

*Departamento de Conservação e Restauro, Faculdade de Ciências e Tecnologia, Universidade NOVA de Lisboa
**Unidade de Investigação VICARTE – Vidro e Cerâmica para as Artes, Faculdade de Ciências e Tecnologia, Universidade NOVA de Lisboa
***CENIMAT/i3N, Faculdade de Ciências e Tecnologia, Universidade NOVA de Lisboa,
****C2TN - Centro de Ciências e Tecnologias Nucleares, Instituto Superior Técnico, Universidade de Lisboa

Os autores escrevem segundo o Acordo Ortográfico de 1945

Investigando depósitos argilosos, possíveis barreiros, associados a sítios arqueológicos calcolíticos na região de Lisboa

Rute Correia Chaves */**
João Pedro Veiga */**/**
António M. Monge Soares ****

Resumo A análise química, associada à análise mineralógica (e petrológica) de argilas, é bastante relevante pelo potencial que tem de poder, quando contrastada com a análise das pastas cerâmicas, determinar proveniências destas. O presente trabalho procura investigar possíveis fontes de argila que poderão ter sido utilizadas por oleiros de sítios arqueológicos calcolíticos da região de Lisboa, a partir de uma caracterização química e mineralógica dessas fontes. Consideraram-se os sítios arqueológicos de Vila Nova de São Pedro (Azambuja), Penedo do Lexim (Mafra), Espargueira e Baútas (Amadora). Foram amostradas argilas dentro de um raio de 5 km de cada um dos sítios. Recolheram-se 19 amostras de depósitos argilosos, possíveis barreiros, e ainda duas outras amostras de argila, uma utilizada na construção da muralha de Vila Nova de São Pedro e uma outra de “barro de cabana” no Penedo do Lexim. As amostras, após cozimento a 700 °C e subsequente moagem, foram analisadas através das técnicas de μ -EDXRF e DRX. Os resultados sugerem que as argilas do Penedo do Lexim, Espargueira e Baútas possam ter origem em rochas basálticas locais, indo de encontro ao facto de que estes sítios arqueológicos se encontram integrados na zona do Complexo Vulcânico de Lisboa, o que não acontece com a área de influência de Vila Nova de São Pedro, onde se encontram concentrações, em média, mais baixas de Al_2O_3 , SiO_2 , K_2O , TiO_2 e Fe_2O_3 , e mais altas de CaO , devendo estas estar associadas à presença de inclusões carbonatadas.

Chemical analysis, complemented with mineralogical (and petrological) analysis of clays, is very relevant due to its potential to determine the provenance of ceramics, when contrasted with ceramic pastes analysis. The present work aims to investigate potential sources of clay associated with Chalcolithic archaeological sites in the Lisbon region, based on a chemical and mineralogical characterization of clay deposits. The archaeological sites of Vila Nova de São Pedro (Azambuja), Penedo do Lexim (Mafra), Espargueira and Baútas (Amadora) were considered. Clay deposits were sampled within a 5 km radius from each archaeological site. A total of 19 samples were collected from clay deposits in addition to other two clay samples, one used in the construction of the inner wall of Vila Nova de São Pedro and the other from a Chalcolithic hut cover at Penedo do Lexim. Samples were heated to 700 °C, subsequently ground and finally analysed using μ -EDXRF and XRD techniques. Results suggest that clays from Penedo do Lexim, Espargueira and Baútas areas may have originated from basaltic rocks, matching with the fact that these archaeological sites are integrated in the area of the Lisbon Volcanic Complex. Samples from the Vila Nova de São Pedro area, which is located outside the Lisbon Volcanic Complex, have, on average, lower contents of Al_2O_3 , SiO_2 , K_2O , TiO_2 and Fe_2O_3 , and higher CaO, which may be associated with the presence of carbonated inclusions in clay samples.

1. Introdução

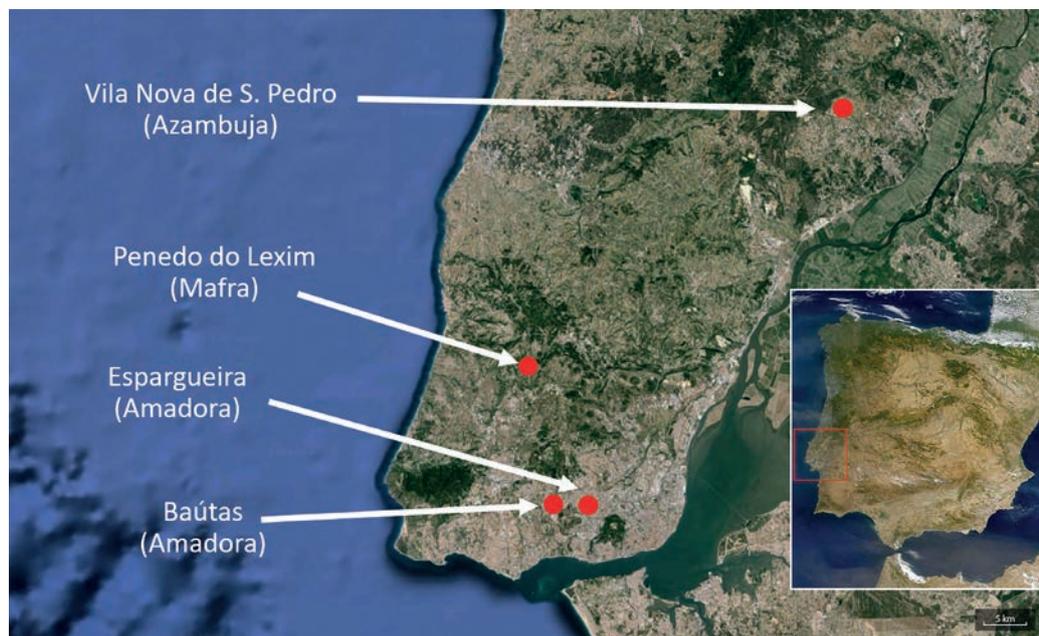
1.1. Estudos de proveniência

O estudo arqueométrico de cerâmicas, tendo por base a sua caracterização textural, química e mineralógica, é um campo ainda pouco utilizado em Portugal, nomeadamente no que se refere a cerâmicas pré-históricas (Amaro, 2011, p. 203). A análise química, que determina a composição elementar das argilas e pastas cerâmicas, torna-se bastante relevante, uma vez que tem o potencial de contribuir para determinar a proveniência das argilas usadas como matéria-prima na manufactura da cerâmica, contrastando as composições daquelas, recolhidas em depósitos argilosos de determinada região, com as das pastas cerâmicas em estudo. Embora este tipo de análise permita já produzir algumas inferências, contudo, para uma atribuição de proveniência com um maior grau de fiabilidade, é importante também a utilização da análise mineralógica e/ou petrológica, uma vez que os depósitos argilosos (barreiros) têm normalmente associados minerais que lhes são característicos, designadamente os resultantes da degradação da rocha que lhes deu origem. Esta comparação entre pastas e argilas faz-se habitualmente recorrendo à análise estatística, que se mostra muito versátil neste campo. É com base em estudos de proveniência deste tipo que os arqueólogos poderão delinear eventuais rotas comerciais da cerâmica ou, numa abrangência mais lata, inferir

as relações socioeconómicas existentes naquelas antigas comunidades.

O presente estudo centra-se na análise química e mineralógica de argilas recolhidas na zona envolvente de sítios arqueológicos calcolíticos da região de Lisboa para, posteriormente, os resultados obtidos poderem ser comparados com os de amostras de cerâmica desses mesmos locais. Os sítios escolhidos (Fig. 1) foram os povoados calcolíticos de Vila Nova de São Pedro (Azambuja), Penedo do Lexim (Mafra), Espargueira (Amadora) e Baútas (Amadora). Estudos baseados em casos etnográficos (Arnold, 1985; 2006) indiciam que, sobretudo em sociedades de nível tecnológico e socioeconómico menos complexos, como acontece na Pré-História, os recursos necessários à produção de cerâmicas (tanto argilas, como desengordurantes) seriam recolhidos a uma distância média inferior a 5 km do local de manufactura, não existindo a necessidade de percorrer longas distâncias, uma vez que, ao contrário de outras matérias-primas, as argilas são relativamente frequentes e de fácil acesso. Para se proceder a uma melhor comparação da composição química e mineralógica das argilas com as das pastas cerâmicas é necessário, conseqüentemente, cozer as amostras de argila, recorrendo a condições semelhantes às que terão sido utilizadas no fabrico das cerâmicas em causa, dado que, durante o cozimento, podem ocorrer transformações químicas e mineralógicas na matéria-prima utilizada (Norton, 1974; Rice, 1987; Santos, 1989; García, 1997; Trindade, 2007).

Fig. 1 – Península de Lisboa com a localização dos quatro sítios em estudo.



1.2. Argilas e sua composição

A definição química de argila diz-nos que esta se compõe de silicatos de alumínio hidratados, dado que a origem de qualquer sedimento argiloso se encontra na decomposição de feldspatos ou outros minerais aluminossilicatados de que resultam diferentes minerais (designados por argilominerais), como a caulinite ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{mSiO}_2) \cdot \text{nH}_2\text{O}$), ilite ($(\text{K}, \text{H}_3\text{O}) (\text{Al}, \text{Mg}, \text{Fe})_2 (\text{Si}, \text{Al})_4 \text{O}_{10} [(\text{OH})_2, (\text{H}_2\text{O})]$), esmectite ($\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{10} (\text{OH})_2 \cdot \text{nH}_2\text{O}$), clorite ($(\text{Mg}, \text{Fe})_3 (\text{Si}, \text{Al})_4 \text{O}_{10} (\text{OH})_2 \cdot (\text{Mg}, \text{Fe})_3 (\text{OH})_6$), montmorilonite ($(\text{Na}, \text{Ca})_{0,3} (\text{Al}, \text{Mg})_2 \text{Si}_4\text{O}_{10} (\text{OH})_2 \cdot \text{nH}_2\text{O}$) e vermiculite ($(\text{MgFe}, \text{Al})_3 (\text{Al}, \text{Si})_4 \text{O}_{10} (\text{OH})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) (Suguio, 2003). Contudo, deverá acrescentar-se que a palavra “argila” não tem só uma conotação petrológica, uma vez que o termo também é aplicado às dimensões das partículas sedimentares (em granulometria), quando têm um diâmetro inferior a 0,004 mm (Wentworth, 1922). Em Portugal, as argilas têm uma longa e importante tradição de exploração. No nosso território existem abundantes recursos de argilas, que ocorrem, na sua maioria, nas orlas meso-cenozóicas, mas também nas bacias hidrográficas interiores mais importantes (Lisboa, 2014, p. 137). Designam-se como “argilas comuns” dois grupos distintos, mas ambos podem ter sido utilizados pelos oleiros pré-históricos. De um lado, a argila habitualmente usada em olaria — uma pasta plástica de fácil modelação, com cores variadas (cinzenta a esverdeada, castanha ou castanha averme-

lhada), podendo incluir, além dos argilominerais já referidos (caulinite, ilite, esmectite, clorite, vermiculite e montmorilonite) também quartzo (SiO_2), feldspato ($(\text{K}, \text{Na}, \text{Ca}) (\text{Si}, \text{Al})_4 \text{O}_8$), mica (moscovite ($\text{KAl}_2 (\text{AlSi}_3\text{O}_{10}) (\text{F}, \text{OH})_2$) e biotite ($\text{K} (\text{Mg}, \text{Fe})_3 (\text{AlSi}_3\text{O}_{10}) (\text{F}, \text{OH})_2$)), óxidos e hidróxidos de ferro (hematite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$), goethite $\alpha\text{-Fe}^{3+}\text{O} (\text{OH})$), carbonatos (calcite (CaCO_3) e dolomite ($\text{CaMg} (\text{CO}_3)_2$), geralmente em teores baixos) e pirite (FeS_2). A argila de olaria possui teores considerados baixos de Al_2O_3 (15–25%) e baixos a médios de Fe_2O_3 (<10%). Do outro lado, a argila que hoje é usada para cerâmica de construção, isto é, para a designada indústria do barro vermelho, apresenta uma pasta mais grosseira, com grande quantidade de silte (granulometria menor do que a da areia, mas maior do que a da argila, entre 0,062 e 0,004 mm (Wentworth, 1922) e areia, com cores predominantes de vermelho a amarelo, de castanho e de cinzento. A percentagem de fração argilosa (tamanho de grão) desta argila pode ser baixa, mas é, no entanto, suficiente para permitir a plasticidade necessária para a moldagem cerâmica, pelo que a utilização deste tipo de argila na manufatura de artefactos cerâmicos pré-históricos não pode ser descartada *a priori*. A argila de construção possui, normalmente, teores mais elevados de SiO_2 , Fe_2O_3 , CaO e $\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$, do que a argila utilizada actualmente em olaria, podendo apresentar, na matriz, além de matéria orgânica, fragmentos grosseiros da rocha-mãe e/ou de outras rochas ou da rocha

encaixante do depósito, quando se trata de uma argila secundária (que sofreu transporte).

Com base num estudo de argilas, de norte a sul do país, concluiu-se que as argilas comuns exploradas em Portugal correspondem, na sua maioria, a sedimentos de carácter fluvial e estuarino (são, por conseguinte, argilas secundárias, uma vez que as primárias são aquelas que permanecem no local onde se originaram). A composição química da generalidade das argilas apresenta valores altos de sílica, baixos de alumina (inferiores a 20%) e, também, baixos de cálcio, magnésio e sódio. Quanto à composição mineralógica, esta pode ser dividida entre minerais argilosos (os já referidos argilominerais) e não argilosos. Entre os minerais argilosos, aparecem como principais a illite, a caulinite e, também, a esmectite, podendo os dois primeiros apresentarem-se interstratificados com a esmectite. A clorite também aparece em algumas das argilas. Menos frequentes são a vermiculite e minerais fibrosos como a paligorskite ($\text{Si}_8\text{Mg}_5\text{O}_{20}(\text{OH})_2(\text{OHH}^+)_4\cdot 4\text{H}_2\text{O}$) e a sepiolite ($\text{Mg}_4\text{Si}_6\text{O}_{15}(\text{OH})_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$). Entre os minerais não argilosos encontram-se o quartzo, feldspatos (maioritariamente feldspatos potássicos), oxihidróxidos de ferro e óxidos de titânio (geralmente vestigiais). Os carbonatos são minerais pouco frequentes nas argilas comuns em Portugal (Lisboa, 2014, p. 155).

Tendo em conta os locais em estudo e respectivo enquadramento geológico, que será apresentado a seguir, é expectável que as argilas ali recolhidas, designadamente as associadas aos sítios de Penedo do Lexim, Espargueira e Baútas possam derivar de rochas basálticas, dado que estes se inserem em pleno Complexo Vulcânico de Lisboa (CVL) (também designado por Manto Basáltico de Lisboa), o qual abrange uma área de cerca de 200 km², englobando Lisboa, Sintra, Mafra e Runa (Ramalho & *alii*, 1993, p. 39). Podem, no entanto, tal como as provenientes das proximidades de Vila Nova de São Pedro estarem “contaminadas” por fragmentos de rochas carbonatadas, uma vez que na região em que todos estes sítios se implantam são abundantes as rochas calcárias. Torna-se, assim, pertinente conhecer as rochas basálticas, a rocha vulcânica mais comum no CVL, bem como as calcárias. O basalto pertence à família das rochas ígneas, ou seja, aquelas que resultam da consolidação do magma aquando do seu arrefecimento próximo da superfície (rochas extrusivas/vulcânicas). O basalto possui

composição máfica, isto é, rica em silicatos de magnésio e ferro. Possui, geralmente, 45-55% de sílica (SiO_2), enquanto 65% do volume da rocha, pelo menos, é constituído por feldspato na forma de plagioclase ((Na, Ca) Al (Si, Al) Si_2O_6) e menos de 10% por minerais feldspatóides. A meteorização química desta rocha consiste, na sua maior parte, na meteorização de aluminossilicatos de magnésio e cálcio. Por seu lado, o sideromelano, o vidro basáltico, altera-se em contacto com a água, transformando-se num material designado por palagonite, antes de decair finalmente em esmectite (argilomineral já anteriormente referido), pelo que poderá ser esperada a sua presença nas argilas de origem basáltica. Um estudo levado a cabo, com mais de 3000 amostras de basaltos, mostra que a composição química comum destes é de aproximadamente 49,97% de SiO_2 ; 1,87% de TiO_2 ; 15,99% de Al_2O_3 ; 3,85% de Fe_2O_3 ; 0,20% de MnO; 9,62% de CaO; 2,96% de Na_2O ; 1,12% de K_2O e 0,35% de P_2O_5 (Maitre, 1976).

Por fim, algumas observações sumárias sobre as rochas carbonatadas, vulgares na região de Lisboa, e que, devido à meteorização que podem sofrer e ao possível transporte sofrido pelas argilas, poderão “contaminar” ou ter “contaminado” as argilas dos depósitos aí existentes. As rochas carbonatadas pertencem à família das rochas sedimentares. As principais são o calcário (composto predominantemente por calcite – CaCO_3) e o dolomito (composto pela dolomite – $\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$) (Suguio, 2003). Os minerais constituintes das rochas carbonatadas são, na sua maioria, minerais carbonatados, como a calcite, a aragonite (com fórmula química igual à da calcite, mas metaestável e mais solúvel do que esta) e a dolomite ou, até, a anquerite ($\text{Ca}(\text{Fe}, \text{Mg}, \text{Mn})(\text{CO}_3)_2$) e a siderite (FeCO_3); como impurezas aparecem minerais siliciosos como quartzo, feldspato e illite (mineral argiloso que constitui a impureza predominante das rochas carbonatadas); minerais evaporíticos, como gesso ($\text{CaSO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$), anhidrite (CaSO_4) e halite (NaCl) e, ainda, outros constituintes menores como a glauconite (K, Na) (Fe^{3+} , Al, Mg)₂(Si, Al)₄O₁₀(OH)₂ e a pirite (FeS_2). O calcário puro possui 95 a 100% de calcite, enquanto a argila pura 0 a 5% de calcite. Entre estes dois tipos de rochas sedimentares, existe uma gama variável de composições, que encontram o seu centro nas margas, uma mistura de argila e carbonato, com 35 a 65% de calcite.

1.3. Enquadramentos geomorfológicos dos sítios arqueológicos em causa

1.3.1. Vila Nova de São Pedro

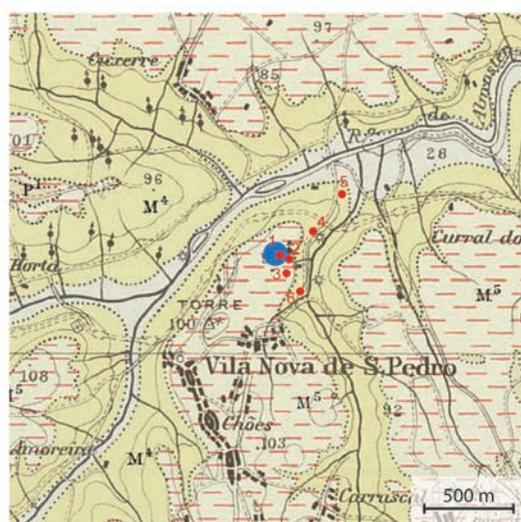
Vila Nova de São Pedro (VNSP) é um dos mais importantes e conhecidos sítios arqueológicos calcolíticos da região de Lisboa, extensamente escavado ao longo de cerca de três décadas, desde 1937 (Arnaud & Fernandes, 2005, p. 141), e com outras intervenções de campo mais recentes (Diniz & alii, 2015). Localiza-se na parte nordeste do concelho de Azambuja, a cerca de 100 m de altitude (Fig. 2) e a cerca de 55 km de Lisboa. A colina onde se implanta encontra-se rodeada, em parte, pela ribeira de Almoester.

O sítio arqueológico e zona envolvente encontram-se assentes num planalto de calcários do Miocénico e Pliocénico, com pequenas zonas do Quaternário nas proximidades (Fig. 3). A área onde se implanta o povoado corresponde a calcários, grés e argilas com *Hipparion gracile* de Azambujeira (M⁵), onde, além dos calcários de bancada, surgem calcários macios ou “tufos” de corte fácil (Zbyszewski, 1953, p. 14). Por sua vez, essa área encontra-se rodeada por calcários, grés e argilas com vertebrados da Quinta do Marmelal e camadas com *Crassostrea cremíssima* de Calhariz e de Alcanhão (M⁴). Assim, nas proximidades de VNSP ocorrem áreas propícias à captação de matérias-primas, designadamente argilas (AAP, 2020). A

Fig. 2 – Vista geral do sítio arqueológico de Vila Nova de São Pedro, reconstrução 3D. Fonte: Google Earth, acedido a 19 de Novembro de 2020.



Fig. 3 – Excerto da Carta Geológica de Portugal, Folha 31-A (Santarém), com a localização de VNSP no centro, a azul, e os locais de amostragem de argilas, a vermelho.



Nota Explicativa da Folha 31-A (Santarém) da Carta Geológica de Portugal (Zbyszewski, 1953, p. 13) menciona ainda que teriam sido recolhidas argilas para olaria contemporânea na zona de Cruz do Campo (P¹), situada a cerca de 12 km de VNSP. Na Fig. 3, encontram-se assinalados os locais de colheita de amostras de argila para este trabalho.

1.3.2. Penedo do Lexim

O Penedo do Lexim (PL), no concelho de

Mafra, é um sítio arqueológico também bastante estudado (Sousa, 2010), com estratigrafia bem definida. Localiza-se na margem direita da Ribeira de Cheleiros, entre a Ribeira da Mata e a Ribeira da Laje, a uma altitude de 223 m (Fig. 4) e a cerca de 30 km de Lisboa.

O designado Penedo do Lexim constitui uma das antigas chaminés vulcânicas do CVL (Briha & alii, 1998). A área específica, onde se implanta este sítio arqueológico (ver Fig. 5), constitui, por conseguinte, o resíduo de uma antiga chaminé monolítica de rocha basáltica



Fig. 4 – Vista geral do sítio arqueológico de Penedo do Lexim, reconstrução 3D. Fonte: Google Earth, acessido a 19 de Novembro de 2020.

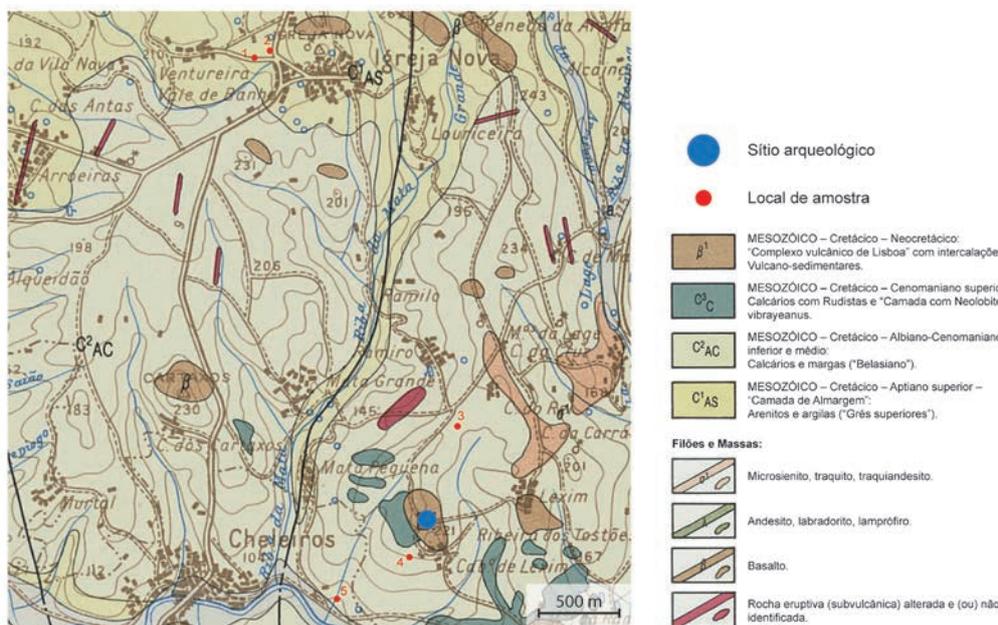


Fig. 5 – Excerto da Carta Geológica de Portugal, Folha 34-A (Sintra), com a localização de PL no centro, a azul, e os locais de amostragem de argilas, a vermelho.

(onde se podem identificar basaltos alcalinos, traquibasaltos, traquitos e riólitos), contrastando com o substrato envolvente constituído por rochas sedimentares, entre elas calcários e margas do “Belasiano” (C²AC), bem como arenitos e argilas (C¹AS - “Grés superiores”). Na Fig. 5, encontram-se assinalados os locais onde se procedeu à colheita de amostras de argila.

1.3.3. Espargueira e Baútas

Espargueira (EPR) e Baútas (BAT) são dois povoados calcolíticos localizados no concelho da Amadora, a cerca de 200 m de altitude, que distam entre si apenas 600 m (Fig. 6). No entanto, têm

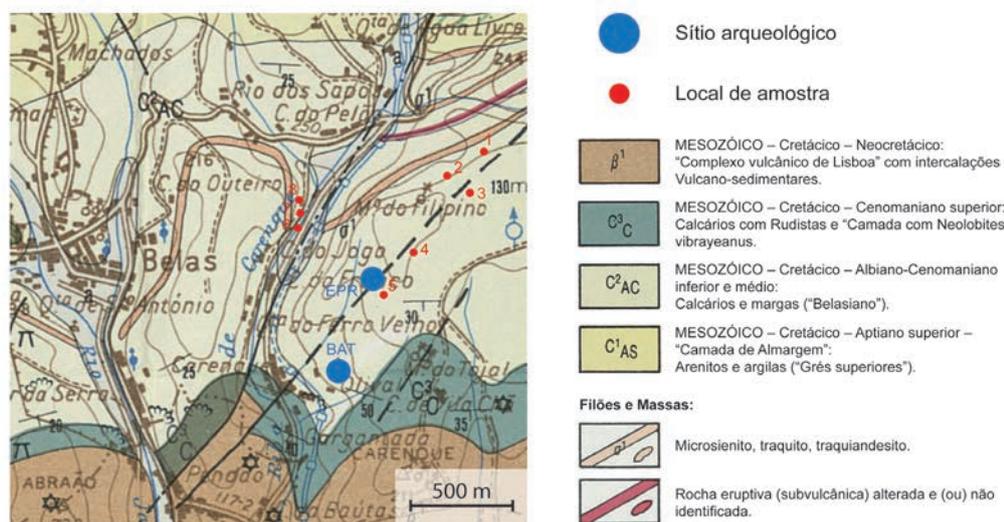
o vale da Ribeira de Carenque a separá-los. Situam-se a cerca de 13 km de Lisboa.

O substrato geológico desta zona (Fig. 7) é constituído por uma sequência de rochas calcárias e margas pertencentes ao Albiano (C²AC), sobrepostas por calcários com Rudistas e *Neolobites vibrayenus*, do Cenomaniano (C³C), sobrepostos, por sua vez, pelas intercalações vulcano-sedimentares do CVL (β¹). A Nota Explicativa da Carta Geológica de Portugal, Folha 34-A (Sintra) (Ramalho & alii, 1993, p. 17), faz referência a correntes fluviais que arrastaram sedimentos de noroeste para este e sudeste, trazendo para a zona areias arcósicas (com feldspatos bem conservados e rolados). Ao longo deste percurso, a

Fig. 6 – Vista geral dos sítios arqueológicos de Espargueira e Baútas, reconstrução 3D. Fonte: Google Earth, acedido a 19 de Novembro de 2020.



Fig. 7 – Excerto da Carta Geológica de Portugal, Folha 34-A (Sintra), com a localização de EPR e BAT no centro, a azul, e os locais de amostragem de argilas, a vermelho.



ribeira de Carenque atravessa, entre outros, as camadas C¹Be e o C¹Ba (referentes, respetivamente, ao Berriasiano, e Berriasiano Superior, com feldspatos, quartzo e mica), e C¹As (datável do Aptiano Superior), com feldspatos bem conservados e rolados, sedimentos arenosos que vai depositando ao longo do seu percurso, sendo uma fonte viável de desengordurantes (Pais & *alii*, 2006; Ramalho & *alii*, 1993; 2001; Manuppella & *alii*, 2011). Nas proximidades encontram-se filões e massas de rochas eruptivas alteradas, designadamente microssienitos, traquitos e traquiandesitos, que constituem elementos do cimento basáltico (Ramalho & *alii*, 1993). Assinalam-se na Fig. 7 os locais de amostragem de argilas.

2. Materiais

2.1. Argilas amostradas

Foram recolhidas 21 amostras de mate-

rial argiloso. Para proceder à amostragem foram escolhidas 19 zonas de existência de solos argilosos e/ou margosos dentro de um raio de 5 km de cada sítio arqueológico em estudo. Numa recolha deste tipo há que ter em conta que, por vezes, os depósitos argilosos podem ser de difícil ou quase impossível amostragem, uma vez que nos podemos deparar com terrenos florestados, campos agrícolas, zonas privadas e, até mesmo, urbanizações. As amostras recolhidas foram extraídas diretamente do solo ou de uma camada argilosa exposta por um corte no terreno. Recolheu-se, em cada amostragem, uma quantidade de cerca de 20 g de material argiloso. Antes da recolha, foi realizada uma remoção da camada de argila mais exposta, para procurar obter uma amostra mais “pura”, livre de elementos mais grosseiros ou vegetais, próprios das camadas mais expostas (Fig. 8).

Foram ainda obtidas duas outras amostras de argila, uma que foi usada como ligante das pedras que constituem a muralha interna



Fig. 8 – Fotografias do processo de recolha de amostras, efetuadas nos vários locais em estudo.

Ref. da amostra	Descrição	Geologia
Vila Nova de São Pedro		
ArgVNSP	Argamassa utilizada na ligação das pedras constituintes da muralha de VNSP	Muito provavelmente obtida no local onde se implantou a muralha (M ⁵)
BarrVNSP-1	Terra rossa do interior do recinto muralhado de VNSP	Calcários, grés e argilas com “ <i>Hipparion gracile</i> ” de Azambujeira (M ⁵)
BarrVNSP-2	Amostra recolhida na mina de água junto ao recinto	Idem
BarrVNSP-3	Amostra de um material muito branco recolhido na encosta onde se situa o povoado, no exterior deste	Idem
BarrVNSP-4	Amostra amarelada recolhida na base da encosta onde se situa o povoado	Calcários, grés e argilas com vertebrados da Quinta do Marmelal e camadas com <i>Crassostrea crassissima</i> de Calhariz e de Alcanhões (M ⁴)
BarrVNSP-5	Amostra recolhida junto à Ribeira de Almoester	Idem
BarrVNSP-6	Amostra com inclusões de aspecto micáceo	Idem
Penedo do Lexim		
ArgPL	Revestimento de cabana	Muito provavelmente obtida no local onde se implantou o povoado
BarrPL-1	Amostra recolhida na zona de Igreja Nova	Arenitos e argilas (“Grés superiores”)
BarrPL-2	Amostra recolhida na zona de Igreja Nova	Idem
BarrPL-3	Amostra de cor escura recolhida num campo agrícola	Calcários e margas (“Belasiano”)
BarrPL-4	Amostra recolhida num terreno que, pelos vestígios arqueológicos nele registados, poderá ter sido frequentado por elementos de uma comunidade pré-histórica	Idem
BarrPL-5	Amostra recolhida junto ao rio Lizandro	Idem
Espargueira e Baútas		
BarrEPR/BAT-1	Amostra amarelada recolhida na zona do Moinho do Filipino	Calcários e margas (“Belasiano”)
BarrEPR/BAT-2	Amostra branca recolhida na zona do Moinho do Filipino	Idem
BarrEPR/BAT-3	Terra rossa de cor muito carregada recolhida na zona do Moinho do Filipino	Idem
BarrEPR/BAT-4	Amostra recolhida na encosta da Espargueira, junto a uma antiga linha de água	Idem
BarrEPR/BAT-5	Amostra rosada recolhida no fundo da encosta da Espargueira	Idem
BarrEPR/BAT 6	Amostra recolhida na zona do Pego Longo	Idem
BarrEPR/BAT 7	Amostra recolhida na zona do Pego Longo	Idem
BarrEPR/BAT 8	Amostra recolhida na zona do Pego Longo	Idem

Quadro 1 – Amostras de argila recolhidas.

de VNSP (ArgVNSP) e a outra como revestimento de cabana (“barro de cabana”) no Penedo do Lexim (ArgPL). A descrição sumária e a proveniência de cada amostra e respetiva designação são apresentadas no Quadro 1.

2.2. Cozimento das argilas

O processo de cozimento de argilas em tempos pré-históricos só pode ser inferido mediante a análise de vários factores relacionados, entre eles a própria composição da amostra, a temperatura atingida, a atmosfera de cozedura e a duração do ciclo de cozedura. Sendo estes factores impossíveis de precisar e, tendo em atenção que em tempos pré-históricos o cozimento seria muito pouco controlado, pode-se então recorrer a testes designados como de “temperatura de cozimento equivalente” (“*equivalent firing temperature*”: Rice, 1987, p. 435), testes estes que pretendem mimetizar as condições de cozedura da cerâmica. Abordagens deste tipo não pretendem ser muito precisas visto que a variabilidade é muito alta, mas sim direccionar a pesquisa para condições prováveis de terem ocorrido. Uma das abordagens, designadamente aquela levada a cabo neste trabalho, consiste em cozer matérias-primas que se julguem semelhantes às usadas para a manufatura das cerâmicas arqueológicas em estudo (Tite, 1995, p. 37). Assim, pode perceber-se, através das análises de FRX e DRX, que composições químicas e fases mineralógicas estão ou não presentes nas amostras de argila e, posteriormente, que diferenças eventualmente existem relativamente às das amostras das pastas cerâmicas.

Assim, de cada amostra de argila recolhida no campo foi separada uma quantidade de cerca de 5 g para ser cozida, como forma de “mimetizar” a pasta (argila cozida) das cerâmicas que teriam sido obtidas com aquela argila. Alguns estudos apontam para que o cozimento das cerâmicas do calcolítico seria efetuado a uma temperatura não superior a 700 °C (Amaro & Anunciação, 2013, p. 66). Seria também esta a temperatura máxima que se estima a que chegariam as chamadas “soengas” do Calcolítico. As designadas “soengas” consistem em fornos no solo em que a temperatura e a atmosfera de cozimento não eram controladas com precisão, realizando-se normalmente em atmosfera pouco oxidante, uma vez que as peças seriam tapadas com restos de cerâmica, terra e madeira (fragmentos de ramos e troncos) (Rice, 1987). Ao contrário do que sucede com os fornos cobertos (frequentes a partir do período romano), onde a obtenção da temperatura de cozimento é demorada, no caso dos “fornos” abertos pré-históricos, o facto de as cerâmicas estarem em contacto direto com o fogo, permitia obter temperaturas “altas” (entre 450 a

700 °C) em pouco tempo, sendo 1 hora tempo suficiente de cozedura na maioria dos casos (Gibson & Woods, 1997, p. 27). Tendo em conta estes dados, foi realizado, no nosso caso, uma mimetização do cozimento calcólítico de argilas fazendo uso de um ciclo de cozimento que consistiu numa rampa de subida de temperatura de 8 horas até serem atingidos os 700 °C, em atmosfera oxidante, ficando durante 1 hora em pátamar, a esta temperatura. De seguida, a temperatura desceu até à temperatura ambiente numa rampa de 9 horas.

3. Métodos de análise

3.1. Análise por μ -EDXRF

A caracterização química permite tanto identificar como quantificar os elementos químicos presentes nas amostras. Esta análise foi realizada através da micro-fluorescência de raios X dispersiva de energias (μ -EDXRF) com um espectrómetro ARTAX 800, equipado com uma âmpola de molibdénio, com potencial máximo de 50 kV, intensidade máxima de corrente de 1 mA e potência máxima de 30 W. O feixe incidente possui um diâmetro de ca. 70 μ m. O detetor é um semicondutor de silício com uma resolução de 160 eV a 5,9 keV. O braço articulado do equipamento encontra-se equipado com uma câmara de vídeo e um laser de diodo vermelho, o que permite não só a escolha da área a analisar, mas também fixar a distância correta do detetor à superfície em análise. A interpretação dos espectros obtidos é efetuada por meio de um computador acoplado ao equipamento, através do programa ArtTAX Spectra Software. O equipamento permite detectar e quantificar os elementos compreendidos entre o alumínio e o urânio, inclusive.

A análise foi efetuada em pastilhas de pó comprimido. Para a sua realização, foram recolhidos 1–2 g de cada amostra de argila, após o cozimento já referido. A moagem foi feita em moinho elétrico de esferas de ágata, durante pelo menos 45 minutos a 450 rpm, até à obtenção de um pó com uma granulometria < 63 μ m, inferior às dimensões do diâmetro do feixe de raios X utilizado. Deste modo, procurou-se minimizar a possibilidade de incidência do feixe sobre uma inclusão de dimensão superior à do diâmetro do feixe. Para a obtenção da pastilha foi utilizada uma prensa de alta pressão Specac, onde

se introduziram cerca de 300 mg de pó a uma pressão de 10 ton, durante 5 minutos. Antes de efectuar cada análise, as pastilhas foram secas durante 2 horas a 140 °C, a fim de evitar a interferência da humidade nos resultados a obter. Em cada pastilha foram realizadas três medições em pontos distintos, com as seguintes condições de análise: atmosfera de hélio, voltagem de 40 kV, corrente de 600 μ A, tempo de aquisição de 300 s. A desconvolução dos espectros foi realizada com recurso ao programa WinAxil e a quantificação com o programa WinFund. Para a calibração foi usada uma pastilha do padrão NIST Brick Clay SRM 679, tratada da mesma forma que as amostras. O erro associado ao resultado da análise é inferior a 6% para os óxidos de silício, ferro, alumínio, cálcio, potássio, titânio e zinco, inferior a 11% para o de manganês, e entre 20% e 40% para os restantes elementos.

3.2. Análise por DRX

A caracterização mineralógica foi feita através da análise por difração de raios X (DRX), o que permite identificar fases cristalinas não visíveis nas ampliações normalmente utilizadas no microscópio petrográfico, como sejam os minerais argilosos associados à matriz plástica ou outras fases que eventualmente se formem durante o processo de cozedura ou durante o período em que as cerâmicas estiveram enterradas. A unificação da componente plástica (argila) e da componente não-plástica (inclusões) foi conseguida através da transformação da amostra num pó fino, no nosso caso, o mesmo utilizado na análise de μ -EDXRF. Os difractogramas foram obtidos através de um difractómetro Rigaku Dmax III-C 3 kW (Rigaku Corporation, Tokyo Japan), que utiliza a radiação de $\text{CuK}\alpha$ com uma voltagem de 40 kV, intensidade de corrente de 30 mA, espaçamento em 2θ de 0,04° e com um tempo de contagem de 1 s por passo. O intervalo de análise foi de 10 a 65° 2θ . A análise dos difractogramas (interpretação e identificação das fases cristalinas) foi feita por comparação com a literatura e o Database of Raman spectra, X-ray diffraction and chemistry data for minerals - RRUFF [<http://rruff.info/>], além do software DIFFRAC.EVA (Eva, Bruker AXS GmbH, Karlsruhe, Germany). Nesta análise há que ter em conta que a identificação das fases cristalinas só é possível quando a sua concentração é superior a 2%.

4. Resultados

4.1. Resultados da análise química

No Quadro 2 são apresentados os valores de concentração (m/m) obtidos a partir das concentrações elementares após conversão para a forma de óxido, expressos em percentagem para os elementos maiores e menores, e em ppm para os elementos traço.

4.2. Resultados da análise mineralógica

A Fig. 9 apresenta uma sobreposição de todos os difratogramas resultantes da análise das pastas por DRX, permitindo uma rápida comparação entre a composição mineralógica das mesmas, isto é, permitindo verificar as semelhanças e diferenças entre as diversas amostras. No Quadro 3 estão indicadas as fases mineralógicas identificadas e semiquantificadas por esta técnica nas amostras em estudo.

que se localizam próximo dos povoados em causa, a uma distância não superior a 5 km, é possível que algumas das amostras recolhidas sejam representativas ou, pelo menos, tenham uma composição química e mineralógica similar à da argila ou argilas utilizadas pelos oleiros pré-históricos desses sítios.

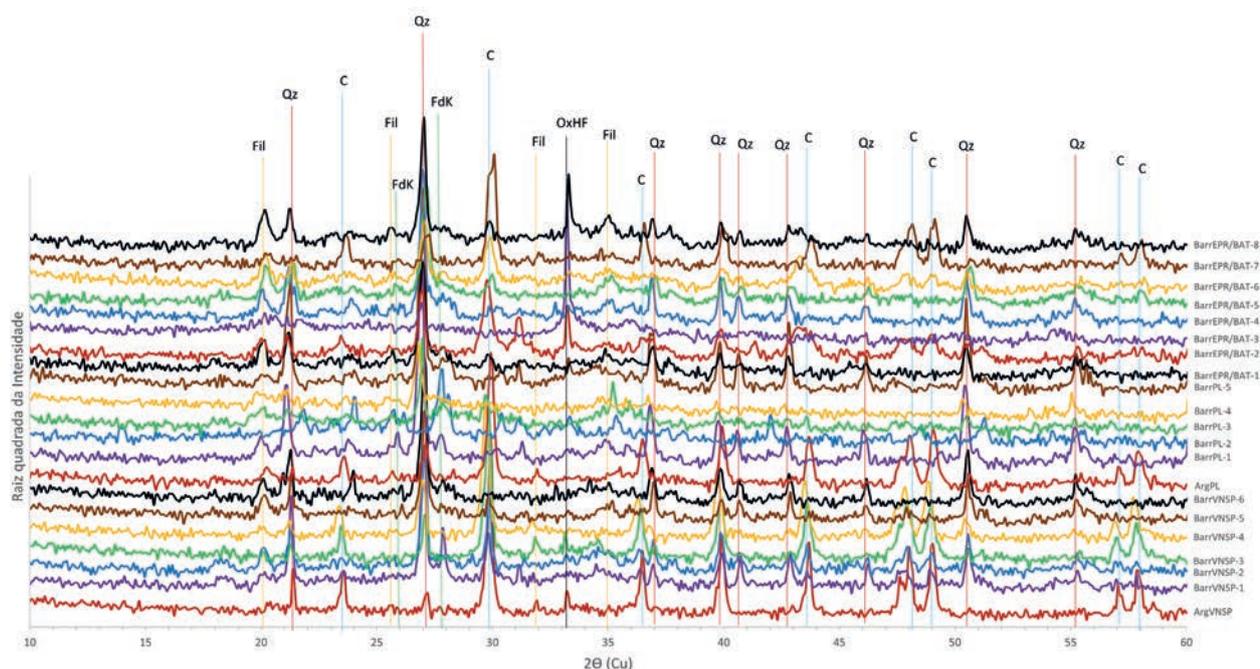
Os resultados obtidos das análises realizadas permitem, dividir as amostras em três grupos tendo por base os teores de CaO: 1) amostras com um teor de CaO > 60%, 2) com um teor entre 15 e 60% e 3) com um teor de CaO < 15%. Dentro do primeiro grupo (CaO > 60%) encontram-se quatro amostras (Quadro 2, "*"). Duas delas (ArgVNSP e BarVNSP-3), que parecem constituir, até pelo aspecto macroscópico, o mesmo material, possuem valores de CaO de 83,5%. Além destas, as outras duas são a BarVNSP-4, com um teor de CaO de 67%, e BarEPR/BAT-7, com 61,5%. Valores tão altos de CaO são apenas compatíveis com calcários e calcários margosos, onde o componente principal é a calcite, cuja percentagem de CaO será sempre superior a 56% (Sampaio & Almeida, 2008). A análise mineralógica efectuada vai de encontro a este facto, uma vez que a fase mineralógica predominante neste grupo é a calcite, que se apresenta em todas as quatro amostras "muito abundante" (Quadro 3, "*").

Fig. 9 – Sobreposição dos difratogramas adquiridos para as 21 amostras de argila analisadas por DRX.

Qz – Quartzo;
C – Calcite;
FdK – Feldspato Potássico;
Fil – Filossilatos;
OxHF – Oxi-Hidróxidos de Ferro.

5. Discussão

Uma vez que tanto M^5 e M^4 (VNSP), como C^1_{AS} e C^2_{AC} (PL, EPR e BAT), constituem formações geológicas onde se encontram depósitos de argilas



VNSP	% (m/m)						ppm							
	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	Fe ₂ O ₃	Cr ₂ O ₃	MnO	CoO	ZnO	Rb ₂ O	SrO	Ce ₂ O ₃	ThO ₂
ArgVNSP*	1.68	7.70	0.73	83.5	0.18	1.26	40	230	5	135	37	66	100	21
σ	0.3	1.1	0.11	4.95	0.01	0.07	0	28	1	21	5	10	14	3
BarVNSP-1**	13.4	59.0	2.50	20.5	0.44	4.15	58	205	10	133	85	34	110	11
σ	0.7	2.8	0.00	0.71	0.15	0.35	4	35	1	52	2	4	28	2
BarVNSP-2**	13.6	45.0	2.45	31.5	1.05	5.50	95	325	12	170	89	40	145	11
σ	1.4	0.0	0.21	4.95	0.49	1.27	7	35	5	28	22	4	7	6
BarVNSP-3*	1.58	8.50	0.79	83.5	0.15	0.84	31	110	2	105	19	59	85	23
σ	0.2	0.4	0.04	6.36	0.07	0.03	2	14	0	7	1	2	3	3
BarVNSP-4*	6.10	22.0	1.31	67.0	0.32	3.45	60	110	7	100	53	63	110	21
σ	0.1	4.2	0.04	4.24	0.05	0.35	0	0	2	0	11	15	3	1
BarVNSP-5	15.0	54.0	2.50	8.30	0.50	4.35	76	495	11	170	96	29	130	8
σ	0.6	4.2	0.00	2.69	0.08	0.49	6	78	1	57	7	1	57	1
BarVNSP-6	15.2	72.5	3.10	0.57	1.10	3.80	61	400	10	160	108	41	145	9
σ	1.1	2.1	0.85	0.09	0.14	0.57	0	85	0	0	23	4	49	2
MÉDIA	9.5	38.4	1.91	42.1	0.53	3.34	60	268	8	139	70	47	118	15
PL	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	Fe ₂ O ₃	Cr ₂ O ₃	MnO	CoO	ZnO	Rb ₂ O	SrO	Ce ₂ O ₃	ThO ₂
ArgPL**	9.05	28.0	2.30	52.0	0.53	5.00	110	390	10	140	112	300	119	22
σ	1.1	1.4	0.14	1.41	0.11	0.42	14	28	1	0	25	42	2	1
BarPL-1	17.4	72.5	3.15	0.39	1.20	3.30	70	390	8	98	92	56	170	6
σ	0.1	2.1	0.07	0.03	0.00	0.57	29	141	2	6	18	3	14	1
BarPL-2	29.5	48.0	3.00	1.75	4.10	2.90	100	165	6	22	42	48	350	7
σ	0.7	1.4	0.14	0.21	0.14	0.57	0	21	1	1	4	3	14	0
BarPL-3	13.7	47.5	1.80	11.8	2.15	11.6	685	0	29	155	83	140	220	17
σ	0.2	0.7	0.00	1.98	0.64	1.41	78	0	3	7	12	16	141	1
BarPL-4	19.0	51.0	2.85	4.90	1.80	9.10	200	0	23	150	98	64	150	10
σ	0.0	0.0	0.07	0.28	0.28	0.42	0	0	1	42	18	2	0	4
BarPL-5	10.2	73.5	1.95	6.20	0.89	3.55	54	490	9	180	36	94	120	7
σ	1.3	0.7	0.21	0.71	0.16	0.07	11	99	1	42	8	21	0	0
MÉDIA	16.5	53.4	2.51	12.8	1.78	5.91	203	239	14	124	77	117	188	12
EPR/BAT	Al ₂ O ₃	SiO ₂	K ₂ O	CaO	TiO ₂	Fe ₂ O ₃	Cr ₂ O ₃	MnO	CoO	ZnO	Rb ₂ O	SrO	Ce ₂ O ₃	ThO ₂
BarEPR/BAT-1	24.0	57.0	3.85	4.75	0.75	5.40	115	360	13	225	165	106	155	9
σ	0.0	1.4	0.49	1.63	0.00	0.42	7	99	0	7	7	13	21	1
BarEPR/BAT-2**	8.40	25.0	2.30	34.5	0.30	3.65	60	825	8	73	102	1125	92	14
σ	0.8	1.4	0.00	3.54	0.01	0.35	14	106	1	14	6	106	5	0
BarEPR/BAT-3	29.5	47.0	0.67	1.07	1.25	13.3	275	350	36	110	73	60	99	19
σ	0.7	1.4	0.02	0.04	0.07	0.64	7	71	0	5	1	5	2	3
BarEPR/BAT-4	19.5	63.5	3.30	0.78	0.73	5.25	75	1550	13	155	142	180	115	7
σ	0.7	2.1	0.14	0.28	0.01	0.49	7	71	1	7	6	14	21	1
BarEPR/BAT-5	20.5	59.0	3.55	9.10	0.65	6.75	110	465	17	295	175	235	106	9
σ	0.7	2.8	0.35	3.54	0.01	0.07	14	7	1	7	21	7	20	1
BarEPR/BAT-6	9.50	26.0	2.25	12.0	0.30	2.79	48	465	6	55	67	145	58	5
σ	6.1	15.6	1.77	4.95	0.26	2.71	45	417	6	49	61	135	37	3
BarEPR/BAT-7*	8.60	23.0	2.45	61.5	0.34	4.50	50	1300	11	125	125	255	110	17
σ	1.4	1.4	0.21	3.54	0.01	0.28	0	0	0	7	8	21	1	2
BarEPR/BAT-8	18.3	54.5	4.60	8.40	0.67	4.40	88	420	11	108	165	101	105	9
	2.4	6.4	0.57	1.98	0.19	1.27	17	57	2	17	21	17	21	0
MÉDIA	17.3	44.4	2.87	16.5	0.62	5.75	103	717	14	143	127	276	105	11

Quadro 2 –
Concentrações
médias dos óxidos
determinadas
nas amostras de
argila recolhidas
na proximidade
dos vários sítios
arqueológicos.

Quadro 3 – Análise mineralógica das amostras:
xxx – muito abundante;
xx – abundante;
x – presente;
v – vestígios;
nd – não detectado.

	Quartzo	Ilite e filossilicatos	Calcite	Feldspato K	Oxi-Hidroxidos de Ferro	
VNSP	ArgVNSP *	x	x	xxx	nd	x
	BarVNSP-1**	xx	x	x	x	v
	BarVNSP-2**	xx	x	x	x	v
	BarVNSP-3 *	x	x	xxx	nd	x
	BarVNSP-4 *	x	x	xxx	nd	v
	BarVNSP-5	xx	x	x	x	v
	BarVNSP-6	xx	x	nd	x	v
PL	ArgPL	x	x	xx	v	v
	BarPL-1 **	xx	x	nd	x	v
	BarPL-2	x	nd	nd	xx	v
	BarPL-3	xx	x	x	x	nd
	BarPL-4	xx	x	nd	v	v
	BarPL-5	xx	x	v	x	x
EPR/ BAT	BarEPR/ BAT-1	xx	x	v	x	nd
	BarEPR/ BAT-2 **	x	x	xx	x	x
	BarEPR/ BAT-3	x	x	nd	v	xx
	BarEPR/ BAT-4	xx	x	nd	x	v
	BarEPR/ BAT-5	xx	x	x	x	v
	BarEPR/ BAT-6	xx	x	x	x	v
	BarEPR/ BAT-7 *	x	x	xxx	nd	v
	BarEPR/ BAT-8	xx	x	x	x	x

Neste grupo, em todas as amostras, mesmo na amostra BarEPR/BAT-7, que é a que possui menor concentração de CaO e que não se associa a VNSP, mas aos sítios EPR e BAT, não foi identificado qualquer feldspato através da análise por DRX, indiciando, de igual modo, que as amostras não são de argilas, mas sim de calcários. Por isso, estas quatro amostras não mais serão tratadas nesta discussão.

Dentro do segundo grupo ("**" nos Quadros 2 e 3) ($15\% < \text{CaO} < 60\%$), constituindo as designadas argilas calcárias, encontram-se também quatro amostras. Três delas têm teores de CaO entre 20 e 35% (BarVNSP-1, BarVNSP-2 e BarEPR/BAT-2), enquanto a única amostra de PL que integra este grupo, a ArgPL, tem uma concentração de 52%. Entre todas, apenas BarVNSP-1 apresenta teores que se assemelham aos de pastas consideradas calcíticas (no contexto de pastas

cerâmicas), uma vez que se consideram pastas calcíticas aquelas que apresentam teores entre 11 e 14% de Al_2O_3 , entre 44 e 59% de SiO_2 e entre 16 e 28% de CaO (Molera, Pradell & Vendrell-Saz, 1998; Mirti, 1998). Verifica-se também, através da análise mineralógica (Quadro 3), que a calcite se apresenta neste grupo com predominância em duas amostras, enquanto o quartzo é predominante nas outras duas, sendo que o feldspato ocorre em todas elas, embora na ArgPL seja vestigial.

Por fim, dentro do grupo de argilas não-calcárias encontram-se todas as restantes 13 amostras (nos Quadros 2 e 3), com uma gama de teores de CaO de 0,39% a 12%. Neste grupo, em algumas amostras foi identificada calcite, em baixa quantidade, noutras apenas vestigialmente, e ainda noutras não foi identificada. O quartzo assume-se aqui como fase mineralógica predominante em todas as

amostras deste grupo à exceção de BarPL-2, que tem como fase predominante o feldspato. Todas as outras amostras apresentam feldspato em alguma quantidade, embora em BarPL-4 e BarEPR/BAT-3 este ocorra apenas vestigialmente.

Se se observar o Quadro 2 verifica-se que as concentrações obtidas para cada óxido, para as amostras associadas à região de cada sítio arqueológico, apresentam grande variabilidade. Nas amostras de VNSP, mesmo excluindo as amostras de calcário atrás referidas, encontram-se, no geral, concentrações médias mais baixas de Al_2O_3 , TiO_2 e Fe_2O_3 , e mais altas de CaO, do que nos outros locais amostrados (Quadro 4).

Os valores das composições médias tornam-se agora mais semelhantes entre si em comparação com os obtidos no Quadro 2. Ainda assim, o teor médio de CaO é mais alto para VNSP, o que indica uma maior contribuição das rochas calcárias para a composição das argilas amostradas desta região. Por outro lado, os teores médios dos óxidos dos elementos maiores correspondentes a PL e EPR/BAT, aproximam-se, em média, mais dos valores da composição das rochas basálticas, isto é, respetivamente, 50,19% para 49,97% (SiO_2); 17,57% para 15,99% (Al_2O_3); 11,36% para 9,62% (CaO); 5,92% em contraste com 3,85% de Fe_2O_3 ; 2,74% em contraste com 1,12% de K_2O e 1,18% em contraste com 1,87% de TiO_2 . Deste modo, tal como era expectável, infere-se que as composições químicas das argilas amostradas na região abrangida pelo Complexo Vulcânico de Lisboa indiciam que estas argilas terão resultado, predominantemente, da decomposição de rochas basálticas.

Contudo, parece haver um padrão que se repete na generalidade das amostras de qualquer um dos sítios — quando os valores de CaO descem, os valores de Al_2O_3 , SiO_2 , K_2O , TiO_2 e Fe_2O_3 sobem, e vice-versa, mostrando mais uma vez a importância e independência daquele primeiro óxido. Deverá notar-se que os valores de CaO são especialmente relevantes quando olhamos para as transformações que ocorrem nos minerais durante o ciclo de cozedura, uma vez que os produtos resultantes dessas transformações dependem sobretudo da composição inicial, em particular da presença de carbonatos.

Sítio	Al_2O_3	SiO_2	K_2O	CaO	TiO_2	Fe_2O_3
VNNSP	14,29	57,63	2,64	15,22	0,77	4,45
PL	16,46	53,42	2,51	12,84	1,78	5,91
EPR/BAT	18,53	47,43	2,93	10,09	0,66	5,93

Para além disso, as concentrações de CaO que as argilas possam apresentar são também importantes na medida em que, quanto maior a percentagem de CaO presente, menor é a temperatura de fusão. À medida que a temperatura sobe ocorre a destruição de certos minerais e a criação de novas fases, através de modificações físicas, normalmente irreversíveis, que tornam o objeto sólido e cada vez mais resistente, num processo a que, nas cerâmicas e em outros materiais sólidos, se chama de sinterização (Ouahabi & alii, 2015; Trindade, 2007, p. 15).

Existem alguns casos particulares nas amostras analisadas para os quais valerá a pena chamar a atenção. Assim, a amostra BarVNNSP-6 destaca-se por possuir um teor de CaO muito menor e de SiO_2 muito superior ao da amostra de argila BarVNNSP-5, embora ambas tenham como fase mineralógica principal o quartzo. A primeira é aquela amostra de argila com inclusões de aspecto micáceo (ver Quadro 1), isto é, em que se observam macroscopicamente filossilicatos (aparentemente micas), que foram também identificados pela análise mineralógica. Por outro lado, a amostra BarPL-1 apresenta teores de CaO e SiO_2 muito semelhantes, quando não idênticos, aos da amostra BarVNNSP-6, mas nesta não se observam as inclusões de aspecto micáceo, embora filossilicatos tenham sido identificados na análise por DRX, o que indicará origens diferentes para estas duas argilas, isto é, terão sido formadas a partir de diferentes rochas.

Em EPR e BAT, abrangidos pelo Complexo Vulcânico de Lisboa, a maioria das amostras parecem possuir composições muito semelhantes com a composição de uma argila de origem basáltica. Há, no entanto, amostras com concentrações altas de CaO, como BarEPR/BAT-2, que apresenta composição algo coincidente com a de pastas calcíticas. Destaca-se ainda o facto de BarEPR/BAT-3, de tom vermelho muito carregado, ser aquela que apresenta o teor de Fe_2O_3 mais elevado de todo o grupo de amostras analisadas. De facto, a fase predominante identi-

Quadro 4 – Valores médios dos teores dos óxidos dos elementos maiores e menores das argilas amostradas.

ficada pela análise mineralógica é a correspondente aos oxi-hidróxidos de ferro. Uma vez que as cores das argilas dependem principalmente das suas composições químicas, aqui a presença de ferro faz-se notar particularmente através do tom vermelho carregado (Shepard, 1976).

A ilite (um filossilicato, muito semelhante à moscovite, por vezes referida como “mica hidratada”, uma vez que é estruturalmente semelhante à mica, mas com menos potássio e mais água) e/ou outros filossilicatos aparecem também em todas as amostras à exceção de BarPL-2, que possui como fase principal feldspato potássico, mineral também presente em todas as amostras de argila analisadas.

6. Conclusões

Após ter sido realizada a análise química por μ -EDXRF, podemos identificar como elementos maiores Si, Al, Fe, Ca, Ti e K, e elementos traço Mn, Ce, Sr, Zn, Cr, Rb, Th e Co. Com base nas análises efectuadas podem dividir-se as amostras em três grupos: 1) amostras com concentrações de CaO superiores a 60% cuja fase mineralógica principal é a calcite, revelando-se como calcários muito meteorizados, mas não como argilas; 2) amostras com um teor de CaO entre 15 e 60%, onde é identificada também a calcite em proporção apreciável, mas que, em algumas, o quartzo já é a fase mineralógica predominante, podendo classificar-se este grupo como de argilas calcárias; por fim 3) argilas não calcárias, que constituem a maior parte das amostras recolhidas, as quais apresentam um teor de CaO < 15%, onde o quartzo se constitui como fase mineralógica principal, para além de o feldspato potássico estar sempre presente.

Embora se tenha encontrado grande variabilidade nas composições das argilas analisadas, percebem-se algumas tendências — as argilas de PL, EPR e BAT, sugerem uma origem basáltica indo ao encontro do facto de que estes sítios arqueológicos se encontram integrados na área do Complexo Vulcânico de Lisboa, o que não acontece com a área de influência de VNSP. Assim, as amostras de argila associadas a VNSP, apresentam,

em média, teores mais baixos de Al_2O_3 , SiO_2 , K_2O , TiO_2 e Fe_2O_3 , e mais altos de CaO em comparação com os anteriores. Esses teores mais altos de CaO deverão estar associados à presença de inclusões carbonatadas nas argilas, devido à forte presença de calcários nas áreas onde existem os depósitos argilosos amostrados. Por outro lado, os resultados da análise mineralógica, através da DRX, identificaram e semi-quantificaram os minerais quartzo, calcite, ilite e outros filossilicatos, feldspato potássico e oxi-hidróxidos de ferro nas amostras analisadas, permitindo uma melhor caracterização dos depósitos argilosos situados em áreas próximas dos sítios arqueológicos calcolíticos considerados e que poderão, eventualmente, ter fornecido a matéria-prima utilizada pelos oleiros daquelas comunidades.

É importante referir a importância que os estudos arqueométricos têm, principalmente em contextos como este, do Calcolítico da região de Lisboa, por existirem poucos casos que tenham por objetivo a caracterização não só de cerâmica como de argilas locais. Os dados aqui obtidos contribuem, por isso, para o incremento e desenvolvimento de bases de dados referentes à cerâmica arqueológica pré-histórica.

Agradecimentos

O presente trabalho insere-se no Plano de Tese de Doutoramento de Rute Correia Chaves, intitulado “Cerâmica calcolítica da região de Lisboa: caracterização arqueométrica de cerâmica pré-histórica”, a qual agradece à Fundação para a Ciência e Tecnologia a bolsa PD/BD/114409. A preparação das amostras foi feita no Centro de Ciências e Tecnologias Nucleares (C2TN) do Instituto Superior Técnico, enquanto as análises de μ -EDXRF foram efectuadas no Laboratório Científico do Departamento de Conservação e Restauro e as de DRX no CENIMAT (Faculdade de Ciências e Tecnologia, Universidade Nova de Lisboa), pelo que se agradece a disponibilização dos equipamentos utilizados. Agradece-se, também, a António Gonzalez e à Doutora Ana Catarina de Sousa as informações e o apoio prestado na recolha de campo das amostras.

Bibliografia citada

- AMARO, Gonçalo (2011) – Continuidade e evolução nas cerâmicas calcolíticas da estremadura: um estudo arqueométrico das cerâmicas do Zambujal. *Estudos Arqueológicos de Oeiras*. 18, pp. 201–233.
- AMARO, Gonçalo; ANUNCIACÃO, Carlos (2013) – Tentativa de compreensão da cadeia operatória de produção de cerâmicas campaniformes através de métodos experimentais: exemplo baseado no estudo das peças do povoado calcolítico do Zambujal e da necrópole da Cova da Moura (Torres Vedras, Portugal). *Al-Madan*. Série II. 17, pp. 59–68.
- ARNAUD, José; FERNANDES, Carla Varela, eds. (2005) – *Construindo a memória: as coleções do Museu Arqueológico do Carmo*. Lisboa. Associação dos Arqueólogos Portugueses.
- ARNOLD, Dean (1985) – *Ceramics, theory and cultural process*. Cambridge: Cambridge University Press.
- BRILHA, José; BRAGA, Maria Amália Sequeira; PROUST, Dominique; DUDOIGNON, Patrick (1998) – A disjunção colunar na chaminé vulcânica de Penedo de Lexim (Complexo Vulcânico de Lisboa): morfologia e gênese. *Comunicações do Instituto Geológico e Mineiro*. 84:1, B.164–B.167.
- DINIZ, Mariana; MARTINS, Andrea; NEVES, César; ARNAUD, José (2015) – Vila Nova de São Pedro De novo do 3.º milénio: um projeto para o Futuro. *Arqueologia e História*. 66–67, pp.7–18.
- GARCÍA HERAS, Manuel (1997) – *Caracterización arqueométrica de la producción cerámica numantina*. Tesis de doctorado. Madrid: Universidad Complutense.
- GIBSON, Alex; WOODS, Ann (1997) – *Prehistoric pottery for the archaeologists*. Leicester: Leicester University Press.
- LISBOA, João (2014) – Argilas comuns em Portugal Continental: ocorrência e características. In DINIS, Pedro; GOMES, Alberto; Monteiro, Sérgio, eds. – *Proveniência de materiais geológicos: abordagens sobre o Quaternário de Portugal*. Coimbra: Associação Portuguesa para o Estudo do Quaternário. 2:1, pp. 135–164.
- MAITRE, Roger (1976) – The chemical variability of some common igneous rocks. *Journal of Petrology*. 17, pp. 589–598.
- MANUPPELLA, Giuseppe; FERREIRA, António de Brum; DINIS, Jorge; CALLAPEZ, Pedro; PAIS, João; REBÊLO, Luis Pina; CABRAL, João; MONIZ, Catarina; BAPTISTA, Rui; HENRIQUES, Paulo; FALÉ, Patrícia; LOURENÇO, Carla; SAMPAIO, José Eduardo; MIDÕES, Carla; ZBYSZEWSKI, Georges; MONIZ, Catarina; RIBEIRO, Maria Luísa (2011) – *Carta Geológica de Portugal. Notícia explicativa da folha 34-B: Loures*. Lisboa: Laboratório Nacional de Engenharia e Geologia.
- MIRTI, Piero (1998) – On the use of colour coordinates to evaluate firing temperatures of ancient pottery. *Archaeometry*. 40:1, pp. 45–57.
- MOLERA MARIMON, Judit; PRADELL CARA, Trinitat; VENDRELL SAZ, Màrius (1998) – The colour of ca-rich ceramic pastes: origin and characterization. *Applied Clay Science*. 13, pp. 187–202.
- NORTON, Frederick (1974) – *Elements of ceramics*. Reading, MA: Addison-Wesley Pub. Co.
- OUAHABI, Meriam; DAOUDI, Lahcen; HATERT, Frédéric; FAGEL, Nathalie (2015) – Modified mineral phases during clay ceramic firing. *Clays and Clay Minerals*. 63:5, pp. 404–413.
- PAIS, João; MONIZ, Catarina; CABRAL, João; CARDOSO, João Luís; LEGOINHA, Paulo Alexandre; MACHADO, Susana; MORAIS, M. A.; LOURENÇO, Carla; RIBEIRO, Maria Luísa; HENRIQUES, Paulo; FALÉ, Patrícia (2006) – *Carta Geológica de Portugal: notícia explicativa da folha 34-D Lisboa*. Lisboa: Departamento de Geologia. Instituto Nacional de Engenharia. Tecnologia e Inovação.
- RAMALHO, Miguel de Magalhães; PAIS, João; REY, Jacques; BERTHOU, Pierre-Yves; ALVES, Carlos Alberto de Matos; PALÁCIOS, Teresa; LEAL, Nuno; KULLBERG, Maria Carla (1993) – *Carta Geológica de Portugal: notícia explicativa da folha 34-A Sintra*. Lisboa: Serviços Geológicos de Portugal.
- RAMALHO, Miguel; REY, Jacques; ZBYSZEWSKI, Georges; ALVES, Carlos Alberto de Matos; PALÁCIOS, Teresa; ALMEIDA, Fernando Moitinho de; COSTA, Carlos; KULLBERG, Maria Carla (2001) – *Carta Geológica de Portugal: notícia explicativa da folha 34-C Cascais*. Lisboa: Departamento de Geologia. Instituto Nacional de Engenharia, Tecnologia e Inovação.
- RICE, Prudence (1987) – *Pottery Analysis: a sourcebook*. Chicago, IL; London: The University of Chicago Press.
- SANTOS, Persio (1989) – *Ciência e tecnologia de argilas. Vol. 1 (2.ª edição)*. São Paulo: Edgard Blücher.
- SHEPARD, Ann (1976) – *Ceramics for the Archaeologist*. Carnegie Institution of Washington. Braun-Brumfield. Washington D.C.
- SOUSA, Ana Catarina (2010) – *O Penedo do Lexim e a Sequência do Neolítico Final e Calcolítico da Península de Lisboa*. Tese de doutoramento. História (Pré-História). Universidade de Lisboa, Faculdade de Letras.
- SUGUIO, Kenitiro (2003) – *Geologia sedimentar*. São Paulo: Editora Blucher.
- TITE, Michael (1995) – Firing temperature determinations: How and why?. In LINDAHL, Anders; STILBORG, Ole, eds. – *The aim of laboratory analyses of ceramics in archaeology: April 7-9 1995 in Lund Sweden in Honour of Birgitta Hulthen*. Stockholm: Coronet Books Inc, pp. 37–42.

TRINDADE, Maria José (2007) – *Geoquímica e mineralogia de argilas da bacia algarvia transformações térmicas*. Tese de doutoramento. Departamento de Geociências. Universidade de Aveiro.

VNSP.ARQUEOLOGOS. Disponível em < <https://vnsparqueologos.pt/localizacao/> > Acesso em 20 de Agosto de 2020.

WENTWORTH, Chester (1922) – A scale of grade and class terms for clastic sediments. *The Journal of Geology*. 5:30, pp. 377–392.

ZBYSZEWSKI, Georges (1953) – *Carta Geológica de Portugal: notícia explicativa da folha 31-A Santa-rém*. Lisboa: Serviços Geológicos de Portugal.