Revue archéol. Ouest, 18, *2001, p. 45-56.*

ÉTUDE DES DÉCHETS DE RÉDUCTION PROVENANT DE DEUX SITES D'EXPLOITATION D'ÉTAIN ARMORICAIN DE L'AGE DU BRONZE ET DU MOYEN AGE

Cécile MAHÉ-LE CARLIER, Yves LULZAC** et Pierre-Roland GIOT****

Résumé : De très nombreux objets en bronze dont les âges varient de l'Age du Bronze aux périodes plus récentes, et notamment du Moyen Age, ont été inventoriés en Armorique. Le Massif Armoricain recèle de nombreux gisements stannifères sur lesquels des traces d'exploitations de diverses époques ont déjà été signalées. Des scories ont été trouvées mélangées à du charbon de bois au cours de sondages géologiques sur deux sites. Le premier, St Renan (Finistère) date du Bronze Moyen ; le second, Limerzel (Morbihan), date du Haut Moyen Age. Une étude pétrographique et géochimique sur des fragments de scories provenant de ces deux sites précise qu'elles résultent de la réduction de la cassitérite (SnO_2) en étain métallique, et que les minerais provenaient des gisements alluvionnaires proches. Ce premier travail confirme donc que l'étain armoricain a été exploité depuis l'Age du Bronze et que les minerais pouvaient être traités sur les lieux même de l'exploitation. La présence d'une petite masse métallique de plomb contenant des grains de cassitérite sur le site de Limerzel semble indiquer que ce site métallurgique pouvait produire des matériaux plus élaborés que de simples lingots d'étain.

Abstract : Numerous bronze artefacts may be found in Armorique. Their ages vary from Bronze Age to recent periods, and particularly of the Middle Age. The Massif Armoricain contains many tin deposits, on which exploitation indices of different ages have been noticed. Slags mixed with charcoal have been found on geological boreholes on two sites. The first site (St Renan, Finistère) is dated of the Middle Bronze Age whereas the second one (Limerzel, Morbihan) is dated of the Early Middle Age. A petrographical and geochemical study of parts of slags from these two sites has been realised. It shows that slags result from the reduction of cassiterite (SnO2) to tin metal. The used ore come from alluvial deposits found in the vicinity. This first work confirms that armorican tin was extracted since Bronze Age and that ore were treated in the area of extraction. In Limerzel site, the presence of the a small metallic lead body which encapsulate cassiterite grains seems to indicate that this site might have also produced more elaborated alloys that simple tin ingots.

Mots-clés : Métallurgie de l'étain, scories, gisements alluvionnaires de cassitérite, Armorique.

Key-words : Tin Metallurgy, slags, cassiterite alluvial deposits, Armorique.

INTRODUCTION

La richesse en objets métalliques en Bretagne, dont un grand nombre ont été fabriqués à l'Age du Bronze, pose le problème de l'origine des matières premières, minerais et métaux. En ce qui concerne le cuivre, les ressources accessibles à l'époque étaient des plus modestes. Les archéologues s'accordent pour écrire que les métallurgistes anciens ont dû importer ce métal depuis la Péninsule Ibérique, les Iles britanniques ou les régions alpines. Par contre, le Massif Armoricain recèle de nombreux gisements stannifères, soit alluvionnaires, soit filoniens.

Cette richesse en étain a orienté certains auteurs vers l'Armorique dans leur recherche de l'emplacement des Cassitérides (Ramin, 1965). Ce qui est certain, d'après de nombreux auteurs anciens, c'est que l'Europe de l'Ouest, et notamment la Cornouaille (ou Cornwall), a exporté de l'étain. Le produit exporté était-il de la cassitérite (SnO_2) ou du métal déjà réduit ? En ce qui concerne l'encombrement et le poids, les deux produits se valent et leur commerce est tout aussi possible. Diodore (Diodore, BH, V, 21, 2) note que l'étain de Cornwall était exporté sous forme de métal et non de cassitérite (d'après Routhier, 1999). La découverte de quelques lingots d'étain dans les épaves (la

* *CRPG-CNRS, rue Notre Dame des Pauvres, BP 20, 54501 VANDOEUVRE-LES-NANCY. cmahe@crpg.cnrs-nancy.fr*
** *1 place du 16ème Régiment d'Infanterie, 44300 NANTES.*
*** *3 rue Edouard Jordan, 35000 RENNES.*

Manuscrit reçu le 30/03/2000, accepté le 15/09/2000.

faible quantité de lingots retrouvés est liée en partie à la «maladie de l'étain» qui correspond à une altération du métal à basse température le transformant en poudre blanchâtre) semble accréditer cette hypothèse. L'analyse de creusets provenant de Fort-Harrouard (Eure-et-Loire) laisse par contre penser que la cassitérite aurait pu être acheminée directement et réduite sur place (Mohen, 1990). Néanmoins, les scories de réduction de l'étain du site de Caerloggas (1600 avant J.-C.) montrent que très tôt dans l'Age du Bronze, et peut être même dès son début, les métallurgistes enfournaient avec le cuivre, de l'étain métal et pas uniquement de la cassitérite (Salter, 1997).

Le travail présenté ici s'attache à argumenter l'existence de cette métallurgie de l'étain en Armorique, par l'étude de quelques fragments de scories de réduction de la cassitérite. Elles ont été trouvées lors de sondages de prospections géologiques réalisés par le B.R.G.M. sur deux sites : le site de St Renan dans le Finistère, et le site de Limerzel dans le Morbihan. Les scories étudiées ont été prélevées lors de ces sondages.

LA MÉTALLURGIE ANCIENNE DE L'ÉTAIN

Les procédés de la métallurgie ancienne de l'étain sont aujourd'hui encore très mal connus. Les gisements les plus aisément accessibles sont certainement d'origine détritique, en dehors des sites à métaux natifs. Remarquons que dans les gisements alluvionnaires, la cassitérite se retrouve fréquemment en même temps que l'or. C'est un minéral dense qui reste associé aux grains d'or pendant le lavage. Pline (HN, XXXIV, 47, 16) décrit un lavage de sables d'un placer dans un torrent où cassitérite et or étaient récupé-



A : Ouvrier transportant les graviers avec une brouette B : Première longue goulotte C : Première petite caisse D : Ses poignées E : Ses anses F : La corde G : La potence H : Son montant I : La seconde goulotte K : La seconde petite caisse L : La troisième goulotte M : La troisième petite caisse N : Première table O : Premier tamis P : Premier baquet Q : Seconde table R : Second tamis S : Second baquet T : Troisième table V : Troisième tamis X : Troisième baquet Y : Bondes

Fig. 1A : Séparation du minerai d'étain d'avec la gangue stérile par densité (circulation d'eau dans des goulottes) et par tamisage (d'après Agricola, 1556).



A : Le fourneau B : Sa bouche C : Bassin de coulée ou avant foyer D : Son ouverture E : Les déchets F : Houe G : Le second bassin H : Les parois de la cheminée I : Balai K : Les plaques de cuivre pour recevoir l'étain L : Treillis d'étain M : Poinçons de fer N : Marteau

Fig. 1B : Réduction du minerai d'étain dans un fourneau. Coulée de l'étain métallique et étalement sur des plaques de cuivre pour fabriquer des treuillis (d'après Agricola, 1556).

rés (d'après Forbes, 1950). Les gîtes détritiques exploités étaient fluviaux mais également côtiers où la mer lavait la cassitérite. Ces derniers gisements présentaient alors des traînées foncées qui tranchaient sur le blanc du sable. Les minéraux lourds des alluvions peuvent être récupérés à la batée, ce qui ne laisse pas de traces pérennes. Des bancs de lavage où un courant d'eau sépare les minéraux denses des autres particules détritiques sont décrits par Agricola (fig. 1A). Le développement du grillage des sulfures a permis d'exploiter d'autres minerais de cuivre que les carbonates et oxydes (premiers minerais de cuivre utilisés). Or, dans certaines régions (Cornwall, Bohême), le cuivre et l'étain sont associés dans la minéralisation sulfurée, d'où une nouvelle possiblité de gisements d'étain. L'exploitation minière en roches par abattage au feu a été très tôt utilisée (Forbes, 1950). Cette méthode fragilise la roche et permet l'oxydation, au moins partielle, des sulfures et arséniures, minéraux plus difficiles à traiter. La roche était ensuite cassée puis lavée, et cela autant de fois qu'il fallait pour que la cassitérite soit suffisamment concentrée (environ 70 % SnO_2, soit 65% Sn métal). Une meule était utilisée pour broyer le minerai. Elle sera actionnée plus tard par un moulin. Ces techniques de lavage et de broyage mues par l'énergie hydraulique, à partir du Moyen Age, décrites au XVI^{ème} siècle par Agricola seront utilisées jusqu'aux XVIII^{ème} et XIX^{ème} siècles.

Aucun four très ancien n'a été trouvé en Grande Bretagne (Tylecote, 1986), ni en France. Les seules mentions de fours de réduction de l'étain par une technique ancienne proviennent d'Afrique du Sud (Friede and Steel, 1976). Néanmoins, des scories de réduction de la cassitérite datant de -1600 avant J.-C. ont été trouvées sur le site de Caerloggas en Cornouaille (Salter, 1997 ; Tylecote, 1986), attestant de la réalité de ce procédé à cette époque dans l'Ouest européen.

A partir du Moyen Age, l'ensemble des installations d'enrichissement et de fusion du minerai et d'affinage du métal se trouvent dans un bâtiment où meules, moulins et soufflets sont mus par l'énergie hydraulique (Earl, 1985) (fig. 1B). A partir du XVIIème siècle, la réduction de la cassitérite s'effectue dans des fours à réverbère (Earl, 1985). En 1778, Pryce décrit un four de réduction haut de 2,18 m et dont les diamètres sont respectivement, au sommet de 60 cm et à la base de 36 cm. Deux paires de soufflets délivrent l'air à une tuyère située à 25 cm de hauteur. La cassitérite et le charbon de bois sont déposés en couches (environ 400-600 kg de cassitérite pour 1100-1500 kg de charbon de bois). La fusion/réduction dure environ 12 heures. Ce four ressemble aux descriptions d'Agricola.

MINERAI D'ÉTAIN EN BRETAGNE ET INDICES D'EXPLOITATIONS ANCIENNES

Avant les prospections systématiques des années 1950, essentiellement réalisées par le B.R.G.M., on ne connaissait que les gisements méridionaux (Morbihan et Loire-Atlantique) qui furent exploités industriellement aux XIX^{ème} et XX^{ème} siècles. Les gisements septentrionaux (Léon et Petit Trégor) furent la révélation des prospections entreprises par le B.R.G.M. à partir de 1957.

Les concentrations stannifères en Europe sont, à une écrasante majorité, situées dans le domaine varisque (ou hercynien) dont fait partie le Massif Armoricain (Chauris, 1981). La quasi-totalité des gîtes stannifères du Massif Armoricain est associé à des granites dont la mise en place s'est échelonnée entre 345 et 285 millions d'années environ. Ces gîtes appartiennent à différents types. La minéralisation peut être disséminée dans un granite (exemple de St Renan), localisée entre deux massifs granitiques (exemple de Montebelleux où il existe d'innombrables veines à quartz, cassitérite et wolframite), ou localisée dans de grands filons quartzeux (exemple d'Abbaretz, de La Villeder ou de St Renan).

Les minéralisations stannifères post-varisques sont d'origine détritique et dérivent de l'érosion des gisements hercyniens. La cassitérite a été rencontrée dans terrains d'âges divers, allant du Trias ou Pliocène, mais principalement dans les alluvions fluviatiles quaternaires (Guigues et Devismes, 1969) (fig. 2) (exemples de St Renan et de Limerzel), et localement dans les sables des plages actuelles (exemples de Pénestin et Piriac).

Le développement important de la production des bronzes armoricains à partir du II^{ème} millénaire (Age du Bronze Moyen), et leur forte teneur en étain, incitent à penser que les gîtes stannifères armoricains ont été reconnus et exploités dès 1500 avant J.-C. (Briard, 1991). A La Villeder (Morbihan), des vestiges gallo-romains tels que des fragments de tuiles, poteries, conduits d'amenée d'eaux de lavage et scories stannifères, ont été trouvés au milieu du XIX^{ème} siècle (Simonin, 1866). Le site d'Abbaretz-Nozay laisse voir une tranchée profonde de 2 à 18 m et large de 25 à 100 m, suivant la ligne flexueuse du filon sur environ 600 m. C'est une mine d'étain d'époque romaine dont l'exploitation s'est poursuivie pendant tout le Haut Moyen Age (Champaud, 1957). Cependant, des vestiges de l'Age du Bronze et de la période de La Tène avaient également été trouvés autrefois aux abords de ce gisement. Un important matériel y a été recueilli : scories stannifères, monnaies romaines et mérovingiennes (550-560) en or (l'une de Vannes, l'autre de Nantes), amphore contenant de la cassitérite, outils en bois (coins et pelle) et en fer (masse). Champaud (1957) a estimé que ce gisement aurait pu produire 900 tonnes d'étain, ce qui peut correspondre, à peu près, de 6000 à 9000 tonnes de bronze à 10 % d'étain. Une ancienne exploitation à Pontchâteau (au Pouliguen) a pu être datée de 400 avant J.-C. (Briard, 1991). Des fragments de scories et des globules d'étain ont été retrouvés à Piriac sans que des datations aient pu être proposées.

A l'Aber-Ildut, non loin de St Renan, des sondages préliminaires B.R.G.M., de 1963, firent découvrir des scories et des débris d'objets en bronze. Des monnaies romaines (Vespasien-Hadrien) furent trouvées en surface et d'autres, auraient été par la suite trouvées sur les tamis de l'usine de traitement des alluvions. La suite de l'exploitation du placer amena de multiples découvertes de zones à scories siliceuses à globules d'étain, récupérées à la laverie... mais non conservées ! Les découvertes archéologiquement les plus nettes auraient été, au sud-est de Plouguin, un débris de «four» dans la vallée du Garo (Giot et Lulzac, 1998).

PRÉSENTATION DES DEUX SITES : ST RENAN ET LIMERZEL

SITE DE ST RENAN-KERVEATOUS (FINISTÈRE)

Le gisement primaire (fig. 2) se trouve disséminé dans la masse du granite dit de St Renan, et dans ses formations associées, greisens et filons de quartz les plus minéralisés. Les concentrations de cassitérite se sont progressivement faites lors de l'arénisation du granite, par des phénomènes de solifluxion lors des périodes froides du Quaternaire, puis par ruissellement vers les dépôts alluvionnaires en fond de vallées (Lulzac, 1968).

Au cours des campagnes de sondages et prospection du B.R.G.M., un fossé de 2 m de profondeur a été trouvé dans le vallon de Délé, à l'ouest du manoir de Kervéatous.

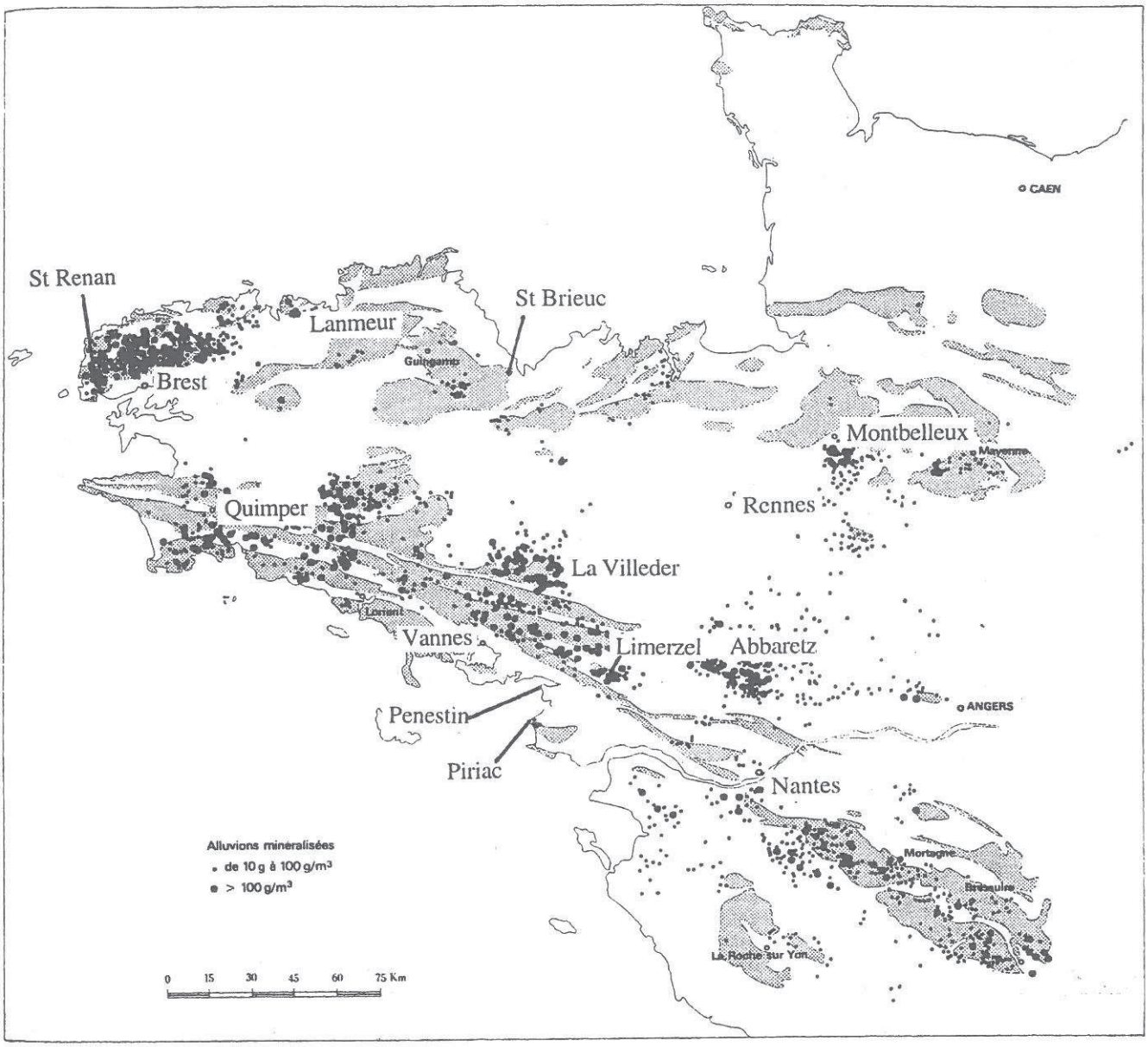


Fig. 2 : Carte de localisation des gisements de cassitérite alluvionnaire en Bretagne (d'après Guigues et Devismes, 1969).

Ce fossé était comblé par de la terre végétale argilo-sableuse contenant une grande quantité de charbons de bois. Après débourbage et concentration de cette terre, il avait été obtenu de rares grains de cassitérite et des petites scories. Le profil réalisé en amont a pu laisser imaginer le décaissement d'un petit banc de dépôt alluvial : il avait été remarqué des berges en banquettes d'allure anormale avec rejet, vers l'aval et sur la couche d'humus préexistante, des alluvions lavées et exploitées. Un bon échantillon de charbon de bois a permis d'obtenir la datation radiocarbone Ly-8696 : 3020 ± 50 années conventionnelles BP, soit à 95 % de chances de probabilités pour la fourchette entre 1387 et 1084 avant J.-C. avec un maximum de probabilité se situant autour de -1369, -1289, -1261 et -1229. Ceci correspond à la fin du Bronze Moyen et au début du Bronze Final (Giot et Lulzac, 1998). Le creusement du fossé d'exploitation aurait pu, au minimum, concerner 4000 à 5000 m³ d'alluvions remuées.

SITE DE LIMERZEL - VIEILLE VILLE (MORBIHAN)

Le bassin du Tévelo, qui s'étend sur 8 km, est la plus importante zone stannifère alluvionnaire du district de Questembert (fig. 2) (évaluation du stock à 600 tonnes d'étain métal). L'origine exacte de la cassitérite est assez mal connue, les seules occurrences aplitiques, pegmatitiques ou quartzeuses n'étant pas suffisantes pour expliquer une telle accumulation détritique (Lulzac, 1970).

Au cours des campagnes de sondages et prospection du B.R.G.M., des vestiges d'exploitation et de traitement de minerai d'étain ont été découverts par sondages en deux endroits, de part et d'autre, du placer de Trévelo. Le premier sondage, dans le vallon de Kerdoret, a permis la découverte sous une couverture argileuse, d'environ 1,20 m, d'un niveau peu épais gravillonneux et arénisé contenant une petite proportion de scories brunâtres accompagnées de minuscules globules d'étain métallique. Le se-

cond sondage a été réalisé dans le vallon du Temple, au sud du flat de Trévelo. La zone exploitée se devine aisément en amont du petit vallon au niveau du village de Vieille Ville. Le fond du vallon est une zone marécageuse sur une extension d'au moins 150 m. Le sondage a reconnu, sous 1,50 m de tourbe et de bois décomposé, une couche de gravillons peu argileux mélangés à du charbon de bois d'une épaisseur de 0,50 m. Une concentration effectuée sur les graviers a fourni une forte proportion de scories brunâtres ou irisées, accompagnées de nombreux globules d'étain recouverts d'une patine blanche ou brunâtre, ou parfois corrodés par un produit cristallin jaune. Un échantillon de charbon de bois a permis d'obtenir la datation radiocarbone GIF-1679 : 890 ± 90 années conventionnelles BP, soit à 95 % de chances de probabilités pour la fourchette se situant entre 950 - 1290 AD (Giot, 1970). Ceci correspond à la fin du Haut Moyen Age et au début du Moyen-Age Central. Les analyses chimiques et pétrographiques ont été réalisées sur des scories provenant du second sondage.

TRAITEMENT ET ANALYSE DES SPÉCIMENS

Les spécimens étant de taille réduite, ceux-ci ont été inclus dans de la résine afin de pouvoir confectionner des sections polies observables au microscope optique par réflexion. Ils ont été ensuite analysés au moyen de la microsonde électronique (Cameca SX-50, Faculté des Sciences de Nancy) équipée de quatre spectromètres et d'un analyseur dispersif en longueur d'onde (WDS) et du microscope électronique à balayage (Hitachi S 2500, Faculté des Sciences de Nancy) équipé d'un spectromètre et d'un analyseur dispersif en énergie (EDS). Les analyses sont effectuées sous une tension d'accélération de 15 kV et un courant de 10 nA. Les éléments systématiquement analysés sont Si, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, Ti, P. D'autres éléments, dont le choix a été orienté par l'étude, ont été également dosés, tels Na, Tb, Pb, As, Sb, Cu, Zn et S. Les standards (pour la microsonde électronique) sont des échantillons géologiques utilisés avant chaque séance d'analyse. Les tableaux présentés dans les paragraphes suivants donnent une sélection d'analyses à fin d'illustration des propos.

RÉSULTATS ANALYTIQUES

SITE DE ST RENAN - KERVEATOUS

Les spécimens analysés présentent un diamètre moyen de 1 à 2 mm. Ils se rassemblent en deux catégories : les premiers présentent une partie centrale formée par de la cassitérite et une bordure scorifiée, les seconds sont entièrement composés par de la scorie dans laquelle sont incluses des billes métalliques d'étain.

Les spécimens à partie centrale de cassitérite

Dans l'ensemble des échantillons, la cassitérite ne possède plus sa forme propre, elle est soit arrondie (photo 1), soit totalement informe (photo 2), mais est toujours englobée dans de la scorie. Cette cassitérite présente quelques impuretés comme Fe, Mn, Ti, Si et Ta (tab. 1). Les analyses n'ont montré aucune trace dosable de Cu, Zn, Ni, Co, As, Sb, Pb et Nb.

Un premier type d'échantillons possède une matrice vitreuse très riche en SiO_2, Al_2O_3 et K_2O, sans étain (tab. 1). Le «bouclage» de l'analyse est très mauvais, aux alentours de 93-94 %. Tous les éléments chimiques dosables à la microsonde électronique ont été examinés ; ce mauvais «bouclage» est sans doute dû à la présence d'éléments légers non dosables à la microsonde électronique. Le verre pourrait contenir une quantité non négligeable d'eau. Mais un autre élément léger peut être également présent, le béryllium. Dans le greisen, du béryl a été rencontré (Chauris, 1981) ; sa teneur en Be_2O_3 peut être très importante, jusqu'à 8 % poids. Des phases cristallisées se sont également formées (tab. 1) ; leur composition chimique les rapprocherait de la famille des chlorites ferrifères, qui peuvent cristalliser à basse température. Mais la cristallisation d'un tel silicate hydraté est incompatible avec les opérations métallurgiques. Il pourrait s'agir alors peut être d'un minéral secondaire formé depuis sa «mise en décharge». La bordure de la cassitérite centrale est nette montrant qu'il n'y a eu aucun début de fusion.

Dans un second type, la cassitérite se présente généralement en masse informe dont la bordure est désagrégée en petites particules (photo 3). Ce sont ces dernières scories qui présentent une matrice vitreuse très riche en étain. Une phase se développe au cours du refroidissement de la scorie : des dendrites de SnO_2 (photo 4, fig. 3-spectre 1) dont la forme est due à une cristallisation extrêmement rapide. La présence de Al et Si dans l'analyse est due au fait que les dendrites sont très petites et que l'analyse a pris en compte une petite partie de la matrice. Cette dernière est effectivement composée de Si, Al, Sn, Fe et Ti (fig. 3-spectre 2) et présente une texture vitreuse. De minuscules billes d'étain métalliques sont présentes, par endroits, au sein de cette matrice.

En même temps que la cassitérite, des restes évoquant la roche du gisement primaire sont reconnaissables dans ces scories. Ce sont des quartz et feldspaths (tab. 1) qui sont restés agglomérés aux grains de cassitérite. Le quartz se présente sous un même habitus que dans les granites ; sans traces de fusion visibles.

Les spécimens à billes d'étain

Les scories vitreuses sont des fragments de coulées (l'écoulement est visible grâce à la texture du verre) composés essentiellement de verre dans lequel sont inclus des billes d'étain métallique, ainsi que des grains détritiques de quartz et de feldspath (photo 5). La matrice vitreuse est composée principalement d'étain, mais également de silice, d'alumine et de fer (fig. 3-spectre 3). La teneur très élevée en étain mesurée dans la scorie, très proche de la teneur dans la cassitérite, montre que la scorie résulte de la fusion en grande majorité de la cassitérite, mais également d'autres composants, comme de l'argile ou la bordure des feldspaths (les grains sont arrondis et montrent un début de fusion). Le quartz présente toujours sa forme propre et n'a pas fondu. Pour d'autres spécimens, la richesse en étain de la scorie est telle que des dendrites de SnO_2 se sont formées, comme dans le cas de certaines scories à coeur de cassitérite.

SITE DE LIMERZEL - VIEILLE VILLE

Les échantillons provenant de ce site sont de taille plus importante que ceux du site de St Renan, allant de 1-2 mm à 1 cm. Ils se répartissent globalement en trois catégories : la première correspond à du minerai non fondu, la seconde à des scories et la dernière à des masses métalliques.

Le minerai non fondu

Les grains de cassitérite ont une taille moyenne de 3-4 mm. Des grains de quartz peuvent y être accolés. Des inclusions peuvent être présentes au sein des grains ; ce sont des oxydes à Nb et Ta majeurs et Fe, Mn, Ti mineurs,

Tableau 1 - Scories à cœur de cassitérite de St Renan					
	Cassitérite	quartz	feldspath	matrice vitreuse	chlorite ferrifère
SiO2	0.13	99.43	64.56	46.04	32.63
Al2O3	0.02	0.08	18.04	32.77	22.04
FeO	0.17	0.00	0.05	2.54	22.36
MnO	0.00	0.00	0.02	0.17	0.52
MgO	0.05	0.00	0.01	0.98	2.75
CaO	0.44	0.00	0.00	0.00	0.23
K2O	0.00	0.01	15.81	10.50	4.04
Na2O	0.00	0.04	0.69	0.31	0.10
TiO2	0.21	0.00	0.00	0.50	1.29
SnO2	102.01	0.00	0.00	0.07	0.00
Ta	0.24	0.85	0.00	0.00	0.00
total	103.03	100.41	99.18	93.88	85.96

Tableau 2 - Minerais de Limerzel							
	cassitérite	cassitérite	cassitérite	cassitérite	inclusion	inclusion	inclusion
SiO2	0.15	6.31	6.63	0.06	0.00	0.00	0.00
CaO	0.33	0.52	0.43	0.48	0.00	0.00	0.00
TiO2	0.00	0.00	0.00	0.37	6.05	0.40	1.03
MnO	0.00	0.00	0.18	0.00	4.17	1.46	2.42
FeO	0.25	0.06	0.03	0.16	11.58	15.83	14.25
Nb2O3	1.59	0.35	0.37	0.33	39.29	52.16	47.23
SnO2	99.21	104.40*	103.03*	100.79*	2.43	0.44	0.25
Ta3O5	0.53	0.53	0.30	0.81	34.23	26.25	32.59
PbO	0.00	0.10	0.00	0.00	0.00	0.03	0.69
Total	102.06	112.27	110.97	103.00	97.75	96.57	98.46

* Remarque : Le standard utilisé pour l'étain est la cassitérite dans laquelle la valence de l'élément est 4+. Le programme de calcul est également basé sur une valence 4+. Si l'étain se trouve dans une valence moindre, la teneur sera sur-estimée. Les cassitérites ayant séjourné dans le four ont sans doute subi un début de transformation, et l'étain a commencé à être réduit.

Tableau 3	
	staurotide
SiO2	26.55
Al2O3	51.01
MnO	0.23
FeO	14.40
MgO	1.56
CaO	0.00
K2O	4.06
TiO2	0.62
SnO2	0.54
Ta3O5	0.00
Total	98.97

Tableau 4 - Billes de métal dans des scories - Limerzel			
	métal	métal	inclusion dans métal
Si	0.14	0.10	0.02
Al	0.00	0.00	0.00
Mn	0.01	0.00	0.00
Fe	0.17	0.03	17.41
Mg	0.04	0.05	0.08
Ca	0.47	0.29	0.30
K	0.00	0.00	0.00
Ti	0.00	0.00	0.00
Sn	100.28	100.32	82.99
Ta	0.28	0.42	0.22
	101.39	101.21	101.02

Tableau 5 - Oxydes néoformés dans des scories Limerzel						
	cristal aut.	cristal dend.	baguette	cristal aut.	cristal aut.	baguette
SiO2	0.01	0.00	4.73	0.00	0.00	0.00
Al2O3	0.05	0.25	1.78	1.14	0.94	0.72
CaO	4.12	5.32	0.29	0.00	0.05	0.04
MgO	0.02	0.07	2.75	0.29	0.19	3.07
TiO2	16.68	10.18	40.85	49.68	62.26	46.25
MnO	0.21	1.01	3.98	0.16	0.10	8.70
FeO	0.43	0.98	31.24	2.99	4.08	32.52
Nb2O3	10.32	14.13	2.14	12.76	9.29	3.72
SnO2	48.80	41.35	7.83	0.07	0.31	1.06
Ta3O5	18.98	28.76	3.86	29.28	22.13	3.02
Total	99.63	102.05	99.45	96.37	99.35	99.10

Tableau 6 - Phases silicatées des scories de Limerzel								
	leucite néoformée	feldspath néoformé	verre	verre	verre	verre	verre	verre
SiO2	54.04	63.74	29.77	36.65	21.87	12.50	24.51	37.14
Al2O3	23.45	18.31	11.10	13.42	9.98	4.79	6.85	11.31
MnO	0.00	0.00	0.84	0.64	1.17	4.43	0.50	1.30
FeO	0.11	0.00	5.11	3.08	5.02	22.46	3.71	5.67
CaO	0.00	0.02	2.49	2.23	5.26	0.85	1.99	3.78
MgO	0.00	0.00	0.74	0.71	0.77	1.43	0.47	0.82
Na2O	0.29	0.33	0.37	0.52	0.13	0.19	0.19	0.38
K2O	20.72	16.10	4.47	5.58	2.52	1.76	1.81	5.00
TiO2	0.09	0.00	6.31	5.41	4.06	25.30	2.36	8.92
SnO2	0.14	0.12	35.56	28.35	42.25	19.95	58.53	11.91
Ta3O5	0.00	0.00	1.91	1.60	2.70	3.16	0.88	5.52
Nb2O3	0.00	0.07	2.06	1.14	3.55	3.74	1.04	5.72
Total	98.84	98.69	100.73	99.33	99.28	100.56	102.84	97.47

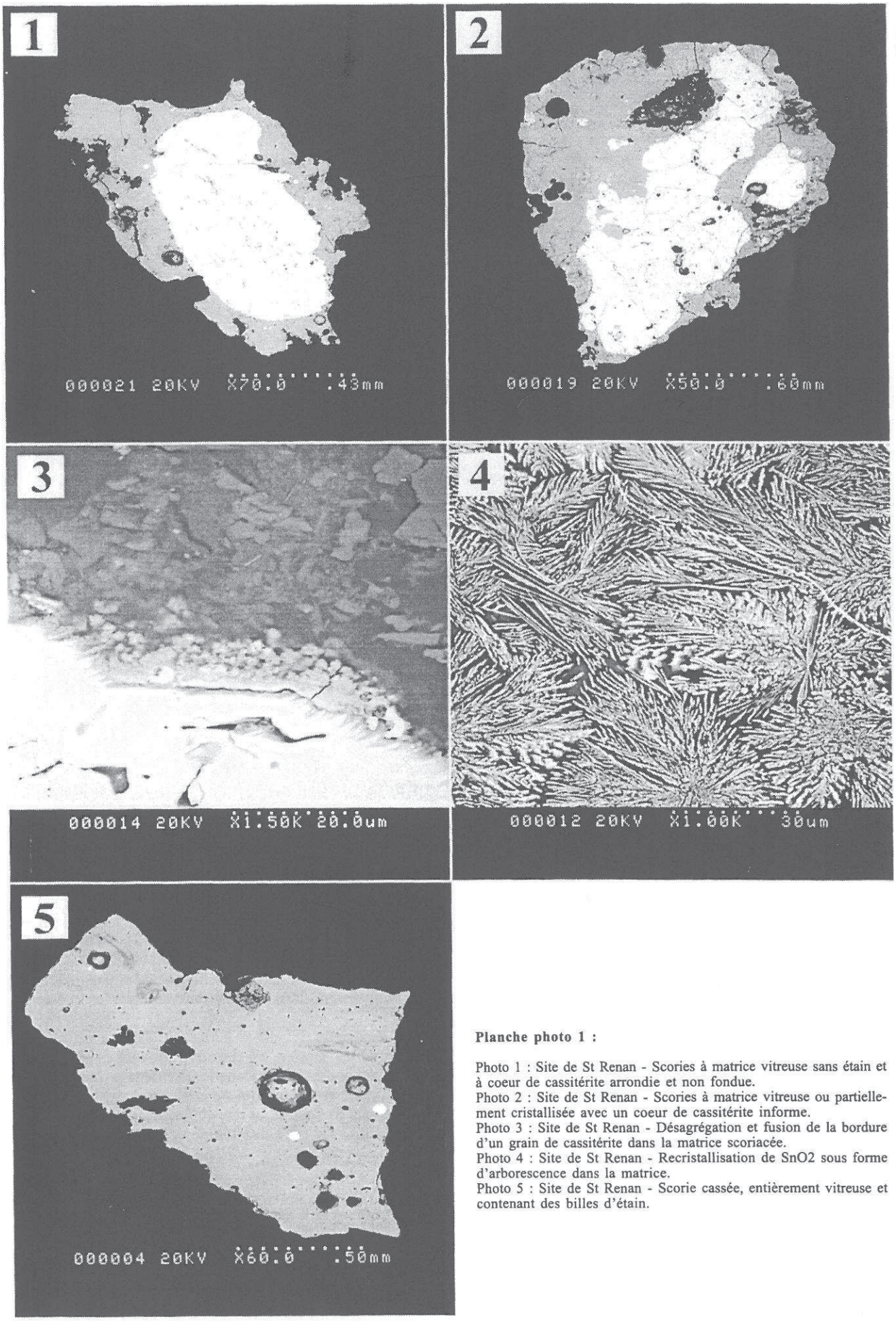


Planche photo 1 :

Photo 1 : Site de St Renan - Scories à matrice vitreuse sans étain et à coeur de cassitérite arrondie et non fondue.
Photo 2 : Site de St Renan - Scories à matrice vitreuse ou partiellement cristallisée avec un coeur de cassitérite informe.
Photo 3 : Site de St Renan - Désagrégation et fusion de la bordure d'un grain de cassitérite dans la matrice scoriacée.
Photo 4 : Site de St Renan - Recristallisation de SnO2 sous forme d'arborescence dans la matrice.
Photo 5 : Site de St Renan - Scorie cassée, entièrement vitreuse et contenant des billes d'étain.

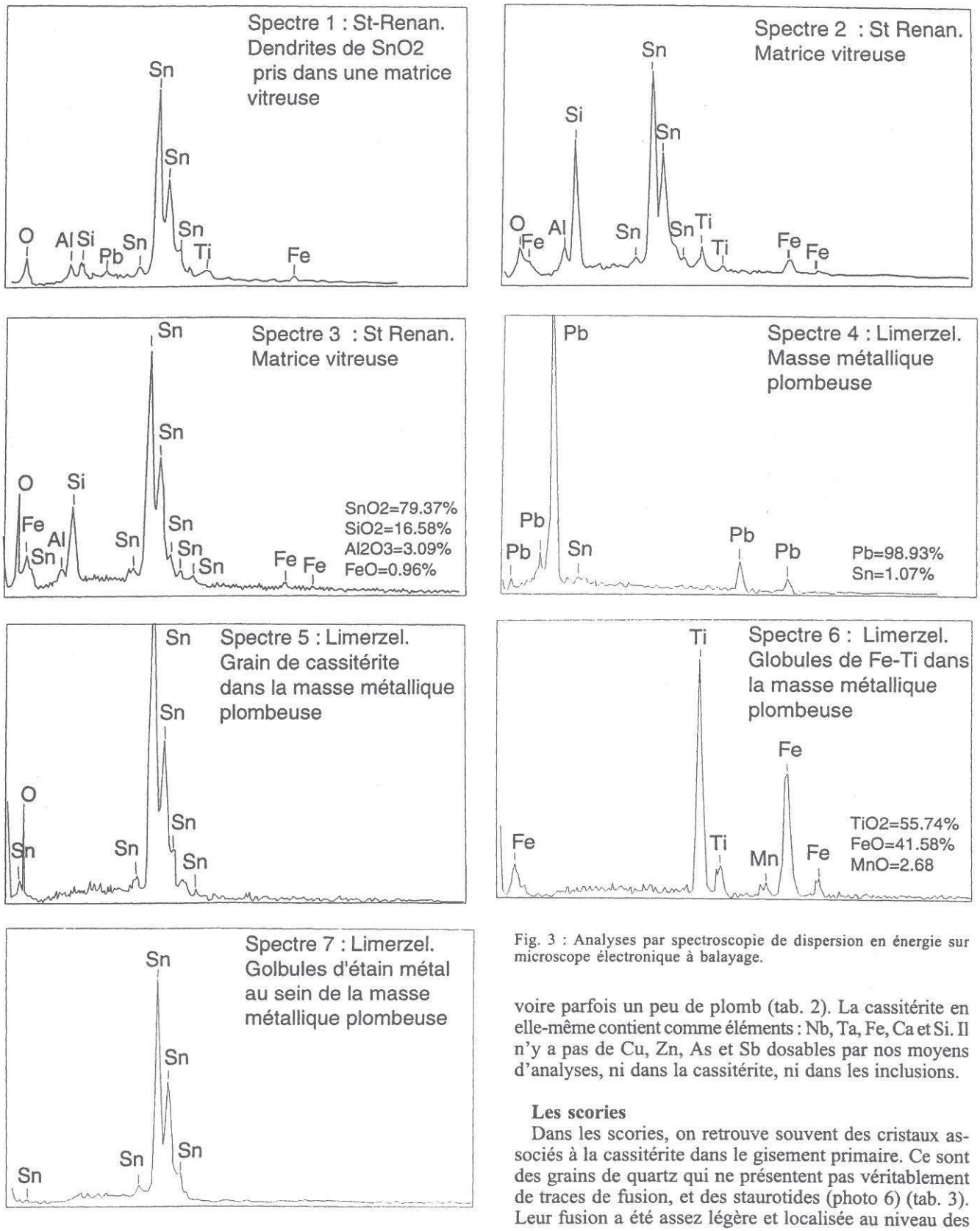


Fig. 3 : Analyses par spectroscopie de dispersion en énergie sur microscope électronique à balayage.

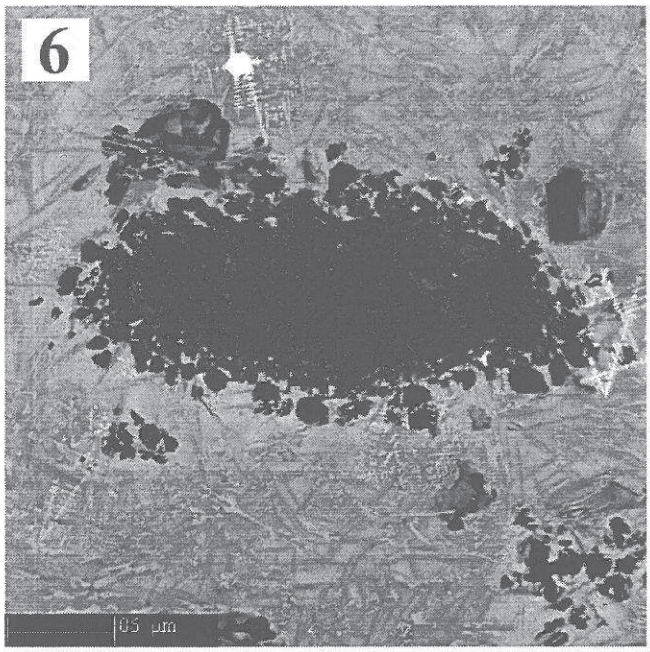
voire parfois un peu de plomb (tab. 2). La cassitérite en elle-même contient comme éléments : Nb, Ta, Fe, Ca et Si. Il n'y a pas de Cu, Zn, As et Sb dosables par nos moyens d'analyses, ni dans la cassitérite, ni dans les inclusions.

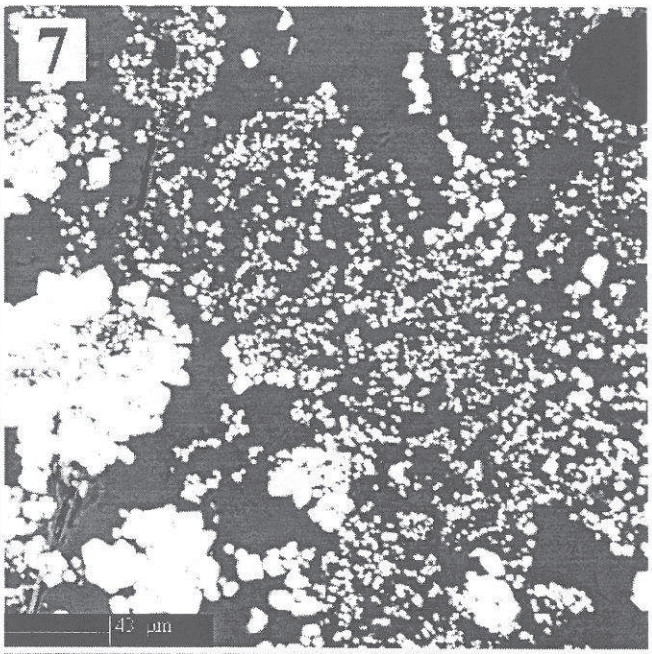
Les scories

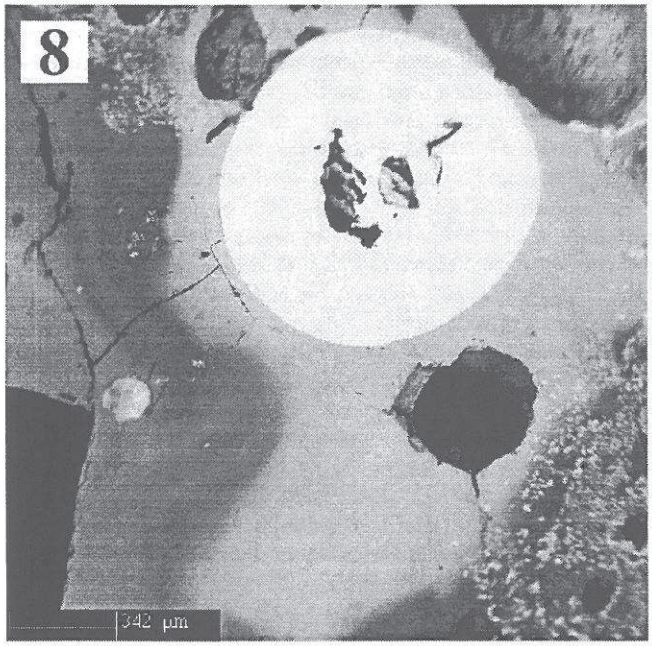
Dans les scories, on retrouve souvent des cristaux associés à la cassitérite dans le gisement primaire. Ce sont des grains de quartz qui ne présentent pas véritablement de traces de fusion, et des staurotides (photo 6) (tab. 3). Leur fusion a été assez légère et localisée au niveau des

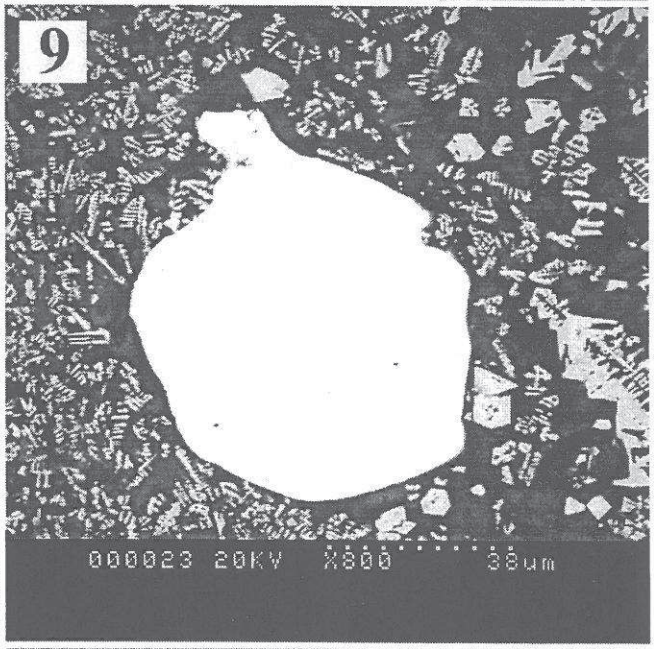
Planche photo 2 :

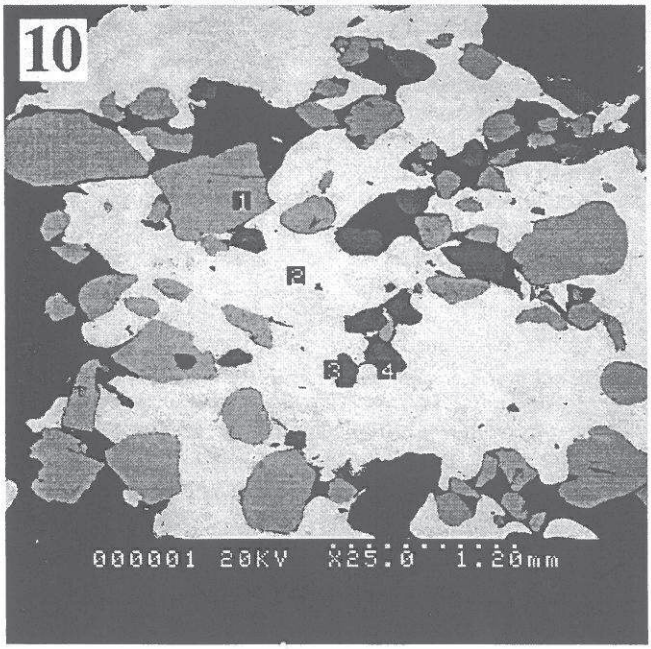
Photo 6 : Site de Limerzel - Cristal de staurotide en partie fondu sur la bordure, noyé dans la matrice scoriacée.
Photo 7 : Site de Limerzel - Amas de petites particules de SnO2 provenant sans doute de la désagrégation d'un cristal de cassitérite.
Photo 8 : Site de Limerzel - Bille d'étain métallique noyée dans une matrice vitreuse très riche en étain.
Photo 9 : Cristaux néoformés d'oxydes de Nb-Ta-Sn et Ti, dendritiques, squelettiques ou trapus, autour d'une masse métallique d'étain, dans une matrice vitreuse très riche en étain.
Photo 10 : Site de Limerzel - Masse métallique plombeuse dans laquelle sont inclus des grains de cassitérite.
Photo 11 : Site de Limerzel - Présence de gouttelettes d'étain métallique au sein de la masse métallique plombeuse.

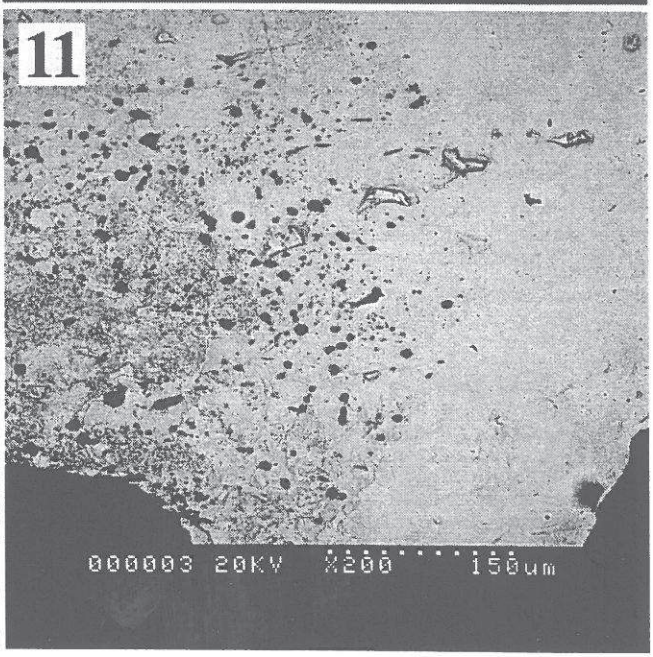

6
65 µm


7
43 µm


8
342 µm


9
000023 20KV X800 38um


10
1
2
3
4
000001 20KV X25.0 1.20mm


11
000003 20KV X200 150um

contours des minéraux. La cassitérite est également présente dans les scories formant des amas de petites particules (photo 7). Il semble que ces amas soient le résultat de la désagrégation de grains beaucoup plus grands de cassitérite. Le métal se présente toujours sous forme de billes (photo 8). Il a comme impuretés notables Si, Ca et Ta (tab. 4).

La matrice des scories provient d'une fusion complète qui a partiellement cristallisé lors du refroidissement (tab. 6). L'essentiel des phases cristallisées formées au cours du refroidissement des scories est représenté par des oxydes à Ta, Nb, Sn et Ti (tab. 5). Ces phases ont eu une croissance très rapide au point de présenter des formes dendritiques (photo 9), ou trapue mais présentant des lacunes de cristallisation. D'autres encore, sont automorphes en forme de baguettes. Elles semblent cristalliser très facilement à partir d'un bain fondu. Elles résultent de la fusion des inclusions présentes au sein des grains de cassitérite. Elles pourraient également résulter de la fusion d'autres oxydes en grains présents dans le granite hôte, et qui sont restés associés à la cassitérite lors du lavage du minerai, du fait de leur forte densité.

Deux phases silicatées sont également présentes. La première est une leucite et présente un contour globalement arrondi. Elle se localise autour des feldspaths potassiques restites provenant du granite d'origine. Ces cristaux pourraient résulter d'une pseudomorphose à l'état solide du feldspath. La seconde est un feldspath potassique (tab. 6). Sa forme trapue, anguleuse et le fait qu'elle englobe les oxydes néoformés, indiquent que c'est une phase qui a cristallisé à partir du bain fondu. La matrice des scories est composée par un verre qui peut être plus ou moins riche en Sn, en Ti ou en Fe (tab. 6).

Les échantillons métalliques

Le premier échantillon correspond à une petite masse de plomb métallique (pastille de 1 cm de diamètre et 1 mm d'épaisseur) dans laquelle sont inclus des cristaux de cassitérite dont les contours sont plus ou moins arrondis (photo 10). Des globules arrondis d'oxydes Fe-Ti sont également inclus dans la masse métallique (fig. 3-spectre 4). Ce sont des minéraux lourds qui ont pu rester avec la cassitérite au moment du lavage du minerai. La masse métallique contient un peu d'étain métal en alliage avec le plomb (fig. 3-spectre 5). Dans certaines zones, de petites billes d'étain sont visibles au sein de la masse plombeuse faisant penser à une séparation de l'étain et du plomb (photo 11).

Le deuxième échantillon correspond à une petite masse métallique d'étain incluse dans une scorie. Comme pour les billes de métal localisées à proximité de cette masse dans la scorie, l'étain métallique contient comme impuretés Si, Ca, Fe et Ta. Par contre, une autre phase cristalline est présente au sein de cette masse, c'est un alliage de fer et d'étain (tab. 4).

INTERPRÉTATION

Il est nécessaire de faire une réserve concernant les interprétations que nous pouvons faire à partir de cette étude pétrographique. En effet, les spécimens analysés sont peu nombreux et de petites tailles, et ne sont donc pas représentatifs de l'ensemble des deux sites. Il agit ici d'une étude préliminaire qui pourra orienter des travaux futurs.

SITE DE ST RENAN - KERVÉATOUS

La cassitérite trouvée sur le site de St Renan correspond aux descriptions faites lors de l'étude systématique des divers gisements d'étain armoricains (Chauris, 1981), c'est-à-dire, que ce minéral ne contient quasiment aucune impureté en son sein, sinon peut être un peu de pyrite (sulfure de fer).

La matrice scorifiée pauvre en étain englobant les grains de cassitérite pourrait provenir de la fusion de l'argile, d'un peu de feldspath potassique et du béryl. La température de fusion du béryl se situe aux alentours de 450°C (VDE, 1981). Ce minéral devrait avoir entièrement fondu. Il semble donc que ces matériaux n'aient subi qu'une faible hausse de température, insuffisante pour permettre la fusion totale de la cassitérite.

La matrice des scories très riches en étain peut provenir de la fusion de l'argile encore présente sur les grains de cassitérite, et peut être de feldspaths potassiques. Pourtant le spectre n'indique pas de fortes teneurs en potassium. D'autres minéraux non identifiés dans ce travail, pourraient alors avoir également fondu. Les bordures désagrégées des grains de cassitérite et la très grande richesse en étain du verre confirment que la cassitérite a fondu en même temps que la gangue stérile. Ces observations montrent que la température du foyer a dû atteindre une température assez élevée, puisque la température de fusion de la cassitérite est de 1127°C et celle du feldspath potassique pur est de 1520°C (Deer *et al.*, 1963b). On peut imaginer une température de fonctionnement du foyer aux alentours de 1000°C, les mélanges de phases pouvant conduire à des températures de fusion plus basses que les minéraux purs séparés. Tylecote (1986) estime que la température de fusion des scories de Caerloggas (1800 avant J.-C. - Cornouaille) est aux environs de 900°C. On peut néanmoins, grâce à la cristallisation de SnO_2 en arborescence, estimer que la température de fonctionnement du foyer a atteint au minimum 500-600°C, car c'est dans cet intervalle que SnO_2 commence à cristalliser à partir d'un liquide silicaté (Deer *et al.*, 1963a ; Onikhimovskiy, 1972).

Les spécimens étudiés sont des scories vitreuses ou partiellement cristallisées (dendrites de SnO_2) contenant des billes d'étain métal. Ces scories résultent donc d'une fusion complète de la cassitérite et de la gangue avec obtention d'étain métallique. Les scories sont toutes fragmentées, laissant penser qu'elles ont été cassées intentionnellement pour une plus grande récupération du précieux métal.

Des expérimentations de réduction de la cassitérite ont montré que pour une même température du four, le rendement n'est pas le même selon la teneur en étain de la charge. A 40 % Sn environ, il y a beaucoup de déchets, les billes de métal sont plus rares et plus dispersées (Earl, 1985). A 65-70 % Sn, il peut se former une masse métallique. Les scories sont alors beaucoup plus rares. Tylecote (1986) précise, en plus, qu'à Caerloggas, tout le charbon de bois est brûlé à la fin de l'opération. Dans le cas de St Renan, la cassitérite est très riche en étain. Ceci a été noté lors des prospections B.R.G.M. : «*Il est également possible que les gisements alluvionnaires fluviatiles du district de St Renan aient été exploités à l'Age du Bronze ; dans cette région, les prospections récentes en lit vif, à la bâtée, ont révélé fréquemment des teneurs en cassitérite supérieures à 5kg/m³, facilement récupérable par lavage artisa-*

nal des sables» (Chauris, 1981). De plus, les scories ont été trouvées dans un lit de charbon de bois. Les différents spécimens analysés laissent alors penser qu'une proportion non négligeable de morceaux de minerais échappaient plus ou moins à la réduction lors de leur passage dans le four. Les échantillons analysés marquent alors différents stades de transformation de la cassitérite en étain métallique. Ces échantillons ne nous permettent pas, par contre, de faire une quelconque hypothèse quant à la taille ou la forme du ou des foyers. Plusieurs expérimentations ont été conduites afin de reconstituer le procédé. Earl et Yener (1993) ont utilisé un creuset en céramique et une ventilation induite par une canne. Earl (1986) a également conduit des réductions dans de petits fours. Timberlake (1992) a, par contre, creusé une cavité dans de la terre tassée. La ventilation a été faite au moyen d'une tuyère et d'un soufflet (fig. 4A). Dans tous les cas, la cassitérite a été réduite en étain métallique. La dernière expérimentation pourrait peut être expliquer pourquoi, à l'Age du Bronze, on ne retrouve pas de traces d'ateliers de réduction des minerais d'étain (fig. 4B). Ce qui est certain dans le cas de St Renan, c'est que des opérations de réduction de la cassitérite ont eu lieu au Bronze Moyen.

SITE DE LIMERZEL - VIEILLE VILLE

La cassitérite utilisée sur ce site correspond aux descriptions faites par Chauris (1981), à savoir que c'est un minéral qui contient des inclusions d'oxydes de Nb-Ta ou des inclusions de rutile ou d'ilménite (oxydes de Ti ou de Ti-Fe).

Les scories analysées montrent une fusion quasiment complète de la charge. La recristallisation de certaines phases minérales permet de donner une température minimale de fonctionnement du four. En effet, le feldspath potassique se transforme en leucite à la température de 1150°C (Deer *et al.*, 1963b). C'est à la même température que le feldspath potassique peut à nouveau recristalliser à partir d'un bain silicaté fondu (Deer *et al.*, 1963b). C'est une température supérieure à celle de fusion de la cassitérite. Il est alors normal d'obtenir une matrice riche en étain, si la cassitérite a fondu et s'est mélangée à la gangue. Il semble donc qu'il y ait une perte assez importante d'étain dans les déchets au cours des opérations de réduction, à cette époque, bien que la scorie soit quand même essentiellement composée d'éléments provenant de la fusion de minéraux accompagnant la cassitérite, tels que les inclusions d'oxydes, les feldspaths, voire un peu de quartz et de staurotide. La température de fonctionnement des fours était à cette époque assez importante pour permettre la réduction du fer qui se retrouve ensuite dans la scorie pour l'essentiel, mais également formant des alliages avec l'étain. Sur ce site, à l'époque du Moyen Age, il existait donc une activité d'extraction de la cassitérite alluvionnaire, mais également une activité de réduction de ce minerai en étain métallique.

Le fait d'avoir trouvé un échantillon de plomb dans lequel des cristaux de cassitérite auraient dû fondre et être réduits, montre également qu'une métallurgie plus élaborée existait sur la même zone géographique, voire peut être dans le même atelier.

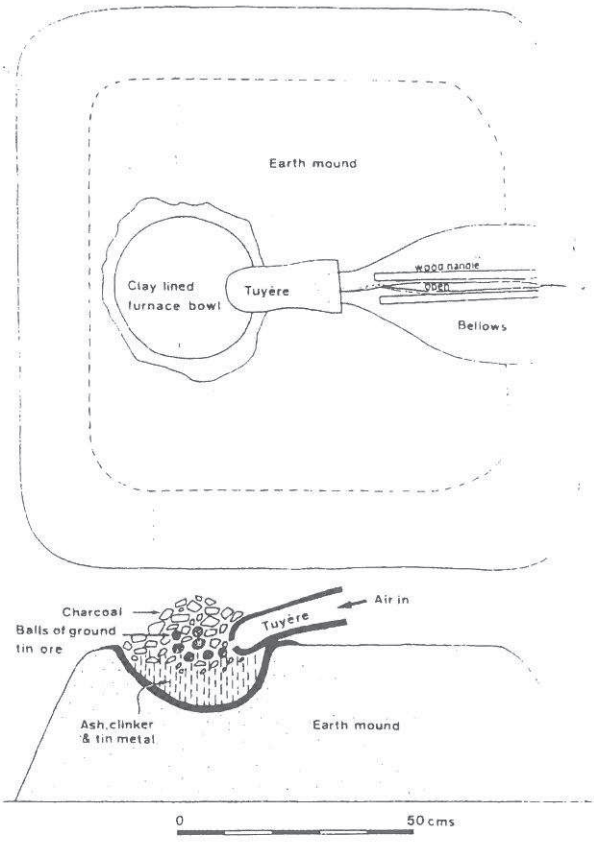


Fig. 4A : Reconstitution d'un foyer pour la réduction de la cassitérite. La cavité est creusée dans un tas de terre tassée. La cassitérite est mélangée à du charbon de bois. Un soufflet apporte l'air à travers une tuyère d'argile (d'après Timberlake, 1994).

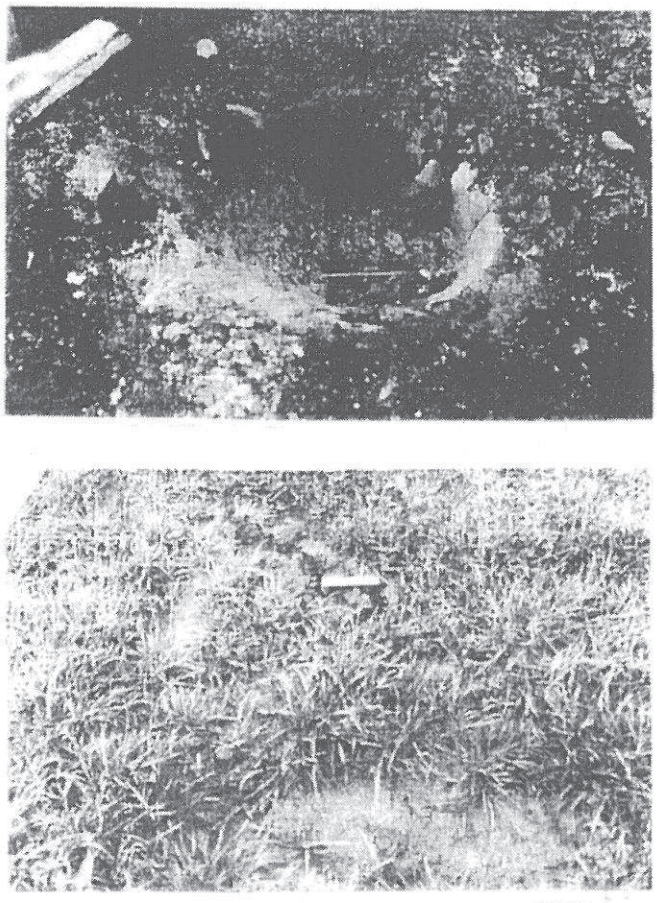


Fig. 4B : Etat du foyer après réduction de la cassitérite (photo du haut). Etat du site après un abandon de 18 mois (photo du bas) (d'après Timberlake, 1994).

Les alliages uniques plomb-étain sont assez rarement mentionnés. Les auteurs sont généralement en accord pour une utilisation en tant que soudure lors de la fabrication de la vaisselle en étain (Tylecote, 1986), car la température de fusion de l'alliage est inférieure à celle du plomb pur. Plus tard au Moyen Age, des tuyaux en plomb-étain ont été utilisés à la place de tuyaux en cuivre pour la fabrication des orgues, car ils donnaient une meilleure tonalité (Tylecote, 1986). Mais ceci aurait été effectué à des périodes postérieures au XI^{ème} siècle, ce qui ne correspond pas avec les datations obtenues sur le site de Limerzel. Une autre utilisation de ce mélange aurait pu concerner la couverture de bâtiment. En effet, durant la période mérovingienne, St Félix, évêque de Nantes, construisit une cathédrale, soi-disant couverte d'étain, en tout cas brillante et fort luxueuse. Or du fait de la «maladie de l'étain», ce métal se désagrège assez rapidement. Il suffit, par contre, de traces de Pb, Sb ou de Bi pour protéger l'étain contre sa maladie. Il est raisonnable de penser que cette toiture aurait plutôt été faite d'étain plombé ou de plomb à forte teneur en étain. L'existence d'une telle toiture aurait nécessité des centres métallurgiques assez importants proches des zones d'extraction de l'étain mais également de plomb, c'est qui est le cas de la région de Limerzel.

Il est certain que sur ce site, il y a eu extraction et réduction de la cassitérite. La question que l'on se pose ensuite, est de savoir si seuls des lingots étaient fabriqués puis exportés, ou si des objets plus élaborés étaient fondus.

CONCLUSION

Cette première étude archéométrique sur quelques spécimens de scories provenant des sites de St Renan (Bronze Moyen) et de Limerzel (Haut Moyen Age) montre qu'effectivement, la cassitérite alluvionnaire a été exploitée en Armorique. On peut se rendre compte également, que sur un même site, il y a eu des travaux d'extraction, de réduction, voire de refusion pour l'obtention de mélanges à l'époque médiévale. Pour l'époque de l'Age du Bronze, c'est de l'étain pur qui a été produit. Au Moyen Age, le procédé permettait des températures de fonctionnement des fours plus importantes, l'étain présente plus d'impuretés, notamment le fer.

Cette étude limitée renseigne sur la nature des travaux miniers et métallurgiques qui ont pu avoir lieu sur ces sites à deux époques différentes. Elle met également en évidence l'existence d'une métallurgie de réduction de la cassitérite à diverses époques en Armorique. Les sites, où des exploitations anciennes sont attestées, sont rares. Cependant, le nombre très important de gisements alluvionnaires en Armorique peut nous laisser penser que cette région a été une province stannifère importante à diverses périodes et que cela a sans doute permis une exportation de ce métal vers d'autres régions moins riches en étain.

BIBLIOGRAPHIE

AGRICOLA, G., 1556 - *De re metallica*, Traduction française d'après l'original en latin par A. France-Lanord, ed. Klopp, Thionville, 1987.

BRIARD, J., 1991 - *La protohistoire de Bretagne et d'Armorique*. éd. Gisserot, 112 p.

CHAMPAUD, Cl., 1957 - L'exploitation ancienne de cassitérite d'Abbaretz-Nozay (Loire Inférieure), *Annales de Bretagne*, **LXIV**, 46-96.

CHAURIS, L., 1981 - Une province stannifère : Le Massif Armoricain (France), *Chronique de la recherche minière*, n°462, 5-41.

DEER, W.A., HOWIE, R.A. & ZUSSMAN, J., 1963a - Rock Forming Minerals 2nd edition, vol. 5, Non-silicates, Longmans, London.

DEER, W.A., HOWIE, R.A. & ZUSSMAN, J., 1963b - Rock Forming Minerals 2nd edition, vol. 4, Framework silicates, Longmans, London.

EARL, B., 1985 - «Melting Tin» in the West of England : A study of an old art, *Historical Metallurgy*, 19, 2, 153-161.

EARL, B., 1986 - «Melting Tin» in the West of England : Part 2, *Historical Metallurgy*, 20, 1, 17-32.

EARL, B. & YENER, K.A., 1993 - Replication experiments of tin using crucibles, Göltepe 1992, IX Arkeometri Sonuçlart Toplantis (Ankara 1993).

FRIEDE, H.M. & STEEL, R. M., 1976 - Tin mining and smelting in the Transvaal during the Iron Age, *J. S. Africa Int. Min. Metall.*, 76, 451-470.

FORBES, 1950 - *Metallurgy in antiquity*, ed. E. J. Brill, Leiden, Nederland, 489 p.

GIOT, P.R., 1970 - Chronique des datations radiocarbone armoricaines, *Annales de Bretagne*, tome **77**, p. 159.

GIOT, P.R. et LULZAC, Y., 1998 - Datation à l'Age du Bronze d'une exploitation de cassitérite dans le Finistère, *Bulletin de la Société Préhistorique Française*, tome **95**, n°4, 589-601.

GUIGUES, J. et DEVISMES, P., 1969 - La prospection minière à la batée dans le Massif Armoricain, *Mém. B.R.G.M.*, n°71, 172 p.

LULZAC, Y., 1968 - *Essai de recherche des gîtes primaires stannifères dans la région de Kervéatous-Saint Renan*, Rapport B.R.G.M., inédit.

LULZAC, Y., 1970 - *Les formations stannifères primaires du bassin du Trévelo en Limerzel (Morbihan)*, Rapport B.R.G.M., inédit.

MOHEN, J.P., 1990 - *Métallurgie préhistorique : Introduction à la paléométallurgie*, éd. Masson, 230 p.

ONIKHIMOVSKIY, V.V., 1972 - Problem of the origin of tin-ore deposits, *International Geology review*, vol. 14, n°6, 609-615.

PENHALLURICK, R.D., 1986 - *Tin in Antiquity*, The Institute of Metals, London, 263 p.

PRYCE, W., 1778 - *Mineralogia Cornubiensis : a treatise on minerals, mines and mining*, London.

RAMIN, J., 1965 - *Le problème des Cassitérides, et les sources de l'étain occidental depuis les temps protohistoriques jusqu'au début de notre ère*, éd. Picard, Paris, 139 p.

ROUTHIER, P., 1999 - *Voyage au monde du métal*, éd. Belin, 159 p.

SALTER, C.J., 1997 - A note on the tin slags from Caerloggas Down, Cornwall and the Upper Merrivale blowing-house, Devon, *in P. Budd, D.Gale (eds), Prejistoric Extractive Metallurgy in Cornwall*, Truro, 45-50.

SIMONIN, L., 1866 - Sur l'ancienne exploitation des mines d'étain de la Bretagne, *C.R. Acad. Sciences Paris*, 346-347.

TIMBERLAKE, S., 1994 - An experimental tin smelt at Flag Fen, *Historical Metallurgy*, 28, 2, 121-128.

TYLECOTE, R.F., 1986 - *The Prehistory of metallurgy in the British Isles*, The Institute of Metals, London, 257 p.

TYLECOTE, R.F., PHOTOS, E. & EARL, B., 1989 - The composition of tin slags from the South-West of England, *World Archaeology*, 20, 3, 435-445.

VDE, 1981 - Verein Deutscher Eisenhüttenleute : Schlackenatlas. Düsseldorf, 282 p.