

surface et dispersion des lieux de production du fer en petites unités, plus ou moins en liaison avec des établissements ruraux et des agglomérations secondaires en ce qui concerne l'époque romaine. Pour le Haut Moyen Age et l'ensemble de l'époque médiévale, la recherche est moins avancée, faute souvent de repères chronologiques très précis.

Addendum 1990

Depuis la présentation de ce programme à Mainz en 1986, les recherches ont beaucoup progressé tant en ce qui concerne les mines modernes que les travaux sur les exploitations du minerai de fer et sa transformation pendant les époques romaine et médiévale. On pourra en juger grâce à la publication du gros ouvrage collectif de Jacob, J.-P. et Mangin, M. (Dir.) 1990. Le bilan relatif à la réduction directe du fer comporte plus d'une centaine de sites d'époque romaine et autant de l'époque médiévale et donne les premiers résultats d'analyses effectuées à Nancy (50 issues de trois sites), en attendant ceux d'une centaine d'autres en cours en 1989: cf. la contribution de Boukezzoula, M. et al. dans l'œuvre collectif cité.

Le bilan antique et médiéval comtois sur le fer, arrêté à 1989, est replacé dans l'ensemble des travaux en cours dans l'Est de la France dans: Mangin, M. (sous presse).

ANDREAS HAUPTMANN · CHRISTOPH RODEN

ARCHÄOMETALLURGISCHE UNTERSUCHUNGEN ZUR KUPFERVERHÜTTUNG DER FRÜHEN BRONZEZEIT IN FENAN, WADI ARABAH, JORDANIEN*

Die Kupfererzlagerstätte im Gebiet von Fenan, das etwa 120 km nördlich von Aqaba am Ostrand des Wadi Arabah liegt, stellt die massivste Metallkonzentration zwischen Totem und Rotem Meer dar. Die Vererzungen treten in zwei Gesteinsformationen des Unteren bis Mittleren Kambriums auf (Bender 1974), und zwar in einer ca. 2-3 m mächtigen Bank aus Tonstein und Dolomit sowie in einzelnen Horizonten der mächtigen Sandsteinserien. Die Vererzungen sind überwiegend schichtgebunden, im Sandstein sind zudem häufig dünne Kluftvererzungen zu verzeichnen. Die Erze bestehen größtenteils aus Malachit, Chrysokoll, Atacamit, Cuprit und verschiedenen Kupfersulfiden, die in der Tonsteinbank mit massiven Lagen von Manganoxiden vergesellschaftet sind.

Diese Lagerstätten wurden vom Chalkolithikum (4. Jahrtausend v. Chr.) an bis in römische Zeit (2. Jahrhundert n. Chr.) und später bergmännisch abgebaut. Die Erze wurden hier verhüttet, wobei insgesamt ca. 150 000-200 000 Tonnen Schlacke anfielen (Hauptmann et al. 1985). Die frühesten, sporadischen Aktivitäten der Kupfergewinnung sind nach den bisherigen archäologischen Funden in das ausgehende Chalkolithikum zu datieren. Wesentlich umfangreichere Aktivitäten sind dagegen für die frühe Bronze-

* Danksagung: Die Untersuchungen wurden mit Mitteln der Stiftung Volkswagenwerk innerhalb des jordanisch-deutschen Gemeinschaftsprojekts »Archäometallurgische und bergbauarchäologische Untersuchungen in Fenan und in der südlichen Arabah« durchgeführt. Wir sind den

Herren J. Kunkel und J. Heckes für unschätzbare Hilfe bei der Ausgrabung und Dokumentation der Öfen sehr zu Dank verpflichtet. Die Arbeiten wären ohne die hilfreiche Unterstützung von Dr. A. Hadidi, Department of Antiquities, Amman, nicht möglich gewesen.



Abb. 1 Frühbronzezeitlicher Kupferschmelzofen von Fenan 9 (Aufsicht). Deutlich erkennbar sind der halbrunde Querschnitt der Ofensohle sowie die vielfach erneuerte Ofenrückwand (aufgenommen mit einer Reseaukamera Rollei SLX zur photogrammetrischen Dokumentation und Auswertung).

zeit (ab 2700 v. Chr.) nachgewiesen. In dieser Zeit konnte anhand von Keramikfunden im Versatz zahlreicher Gruben der Bergbau in der Tonsteinbank datiert werden, ebenso über 15 Hüttenplätze mit Überresten von Schmelzöfen. Ausgrabungen an einer frühbronzezeitlichen Schlackenhalde in Fenan 9 brachten eine Batterie mit 28 dicht nebeneinanderstehenden metallurgischen Installationen zutage, die nach ihrem Erhaltungszustand, ihrer Konstruktionsweise und ihrem massierten Auftreten ein Novum in den bisherigen archäometallurgischen Forschungen darstellen. Diese Installationen seien hier als Schmelzöfen bezeichnet.

Sie bestanden aus einer 60 cm breiten und 30-40 cm hohen schalenförmigen Rückwand, relativ niedrigen Seitenteilen und einer halbkreisförmigen, nach vorn geneigten Ofensohle (Abb. 1). Fragmente einer geschlossenen Ofenbrust fehlen völlig. Vielmehr ergibt sich aufgrund entsprechender Funde die Möglichkeit, daß diese aus locker geschichteten Steinplättchen oder einem Rost aus vertikal orientierten Tonstäbchen konstruiert war, der auf die Ofensohle aufgesetzt wurde. Durch die Erneuerung der Öfen nach einem oder mehreren Schmelzgängen entstanden durch die Addition einzelner Verstrichschichten an der Rückseite mächtige Schichtpakete. Ein wesentlicher Gesichtspunkt für die Konstruktionsweise ist die Tatsache, daß es keine Hinweise auf eine Überkuppelung der Öfen gibt. Ebenso konnten weder in Fenan 9 noch auf den anderen frühbronzezeitlichen Schlackenplätzen Düsen für eine künstliche Windzufuhr nachgewiesen werden.

Nach diesen Befunden handelt es sich in Fenan um relativ offene Systeme ohne Schacht, die den natürlichen Wind ausnutzten. Als Schmelzöfen widersprechen diese Konstruktionen den bisherigen Vorstellungen über die Form der frühesten Öfen, die im allgemeinen zu Formen einfacher Schachtöfen tendieren. So beschreibt Rothenberg (1985) aus Timna, das ca. 60 km von Fenan entfernt am Westrand der Arabah liegt, Schmelzöfen mit einem Durchmesser von 0,3-0,5 m und einem Schachtansatz (»bowl furnaces«) sowohl aus dem Chalkolithikum (Timna, site 39) als auch aus der späten Bronzezeit (Timna, site 2).

Problematisch erscheinen die frühbronzezeitlichen Schmelzöfen von Fenan 9 auch unter dem Aspekt der thermodynamischen Effizienz. Abgesehen davon, daß sowohl Ofensohle als auch Seitenwände auffal-

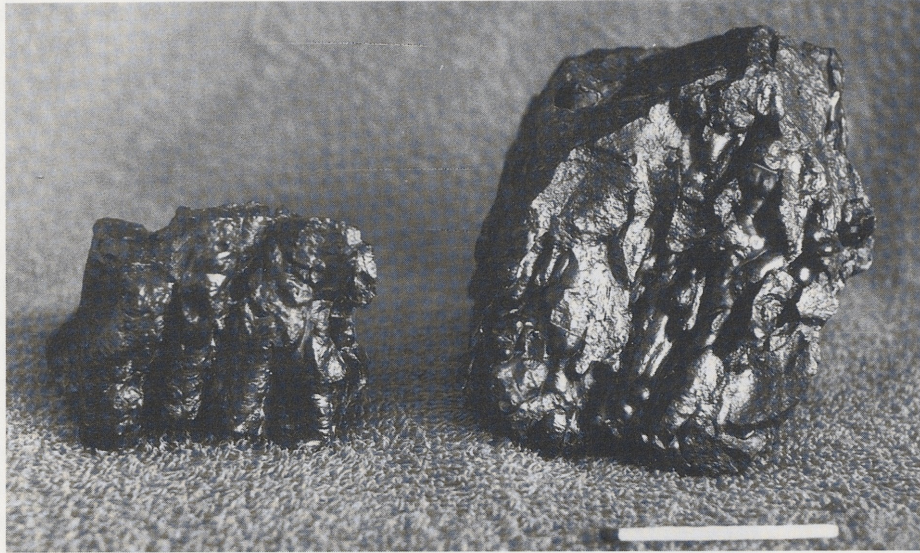


Abb. 2 Frühbronzezeitliche Kupferschlacken, bestehend aus einem Paket vertikal abgelaufener Schlackentropfen mit Einlagerungen von metallischem Kupfer. Ras en-Naqab, Probe Nr. JD-5/1.

lend geringe Verschlackung aufweisen, sind die Öfen nach dem jetzigen Verständnis sehr ungünstig konstruiert, um die für den Verhüttungsprozess notwendigen Temperaturen zu erzeugen und über entsprechende Zeit zu halten.

Eine alternative Erklärung dieser metallurgischen Installationen ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt nicht möglich. Eine Ansprache als Vorrichtungen für einen Röstprozess ist aufgrund der niedrigen Schwefelgehalte in Erz und Schlacke ($\leq 1,5\%$) unwahrscheinlich. Möglicherweise könnten hier einfachste Vorläufer von Flammöfen vorliegen. Sie sind unter Umständen auch mit den in Mittelamerika bis in dieses Jahrhundert verwendeten »Windöfen« vergleichbar, den sog. *guairas*, die sowohl in der Blei- als auch in der Kupferverhüttung eingesetzt wurden.

Die Schlacken, deren Menge an den frühbronzezeitlichen Schmelzplätzen auf über 1000 t geschätzt wird, sind gewöhnlich in cm-große Komponenten zerschlagen worden. Der bereits makroskopisch erkennbare und durch die chemische Analyse belegte hohe Kupfergehalt (bis 5%) in diesen Stücken ist hier ein klarer Beweis, daß eine mechanische Separation des Metalls von der Schlacke im festen Zustand durchgeführt worden ist.

Anhand von Einzelstücken läßt sich die ursprüngliche Form und Größe der Schlacken sowie ihre Bildung außerhalb des Ofens rekonstruieren: Die doppelt faustgroßen Stücke bestehen aus einer Vielzahl mm- bis cm-großer, nahezu vertikal abgelaufener Schlackentropfen, zwischen die sporadisch dünne Lagen und Kügelchen von metallischem Kupfer eingelagert sind (Abb. 2). Sie zeigen, daß das Metall zusammen mit der Schlacke aus dem Ofen abgestochen wurde bzw. abgeflossen ist.

Den Hüttenleuten in Fenan stand mit den Cu-Mn-Erzen eine Rohstoffbasis zur Verfügung, die sich in einigen Punkten vorteilhaft auf die metallurgische Prozeßführung auswirkte.

Die chemische Analyse¹ zeigt, daß der als natürliches Flußmittel wirkende Mangananteil zur Bildung von Mangansilikatschlacken führte, die nicht nur in der frühen Bronzezeit, sondern auch in fast allen anderen Perioden produziert worden sind (Hauptmann et al. 1985). Sie enthalten 23-40% MnO, 7-15% CaO und 28-35% SiO₂. Gehalte bis 6% P₂O₅ sind auf die Verwendung von vererzten Phosphoritlagen

¹ Die chemische Zusammensetzung der Schlacken wurde röntgenfluoreszenzspektrometrisch und mit der AAs bestimmt.

Die Röntgenfluoreszenzanalysen wurden am Mineralogischen Institut der Ruhr-Universität Bochum an einem Philipps-Spektrometer, PW 1400, durchgeführt.

	JD-1/1 B, Fenan	JD-5/1, Ras en-Naqab
SiO ₂	36.2	32.3
TiO ₂	0.25	0.22
Al ₂ O ₃	5.82	4.55
FeO	3.66	2.65
MnO	31.2	23.4
MgO	1.34	4.96
CaO	8.83	13.0
BaO	0.35	1.93
K ₂ O	2.54	1.01
Na ₂ O	2.50	0.38
P ₂ O ₅	2.63	2.10
S	0.42	n.n.
Cu	0.38	3.67
Zn	0.02	0.14
Pb	0.04	0.93
Σ (Gew. %)	95.73	91.24

Tab. 1 Chemische Zusammensetzung repräsentativer Kupferschlacken der frühen Bronzezeit aus dem Gebiet von Fenan.

in der Tonsteinbank zurückzuführen. Beispiele repräsentativer chemischer Analysen frühbronzezeitlicher Schlacken sind in Tab. 1 aufgeführt.

Der Vergleich der Schlackenzusammensetzung mit dem Nebengestein der Vererzung ergab, daß abgesehen von einer geringfügigen Auslese von Manganoxiden (ca. 10-15%) keine weiteren Flußmittel bei der Chargierung zugegeben worden sind. Dennoch geht aus der Projektion der auf die chemischen Hauptkomponenten reduzierten Analyse in das ternäre Zustandsdiagramm CaO-MnO-SiO₂ hervor, daß die Zusammensetzung dieser Schlacken in den Bereich mit den niedrigsten Liquidustemperaturen («Schmelztemperaturen») zu liegen kommt. Im reinen System liegen diese zwischen etwa 1200° und 1250°C. Dies zeigt, daß weitgehend »selbstgehende« Erze verwendet werden konnten.

Die Mangansilikatschlacken zeigen einen wichtigen Unterschied zum chemisch-physikalischen Verhalten der sonst in der Archäometallurgie verbreiteten eisenreichen Schlacken. Wie aus den Gleichgewichtskurven im pO₂/T-Diagramm der Systeme Mn-Si-O und Fe-Si-O hervorgeht (Abb. 3), zeigt das schlackenbildende MnO einen weit größeren Stabilitätsbereich als »FeO« (Huebner u. Sato 1970). Hierdurch wird einerseits die Ausscheidung von metallischem Eisen bzw. Mangan durch Überreduktion unterdrückt. Dies soll der häufigste Grund für die Verwendung manganhaltiger Flußmittel in der Archäometallurgie gewesen sein (Steinberg u. Koucky 1974) und wird sowohl für die frühe Kupfergewinnung in Timna (Bachmann 1980) als auch in Zypern (Bachmann 1982) postuliert. Andererseits ist in dem für die jordanischen Schlacken abgeleiteten Temperaturbereich die Bildung von Mangansilikatschmelzen der beobachteten Zusammensetzung sogar noch unter Zutritt von Luft möglich (Abs-Wurmbach et al. 1983). Die Kristallisation von Oxiden wird im Gegensatz zu eisenreichen Schmelzen weitgehend unterdrückt, was sich entscheidend auf die Separation der Metallschmelze von der Schlackenschmelze auswirkt.

Eine Abschätzung des Sauerstoffpartialdruckes, also der Redox-Verhältnisse, unter denen sich die manganreichen Schlackenschmelzen in Fenan gebildet haben, ist aus deren Phasenbestand möglich. Hierzu wurden von den Proben polierte Dünnschliffe angefertigt, die lichtmikroskopisch im Auf- und Durchlicht sowie mit der Mikrosonde² untersucht wurden. Aus dem Schlibfbild zeigt sich nochmals sehr deutlich der Aufbau der Schlacken aus einzelnen Lagen bzw. Tropfen, die durch Abkühlungsänderungen scharf voneinander getrennt sind (Abb. 4). Sehr charakteristisch ist die Kristallisation von dendritischem Haus-

² Die Analysen wurden am Mineralogischen Institut der Ruhr-Universität Bochum an einer Mikrosonde der Fa. Cameca, Typ Camebax, durchgeführt.

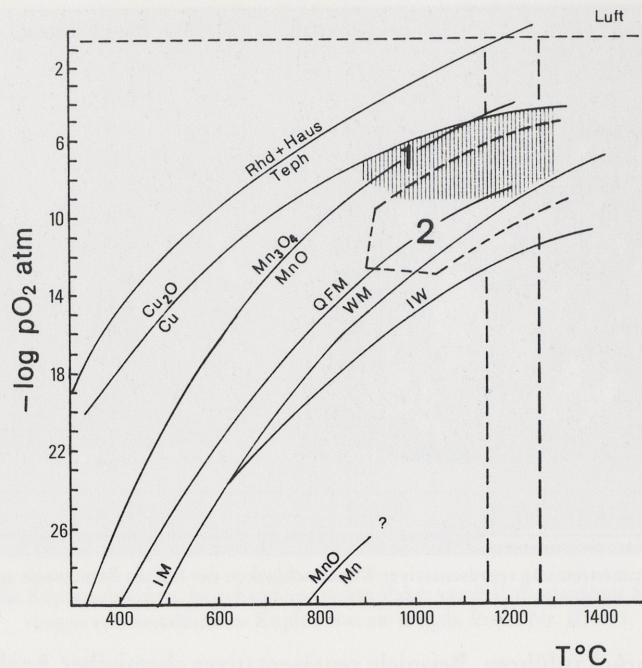


Abb. 3 Abgeschätzte pO_2/T -Bereiche manganreicher Kupferschlacken aus der frühen Bronzezeit von Fenan, dargestellt im pO_2/T -Diagramm der Systeme Mn-Si-O und Cu-O (1). – Zum Vergleich sind der Stabilitätsbereich eisenreicher Schlacken und relevante Puffergleichgewichte eingezeichnet (2). – Strichraster: geschätzte Arbeitstemperatur im Schmelzofen (nach Daten von Huebner u. Sato 1970; Abs-Wurbach et al. 1983; Eugster u. Wones 1962; Keesmann [in Vorbereitung]).

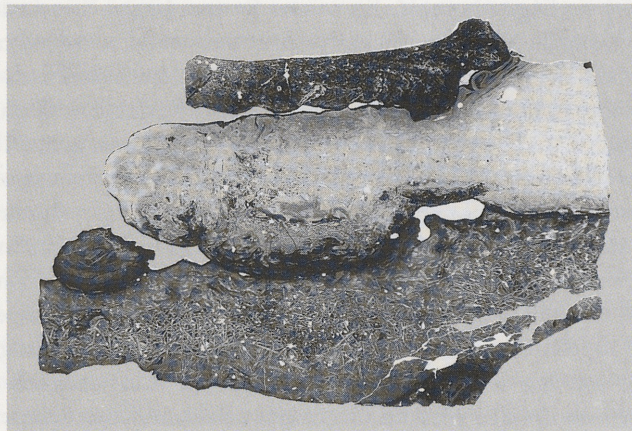


Abb. 4 Tropfenförmig übereinandergeflossene Schlackenpartien (Orientierung vertikal!) mit deutlich erkennbaren Abkühlungs-rändern dazwischen. Die Schlackentropfen sind randlich glasig erstarrt; zur Mitte hin Kristallisation von Mn-Olivin. Ras en-Naqab, Probe Nr. JD-5A/2b. Breite des Präparates: 2,7 cm.

mannit (Mn_3O_4), der in mm-dicken Säumen den Abkühlungs-rändern folgt und hier Bereiche höherer Sauerstoffpartialdrucke während der Erstarrung der Schlacken anzeigt (Abb. 5). Der innere Teil der Schlackentropfen besteht zum großen Teil aus Glas, in das Schlieren von mm-großen Kupfer- und Cuprittröpfchen (Cu_2O), stellenweise auch Hausmannit eingelagert sind. In wechselnden Anteilen ist skelettartig kristallisierter manganreicher Olivin («Tephroit») vorhanden, der oftmals Hauptbestandteil

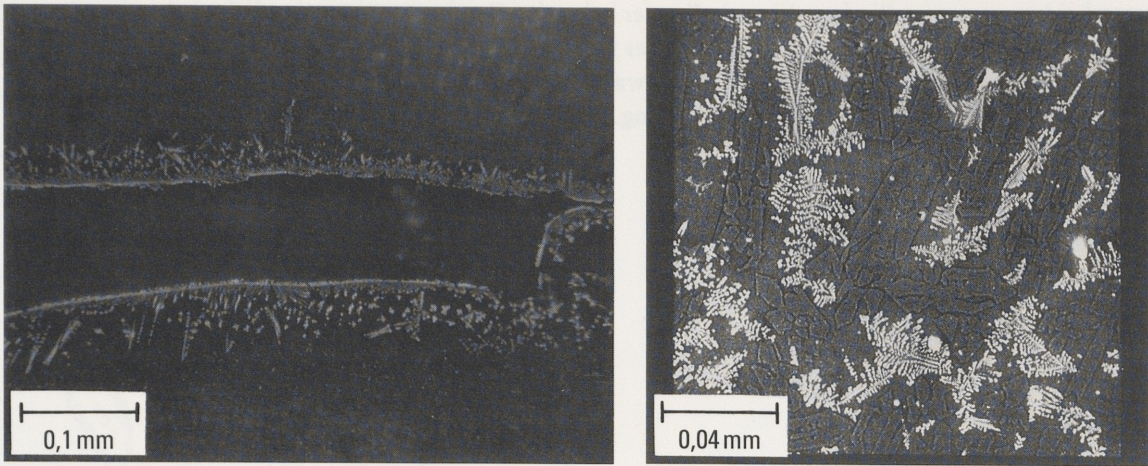


Abb. 5-6 5 Abkühlungsränder einzelner Schlackentropfen mit deutlich erkennbarer Kristallisation von Hausmannit-Dendriten bis in eine Eindringtiefe von etwa 0,5 mm. Ras en-Naqab, Probe Nr. JD-5A/2b. – 6 Skelettartig ausgebildete Mn-Olivine mit dendritischem Cuprit in den Zwickeln (Rest: Glas). Ras en-Naqab, Probe Nr. JD-5/1i.

ist (Abb. 6). Je nach Gesamtchemismus der Schlacke werden bis zu 5 Gew.-% CaO im Gitter substituiert.

Außerordentlich bezeichnend für die Prozeßrekonstruktion ist die Tatsache, daß Tephroit in den frühbronzezeitlichen Schlacken bis 2,9 Gew.-% CuO enthält (Tab. 2). Zusammen mit dem Nachweis von Cuprit in den Zwickelräumen der Kristalle ergibt sich hieraus, daß die beim Schmelzprozeß bis zur Liquidustemperatur erhitzten Schlacken unter ungewöhnlich schwach reduzierenden Bedingungen im Ofen vorlagen und erstarren.

Bei der Projektion dieser Paragenesen in die einfachen Systeme Mn-Si-O und Cu-O in Abhängigkeit von Temperatur und Sauerstoffpartialdruck zeigt sich, daß sich die Schlacken in einem Bereich von $pO_2 \sim 10^{-4} - 10^{-7}$ atm gebildet haben (Abb. 3) und damit den oberen Stabilitätsbereich tephroithaltiger Schmelzen erreichen. Das bedeutet, daß unter diesen Bedingungen eine Reduktion der eingesetzten Kupfererze gerade erreicht worden ist. Der Einsatz manganreicher Flußmittel als Schutzmaßnahme gegen eine unerwünschte Metallausfällung durch Überreduktion trifft hier nicht zu.

Die hier aus petrologischen Daten erfaßte Feuerführung unter relativ schwach reduzierenden Bedingungen ist im Ansatz mit den offen konstruierten Schmelzöfen von Fenan 9 vereinbar. Sie sollte aber von Schmelzverfahren in beginnenden Schachtöfen abgegrenzt werden, wie sie z. B. von Bamberger et al. (1986) auf der Basis archäologischer Befunde in Timna experimentell nachvollzogen worden sind. Die

	JD-1/1-7, Fenan 9	JD-5/1, Ras en-Naqab
SiO ₂	31.30	29.98
TiO ₂	0.08	n.n.
Al ₂ O ₃	1.49	0.90
FeO	4.75	1.26
MnO	54.57	53.73
MgO	0.55	4.85
CaO	2.86	3.30
BaO	1.15	0.50
CuO	n.n.	2.56
K ₂ O	0.50	0.31
Σ (Gew. %)	97.25	97.39

Mol bezogen auf 4 Sauerstoffatome		
Si	1.04	0.98
Al	0.06	0.03
Fe	0.13	0.03
Mn	1.54	1.48
Mg	0.03	0.24
Ca	0.10	0.12
Ba	0.01	0.01
Cu	–	0.06
K	0.02	0.01

Tab. 2 Chemische Zusammensetzung von Tephroit aus frühbronzezeitlichen Kupferschlacken.

Ausscheidung von metallischem Eisen in Kupfer belegt bei Bamberger einen deutlich niedrigeren Sauerstoffpartialdruck, der – in Berücksichtigung der nachgewiesenen Cu-Fe-Mischkristalle – bei den angewandten Ofentemperaturen ($\sim 1120^\circ\text{C}$) bei etwa $p\text{O}_2 \sim 10^{-11}$ atm gelegen haben sollte. Dies belegt eine wesentlich stärker reduzierende Prozeßführung, als sie in der frühen Bronzezeit in Fenan angewandt worden ist.

EVELYN KRAWCZYK · INGO KEESMANN

ERGÄNZENDE UNTERSUCHUNGEN ZUR KUPFERMETALLURGIE VON TIMNA IM WADI ARABAH, ISRAEL*

Einleitung

Im Süden des Wadi Arabah-Grabens (Israel) befinden sich einige der bedeutendsten Kupferverhüttungsplätze der Antike. Das Zentrum der metallurgischen Aktivitäten lag hier seit Beginn des Chalkolithikums im Timna-Tal (s. Abb. 1). Die mannigfaltigen Kupfervererzungen im Nubischen Sandstein wurden bereits im Chalkolithikum gezielt abgebaut und meist an Ort und Stelle verhüttet. Der antike Bergbau und die Verhüttung der Erze erfolgten bis in die islamische Zeit und hatten in Timna ihre Hauptphase in der späten Bronzezeit.

Die langjährigen und intensiven Forschungsarbeiten von B. Rothenberg und seiner Arbeitsgruppe seit den fünfziger Jahren führten zur Entdeckung von antiken Siedlungsplätzen und Bergwerken sowie verhüttungstechnischen Anlagen und Produkten. Zahlreiche Halden von Verhüttungsschlacke lassen heute die große metallurgische Bedeutung Timnas erahnen. Sie sind einer der Ansatzpunkte für die Rekonstruktion der Verhüttungsverfahren in der Antike.

Der Schwerpunkt der bisherigen Untersuchungen der Schlacken dieses Gebietes lag auf der Anwendung chemisch-analytischer und röntgendiffraktometrischer Arbeitstechniken (vergl. Bachmann 1980). Bei unseren ergänzenden Untersuchungen werden insbesondere optische Methoden und – darauf aufbauend – mikrochemische Verfahren (Elektronenstrahl-Mikrosonde, EMS) eingesetzt. Spezielle petrologische Interpretationen dieser Beobachtungen erfolgten mit Methoden, die aus Erfahrungen in vorangegangenen Untersuchungen entwickelt wurden. Für unsere Arbeiten stand Material einer umfassenden Aufsammlung von Schlacken und Verhüttungsresten einer flächendeckenden Prospektion zur Verfügung. Die Beobachtungen erfolgten zunächst unabhängig von einer absoluten und relativen zeitlichen Zuordnung.

* Diese Untersuchung geht auf die Diplomarbeit von E. Krawczyk (1986) zurück. Wir danken Herrn Prof. B. Rothenberg, London, für die Bereitstellung des Untersuchungsmaterials und die eingehende Diskussion der Ergebnisse.

Den Herren Dr. B. Schulz-Dobrick und Th. Kost, Institut für Geowissenschaften der Universität Mainz, möchten wir an dieser Stelle für ihre freundliche Mithilfe bei der chemischen Pauschal- und Mikroanalyse danken.