



HAL
open science

Méthodologie pour l'étude du cuivre natif protohistorique des mines de Roua (Alpes-Maritimes)

Romain Bussone, Franck Sumera, Pierre Camps, Z Fekiacova, Benjamin Girard, O. Grauby, Alain Veron

► To cite this version:

Romain Bussone, Franck Sumera, Pierre Camps, Z Fekiacova, Benjamin Girard, et al.. Méthodologie pour l'étude du cuivre natif protohistorique des mines de Roua (Alpes-Maritimes). Marie Laroche; Laurent Bruxelles; Philippe Galant; Martine Ambert. Paysages pour l'Homme, Actes du colloque international en Hommage à Paul Ambert, Cabrières (Hérault), du 15 au 19 octobre 2019, Association Culturelle des Amis de Cabrières, pp.279-288, 2019, 9782957021406. <hal-02367712>

HAL Id: hal-02367712

<https://hal.science/hal-02367712v1>

Submitted on 20 Oct 2020

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

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



HAL Authorization

Méthodologie pour l'étude du cuivre natif protohistorique des mines de Roua (Alpes-Maritimes)

Version auteur, mise en page personnelle*

<https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-02367712>

Référence bibliographique de la publication :

2019 - Bussone R., Suméra F., Camps P., Fekiacova Z., Girard B., Grauby O., Véron A. Méthodologie pour l'étude du cuivre natif protohistorique des mines de Roua (Alpes Maritimes), in *M. Laroche (dir.), L. Bruxelles (dir.), P. Galant (dir.), M. Ambert (dir.), Paysages pour l'Homme - Actes du colloque international en Hommage à Paul Ambert, Cabrières (Hérault), du 15 au 19 octobre 2019*, Association Culturelle des Amis de Cabrières, Avèze, p.279 - 288

ISBN des actes de colloque : 978-2-9570214-0-6

Résumé : A ce jour, seules les mines de cuivre natif de Roua (Massif du Dôme de Barrot, Alpes-Maritimes) livrent des indices tangibles d'une extraction protohistorique dans les Alpes-Maritimes. Dans le cadre d'une thèse, les questions liées à l'extraction et à la circulation du mobilier en alliage cuivreux à la Protohistoire sont étudiées au moyen de diverses approches méthodologiques. L'objectif est de mettre en relation les extractions anciennes de cuivre et les artefacts métalliques protohistoriques. La datation archéomagnétique des creusements par le feu est expérimentée sur les pélites permienes du Dôme de Barrot. Un relevé des mines anciennes est effectué pour cibler les zones à prélever. Des artefacts métalliques de l'âge du Bronze Final et de l'âge du Fer sont étudiés par le prisme de leurs signatures isotopiques du plomb et du cuivre. Les observations des microstructures des artefacts au MEB livrent des informations sur le rôle des métaux présents dans les alliages cuivreux et constituent une piste pour l'étude des processus métallurgiques protohistoriques. Suite aux premières expériences et résultat, l'hypothèse d'une origine régionale du cuivre du mobilier métallique protohistorique est posée et doit être confirmée par la poursuite de ces études.

Mots-Clefs : âge du Bronze, âge du Fer, Alpes du sud, Métallurgie, Cuivre natif, Mines, Datation archéomagnétisme, Isotopes, MEB EDS, microstructures

Abstract: Up until now, only the native copper mines of Roua (Massif du Dôme Barrot, Alpes-Maritimes) have provided clues of protohistoric extraction in the Alpes-Maritimes region. As part of a thesis, questions about extractions and circulation of copper alloy artefacts during the Protohistory are assessed using various methodological approaches. The aim is to establish a relationship between copper's protohistoric extractions and ancient metal artefacts. Archaeomagnetic dating of firesetting is experimented on permian lutites of the Dome de Barrôt. A survey of ancient mines is also carried out to target areas to be sampled. The provenance of copper containing metal artefact from the Late Bronze Age and Iron Age are examined using lead and copper isotopic imprints. Artefact's microstructure observations by Scanning Electron Microscopy (SEM) provide information on metal inclusions in copper alloys and protohistoric metallurgical processes. Preliminary experiments and result suggest a regional origin of copper ores for local protohistoric metal artefacts. These conclusions owe to be corroborated by further investigation such as isotope data from local ores, Roua mine surveys and archaeomagnetic datings.

Keyword : Bronze Age, Iron Age, Southern Alps, Metallurgy, Native copper, Mines, Archaeomagnetic dating, Isotopes, SEM-EDS, microstructures

* La pagination n'est pas la même que la version imprimée, pour le texte et les figures. Le texte a très légèrement été amendé, les délais d'envoi ayant été particulièrement court et la publication des actes du colloques précipitée, une dernière relecture aurait été nécessaire. Cependant, le propos, les figures et les résultats restent identiques à la version papier. Les inclusions de SiC observées au sein du mobilier sont due après vérification à la méthode de polissage des artefacts (p. 285).

Dernières modifications en octobre 2020.

Méthodologie pour l'étude du cuivre natif protohistorique des mines de Roua (Alpes-Maritimes)

Romain Bussone^{1,3}, Franck Suméra², Pierre Camps³, Zuzana Fekiacova⁴, Benjamin Girard⁵, Olivier Grauby⁶, Alain Véron⁷

1 Archéologie des Sociétés Méditerranéennes, UMR 5140, Univ Paul-Valéry, CNRS, MCC, 34199 Montpellier, France

2 Aix Marseille Univ, CNRS, Minist Culture, CCJ, Aix-en-Provence, France

3 Géosciences Montpellier, CNRS et Université de Montpellier, 34095 Montpellier France

4 Aix Marseille Univ, CNRS, IRD, INRA, Coll France, CEREGE, BP80, 13545 Aix-en-Provence cedex 04, France

5 Aix Marseille Univ, CNRS, CCJ, Aix-en-Provence, France

6 Aix-Marseille Univ, CNRS – UMR 7325 CINaM (Centre Interdisciplinaire de Nanoscience de Marseille), Campus de Luminy, 13288 Marseille, France

7 CEREGE - UM34 Aix-Marseille Univ, CNRS, IRD, Coll France, INRA, Technopole Environnement Arbois - Méditerranée, BP80, 13545 Aix-en-Provence cedex 04, France

Introduction

Cette étude est conduite dans le cadre de la thèse évoquée plus bas et intégrée pour partie dans le programme de recherche interdisciplinaire dirigé par Franck Suméra qui porte sur l'étude du site de la Cime de Tournerie à Roubion (Alpes-Maritimes) qui associe des chercheurs de plusieurs institutions. Elle a pour ambition de présenter les aspects méthodologiques mais emprunte ponctuellement à des travaux en cours de réalisation et donc encore inédits. Les analyses des isotopes du cuivre (Cu) ont été réalisées sous la direction de Zuzana Fekiacova, les analyses isotopiques du plomb (Pb) avec et sous la direction d'Alain Véron, Olivier Grauby a effectué les analyses MEB et Benjamin Girard l'analyse typologique du mobilier métallique, enfin les études d'archéomagnétisme ont été réalisées sous la direction de Pierre Camps.

Depuis la seconde moitié du XX^e siècle, on soupçonne la présence d'exploitations protohistoriques de cuivre dans les Alpes-Maritimes (Mohen et Eluère, 1990 ; Mercurin, 2017 p. 757). Mais à ce jour, seules les mines de Roua (Gorges de Daluis, communes de Daluis, Guillaumes, Alpes-Maritimes ; fig.1 A) ont livré des indices tangibles d'une extraction protohistorique. Gilbert Mari, géologue qui a consacré des années de recherche à l'étude des minéralisations cuprifères de la Région Alpes-Provence Côte d'Azur, étudie ces mines de cuivre natif exceptionnelles depuis le début des années 1990. La présence de maillets en grès, de plaquettes de cuivre martelées, et l'allure des travaux miniers attestent d'une activité ancienne qui n'a pas encore fait l'objet de fouilles archéologiques (Mari et Mari, 2009 ; Bussone, 2018).

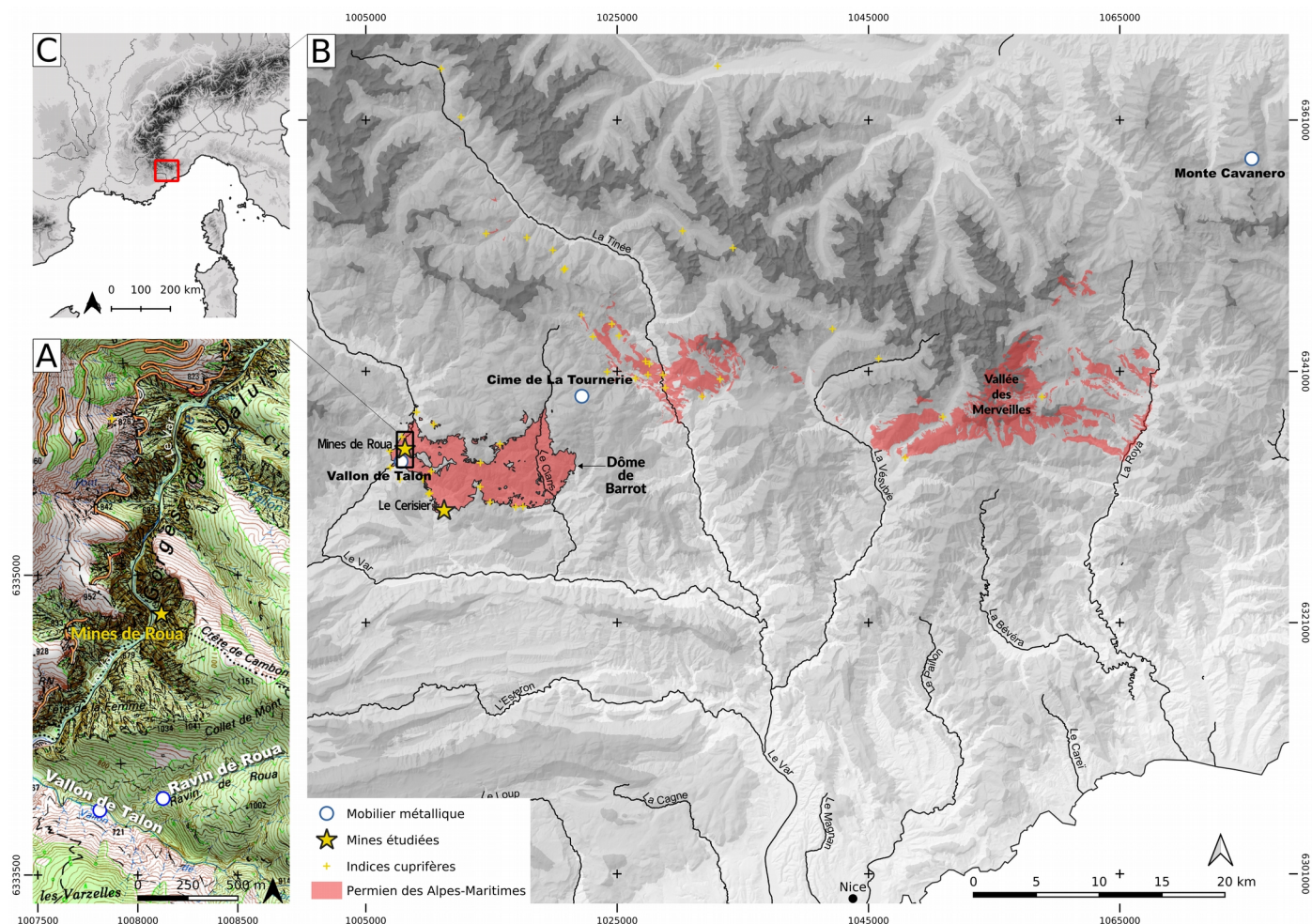


Figure 1: Localisation des sites étudiés. Carte A : emplacement des mines de Roua, du vallon de Talon et ravin de Roua sur fond de carte IGN. Carte B : localisation du Dôme de Barrot, de la Cime de Tournerie et du Monte Cavanero (données topographiques IGN, géologiques BRGM). Carte C : contexte géographique de la zone d'étude au sud des Alpes et à proximité du bassin méditerranéen (R. Bussone).

À l'occasion de l'étude du sanctuaire de l'âge du Fer de la Cime de Tournerie (Roubion), situé à 15 kilomètres des mines, les extractions de Roua et de son cuivre natif vraisemblablement convoité dès la Protohistoire sont conjointement étudiées. Les relations entre objets métalliques cuivreux et extractions minières sont au cœur des problématiques soulevées à l'occasion de la fouille du sanctuaire. La découverte d'un dépôt de 41 monnaies massaliotes du III^e siècle av. n.è et appartenant au type des Grands Bronzes au Taureau dont l'ère de diffusion connue était auparavant restreinte aux abords immédiats de la cité et aux agglomérations de la côte sous influence massaliote soulève la question de l'origine du cuivre avec lequel sont fabriquées ces monnaies. L'hypothèse émise est que la présence de ce dépôt monétaire pourrait s'expliquer par des échanges de matière première cuivreuse locale (Suméra, 2015 ; Suméra *et al.*, 2019). Les relations entre mines et mobilier protohistorique sont étudiées dans le cadre d'une thèse (R. Bussone, O. Lemerrier – ASM et P. Camps – Géosciences dir. , F. Suméra – CCJ tut.). Cet article présente la méthodologie mise en œuvre pour l'étude des mines et du mobilier en alliage cuivreux reposant sur le relevé des travaux miniers, la datation des travaux par le feu grâce à l'archéomagnétisme, la caractérisation des isotopes du plomb des artefacts et du minerai pour en identifier la provenance et l'analyse au MEB des microstructures observables sur les artefacts afin de caractériser les processus métallurgiques pour la confection des objets métalliques. Des résultats préliminaires de ces différentes méthodes sont présentés en fin d'article.

1. Les mines de Roua

1.1 Contexte géologique et minier

Les mines de Roua se situent dans le massif géologique permien du Dôme de Barrôt (fig. 1 B). Ce massif constitué de pélites rouges surélevé par la surrection alpine est bordé par les niveaux supérieurs du Trias qui font apparaître aujourd'hui à l'affleurement de nombreuses minéralisations cuprifères. À l'interface de ces deux formations géologiques, de nombreux gisements de cuivres aux minéraux variés (sulfures, oxydes, etc.) ont fait l'objet de recherches minières dans les Alpes-Maritimes au XIX^e siècle (Mari, 1992). Quelques gisements recèlent de faibles traces de cuivre natif. Ainsi, la mine du Cerisier (La-Croix-sur-Roudoule) contient du cuivre natif de manière anecdotique, mentionné une seule fois par les ingénieurs du XIX^e siècle. Gilbert Mari a retrouvé quelques éléments de cuivre natif en très petite quantité dans les haldes d'une galerie (Mari *et al.*, 1995).

D'autres minéralisations cuprifères, plus rares, affleurent au cœur des formations permiennes. C'est le cas des gisements de Roua situés en plein escarpement de grès et pélite Permien, constitués d'un ensemble de minéralisations exceptionnelles : des filonnets centimétriques subverticaux composés quasi exclusivement de cuivre natif entouré d'une gangue de calcite et/ou de quartz. La minéralisation affleure en surface, à flanc d'escarpement et fournit encore actuellement des minéraux rares et des spécimens inédits (Sarp et Cerny, 1999 ; Sarp *et al.*, 2003). Il s'agit à notre connaissance des seules mines en France et dans les Alpes contenant exclusivement du cuivre natif (Rostan et Mari, 2005).

1.2 Contexte archéologique

1.2.1 Les mines de Roua

Deux groupes de galeries et amorces d'excavation ont été creusés à différentes périodes sur les zones nord et sud de l'escarpement. Ils comportent respectivement au moins 13 et 21

galeries et traces d'exploitations minières. Les galeries sont parallèles entre elles et sont accessibles par des entrées ouvertes sur l'est des escarpements des gorges de Daluis. Le premier groupe empiète sur la commune de Guillaumes, au nord, le second appartient au territoire de la commune de Daluis, plus au sud.

À partir des archives et des quelques indices archéologiques, il est possible de restituer un minimum de 3 phases de creusement des galeries. La plus récente est caractérisée par des investigations à la poudre qui ont été réalisées entre 1864 et 1884 sur les deux zones de la falaise. Une seconde période d'exploitation correspond aux recherches conduites par le marquis de Daluis à la fin du XVII^e. Et enfin, au moins une phase d'extraction antérieure pourrait remonter à la Protohistoire. Les descriptions liées aux travaux du XIX^e siècle font état de la présence d'anciennes excavations creusées par le feu et d'ossements humains certainement détruits lors des recherches minières de la fin du XIX^e siècle (Mari et Mari, 2009 ; Bussone, 2018). Les témoins archéologiques des périodes anciennes sont rares, des artefacts lithiques ont été retrouvés au pied du groupe de galerie nord : des maillets (avec incrustation de cuivre qui témoigne de son usage dans une activité métallurgique d'extraction) dont un associé à 14 plaquettes de cuivre natif martelées. La documentation archéologique pour ce site est quasi inexistante. Un plan des mines a été réalisé ainsi que les dessins des maillets et d'une meule (Rostan et Mari, 2005).

Echantillon	Identification	Période	Localisation
Artefacts de bronze			
40/T	épingle à tête sphérique	Âge du Bronze Final (2b-3b)	Talon
36/T	bouton	Âge du Fer	Talon
15/T	bracelet	Âge du Fer	Talon
07/T	fibule	Âge du Fer	Talon
48/T	maillon de chaînette	Âge du Fer	Talon
57/R	maillon de chaînette	Âge du Fer	Roua
62/T	maillon de chaînette	Âge du Fer	Talon
54/T	maillon et pendeloque	Âge du Fer	Talon
63/T	bracelet serpentiforme	Âge du Fer I (Ha D2-D3)	Talon
3504	monnaie massaliote	III ^e siècle av.n.è	Tourmerie
3514	monnaie massaliote	III ^e siècle av.n.è	Tourmerie
3536	monnaie massaliote	III ^e siècle av.n.è	Tourmerie
Résidus de métallurgie			
14/T	déchet de coulée		Talon
49/T	déchet de coulée		Talon
50/T	déchet de coulée		Talon
60/R	déchet de coulée		Roua
03/T	déchet de travail		Talon
13/T	déchet de travail		Talon
44/T	déchet de travail		Talon
45/T	déchet de travail		Talon
51/T	déchet de travail		Talon
55/T	déchet de travail		Talon
56/R	déchet de travail		Roua
1/LE	Indéterminé		Leouvé
Bronze 2	Indéterminé		Talon
Bronze 3	Indéterminé		Talon
Bronze 4	Indéterminé		Talon
C/T	Indéterminé		Talon
Minerai de cuivre			
D	Minerai natif		Cerisier
fusion_roua_bijoux	Minerai natif fondu		Roua
P/R	Minerai natif		Roua
roua_fusion_120	Minerai natif fondu		Roua

Figure 2: Corpus de mobilier et minerai retenu pour les analyses MEB et isotopiques. La détermination typochronologique du mobilier métallique est effectuée par B. Girard.

1.2.2 Les artefacts métalliques autour des mines

À proximité immédiate des mines, plusieurs artefacts et sites archéologiques ont livré du mobilier qui compose en partie notre corpus d'étude.

Gilbert Mari a prospecté le vallon de Talon et ses affluents de manière approfondie et systématique, fouillant avec rigueur

chaque faille et marmite du vallon durant 20 ans à la recherche d'indices de minéralisations cuprifères. Au cours de ses prospections, il a mis au jour des artefacts en bronze piégés en position remaniée dans les interstices géologiques. Ce mobilier archéologique se concentre dans le bas du vallon de Talon et dans le ravin de Roua, au plus proche des mines de cuivre natif. Ces artefacts sont de différentes natures, déchet de fonderie, scorie, éléments de parure. Ils renvoient à toutes les périodes dont celles de la Protohistoire (Bronze Final et Âge du Fer).

À une quinzaine de kilomètres des mines de Roua, la fouille du sanctuaire de La Cime de Tournerie a livré de nombreux artefacts métalliques de l'âge du Fer dont 41 Grands Bronzes au Taureau réunies dans un dépôt (Suméra *et al.*, 2019). Ces monnaies massaliotes sont d'ordinaire échangées dans les cités phocéennes et leurs territoires proches circonscrits à une dizaine de kilomètres du littoral (Richard, 1992 p. 256 – 257). Le dépôt de La Cime de Tournerie fait figure d'exception et cette anomalie est à l'origine des questions de provenances des matériaux et de l'étude des mines de Roua.

Le corpus métallique de cette étude regroupe trois de ces monnaies, du cuivre natif du Dôme de Barrot, le mobilier protohistorique et des témoins d'activités métallurgiques provenant du vallon de Talon et du ravin de Roua (fig. 2). L'identification des artefacts a été effectuée par B. Girard (CNRS- CCJ).

1.3 Approches pour l'étude des mines protohistoriques de Roua

L'étude de l'utilisation du cuivre natif des mines de Roua à la Protohistoire peut s'entreprendre de plusieurs manières :

En revenant sur les travaux miniers de Roua, il est possible de mettre en évidence les extractions anciennes. Pour ce faire, les outils archéomagnétiques sont expérimentés pour mettre au point une méthode de datation des creusements par le feu. L'encaissant minier est composé de pélites et grès permien, des roches contenant des minéraux ferromagnétiques capables d'enregistrer l'orientation du champ magnétique à la suite d'une chauffe. Des relevés des travaux miniers sont également entrepris pour cibler les zones propices à fournir des datations protohistoriques.

Le creusement des mines de Roua à la Protohistoire peut également être mis en évidence en étudiant les artefacts métalliques pour établir la filiation entre le minerai et l'objet archéologique. La signature des isotopes du plomb du mobilier protohistorique et des scories retrouvées à proximité des mines seront déterminées. La signature des isotopes du cuivre sera également expérimentée sur ce même corpus. Ces empreintes isotopiques sont susceptibles de révéler l'origine et le type de minéralisation ayant servi pour la confection des artefacts. Les artefacts en cuivre peuvent comporter du plomb exogène lors des étapes de métallurgie qui est susceptible de perturber les signatures isotopiques initiales du minerai de cuivre. Afin de vérifier ces contaminations, les éléments chimiques majeurs qui composent le mobilier sont analysés au moyen d'un Microscope Électronique à Balayage (MEB) avec un protocole rapide permettant aussi de sauvegarder l'intégrité des monnaies de Marseille.

2. Méthodologie

2.1 Archéomagnétisme : expérimentation en laboratoire

Une expérimentation de chauffe en laboratoire menée sur les pélites et grès du permien est réalisée pour vérifier la capacité d'enregistrement de l'aimantation du champ magnétique terrestre de ces roches suite à une chauffe. Deux conditions doivent être réunies pour permettre la datation des travaux par le feu :

- les pélites et grès du Permien doivent contenir des minéraux ferromagnétiques.

- l'aimantation des roches doit être remplacée lors du chauffage par l'acquisition d'une Aimantation ThermoRémnente ATR (Tauxe, 1998) inférieure à la température de fracturation de la roche.

Pour cette expérience, des roches permiennes locales, pélites et grès sont utilisées ; soit 5 échantillons nommés d'après le lieu de prélèvement : Clue d'Amen - CA, Gorges du Cians - GC, Valon de Talon - VT, Valon de Talon Noir - VTN, Mines de Roua - MR. Ces roches sont considérées comme étant prélevées dans des zones où l'aimantation rémanente naturelle est préservée. Le comportement de l'aimantation rémanente lors d'une chauffe progressive est observé sur les roches CA, GC, VT, MR. L'appareil catVTM (Controlled atmosphere Vibrating Magnetometer, Poidras *et al.*, 2009) du laboratoire Géoscience est utilisé, cet outil est capable de mesurer l'aimantation rémanente sur un axe en continu au cours d'un cycle de chauffe et de refroidissement jusqu'à une température maximale de 700°C. Les échantillons sont réduits en poudre, permettant de débiter l'expérience sur des échantillons à aimantation strictement nulle. Le CatVTM est programmé ici pour effectuer des cycles de chauffe et refroidissement continus de 150 à 680°C réalisés par paliers (150, 250, 350, 450, 500, 600 et 680°C). Ces paliers sont répétés deux fois, d'abord sous un champ magnétique de 30 μT puis dans un champ nul afin de désaimanter l'échantillon suite à la première chauffe.

Dans une deuxième expérience, des attaques par le feu sont simulées sur les roches permiennes CA, GC, VTN et MR. Des échantillons sont chauffés à différentes températures sous un champ magnétique induit en laboratoire. Ces prélèvements sont ensuite désaimantés progressivement et mesurés dans les conditions d'une datation archéomagnétique. L'objectif de l'expérience est de reconnaître l'aimantation de laboratoire parmi les aimantations rémanentes naturelles des roches. Les prélèvements de chaque roche sont au préalable arbitrairement orientés pour constituer un référentiel se substituant au nord magnétique. L'aimantation globale naturelle de la roche (NRM) est dans un premier temps mesurée. Pour l'aimantation de laboratoire, un four FURemAG (Four à chauffe Ultra Rapide dédié au MAGnétisme des roches), prototype développé au laboratoire Géosciences Montpellier est employé. Chaque prélèvement d'une roche est chauffé entre 100 °C et 600 °C par palier de 100°C (soit 6 échantillons). Un champ magnétique de laboratoire est induit pendant la chauffe, calculé à partir de l'aimantation rémanente naturelle sur chaque prélèvement pour être observé à 90 °C de cette dernière sur les diagrammes de désaimantation (projection sur deux plans orthogonaux ou encore appelé projection de Zijderveld - Tauxe, 1998). Les prélèvements sont ensuite désaimantés par champ alternatif (AF) et chauffés en champ nul (6 paliers de 100°C, de 100 à 600°C) mesurés avec le magnétomètre cryogénique 2G, un appareil qui mesure l'aimantation sur trois axes. Cette deuxième analyse permet de fixer expérimentalement les températures minimales à partir desquelles l'aimantation secondaire thermorémnente peut être observée.

La susceptibilité magnétique mesurée à température ambiante est un indicateur de changements chimiques au sein de la roche. La susceptibilité magnétique spécifique (noté χ exprimée en $\text{m}^3.\text{kg}^{-1}$) des roches CA, GC, VT est mesurée en continu lors d'une chauffe progressive. L'appareil utilisé pour ces mesures est un susceptibilitémètre en température Agico KLY-3S couplé au four CS3.

2.2 Chimie : provenance du mobilier archéologique métallique

2.2.1 Les isotopes du plomb et du cuivre

Lors de leur formation les minerais acquièrent une composition isotopique relative en isotopes stables du plomb de masse 206, 207 et 208 spécifique qui dépend de la composition initiale en Pb, Th (Thorium) et U (Uranium), ainsi que de l'âge de formation des objets géologiques (Doe, 1970). Le plomb stable de masse 204 non radiogénique est complémentaire des isotopes radiogéniques pour l'interprétation des rapports isotopiques afin de caractériser les minerais. Le cuivre métal extrait des minéralisations cuprifères hérite des proportions caractéristiques de ces isotopes ce qui permet d'établir une filiation entre source de cuivre et mobilier archéologique. Cependant ces rapports isotopiques du plomb peuvent être similaires sur deux minéralisations très éloignées ou différentes au sein dans un même filon. Les éléments traces au sein du mobilier archéologique sont altérés par les processus métallurgiques et son utilisation pour discuter des provenances des matériaux métalliques est sujette à caution (Cattin, 2008). La mesure des isotopes du cuivre se développe pour préciser la provenance des métaux. De manière similaire aux isotopes du plomb la composition isotopique de cuivre d'un minerai est le résultat de son processus de formation en se basant sur les isotopes ^{65}Cu et ^{63}Cu (Klein *et al.*, 2010 ; Jansen *et al.*, 2018). Les processus métallurgiques ne semblent pas modifier cette signature isotopique (Gale *et al.*, 1999). L'utilisation des empreintes isotopiques du cuivre étant encore expérimentale, notre objectif est d'abord d'explorer la variabilité isotopique du cuivre dans les minéralisations cuprifères du Dôme de Barrot (sulfure, natif, carbonates) et le mobilier archéologique. Il s'agit d'une étude destinée à tester l'efficacité de ces signatures isotopiques dans le contexte de notre étude, pour le gîte de cuivre natif de Roua.

Des prélèvements ont été effectués à l'aide d'une microfraise de type Dremel®, en éliminant les couches de corrosion avant d'échantillonner l'artefact ainsi nettoyé. Les échantillons dissous et évaporés à sec ont été repris dans 5 ml Hbr 0.5N avant la séparation chromatographique suivant le protocole décrit par Manhès *et al.* (1978) pour le plomb et de Maréchal et Albarède (2002) pour le cuivre à l'aide de résines échangeuses d'ion AG1x8 (200-400 mesh) pour Pb et AG MP1 (100-200 mesh, forme chlorure) pour Cu. Les rapports isotopiques de plomb et de cuivre ont été déterminées par spectrométrie de masse à source-plasma et multi-collection (MC-ICP MS) au CEREGE (Neptune^{plus}).

2.2.2 Chimie et microstructures des artefacts.

Nous utilisons un Microscope Électronique à Balayage (MEB, JEOL JSM-6340F, laboratoire CINaM) afin d'estimer la proportion de plomb contenu dans les artefacts de Roua et des monnaies de la Cime de Tournerie. Ce MEB est équipé d'un spectromètre à dispersion d'énergie (EDS, PGT Prism Princeton Gamma-tech Digital Spectrometer), avec un traitement statistique par la méthode ZAF qui permet d'obtenir une valeur semi-quantitative des teneurs en éléments chimiques. D'ordinaire, le MEB n'est pas une technique pertinente pour analyser la chimie d'un objet (Eberhart, 1989). Il s'agit ici de déterminer la composition relative des éléments qui composent majoritairement le mobilier en bronze, à savoir Cu, Sn. Pb est également analysé afin de déterminer si sa concentration trahit un ajout protohistorique pendant les étapes métallurgiques ou est constitutif des minerais originaux et permet dans ces conditions de tracer leur origine. Nous considérons qu'une proportion de Pb supérieure ou égale à 2 % correspond à un ajout volontaire

(Craddock et Giunlia-Mair, 1988 p. 318 – 319). L'artefact Bronze 2 a été également analysé au XPS pour contrôler la justesse des mesures MEB. Le mobilier de type déchet de métallurgie a été sectionné pour observer des surfaces planes à l'aide de récepteurs électroniques SE (Secondary Electron) et BSE (BackScattered Electrons), fournissant ainsi des informations sur la microstructure et la chimie des artefacts et des minerais. Un minerai de Roua fondu par G. Mari a été observé au MEB pour identifier les microstructures dans le cuivre natif transformé et dans les déchets métallurgiques retrouvés à proximité des mines de Roua.

3 Résultats préliminaires

3.1 Mesures archéomagnétiques

3.1.1 Susceptibilité magnétique : Mise en évidence des minéraux ferromagnétiques et températures de blocage

La susceptibilité magnétique mesurée au four CS3 reste faible au cours d'un cycle de chauffe et de refroidissement de 20°C à 670°C, d'un ordre de grandeur de $10^{-8} \text{ m}^3.\text{kg}^{-1}$ dans toutes les roches analysées (CA, GC, VT, VTN). Cependant, un écart de susceptibilité d'un rapport de 2 à 3 remarqué systématiquement suffit à discriminer une roche chauffée d'une roche initiale (fig. 3). Cette différence serait observable sur le terrain au moyen d'un susceptibilimètre ce qui permettrait de cibler les éléments de parois à prélever. Ces résultats attestent de la présence de minéraux ferromagnétiques dans les pélites et grès Permien.

L'analyse au CatVTM met en évidence que l'aimantation thermorémanente est portée par un minéral créé lorsque la roche est chauffée à une température supérieure de 300 °C. À partir de 680 °C, les minéraux d'hématite enregistrent également l'aimantation rémanente. Seuls les grès permien de Roua ont un comportement différent. Ils contiennent de la magnétite. Cette roche est également la seule qui ne présente pas de minéraux d'hématite. Comme pour les autres échantillons, une chauffe supérieure à 300 °C crée un nouveau minéral (fig. 4). D'après la température de curie observée sur tous les échantillons, le nouveau minéral créé peut être rapproché de la pyrrhotite (Butler, 1992). Il faudrait confirmer cette déduction par des analyses minéralogiques sur des échantillons chauffés à 300 °C.

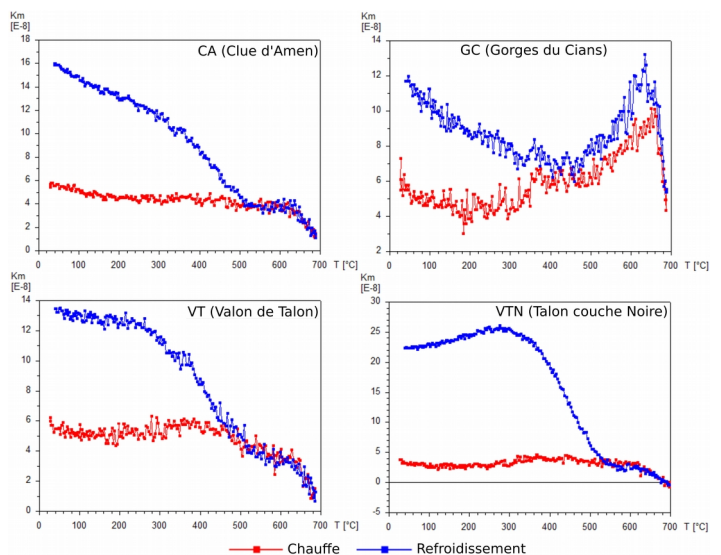


Figure 3: Susceptibilité en cours de chauffe pour les échantillons CA (Clue d'Amen), VC, Valon du Cians (four CS3 susceptibilimètre Agico KLY-3S, graphique fourni par le logiciel Curval®).

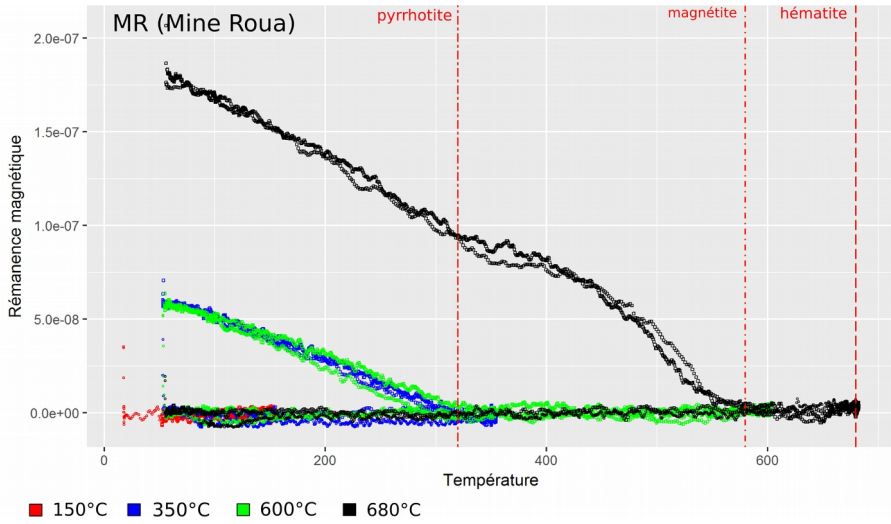


Figure 4: Résultat catVTM: susceptibilité en cours de chauffe par palier (150°C, 350°C, 600°C, 680°C) pour la roche MR. Les barres rouges verticales correspondent aux températures de curies des minéraux ferromagnétiques pyrrhotite, magnétite, hématite (R. Bussone).

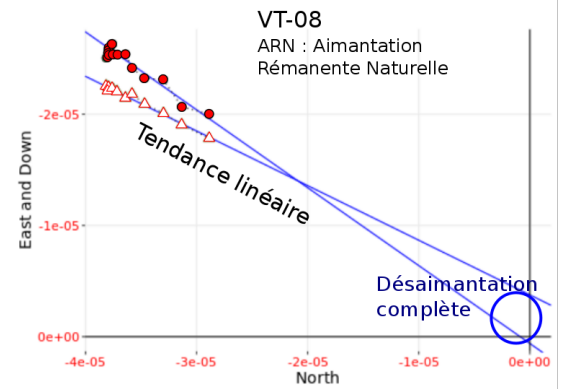
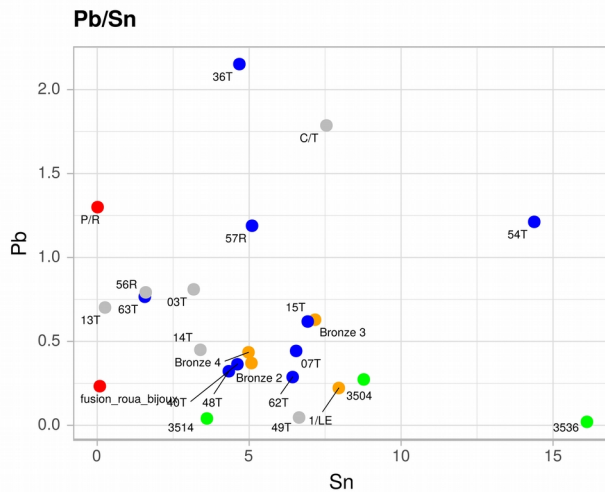
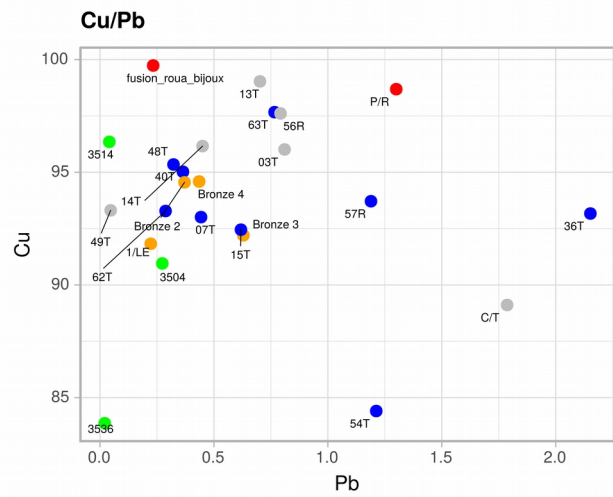
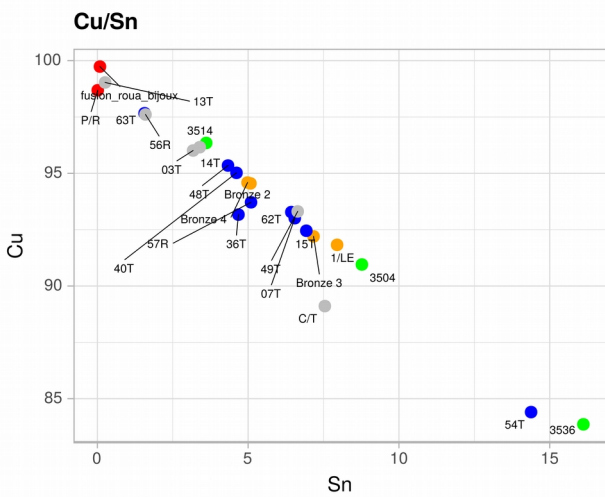


Figure 6: Projections de Zijderveld. Désaimantation de l'échantillon VT08 (non chauffé) pour étudier les composantes de l'aimantation rémanente naturelle des pélites (P. Camps et R. Bussone).



- categorie
- Artefact
 - Indetermine
 - Metallurgie
 - Minerai
 - Monnaie

Figure 7: Moyenne par artefact des rapport des éléments Cu-Sn-Pb mesurés au MEB-EDS dans les matrices (sections polies) des déchets métallurgiques et sur les surfaces nettoyées (acide) des artefacts protohistoriques (R. Bussone).

Les chauffes expérimentales sur les roches permienes du Dôme de Barrot permettent d'établir que l'aimantation thermorémanente est observable sur des échantillons chauffés à des températures inférieures ou égales à 300 °C.

3.1.2 Les chauffes expérimentales

Au cours de l'expérience de chauffe expérimentale, la désaimantation AF s'est révélée inefficace, la désaimantation par chauffe a été utilisée. Ceci révèle la présence de minéraux magnétiques caractérisés par des champs coercitifs élevés comme c'est le cas pour l'hématite par exemple.

Les aimantations de laboratoires sont observées à partir de 300 °C pour les échantillons CA et VTN (fig. 5 en bleu et noir). Les échantillons GC possèdent une aimantation thermorémanente à partir de 400 °C (en orange). Seul l'échantillon de grès permien provenant des mines de Roua s'aimante à partir de 200 °C (en vert). Pour étudier l'aimantation rémanente naturelle au sein de ces roches, l'échantillon VT-08 a été désaimanté par des chauffes successives jusqu'à 600 °C. Cette expérience montre qu'il n'y a à priori qu'une seule composante de l'aimantation rémanente naturelle au sein de ces roches (fig. 6).

Les pélites du Dôme de Barrot enregistrent l'aimantation thermorémanente entre 300 et 400 °C avec la formation d'une nouvelle population de grains. Le grès de l'encaissant de Roua supporte cette aimantation pour des températures inférieures à 300 °C. Il est possible que les vestiges des galeries en grès de Roua aient subi ces températures et soient toujours en place. Les éléments chauffés peuvent être décelés sur le terrain avec un susceptibilitémètre. Ce qui est favorable à une datation archéomagnétique sur les roches permienes du Dôme de Barrot.

3.2 Mobilier métallique

Echan.	NRM		Aimantation (ATR) Labo			ATR Lab retrouvée ?	
	Dec	Inc	Dec	Inc	T°C	ATR ?	observé entre
CA-1	213,1	55,5	33,1	34,5	300	Oui	0 - 300°C
CA-5	142,4	51,9	322,4	38,1	450	Oui	0 - 400°C
CA-6	295,5	60,2	115,5	29,8	550	Oui	0 - 500°C
GC-1	39,1	18,9	219,1	71,1	500	Oui	0 - 500°C
GC-3	18,8	17,7	198,8	72,3	300	Non	100 - 300°C
GC-4	87,6	4,9	267,6	85,1	400	Oui	0 - 500°C
GC-6	153,6	8,6	333,6	81,4	600	Oui	0 - 600°C
MR-1	57,1	31,1	237,1	58,9	600	Oui	300 - 500°C
MR-2	330,7	-48,8	150,7	-41,2	200	Oui	0 - 15 (AF)
MR-3	216	61,2	36	28,8	300	Oui	0 - 300°C
MR-4	133,8	47,3	313,8	42,7	400	Oui	0 - 400°C
MR-5	328	21,7	148	68,3	500	Oui	0 - 500°C
VTN-2	250,7	-30,4	70,7	-59,6	200	Non	100 - 200°C
VTN-3	298,4	27	118,4	63	300	Oui	0 - 300°C
VTN-4	36,5	-51,4	216,5	-38,6	400	Oui	0 - 400°C
VTN-5	160,3	56,7	340,3	33,3	500	Oui	0 - 500°C
VTN-6	161	51	341	39	600	Oui	0 - 500°C

NRM naturelle des échantillons. Champ magnétique de laboratoire (déclinaison, inclinaison) appliqué à une certaine température. Composante de la NRM pour laquelle l'aimantation de laboratoire est observée.

Figure 5: Interprétation sous forme de tableau des résultats des projections de Zijderveld des échantillons de roches chauffées (CA,GC,MR,VTN). Les cellules de couleur indiquent les températures minium et maximum pour lesquelles l'aimantation thermorémanente est cohérente avec le champ magnétique induit lors de la chauffe pour un échantillon (R. Bussone).

3.2.1 Chimie et observations MEB

La chimie de l'individu Bronze 2 analysé au MEB-EDS (avec 6 chimies ciblées sur la matrice de l'échantillon sectionné) donne les proportions suivantes : Cu 94,5 %, Sn 5 %, Pb 0,4 %. L'analyse XPS réalisée par C. Laffon et P. Parent (CINaM)

sur l'autre moitié de l'échantillon sectionné indique Cu 96,57 %, Sn 2,74 % et Pb 0,69 % (déviation standard respective pour chaque élément 0,04 %; 0,06 %; 0,09 %). La chimie MEB-EDS présente l'avantage d'être plus rapide et accessible que la méthode XPS et affiche des résultats sur les éléments chimiques qui composent majoritairement le mobilier cohérent.

Les rapports des éléments majoritaires Cu/Sn/Pb des artefacts mettent en évidence une corrélation Cu - Sn au sein du mobilier protohistorique étudié, aucune relation linéaire ne peut être établie entre Sn - Pb ou Cu - Pb (fig. 7). Pb est présent à moins de 2 % dans les artefacts métalliques (excepté pour l'individu 36/T). Nous considérons dans cette étude que le plomb présent dans ces artefacts est associé à l'origine au minerai de cuivre.

Par l'observation d'imagerie MEB (fig. 8), la comparaison entre la microstructure d'un minerai de Roua fondu et de celle de déchets de fusions révèle la présence d'inclusions microniques de plomb. Le plomb, présent en faible quantité dans le cuivre natif (Rostan et Mari, 2005) se démixe lors des étapes métallurgiques. Les observations des sections de déchets métallurgiques mettent en évidence plusieurs types d'inclusions de matière :

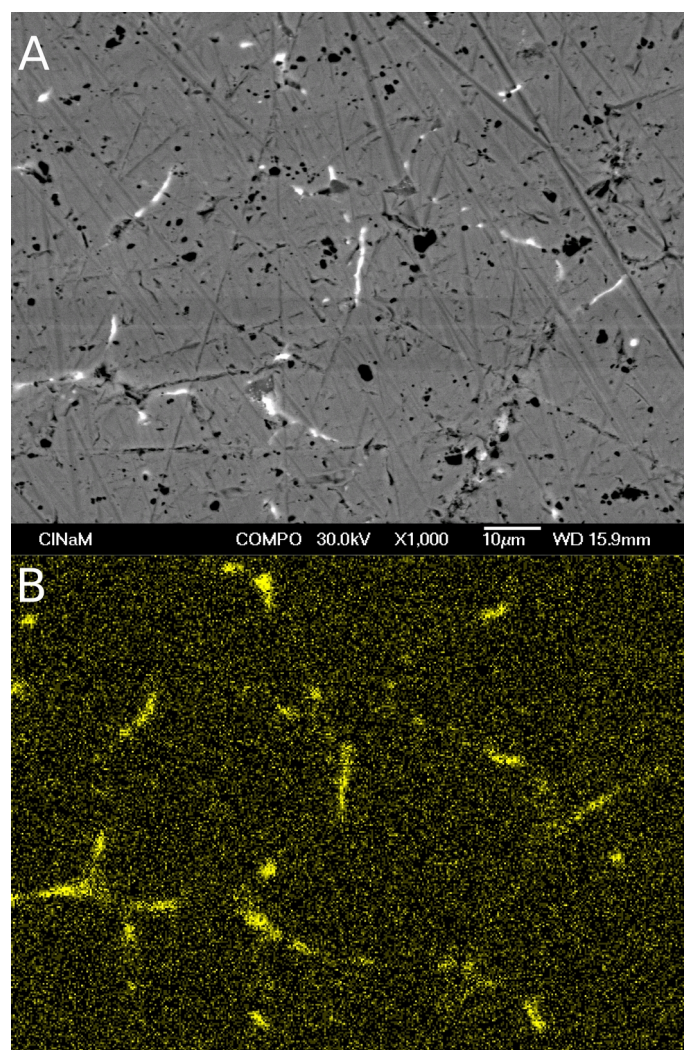


Figure 8: Imagerie MEB (A) et cartographie chimique du Pb (B) de l'objet fusion_roua_bijoux. Exsolutions de plomb (en blanc dans A et en jaune dans B) au sein d'un fragment de cuivre natif de Roua fondu par Gilbert Mari et poli en laboratoire (O. Grauby, CINaM).

- des inclusions microniques Pb dans tout le mobilier analysé.
- des inclusions sphériques Pb avec des cristaux de SiC (moissanite polytype 6H) et de Al₂SO₃ (corindon) au sein de 60/R, Bronze 2, Bronze 3 (inclusions résultant du polissage).
- des inclusions millimétriques Pb avec des Cu et Pb (un seul individu Bronze 3)
- Inclusions de dizaines de micron de fer et soufre (56/R)

L'étude des microstructures révèle que différentes phases Cu-Sn sont présentes dans les scories (phase alpha :5 à 8 % Sn et phase beta 15 % Sn). Ces phases et les inclusions pourraient apporter des informations sur des températures de chauffe et sur les étapes métallurgiques. Les inclusions de fer et de soufre pourraient dévoiler le type de minéralisation employé lors des étapes métallurgiques, hypothèse qui pourrait être confirmée lors des analyses isotopiques du cuivre.

3.2.2 Les isotopes

Le mobilier 07/T, 14/T, 15/T, 36/T, 40/T, 48/T, 56/R, 57/R, 62/T, 63/T, le minerai natif de Roua et du Cerisier (respectivement roua_fusion_120 et D) ont fait l'objet d'analyses isotopiques du plomb. Les données sont répliquables (coefficient de corrélation $R^2 = 0.96$ pour $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$) sur le mobilier échantillonné deux fois (3504, 3514, 3536, 36/T, 40/T, 57/R, 63/T). Tous les rapports sur ^{204}Pb présentent une déviation standard comprise entre 0,012 et 0,005. Les rapports $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ sur $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ et $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ sur $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ discriminent au mieux les signatures isotopiques dans notre étude. Plusieurs signatures semblent se regrouper, ce qui pourrait témoigner de l'usage d'une même source de cuivre pour ces individus (fig. 9).

Le mobilier 40/T, 63/T, Bronze 2, Bronze 3 et les monnaies 3514 et 3536 ont les signatures les plus proches des minerais

roua_fusion_120 et D sans qu'aucune conclusion définitive ne puisse être tirée à partir de cette seule observation. Les empreintes des monnaies 3514 et 3536 sont proches et pourraient provenir de la même source de cuivre que le déchet de métallurgie 48/T et le mobilier 62/T et 57/R (âge du Fer).

La signature de la troisième monnaie 3504 est proche de l'objet 15/T (âge du Fer).

Si on intègre les données bibliographiques, la signature de l'objet 40/T (bronze final 2b-3b) peut être rapproché de la signature isotopique d'une dizaine d'artefacts (CP6, CP40, CP51, CP53, CP63, CP94, CP132, CP133, CP156, CP170, CP175_CL) du dépôt du Monte Cavanero (Italie, Chiusa di Pesio, Province de Coni), situé à une cinquantaine de kilomètres du vallon de Talon, de l'autre côté de la chaîne alpine (Artioli *et al.*, 2009) (fig. 10).

La signature de l'objet 07/T (âge du Fer) est proche du minerai de Roua M39 (Cattin, 2008).

L'objet 63/T (âge du Fer) pourrait être rapproché de la signature d'un objet du dépôt de Cavanero (CP162).

Un artefact du dépôt de Cavanero (CP45) est proche des valeurs obtenues dans cette étude pour le cuivre natif de Roua (roua_fusion_120).

Les signatures isotopiques des artefacts 40/T et 07/T plaident en faveur de l'hypothèse d'une métallurgie régionale. Ces premiers résultats doivent être confortés par d'autres analyses isotopiques sur mobilier et minerai de Roua et des gisements alentour, à l'interface Permien/Trias.

Les essais sur les isotopes du cuivre engagés avec Z. Fekiacova (CEREGE) seront l'occasion de vérifier les résultats des isotopes du plomb et de préciser le type de minéralisation des minerais de cuivre. En effet, si le minerai natif se distingue des autres minéralisations, la méthode sera utilisée pour identifier l'emploi

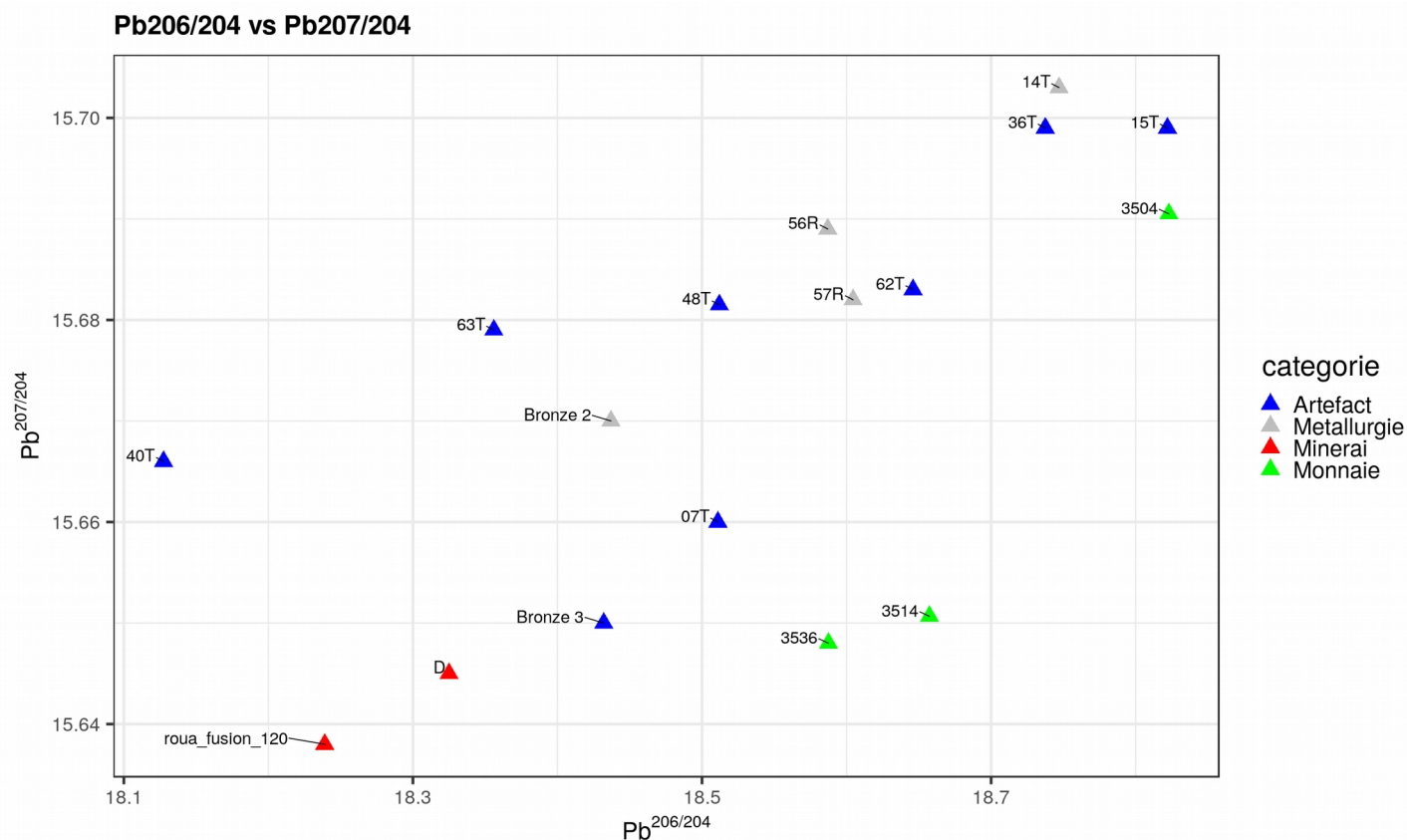


Figure 9: Rapports isotopiques $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ vs $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ du mobilier métallique du vallon de Talon, ravin de Roua et monnaies de la Cime de Tournerie (analyses A. Veron et R. Bussone. Graphique R. Bussone).

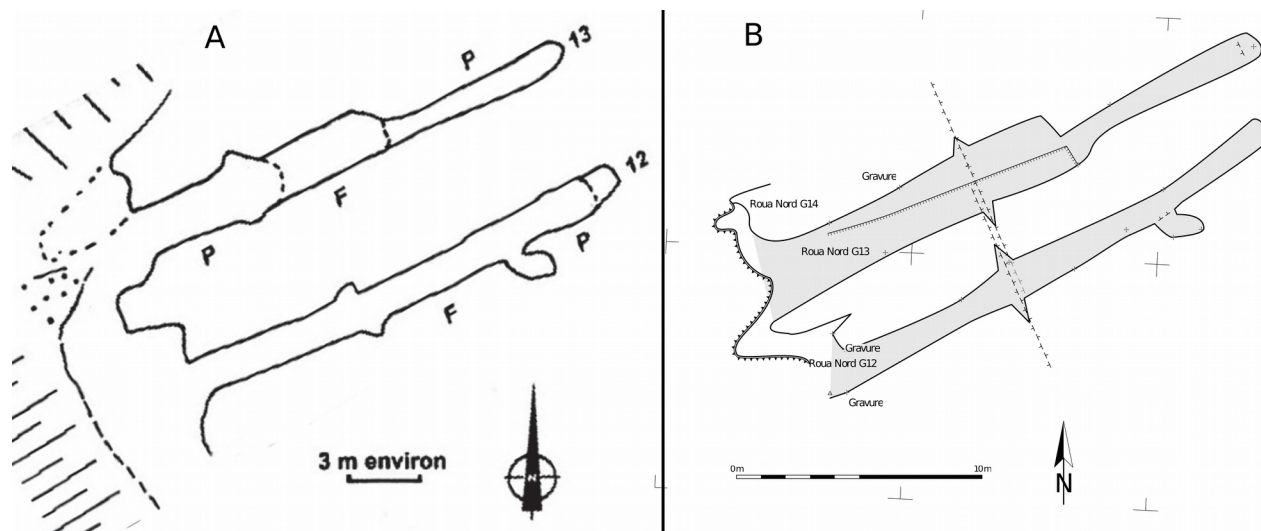


Figure 11: Comparaison entre les plans des galeries nord 13 et 12 publiés en 2005 (A – Rostan et Mari, 2005, fig. 3) et ceux issus de la campagne de relevé de l'été 2019 (B). Cette campagne permet de préciser les plans de 2005 en rectifiant par exemple l'alignement de failles géologiques qui traversent ces deux galeries. Interprétation des relevés en cours. Plan B susceptible d'évoluer (Relevé et dessin X. Pennec et R. Bussone).

minéralisation employé et permettrait de confirmer ou non l'emploi du cuivre natif. D'après les premières analyses, les monnaies de la Cime de Tournerie peuvent être rapprochées de plusieurs artefacts de l'âge du Fer retrouvés dans le vallon de Talon. La signature de l'objet 40/T (épingle à tête sphérique du Bronze Final 2b-3b) semble correspondre à plusieurs artefacts du dépôt de Cavanero (Italie, Chiusa di Pesio, Province de Coni) daté lui aussi du Bronze Final. A ce stade de nos analyses, l'utilisation du cuivre natif de Roua n'est pas mise en évidence. Nos résultats fournissent plutôt des indices d'une utilisation régionale du cuivre à la Protohistoire qui doivent être confirmés par de nouvelles analyses (isotopes Pb, Cu) de minerais locaux croisées avec des relevés des mines de Roua et des datations archéomagnétiques.

Remerciements

Je remercie tout d'abord Gilbert Mari. Les connaissances que nous tirons de ces mines sont essentiellement issues de ses ouvrages et de nos rencontres. Sans son intérêt pour ces mines et les prélèvements de cuivre de sa collection qu'il nous a confié, cette étude n'aurait pas pu avoir lieu. Xavier Pennec pour son expertise indispensable dans les milieux souterrains, le prêt des appareils de relevés et le traitement des données souterraines. Corinne Laffont et Philippe Parent (CINaM) pour l'analyse XPS. Le Service Régional d'Archéologie PACA qui a financé l'installation de sécurité pour l'accès aux mines de Roua et autorisé l'opération de prospection. Le Parc National du Mercantour qui a financé les études isotopiques dans le cadre du projet de recherche portant sur le sanctuaire de la Cime de Tournerie.

Bibliographie

- Artioli G., Angelini I., Giunti I., Omenetto P., Villa I.-M.**
2009 : La provenienza del metallo degli oggetti di Monte Cavanero: considerazioni basate sugli isotopi del Pb e sulla geochemica delle mineralizzazioni cuprifere limitrofe, *Il ripostiglio del Monte Cavanero di Chiusa di Pesio (Cuneo)*, Alessandria, LineLab, p. 167 – 178
- Bianchi N.**
2013 : *Art rupestre en Europe occidentale : contexte archéologique et chronologique des gravures protohistoriques de la région du mont Bego. De la typologie des armes piquetées à l'étude des gravures schématiques-linéaires*, Thèse de Doctorat, Université de Perpignan Via Domitia, inédit, 422 p.
- Bussone R.**
2018 : *Extraction, métallurgie et diffusion des cuivres protohistoriques du Dôme de Barrot*, Mémoire universitaire, Université Paul Valéry Montpellier, inédit, 161 p.
- Cattin F.**
2008 : *Modalités d'approvisionnement et modalités de consommation du cuivre dans les Alpes au 3e millénaire avant notre ère : apport des analyses métalliques à la connaissance des peuplements du Néolithique final, du Campaniforme et du Bronze ancien*, Thèse de Doctorat, Université de Genève : Département d'anthropologie et d'écologie (Archéologie préhistorique), inédit, 458 p.
- Craddock P., Giunliamair A.-R.**
1988 : Problems and possibilities for provenancing bronzes by chemical composition, with special reference to Western Asia and the Mediterranean in the Early Iron Age, Bronzeworking centres of western Asia c. 1000 – 539 B.C., *Kegan Paul International*, p. 317–327.
- Doe B.-R.**
1970 : Radioactive Lead Isotopes, *Minerals*, n° 3, p. 79-80.

Eberhart J.-P.

1989 : *Analyse structurale et chimique des matériaux: diffraction des rayons X, électrons et neutrons, spectrométrie des rayons X, électrons et ions, microscopie électronique*, Paris, Dunod, 614 p.

Gale, N. H., Woodhead, A. P., Stos-Gale, Z. A., Walder, A. and Bowen, I.

1999 : Natural variations detected in the isotopic composition of copper: possible applications to archaeology and geochemistry, *International Journal of Mass Spectrometry*, n° 184, p. 1-9.

Jansen, M., Hauptmann, A, Klein, S. and Seitz, M.-H.

2018 : The potential of stable Cu isotopes for the identification of Bronze Age ore mineral sources from Cyprus and Faynan: results from Uluburun and Khirbat Hamra Ifdan, *Archaeological Anthropological Sciences*, n° 10, p. 1485-1502.

Klein, S., Brey, G. P., Durali-Müller, S. and Lahaye, Y.

2010 : Characterisation of the raw metal sources used for the production of copper and copper-based objects with copper isotopes, *Archaeological Anthropological Sciences*, n° 2, p. 45-56.

Manhes, G., Minster, J. F., & Allegre, C. J.

1978 : Comparative uranium-thorium-lead and rubidium-strontium study of the Saint Severin amphoterite: Consequences for early solar system chronology. *Earth and Planetary Science Letters*, n° 39, p. 14-24.

Maréchal, C., Albarède, F.

2002 : Ion-exchange fractionation of copper and zinc isotopes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, n° 66, p. 1499-1509.

Mari, G.

1992 : Les anciennes mines du Dôme de Barrot (Alpes-Maritimes), Éditions Serre, Nice. 112 p.

Mari G., Mari D.

2009 : Le cuivre natif des gorges du Daluis dans l'Histoire, *Riviera Scientifique*, n° 93, p. 21-50.

Rostan P., Mari G.

2005 : L'exploitation protohistorique de cuivre natif de Roua (Daluis et Guillaumes, Alpes-maritimes), in *Ambert P. (dir.), Vaquer J. (dir.), Actes du colloque international de Carcassonne, Carcassonne, 28-30 septembre 2002*, Paris, Société préhistorique française, p. 139-149.

Mari G., Mari D., Rolland P.

1995 : Le cuivre natif des Alpes-Maritimes, *Riviera Scientifique*, n° 79, p. 33-44.

Mercurin R.

2017 : *Les Alpes Maritimes à l'âge du Bronze et au début de l'âge du Fer : Bilan documentaire critique, mobilier céramique et métallique, dynamique*, Thèse de Doctorat, Université Aix-Marseille: Archéologie Méditerranéenne et Africaine: Espaces cultures sociétés, Centre Camille Jullian, inédit.

Mohen J.-P., Eluère C.

1990 : Le rôle du métal dans le site du Mont Bégo, *Antiquités Nationales et Société des Amis du Musée et du Château de Saint-Germain-en-Laye*, n° 22/23, p. 27 -35.

Poidras T., Camps P., Nicol P.

2009 : Controlled atmosphere vibrating thermo-magnetometer (CatVTM) : a new device to optimize the absolute paleointensity determinations, *Earth, planets and space*, n° 61, p. 101-110.

Richard J.-C.

1992 : La diffusion des monnayages massaliètes au-delà du territoire de Marseille, *Marseille grecque et la Gaule – Études massaliètes*, n° 3, p. 255-260.

Sarp, H., Cerny, R.

1999 : Gilmarite, Cu₃(AsO₄)(OH)₃, a new mineral: its description and crystal structure. *European Journal of Mineralogy*, n° 11, p. 549-555.

Sarp H., Pushcharovsky D.-Y. Maclean, E.-J. Teat, S.-J., Zubkova, N.-V.

2003 : Tillmannsite,(Ag₃Hg)(V, As) O₄, a new mineral: its description and crystal structure. *European Journal of Mineralogy*, n° 11-1, p. 177-180.

Suméra F.

2015 : *Signature des occupations protohistoriques et antiques dans l'évolution des paysages et dans la construction de la géographie humaine du massif du Mercantour (Alpes-Maritimes)*, Thèse de Doctorat, Université Aix-Marseille : Archéologie Méditerranéenne et Africaine : Espaces cultures sociétés, Centre Camille Jullian, inédit, 455 p.

Suméra F., Girard B., Méniel P., Schmitt A., Cenzon K.

2019 : Un lieu de culte monumental gaulois dans le Mercantour : le site de la Cime de la Tournerie (commune de Roubion, Alpes-Maritimes), *Actes du 41 colloque de l'Association Française pour l'Étude du Fer, Dole, 25-28 mai 2017*, p. 131-148.

Tauxe L.

1998 : Modern approaches in geophysics, *Paleomagnetic Principles and Practice*, n° 17, 316 p.