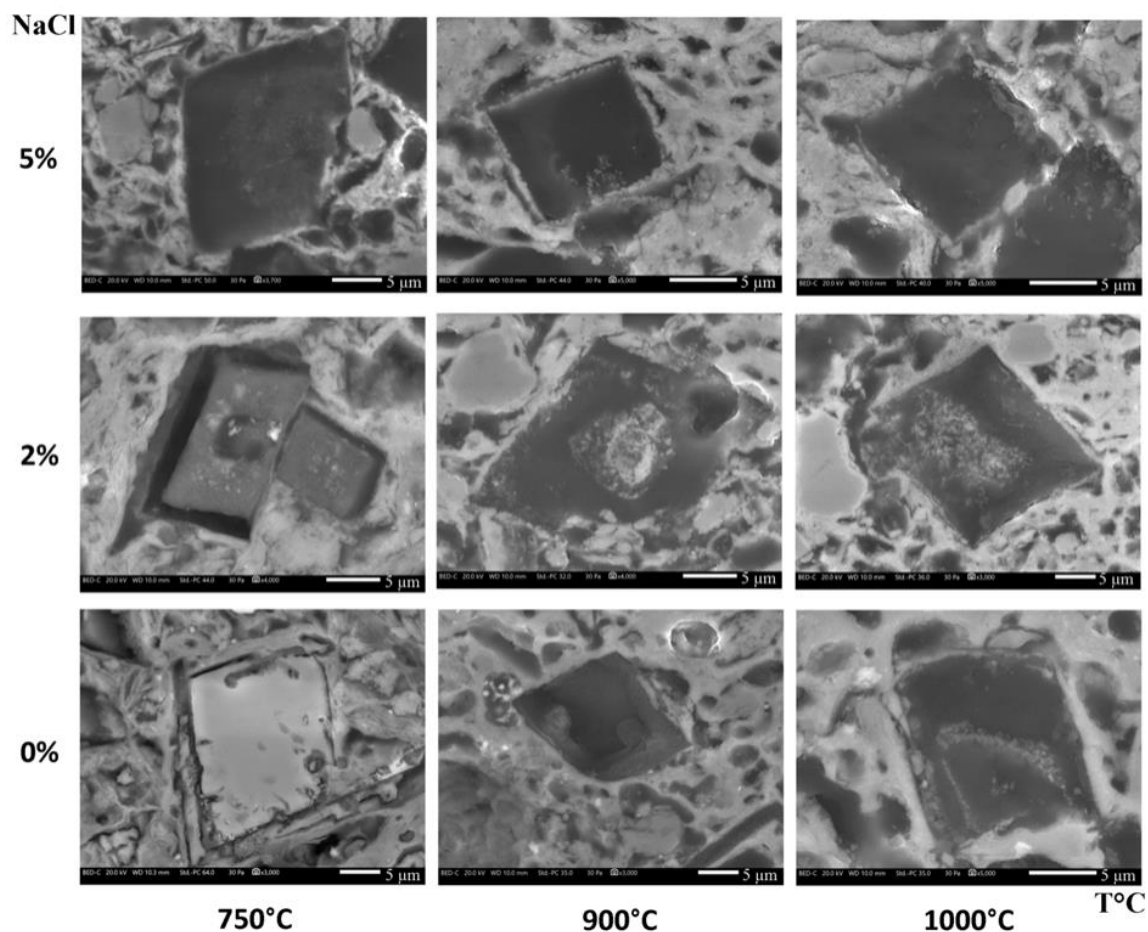
A cet égard, des différences importantes dans la microstructure des argiles calcaires à 5% de sel sont observées avec l'apparition de Ca-silicates (gehlénite, wollastonite) dès 750°C.

De plus, les changements de couleur, dus au piégeage des ions Fe dans le réseau cristallin peuvent maintenant être expliqués (Nodari et al., 2007). Bien que les mesures de Mossbauer - qui pourraient être la meilleure méthode à appliquer dans de tels cas - n'aient pas encore été réalisées, Chevalier et al. (1976) ont démontré que des cristaux de gehlénite, d'anorthite ou de wollastonite peuvent piéger les ions Fe dans leur réseau, par substitution de  $Al_3^+$  et  $Ca_2^+$ . Ils ont souligné que l'oxyde ferrique est connu pour être produit lorsque la biotite atteint des températures élevées, autour de 900°C, et que la cristallisation s'améliore à 1000°C. Par ailleurs, R. Noller et H. Knoll (1983) ont mené des recherches en rendant possible l'insertion de  $Fe_3^+$  dans les réseaux de silicates Ca-Mg-Al. Ils ont observé que la différence de coloration pouvait s'expliquer pour les silicates synthétiques par une liaison polarisée des ions  $Fe_3^+$  dans une matrice désordonnée. Par conséquent, les données expérimentales présentées ici fournissent des preuves explicatives significatives de l'action du sel sur le blanchiment des argiles calcaires. En abaissant la température à laquelle les silicates de calcium se forment, le NaCl sert à réduire la température nécessaire à laquelle l'effet de blanchiment commence.

De plus, le résultat obtenu par l'imagerie MEB a permis de décrire et de préciser la présence de vides rhomboédriques (**Fig. 1**). Les résultats montrent qu'ils sont dus à la dissolution des carbonates, contrairement à ce qui a été avancé précédemment dans la littérature scientifique où les vides étaient attribués à la dissolution des sels (Rye, 1976).

En revenant spécifiquement à la céramique d'Hébron, il ressort des résultats expérimentaux que les deux colorations obtenues (rose et blanche) s'expliquent en fait principalement par une différence de concentration en sel dans le mélange initial plutôt que par d'autres facteurs.

D'autres mesures en cours tiendront davantage compte de l'effet du sel sur la porosité des céramiques. Ces observations seront comparées à des céramiques produites ailleurs sur d'autres sites, par exemple en Inde, où des pratiques similaires avec ajout de sel ont été signalées.



**Fig. 1** Images MEB-BSE de calcite ou de vides rhomboédriques présents dans la matrice de la brique expérimentale

## **Chapitre VI - CONCLUSIONS GENERALES, CONTRIBUTIONS PERSONELLES ET PERSPECTIVES D'AVENIR**

### **Conclusions**

L'approche multi-échelles menée dans cette recherche de thèse a été efficace pour étudier la structure complexe et hétérogène des matériaux céramiques traditionnels, à l'aide de trois études de cas différentes.

Le premier cas concernait la céramique dace ancienne, de la culture de La Tène où l'objectif principal était de déterminer les caractéristiques chimiques et minéralogiques de la céramique, permettant de discriminer les objets en céramique selon leur fabrication.

La méthodologie appliquée a permis d'analyser dix tessons de poterie daces trouvés sur le site archéologique d'Ocnița-Buridava, en Roumanie. L'étude a redite de découvrir la présence de



corps céramiques non calcaires. De plus, j'ai observé une grande différence de granulométrie entre les tessons de céramique, comme les céramiques fabriquées à la main faites à partir de pâtes grossières.

La recherche a commencé par les analyses pétrographiques où nous avons observé que tous les corps céramiques étaient principalement composés de quartz, de feldspaths, de micas (biotite et muscovite), d'amphiboles et de vides. Avec l'aide de la cathodoluminescence et des images MEB, nous avons remarqué que la proportion d'inclusions était plus élevée dans le groupe de céramiques faites à la main. De plus, la distribution granulométrique suggérait que ces inclusions non plastiques étaient à l'origine présentes dans l'argile et non ajoutées par le potier. L'analyse DRX a mis en évidence la présence d'illite-muscovite dans nos échantillons, que nous avons utilisé comme guide thermique (Rodriguez-Navarro et al., 2003). Par conséquent, les résultats ont montré que la température de cuisson des tessons de céramique dace était relativement basse, inférieure à 900°C. Ainsi, cette recherche a permis d'observer des différences de texture, de composition chimique et minéralogique entre les céramiques selon leur technique de fabrication. Concernant la deuxième problématique d'étude, je me suis concentrée sur une étude de provenance d'amphores adriatiques dans la région du Danube, à l'aide d'un nouvel appareil, qui a été acheté au début de l'année 2021 dans le laboratoire IRAMAT-CRP2A, un p-XRF VANTA-OLYMPUS , Série C.

Après tous les processus de paramétrage et d'étalonnage, la méthodologie a été appliquée sur les échantillons d'amphores, sur des fractures polies douces. A l'aide des PCA, il a été possible de créer des groupes différents et de mieux observer la distribution des échantillons. De plus, puisque dans notre cas nous avons une étude de provenance avec un groupe de référence, nous avons pu comparer nos résultats avec celui-ci. Nous avons appliqué la méthode de détection des valeurs aberrantes dans l'espace multivarié, en utilisant un calcul statistique nommé Mahalanobis Distance (MD), en utilisant le logiciel R. Par conséquent, l'approche statistique nous a permis d'émettre une hypothèse concernant la provenance des corps d'amphores. Un seul échantillon (BDX 25423) sur trente-trois, pourrait correspondre à la production du Loron. Cette étude a permis de préciser la fiabilité du p-XRF, en réalisant l'analyse sans aucune préparation particulière et en démontrant la praticabilité de cet appareil.

Le dernier cas d'étude s'est concentré sur le processus de fabrication de la céramique à Hébron aujourd'hui, en mettant en œuvre une autre stratégie, l'ethno-archéométrie. Cette recherche nous a permis de comprendre le rôle du sel comme agent de blanchiment et de mieux comprendre les transformations de la matière céramique lors de sa fabrication. De plus, des analyses céramiques sur des aliquotes expérimentales ont été effectuées, afin de reconstituer les processus de production depuis la sélection des matières premières jusqu'à la cuisson du récipient (Cantin et Mayor, 2018). Tout d'abord, j'ai analysé quatre tessons modernes et quatre matières premières (utilisées par les potiers d'Hébron dans leur fabrication), collectés à Hébron. Pour élargir notre compréhension de l'effet blanchissant, dix-huit échantillons expérimentaux ont été préparés, en utilisant les mêmes argiles utilisées par les potiers d'Hébron. L'étude a confirmé que le rôle du sel dans le blanchiment des céramiques n'était visible que sur les échantillons à forte teneur en CaO. Les changements de phase minéralogique des briques expérimentales ont été observés et enregistrés à l'aide de la cathodoluminescence, de l'analyse DRX qualitative et quantitative et de l'analyse MEB-EDX. Les résultats ont permis d'observer l'évolution des proportions des différentes phases, relativement aux augmentations de teneur en sel et de température de cuisson. Il a été observé que le processus de

transformation des minéraux argileux pour former de nouveaux silicates de calcium semblait avoir lieu à une température plus basse en présence de sel que ce à quoi on s'attendait généralement. De plus, nous avons réussi à décrire et à attribuer avec précision la présence de vides rhomboédriques découverts dans la brique expérimentale avec l'imagerie MEB. Les résultats ont montré qu'ils sont dus à la dissolution des carbonates, contrairement à ce qui a été avancé précédemment dans la littérature scientifique où les vides étaient attribués à la dissolution des sels (Rye, 1976).

En étudiant ces trois cas, cette thèse a réussi à répondre aux principaux défis tels que l'utilisation d'une approche méthodologique appropriée pour l'étude des tessons daces (création d'une base de données pouvant être utilisée pour de futurs projets) et l'application de différentes méthodes techniques d'analyse de la science des matériaux qui a apporté une réponse à différents questionnements archéologiques et ethnographiques.

### **Contributions personnelles**

Lors de ces années de recherche, j'ai pu assister à plusieurs formations et sessions organisées par les équipes des laboratoires. Ces stages scientifiques m'ont permis d'être autonome et de mettre en œuvre des méthodes techno-analytiques spécifiques à la science des matériaux, nécessaires à l'analyse des matériaux céramiques anciens, contribuant ainsi à répondre aux questions archéologiques.

De plus, j'ai réussi à :

- Faire une approche systématique de la recherche, à partir des données historiques et archéologiques, des caractéristiques du matériau analysé, des matières premières, des technologies de fabrication, des paramètres fonctionnels et d'apparence pour répondre aux objectifs archéologiques, historiques et culturels.
- Faire le choix approprié des techniques utilisées pour la caractérisation aux différentes étapes, et l'interprétation des résultats en collaboration avec les historiens, les archéologues et en accord avec les informations de la bibliographie.
- Construire une base de données archéométriques de la céramique dacienne du sud des Carpates, qui sera enrichie par des données complémentaires, afin de permettre des études comparatives.
- Observer les différences de texture, de composition chimique et minéralogique entre les céramiques, en fonction de leur technique de fabrication et confirmer le rôle du sel comme agent de blanchiment dans les céramiques à haute concentration en CaO.
- Fournir des données concernant la provenance des amphores, en provenance de l'Est, en établissant un lien avec les pays actuels : France, Italie, Croatie et Roumanie.
- Démontrer que l'équipement portable (pXRF) peut être un outil efficace pour une approche analytique préliminaire (basée sur la composition élémentaire dans ce cas) qui peut fournir une première classification des céramiques, facilitant ainsi la sélection des échantillons qui seront soumis à des analyses de laboratoire plus approfondies et complètes.

### **Les Perspectives**

Étant donné que différents cas ont été étudiés et présentés dans ce travail, certains défis sont inévitablement apparus au cours de la recherche et certaines questions doivent être étudiées plus avant.

Par exemple, dans le cas de la céramique dacienne, il est important pour les études futures de formuler une question/enquête archéologique/ethno-archéologique afin de pouvoir sélectionner la poterie qui peut répondre aux questions posées par les archéologues.

De plus, des amphores Dressel 6B ont également été découvertes en Roumanie. Il serait intéressant d'approcher les musées roumains qui peuvent nous fournir les échantillons nécessaires pour leur étude et ajouter les résultats obtenus à la base de données existante.

En ce qui concerne le dernier cas de recherche, où le sel joue un rôle important dans le processus de fabrication de la céramique d'Hébron, d'autres mesures en cours permettront d'approfondir l'étude de l'influence du sel sur la porosité de la céramique. Ces observations seront comparées à des céramiques réalisées à Jodhpur (Inde) où des pratiques similaires d'ajout de sel ont été rapportées. De plus, cette étude permettra d'utiliser cette méthodologie et d'explorer d'autres corpus où le sel a été utilisé dans la fabrication de céramiques archéologiques anciennes.

Cependant, dans toutes les études de cas ci-dessus, il convient de souligner le fait que le point clé pour avoir une recherche réussie consiste à définir clairement les enjeux ou les questionnements archéologiques et donc à sélectionner un corpus approprié d'échantillons à analyser. Bien sûr, toutes ces étapes nécessitent une collaboration pluridisciplinaire, qui commence sur le terrain, se poursuit en laboratoire. Cette collaboration peut être précieuse pour des publications et/ou des expositions muséales (Gliozzo, 2020).

De plus, la possibilité de développer des recherches archéométriques approfondie en Roumanie à l'avenir est très importante car il existe des équipements efficaces de plusieurs équipes de recherche (comme le laboratoire de Pitesti, CRC&D AUTO) travaillant sur des matériaux modernes. Il suffit de mettre en pratique les compétences acquises dans le cadre de cette thèse et de renforcer les liens avec les archéologues et les conservateurs de musées.

Ainsi, pour les futures études, il convient d'élargir le nombre d'échantillons des corpus actuels étudiés, mais aussi d'ajouter d'autres collections de céramiques (comme mentionné, de zones fermées). Il s'agit de tirer parti de la connaissance des méthodes présentées dans cette thèse et de les utiliser à d'autres types de matériaux tels que le verre et les métaux, même si d'autres méthodes différentes devraient alors être incluses (spécialement pour les métaux).

---

Le projet de thèse a été réalisé entre l'Université de Pitesti et l'Université Bordeaux Montaigne, permettant l'obtention d'un double diplôme en science des matériaux et en physique des archéomatériaux.

Pendant les trois années de recherche (2019-2021), j'ai bénéficié d'une bourse de doctorat accordée par l'Université de Pitesti, et j'ai été employé comme assistant de recherche scientifique au Centre régional de recherche pour le développement de matériaux, de processus et de produits innovants pour l'industrie automobile (CRC&D-Auto), affilié à l'Université de Pitesti, sous la supervision du Prof. Conf. Cătălin Ducu.

J'ai également bénéficié d'un soutien financier ERASMUS de l'Université Pitești et d'une bourse obtenue de l'Institut Français de Roumanie (IFR) - Bucarest, qui m'a aidé à finaliser ma thèse.

"Etude de cas des amphores à huile d'olive fabriquées dans les ateliers d'Istrie, diffusées dans les provinces danubiennes à l'époque romaine" a été le résultat de l'extension d'une recherche antérieure, établie dans le cadre d'un programme de collaboration entre Ausonius et l'IRAMAT - CRP2A (Archéosciences Bordeaux UMR 6034), dans une autre direction d'étude. Ce programme a été soutenu par une aide du LabEx Science Archéologiques de Bordeaux (ANR-10-LABX-52).

"L'influence du sel dans le processus de fabrication des céramiques d'Hébron" fait partie du projet "Savoir traditionnel des potiers d'Hébron et résistance du patrimoine (territoires palestiniens)" en collaboration avec l'archéologue V. Roux (Préhistoire et Technologie, UMR 7055, CNRS), Université de Paris Nanterre), qui nous a permis de découvrir les enjeux d'un corpus ethnographique avec des traditions céramiques, permettant de tester nos méthodes interprétatives en archéométrie.

La plupart des investigations présentées dans cette thèse ont été réalisées dans le laboratoire du Centre de Recherche en Physique Appliquée à l'Archéologie de l'Institut de Recherche sur les Archéomatériaux (IRAMAT-CRP2A, UMR 5060 Université Bordeaux Montaigne - CNRS), maintenant connu sous le nom d'Archéosciences Bordeaux UMR 6034, à Bordeaux, France.

## REFERENCES

- Anghel, D., 2011. Experimente de ardere a ceramicii in cuptoare de tip arhaic. *Terra Sebus* 3, 339–350.
- Anghel, D., 2002. Influenta conditiilor de ardere asupra ceramicii. *Revista Terra Sebus* 6, 171–173.
- Artioli, G., 2010. *Scientific methods and cultural heritage: an introduction to the application of materials science to archaeometry and conservation science*. Oxford University Press, Oxford ; New York.
- Bearat, H., Dufournier, D., Nguyen, N., Raveau, B., 1989. Influence de NaCl sur la couleur et la composition chimique des pâtes céramiques calcaires au cours de leur cuisson. *arsci* 13, 43–53. <https://doi.org/10.3406/arsci.1989.871>
- Berciu, D., 1967. *Ancient Peoples and Places Series*, 1st edition. ed. F.A. Praeger, London.
- Berciu, D., Iosifaru, M., 1980. Săpăturile arheologice de la Ocnița, jud. Vâlcea. *Materiale și cercetări arheologice* 14, 183–185. <https://doi.org/10.3406/mcarh.1980.1539>
- Bohor, B.F., 1963. High-Temperature Phase Development in Illitic Clays. *Clays Clay Miner.* 12, 233–246. <https://doi.org/10.1346/CCMN.1963.0120125>
- Bouchet, A., Meunier, A., Sardini, P., 2000. Minéraux argileux structure cristalline, identification par diffraction de rayons X = Clay minerals: crystal structure, x-ray diffraction identification. Elf Exploration Production, Pau (Pyrénées-Atlantiques).
- Bougard, E., 2011. Les céramiques gravettiennes de Moravie : derniers apports des recherches actuelles. *L'Anthropologie* 115, 465–504. <https://doi.org/10.1016/j.anthro.2011.05.007>
- Brooks, D., Bieber, A.M., Harbottle, G., Sayre, E.V., 1974. Biblical studies through activation analysis of ancient pottery, in: *Archaeological Chemistry, Advances in Chemistry*. AMERICAN CHEMICAL SOCIETY, WASHINGTON, D. C., pp. 8–33. <https://doi.org/10.1021/ba-1974-0138>
- Bulić, D.; K.U., 2020. Observations on the Architecture and Products of the Figlina in Fažana [Ausonius éd., UBM]. *Adriatlas* 3.
- Cantin, N., Mayor, A., 2018. Ethno-archaeometry in eastern Senegal: The connections between raw materials and finished ceramic products. *Journal of Archaeological Science: Reports* 21, 1181–1190. <https://doi.org/10.1016/j.jasrep.2017.01.015>
- Ceccarelli, L., Rossetti, I., Primavesi, L., Stoddart, S., 2016. Non-destructive method for the identification of ceramic production by portable X-rays Fluorescence (pXRF). A case study of amphorae manufacture in central Italy. *Journal of Archaeological Science: Reports* 10, 253–262. <https://doi.org/10.1016/j.jasrep.2016.10.002>
- Chevalier, R., Coey, J.M.D., Bouchez, R., 1976. A study of iron in fired clay : Mössbauer effect and magnetic measurements. *J. Phys. Colloques* 37, C6-861-C6-865. <https://doi.org/10.1051/jphyscol:19766181>

- Cipriano, S.; M., 2020. Le anfore Dressel 6B prodotte in area nord adriatica [Ausonius éd., UBM]. AdriAtlas 3.
- Combès, J.-L., Louis, A., 1967. Les poteries de Djerba. Publication du centre des arts et traditions populaires, Tunis.
- Crisan, I.H., 1993. *Civilizatia Geto-Dacilor*. Editura Meridiane, Bucarest.
- Cultrone, G., Rodriguez-Navarro, C., Sebastian, E., Cazalla, O., De La Torre, M.J., 2001. Carbonate and silicate phase reactions during ceramic firing. *Eur. J. Mineral.* 13, 621–634. <https://doi.org/10.1127/0935-1221/2001/0013-0621>
- Duminuco, P., Messiga, B., Riccardi, M.P., 1998. Firing process of natural clays. Some microtextures and related phase compositions. *Thermochimica Acta* 321, 185–190. [https://doi.org/10.1016/S0040-6031\(98\)00458-4](https://doi.org/10.1016/S0040-6031(98)00458-4)
- Edwards, H., Vandenberghe, P., 2016. *Analytical Archaeometry: Selected Topics*. Royal Society of Chemistry.
- Frahm, E., 2018. Ceramic studies using portable XRF: From experimental tempered ceramics to imports and imitations at Tell Mozan, Syria. *Journal of Archaeological Science* 90, 12–38. <https://doi.org/10.1016/j.jas.2017.12.002>
- Gliozzo, E., 2020. Ceramics investigation: research questions and sampling criteria. *Archaeol Anthropol Sci* 12, 202. <https://doi.org/10.1007/s12520-020-01128-9>
- Greene, K., Moore, T., 2010. *Archaeology: An Introduction*, 5th ed. Routledge, London. <https://doi.org/10.4324/9780203835975>
- Holakooei, P., Tessari, U., Verde, M., Vaccaro, C., 2014. A new look at XRD patterns of archaeological ceramic bodies: An assessment for the firing temperature of 17th century haft rang tiles from Iran. *JTHEA* 118, 165–176. <https://doi.org/10.1007/s10973-014-4012-z>
- Ionescu, C., Ghergari, L., Horga, M., Rădulescu, G., 2007. Early Medieval ceramics from the Viile Tecii archaeological site (Romania): an optical and XRD study. *Studia UBB Geologia* 52, 29–35.
- Machut, P., Marion, Y., Ben Amara, A., Tassaux, F., 2020. AdriAtlas 3. Recherches pluridisciplinaires récentes sur les amphores nord-adriatiques à l'époque romaine. Ausonius éditions, Bordeaux, France.
- Marion, Y., Tassaux, F., 2020. Les amphores d'Istrie septentrionale et centrale : ateliers et typochronologie, in: AdriAtlas 3. Recherches pluridisciplinaires récentes sur les amphores nord-adriatiques à l'époque romaine. Ausonius Editions, UBM, Bordeaux, France.
- Maritan, L., 2004. Archaeometric study of Etruscan-Padan type pottery from the Veneto region: petrographic, mineralogical and geochemical-physical characterisation. *ejm* 16, 297–307. <https://doi.org/10.1127/0935-1221/2004/0016-0297>
- Maritan, L., Nodari, L., Mazzoli, C., Milano, A., Russo, U., 2006. Influence of firing conditions on ceramic products: Experimental study on clay rich in organic matter. *Applied Clay Science* 31, 1–15. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2005.08.007>

- Montana, G., Cau Ontiveros, M., Polito, M., Azzaro, E., 2011. Characterisation of clayey raw materials for ceramic manufacture in ancient Sicily. *Applied Clay Science - APPL CLAY SCI* 53, 476–488. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2010.09.005>
- Nodari, L., Marcuz, E., Maritan, L., Mazzoli, C., Russo, U., 2007. Hematite nucleation and growth in the firing of carbonate-rich clay for pottery production. *Journal of the European Ceramic Society* 27, 4665–4673. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2007.03.031>
- Nöller, R., Knoll, H., 1983. Magnetic properties of calcium-silicates (diopside and gehlenite) doped with iron (III). *Solid State Commun.* 47, 237–239. [https://doi.org/10.1016/0038-1098\(83\)90552-5](https://doi.org/10.1016/0038-1098(83)90552-5)
- Ricci, G., 2016. *Archaeometric studies of historical ceramic materials (Scienze Chimiche)*. Universita Ca'Foscari Venezia.
- Rodriguez-Navarro, C., Cultrone, G., Sanchez-Navas, A., Sebastian, E., 2003. TEM study of mullite growth after muscovite breakdown. *American Mineralogist* 88, 713–724. <https://doi.org/10.2138/am-2003-5-601>
- Roux, V., 2015. *The white matka: ethnography of a water jar*. Rupayan Sansthan, Jodhpur.
- Rye, O.S., 1976. Keeping Your Temper under Control: Materials and the Manufacture of Papuan Pottery. *Archaeol. Oceania* 11, 106–137.
- Sciau, P., Goudeau, P., 2015. Ceramics in art and archaeology: a review of the materials science aspects. *Eur. Phys. J. B* 88, 132. <https://doi.org/10.1140/epjb/e2015-60253-8>
- Shepard, A.O., 1985. *Ceramics for the archaeologist*, Repr. ed, Publication / Carnegie Institution of Washington. Carnegie Inst, Washington, DC.
- Stefan, A., Mazare, P., 2001. Metode de prelevare a materialelor ceramice pe santerele arheologice. *Arheologie-Istorie-Muzeologie* 7, 259–276.
- Stiles, D., 1977. *Ethnoarchaeology: A Discussion of Methods and Applications*. *Man* 12, 87–103. <https://doi.org/10.2307/2800996>
- Szakmány, G., 2020. Fažana amphorae: geological context and new petrographic and chemical results [Ausonius éd., UBM]. *Adriatlas* 3.
- Teodorescu, L., Ben Amara, A., Cantin, N., Chapoulie, R., Ducu, C., Ciucă, S., Tulugea, C., Terteci, C., Abrudeanu, M., 2021. Characterization of Archaeological Artefacts Using Methods Specific to Materials Science: The Case Study of Dacian Ceramics from 2nd c. BC to 1st c. AD. *Materials* 14, 3908. <https://doi.org/10.3390/ma14143908>
- Tian, W., 2016 *A Multi-scale Study of Ancient Ceramics Using a Series of Analytical Techniques*. Universite de Toulouse, Institut National des Sciences Appliquees de Toulouse.
- Tite, M. s, 2008. Ceramic production, provenance and use - A review. *Archaeometry* 50, 216–231. <https://doi.org/10.1111/j.1475-4754.2008.00391.x>
- Tykot, R.H., 2004. Scientific methods and applications to archaeological provenance studies. *Physics Methods in Archaeometry* 407–432. <https://doi.org/10.3254/978-1-61499-010-9-407>

Vandiver, P.B., Soffer, O., Klima, B., Svoboda, J., 1989. The Origins of Ceramic Technology at Dolni Věstonice, Czechoslovakia. *Science* 246, 1002–1008.  
<https://doi.org/10.1126/science.246.4933.1002>