

# MATERIALE TEGULARE ROMANE DE LA SARMIZEGETUSA

## (2) CARACTERISTICI MINERALOGICE ȘI FIZICE ALE MATERIEI PRIME

### TEGULAR MATERIALS FROM SARMIZEGETUSA –

## (2) MINERALOGICAL AND PHYSICAL CHARACTERISTICS

### OF THE RAW MATERIAL

MARCEL BENEĂ\* MARIA GOREA, NICOLAE HAR

Universitatea "Babeș-Bolyai", Str. M. Kogălniceanu nr.1, 400084, Cluj-Napoca

Într-o lucrare anterioară [1], un număr de 17 fragmente ceramice romane (cărămizi și țigle) de la Sarmizegetusa au fost analizate în vederea stabilirii caracteristicilor fizice și a parametrilor tratamentului termic. Prezenta lucrare intenționează să răspundă unei întrebări frecvente în arheologie: care au fost materiile prime utilizate pentru confecționarea materialelor tegulare romane? În acest scop au fost analizate șase probe de argilă colectate din diferite puncte din apropierea fostei capitale a Provinciei romane Dacia. Interpretarea difracțiilor de raze X efectuate pe probele de argilă naturală, precum și pe fracția argiloasă fină ( $< 2 \mu\text{m}$ ) a pus în evidență o compoziție mineralogică relativ simplă: caolină, smectit/vermiculit, cuarț, feldspați calcosodici (albit-anortit), feldspați potasici (microclin), illit, miche, clorite, calcit și hematit. Microscopia electronică cu baleiaj a permis ilustrarea morfologiei plăcuțelor de caolină. Compoziția mineralogică și chimică, precum și proprietățile mecanice au permis separarea a trei tipuri de argilă: (1) argilă plastică, (2) argilă nisipoasă și (3) argilă bogată în carbonați. Principalele caracteristici determinate recomandă argilele plastice ca materie primă pentru ceramică. Pentru a verifica această ipoteză, s-au analizat compoziția mineralogică (prin difracție de raze X și microscopie optică) și caracteristicile tehnologice ale argilei plastice, caolinice, tratată termic la 800°, 850°, 900° și 950° C. Culoarea brun-roșcată, absorbția de apă (12,82–13,89 %), densitatea (1,95–2,00 g/cm<sup>3</sup>) și porozitatea aparentă (25,61–27,16 %) sunt foarte asemănătoare cu cele ale cărămizilor și țiglelor romane studiate anterior. Aceasta ar însemna că aceeași sursă de argilă a putut fi utilizată la obținerea oricărui tip de ceramică, în funcție de modul de fasonare și de parametri de ardere.

In a previous work [1], 17 Roman ceramic fragments (bricks and tiles) from Sarmizegetusa were analysed for emphasizing some physical characteristics and thermal treatment parameters. The present study intends to answer a very frequent archaeological question: which are the raw materials used for manufacturing the Roman ceramic tegular materials? In this respect, six samples of clays from different locations in the vicinity of the former capital of the Roman Province Dacia were analysed. The interpretation of the X-ray diffraction patterns of the bulk clay samples and of the fine clay fraction ( $< 2 \mu\text{m}$ ) evidences a relatively simple mineralogical composition: kaolinite, smectite/vermiculite, quartz, Ca-Na feldspars (albite-anorthite), K-feldspars (microcline), illite, micas, chlorites, calcite and hematite. Scanning electron microscopy allowed illustrating the well-shaped kaolinite plates. The mineralogical and chemical composition, as well as the mechanical properties allowed separating three different clay types: (1) plastic clay, (2) sandy clay and (3) carbonate-rich clay. The main characteristics recommend the plastic clay as the proper raw material for ceramics. To verify, the mineralogical composition (by using XRD and optical microscopy), and the technical characteristics of the plastic, kaolinic clay, after thermal treatment at 800°, 850°, 900° and 950° C, were analysed. The brown-reddish colour after firing, the water adsorption (12.82–13.89 %), density (1.95–2.00 g/cm<sup>3</sup>) and apparent porosity (25.61–27.16 %) are very similar to the previous studied Roman bricks and tiles. This means that the same clay source could have been used for obtaining any type of ceramics, following specific shaping and firing patterns.

**Keywords:** clays, mineralogical and physical analyses, Roman ceramics, Sarmizegetusa

### 1. Introducere

Compoziția mineralogică și proprietățile argilelor reprezintă caracteristici importante utilizate în diferite domenii (geologice, tehnologice și arheologice). Abundența și ușurința exploatarei argilelor a permis utilizarea acestora ca materie primă ieftină pentru materiale de construcții. Totodată, lucrabilitatea ușoară face posibilă obținerea de produse solide de diverse forme care, prin ardere, dobândesc rezistență mecanică ridicată și bune calități izolante [2, 3].

### 1. Introduction

The mineralogical composition and the mechanical properties of clays are very important features in a variety of geological, technological, and archaeological applications. The abundance and easiness of clay mining allowed it to be used as inexpensive raw material for building materials. Additionally, the handy clay processing procedures allowed obtaining variously shaped solid products that, after firing, gained high mechanical strength and good insulating properties [2, 3].

\* Autor corespondent/Corresponding author,  
+40 264.405300/5217, E-mail: marcel.benea@ubbcluj.ro

Studiul de față vizează materiile prime argiloase din diferite puncte în jurul locației Ulpia Traiana Sarmizegetusa (fosta capitală a Provinciei romane Dacia) care ar fi putut fi utilizate la obținerea de produse ceramice pentru materiale de construcții (cărămizi, țigle). S-au colectat un număr de șase probe de argilă care au fost analizate prin difracție de raze X, chimic și granulometric. Din argila caolinitică s-au confecționat epruvete care au fost tratate termic la 800°, 850°, 900° și 950° C în vederea determinării compoziției mineralogice și caracteristicilor tehnologice. Scopul a fost de a compara rezultatele cu cele obținute anterior pe materialele tegulare analizate [1] și a stabili dacă argilele luate în studiu ar fi putut fi sursă de materie primă pentru produse ceramice.

## 2. Determinări experimentale

Diagramele de difracție de raze X, pe intervalul 2°–70° 2θ, au fost obținute cu un difractometru Philips PW 1710, geometrie Bragg-Brentano, anticatod de Cu ( $\lambda = 1,54060$ , 45kV, 40 mA) și monocromator de grafit. În urma metodologiei clasice de pregătire a probelor (utilizarea de compuși chimici, tratament cu ultrasunete, proceduri de dispersie/antifloculare, concentrarea fracției argiloase prin centrifugare și sedimentare, prepararea de probe naturale și orientate, saturare în cationi, metode de expandare/deshidratare) s-au obținut mai multe diagrame de difracție RX pentru fiecare probă de argilă. Pentru o mai bună dispersie și analiză a fracției argiloase fine, restul din probele netratate (fracția < 2 μm) a fost uscat prin congelare într-un dispozitiv Hetosic FD3, apoi măcinat și analizat prin difracție de raze X pe intervalul 2°–70° 2θ și 58°–64° 2θ ("step-scan", utilizând timpi de măsurare mai lungi și factor de mărime redus) în vederea identificării reflexelor (060). Componentii minerali au fost identificați pe baza reflexelor din difracțiile de raze X [4]. Microscopia electronică cu baleiaj, utilizând un microscop Philips XL30 ESEM a permis ilustrarea morfologiei plăcuțelor de caolin.

Compoziția chimică a argilelor s-a determinat prin metode clasice, pe cale umedă, prin evaluarea cantitativă a oxizilor.

Distribuția granulometrică a probelor naturale s-a obținut prin sitare, iar pentru fracția argiloasă fină (< 2 μm) s-a utilizat un aparat Sedigraph 5000 ET.

Pentru o mai bună caracterizare și în vederea comparării cu materialele tegulare (cărămizi și țigle) analizate anterior, din probele de argilă s-au confecționat epruvete ce au fost apoi arse la 800°, 850°, 900° și 950° C. Din epruvetele arse s-au realizat secțiuni subțiri (< 25 μm) care au fost analizate optic în lumină transmisă utilizând un microscop polarizant Nikon Eclipse E200. Compoziția mineralogică a argilelor arse a fost

The present study focused on the clayey raw material from different locations around Ulpia Traiana Sarmizegetusa (the former capital of the Roman Province Dacia) which could have been used to obtain ceramics as building materials (e.g. bricks and tiles). A number of six clay samples were collected and analysed by using X-ray diffraction, chemical analysis and particle size distribution. Specimen samples were shaped from the identified kaolinitic clay, thermal treated at 800°, 850°, 900° and 950° C and analysed in order to establish the mineralogical composition and physical properties. The aim was to compare the results with those of the previously analysed tegular material [1] and to establish if the studied clays could be used as raw material for ceramic materials.

## 2. Experimental

The X-ray diffraction (XRD) patterns (2°–70° 2θ) were obtained by using a Philips PW 1710 diffractometer equipped with Bragg-Brentano geometry, Cu-anticathode ( $\lambda = 1.54060$ , 45kV, 40 mA), and graphite monochromator. Following a well-established pre-treatment methodology (use of chemicals, ultrasonic treatment, dispersion procedures, clay mineral concentration by centrifugation and sedimentation, oriented and random powder preparation, cation saturation, expansion/dehydration methods), several XRD patterns were obtained from each sample. For a better redispersion and analysis of the fine clay fraction, the rest of the untreated samples (< 2 μm fraction) was dried by freezing in a Hetosic FD3 device, then ground and analysed by XRD between 2°–70° 2θ and 58°–64° 2θ (step-scan procedures using long count times and small scale factor) in order to identify the (060) reflections. The mineral phases were identified based on the X-ray diffraction patterns [4]. Scanning electron microscopy (SEM), using a Philips XL30 ESEM allowed to illustrate the well-shaped kaolinite plates.

The chemical composition of the clays was obtained by using the classical wet chemistry method, the main oxides being quantified.

The grain size distribution of the bulk clay samples was obtained by sieving; for the clay fraction itself (< 2 μm) a Sedigraph 5000 ET device was used.

For a better characterization and in order to compare with the previously analysed tegular material (bricks and tiles), the clay samples were thermally treated at 800°, 850°, 900° and 950° C. The test specimens (thin sections < 25 μm thick) were analysed by transmitted light optical microscopy on a Nikon Eclipse E200 polarising microscope. The mineralogical composition of the fired clays was also investigated by XRD.

determinată și prin difracție de raze X.

Densitatea aparentă, capacitatea de absorbție și porozitatea aparentă au fost determinate prin metoda lui Arhimede, după saturare în apă, prin fierbere.

### 3. Rezultate și discuții

#### 3.1. Compoziția mineralogică a argilelor analizate

Interpretarea difractogramelor probelor din argilă naturală (fig. 1) și ale fracției argiloase fine (< 2 μm) (fig. 2) a dus la identificarea următoarelor faze minerale: caolin, illit/muscovit, smectit/vermiculit, feldspați, cuarț, clorite, calcit și hematit. Liniile din intervalul 59,917–62,218 2θ au fost atribuite, pe baza reflexelor (060) (tabelul 1 și fig. 3) vermiculitului și smectitelor.

Microscopia electronică cu baleiaj (SEM) a permis ilustrarea morfologiei plăcuțelor de caolin (fig. 4).

#### 3.2. Compoziția chimică a argilelor analizate

Compoziția chimică a argilelor studiate este redată în tabelul 2. Este important de remarcat cele mai ridicate valori ale unor oxizi în proba SA20, de exemplu Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (16,97 %), Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (5,52 %), K<sub>2</sub>O (1,40 %). Cele mai ridicate valori ale conținutului de SiO<sub>2</sub> și CaO se înregistrează în proba SA19 (80,11 %), respectiv SA18 (9,15 %).

Additionally, apparent density, adsorption capacity and apparent porosity were measured by Archimedes method, after water saturation, by boiling.

### 3. Results and discussions

#### 3.1. Mineralogical composition of the analysed clays

The interpretation of the XRD patterns of the natural clay samples (Fig. 1), and of the fine clay fraction (< 2 μm) (Fig. 2) led to the identification of the following mineral phases: kaolinite, illite/muscovite, smectite/vermiculite, feldspars, quartz, chlorite, calcite and hematite. The lines between 59.917–62.218 2θ have been assigned, based on the (060) reflections (Table 1 and Fig. 3), to vermiculite and smectite.

Scanning electron microscopy (SEM), allowed illustrating the well-shaped kaolinite plates (Fig. 4).

#### 3.2. Chemical composition of the analysed clays

The chemical composition of the studied clays is presented in Table 2. It is worth to emphasise the highest oxide values for SA20 sample, *i.e.* Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (16.97 %), Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (5.52 %), K<sub>2</sub>O (1.40 %). The highest values for SiO<sub>2</sub> and CaO content were recorded in SA19 (80.11 %), and in SA18 (9.15 %) respectively.

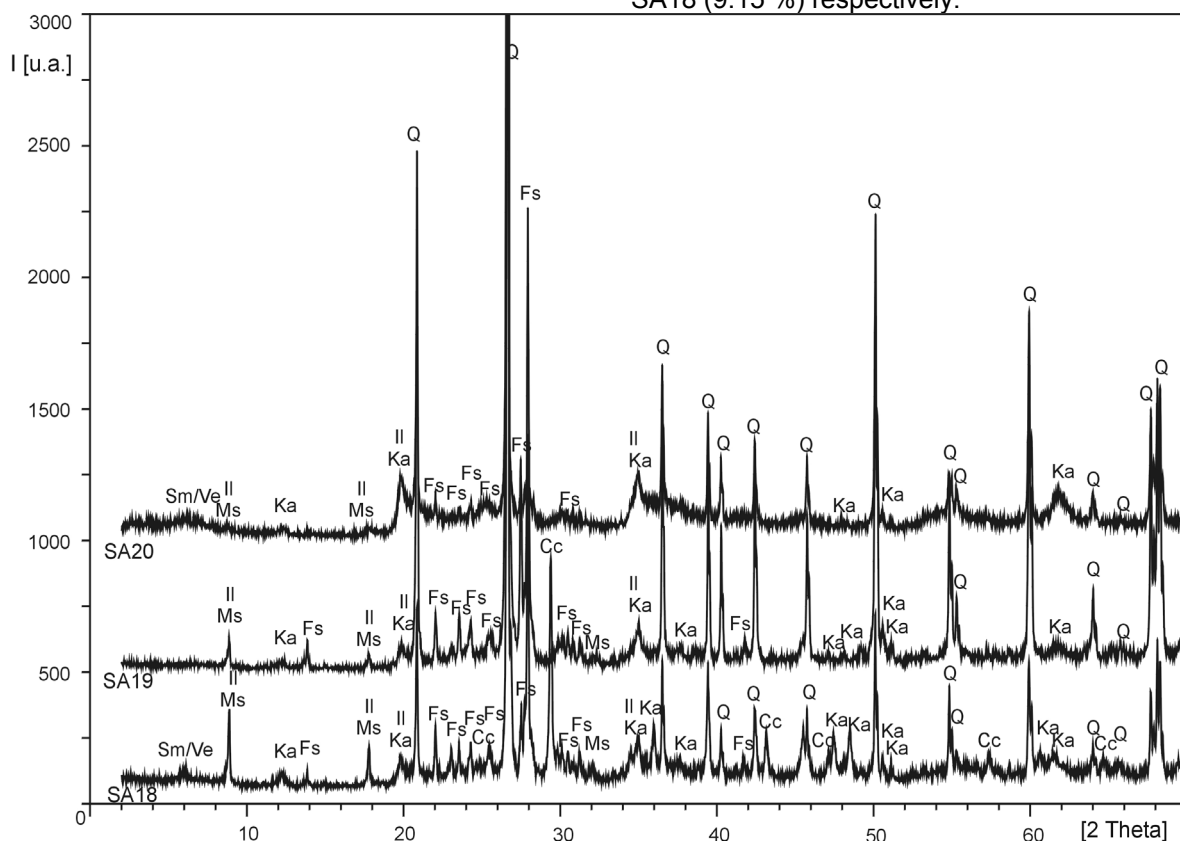


Fig. 1 – Diagramele de difracție RX ale probelor naturale (Q-cuarț, Ka-caolin, Cc-calcit, Fs-feldspați, Ms-muscovit, Il-illit, Sm-smectite, Vm-vermiculit / X-ray diffraction patterns of the natural samples (Q-quartz, Ka-kaolinite, Cc-calcite, Fs-feldspars, Ms-muscovite, Il-illite, Sm-smectite, Vm-vermiculite).

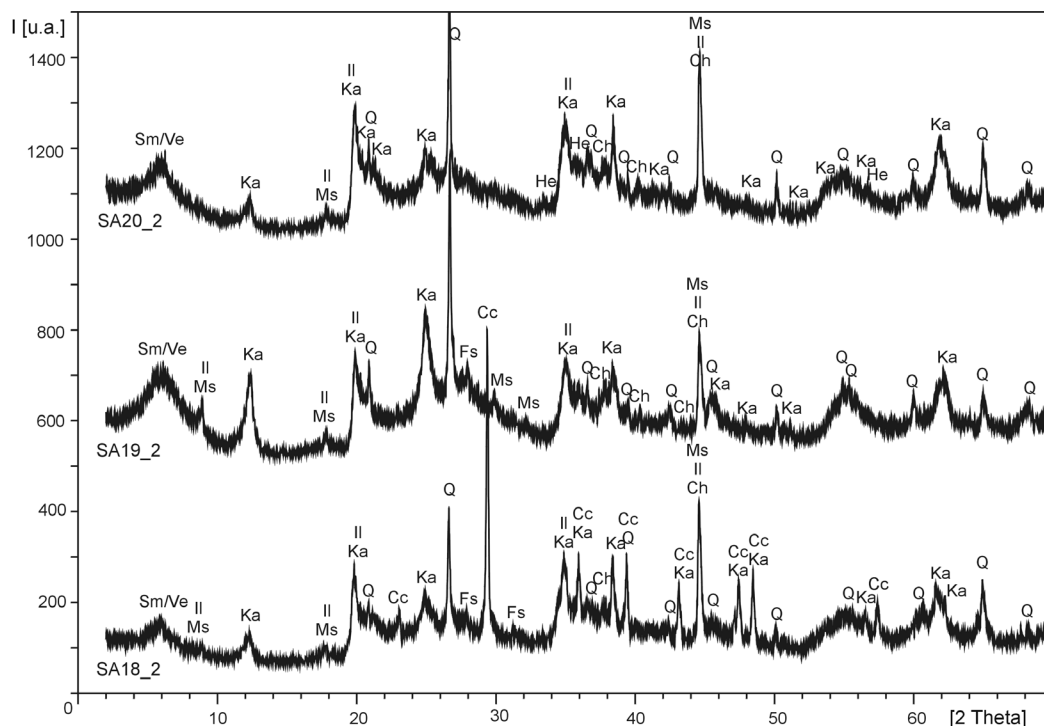


Fig. 2 – Diagramele de difracție RX ale fracției argiloase fine (< 2 μm) (Q-cuarț, Ka-kaolinit, Cc-calcit, Fs-feldspați, Ms-muscovit, Il-illit, Sm-smectite, Vm-vermiculit, Ch-clorite, He-hematit / X-ray diffraction patterns of the fine clay fraction (< 2 μm) (Q-quartz, Ka-kaolinite, Cc-calcite, Fs-feldspars, Ms-muscovite, Il-illite, Sm-smectite, Vm-vermiculite, Ch-chlorite, He-hematite).

Tabelul 1

Valorile d(060) și 2θ pentru vermiculit și smectite / Values of d(060) and 2θ for vermiculite and smectite

Mineral	d(060) [Å]	2θ [°]
Vermiculit / Vermiculite	1.541 (1.543 - 1.539)	60.03 (59.917 – 60.088)
Smectite / Smectite	1.497 1.491 – 1.503	61.935 61.670 – 62.218

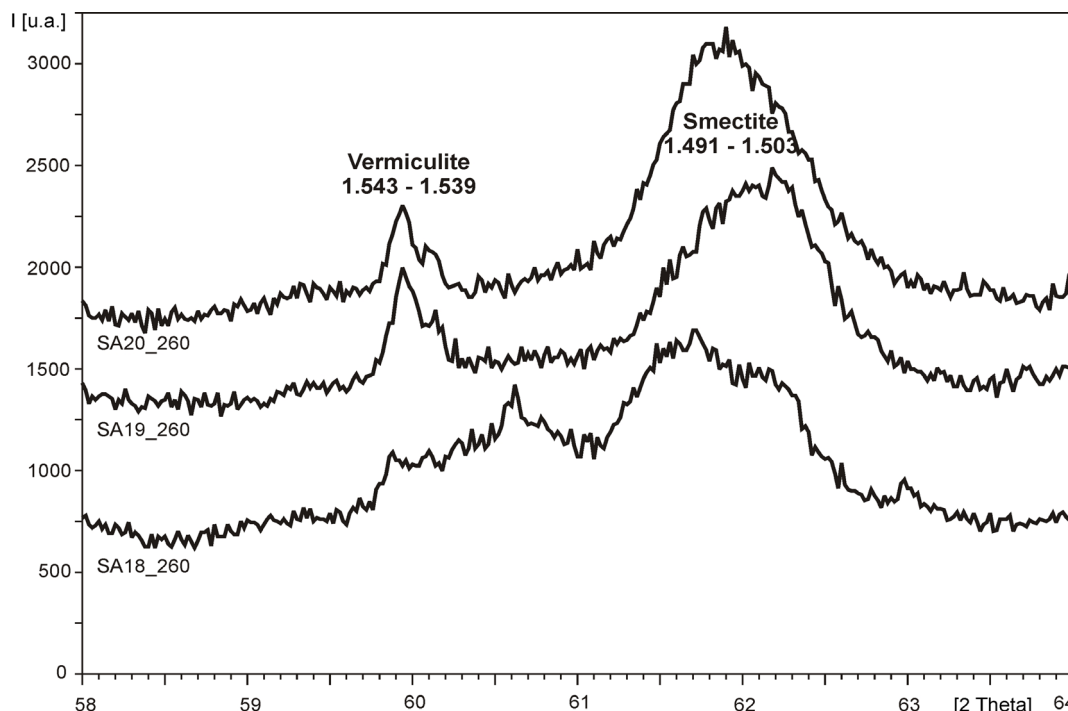
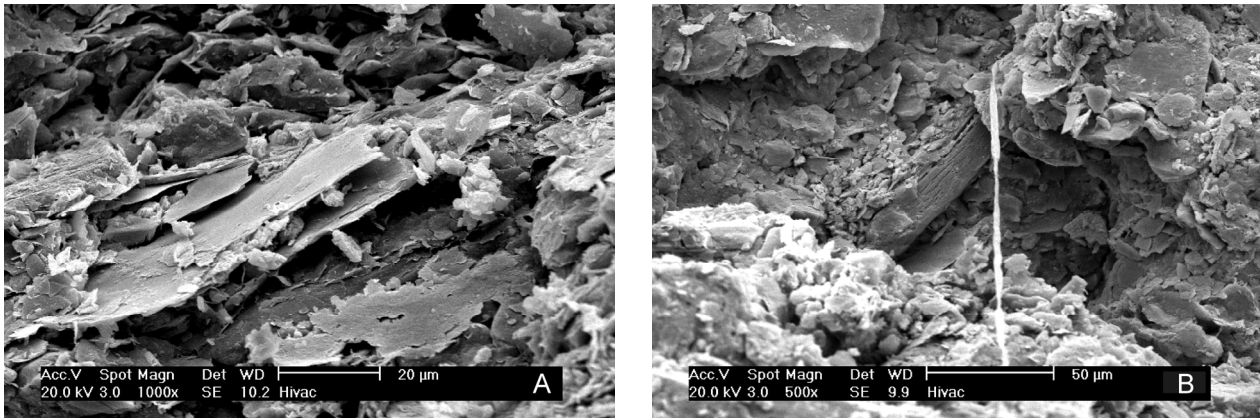


Fig. 3 – Diagramele de difracție RX ale fracției fine (< 2 μm) și reflexele (060) / X-ray diffraction patterns of the fine clay fraction (< 2 μm) and the (060) reflections.

Fig. 4 – Proba SA20 – Cristale lamelare de caolinite / *Sample SA20 – Lamellar kaolinite crystals*

Tabelul 2

Compoziția chimică a argilelor studiate / *Chemical composition of the studied clays (wt. %)*

	SA18 (4803)	SA19 (4804)	SA20 (4805)
PC	10.83	2.62	9.04
SiO <sub>2</sub>	56.62	80.11	63.49
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	14.25	10.41	16.97
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.10	1.38	5.52
TiO <sub>2</sub>	0.30	0.27	0.31
CaO	9.15	1.34	1.88
MgO	1.16	0.29	0.38
K <sub>2</sub> O	1.76	1.73	1.40
Na <sub>2</sub> O	1.50	1.45	0.70
Total	99.67	99.60	99.69

Compoziția mineralogică semicantitativă (tabelul 3) a fost determinată pe baza intensității relative a maximelor de difracție (majoritatea de ordin scăzut) și a suprafețelor acestora, ținând cont de o serie de factori de corecție [5, 6] și totodată reglată parțial de compoziția chimică.

Pe baza informațiilor chimice și mineralogice, argilele studiate au putut fi grupate în trei categorii: (1) argilă plastică, caolinică (SA20), (2) argilă nisipoasă (SA19) și (3) argilă bogată în carbonați (SA18).

The semi-quantitative mineralogical composition (Table 3) was determined based on relative peak intensities (mostly of lower orders) and peak areas corrected by various factors [5, 6] and also partly controlled by chemical composition.

According to the chemical and mineralogical data, the studied clays can be grouped into three categories: (1) plastic, kaolinic clay (SA20), (2) sandy clay (SA19) and (3) carbonate-rich clay (SA18).

Tabelul 3

Compoziția mineralogică semicantitativă a argilelor analizate / *Semi-quantitative mineralogical composition of the analysed clays (wt. %)*

Mineral	Proba / Sample		
	SA18 (4803)	SA19 (4804)	SA20 (4805)
Cuarț / Quartz	33.76	68.67	41.12
Caolinite / Kaolinite	17.31	10.39	21.51
Feldspați / Feldspars	7.41	6.42	14.50
Illit/muscovit / Illite/muscovite	10.36	11.21	10.23
Smectit/vermiculit / Smectite/vermiculite	7.87	3.06	5.90
Clorite / Chlorite	2.04	0.25	0.84
Carbonați (calcit) / Carbonates (calcite)	21.25	-	-
Hematit / Hematite	-	-	5.90

### 3.3. Distribuția granulometrică

Reprezentarea grafică (Fig. 5) a datelor obținute prin sitare și sedimentare (pentru componenta < 2 μm) a argilelor studiate pune în evidență participarea procentuală a trei fracții granulometrice: S (nisip), U (praf) și T (argilă). Conform DIN-Norm 4022 (înlocuit de EN ISO 14688), aceste fracții se referă la: S (nisip) = 2,0–0,063 mm, U (praf) = 0,063–0,002 mm și T (argilă) = 0,002 – < 0,0002 mm.

Dintre cele trei probe analizate, SA20 iese în evidență prin valorile procentuale cele mai

### 3.3. Particle size distribution

The illustration of the particle size measurements obtained on the clay samples by sieving and sedimentation, in the case of the fine fraction (< 2 μm) (Fig. 5) evidences the quantitative (%) distribution of three distinctive grain size fractions: S (sand), U (silt) and T (clay). According to normative DIN-Norm 4022 (replaced by EN ISO 14688), these fractions refer to: S (sand) = 2.0–0.063 mm, U (silt) = 0.063–0.002 mm and T (clay) = 0.002 – < 0.0002 mm. Among the three analysed samples, SA20 is characterized by the highest

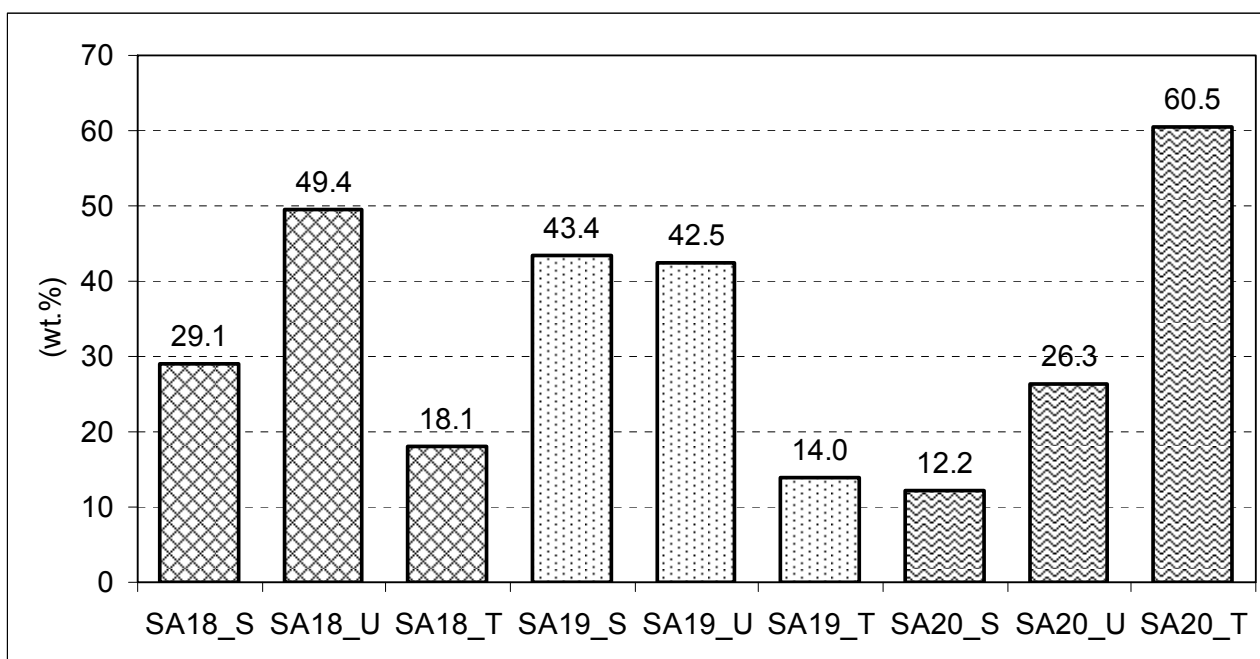


Fig. 5 – Repartiția granulometrică a probelor SA18, SA19 și SA20 (\_S = nisip, \_U = praf, \_T = argilă)  
Particle size distribution of samples SA18, SA19 and SA20 (\_S = sand, \_U = silt, \_T = clay).

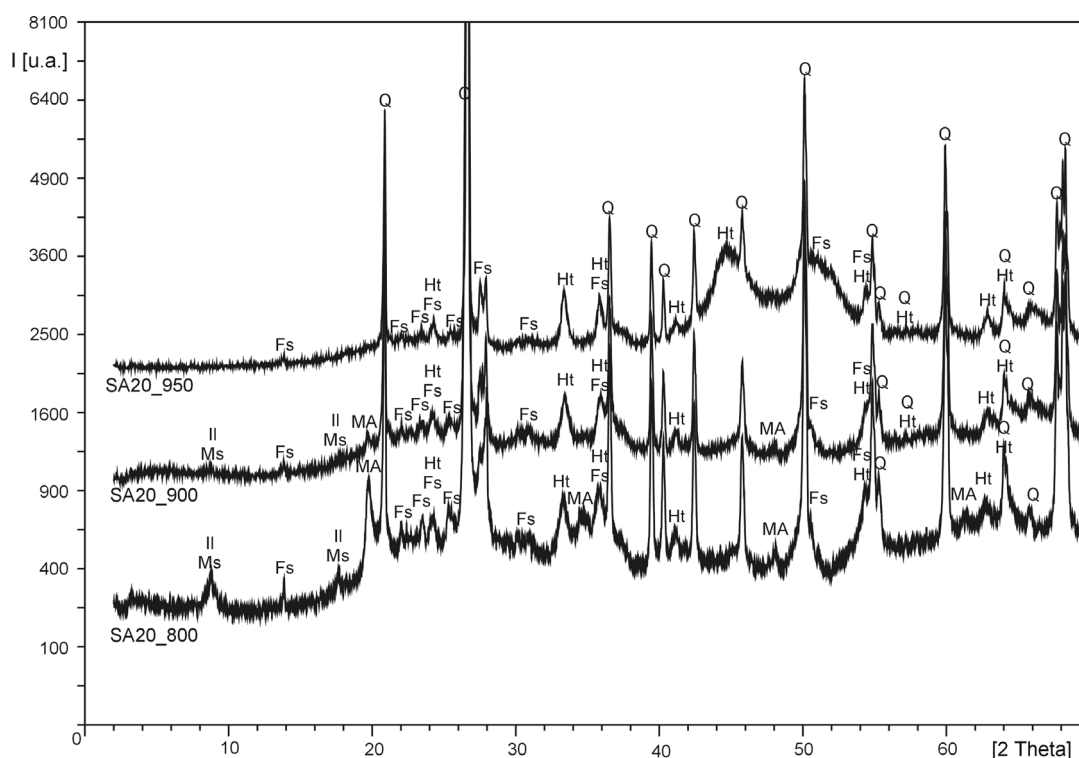


Fig. 6 – Diagramele de difracție RX ale probei SA20 tratată termic la 800°, 900° și 950° C (Q-cuarț, Fs-feldspați, Ms-muscovit, Il-illit, He-hematit, MA-minerale argiloase afectate termic) / X-ray diffraction patterns of sample SA20 fired at 800°, 900° and 950° C (Q-quartz, Fs-feldspars, Ms-muscovite, Il-illite, He-hematite, MA-thermally-affected clay minerals).

ridicate ale fracției argiloase fine (60,5%) și cele mai scăzute pentru fracția nisipoasă (12,2%).

values for the fine clay fraction (60.5 %) and the lowest for the sand fraction (12.2 %).

### 3.4. Compoziția mineralogică a argilelor arse

Pe baza rezultatelor obținute pe probele de argilă studiate, am considerat că argilele plastice, caolinice, reprezentate cel mai bine prin proba SA20, pot fi utilizate, fără a mai necesita îmbunătățiri, ca materie primă ceramică. Pentru a

### 3.4. Mineralogical composition of the thermally treated clays

Based on the results obtained on the investigated clay samples, we have concluded that the plastic, kaolinic clays – best represented in sample SA20, may be used without additional

verifica această ipoteză și a putea compara argilele arse cu materialul tegular studiat anterior, din proba SA20 au fost confecționate epruvete care au fost supuse unui tratament termic la 800°, 900° și 950°C.

Diagramele de difracție ale epruvetelor arse (fig. 6) pun în evidență prezența cuarțului (spectrul complet), feldspaților (calco-sodici și potasici) (evidențiați de liniile cele mai intense) și hematitului. Pe măsură ce tratamentul termic a avut loc la temperaturi mai ridicate o serie de reflexe dispar. Astfel, în proba SA20\_800 și SA20\_900 se mai pot identifica reflexele corespunzătoare pentru illit/muscovit și cele de la 4,50 Å, 2,60 Å, 1,89 Å și 1,51 Å aparținând mineralelor argiloase afectate termic. În proba arsă la 950°C (SA20\_950) liniile menționate anterior dispar, fiind prezente doar reflexele cuarțului, feldspaților (calco-sodici și potasici) și hematitului.

### 3.5. Microscopia optică a argilelor arse

Studiile de microscopie optică în lumină transmisă efectuate pe epruvetele din argilă (SA20) tratată termic au permis completarea informațiilor privind compoziția mineralogică a matricei și degresantului, precum și fabricului și porilor.

Astfel, în ce privește granulometria, epruvetele studiate în secțiuni subțiri ar intra la categoria ceramică semifină (lutito-silto-arenitică) ([7], [8]), iar în funcție de ponderea componentelor cristalini comparativ cu fazele amorfe prezintă un fabric microcristalin la microcristalin-amorf (SA20\_950), omogen, cu pori (primari și secundari) rari.

Matricea este alcătuită în principal din minerale argiloase afectate termic și o participare mai redusă a cuarțului, feldspaților și micelor. În lumină polarizată paralel, cu un nicol, prezintă o culoare roșcată-gălbuie ce trece spre roșcată-brună pe măsură ce argila a fost arsă la temperaturi mai mari. În mod similar, la nicoli încrucișați, prezintă o birefrință care scade odată cu creșterea temperaturii de tratament termic.

Cristaloclastele sunt reprezentate prin cuarț (angular la subangular), frecvent cu extincție ondulatorie și cu dimensiuni ce pot ajunge la 0,60 x 0,85 mm, feldspați (plagioclazi și potasici) (< 0,22 x 0,28 mm), mice (< 0,05 x 0,12 mm), hematit (< 0,12 x 0,22 mm) și fragmente de epidot, zircon și piroxeni rombici (SA\_850). Ca litoclaste au fost identificate doar fragmente de cuarțite cu dimensiuni maxime de 0,77 x 1,55 mm.

Transformările rezultate ca urmare a tratamentului termic sunt evidențiate prin aglomerarea hematitului sub formă de agregate, prezența cristaloclastelor de cuarț cu coroane de minerale argiloase (SA20\_850), modificarea birefrinței micelor, fenomene de fisurare, corodare și vitrificare marginală a cristaloclastelor de cuarț, precum și difuzia Fe din matrice (SA20\_900 și SA20\_950).

enrichment as ceramic raw material. In order to test this hypothesis, and to compare the properties of fired clays with those of the previously-studied tegular material, test specimens have been shaped from sample SA20 and submitted to thermal treatment at 800°, 900° and 950° C.

The XRD patterns of fired clay samples (Fig. 6) reveal the omnipresence of quartz (with all peaks), feldspars, both Ca-Na and K-rich (illustrated by the most intense diffraction lines) and hematite. As the firing temperature increased, some of the diffraction peaks disappeared from the patterns. Thus, the patterns of sub-samples SA20\_800 and SA20\_900 still include typical illite/muscovite lines, as well as the peaks at 4.50 Å, 2.60 Å, 1.89 Å and 1.51 Å assigned to thermally-affected clay minerals. However, in the sub-sample fired at 950°C (SA20\_950) the above-mentioned reflexes disappeared, the only ones present being those of quartz, feldspars (Ca-Na and K-rich) and hematite.

### 3.5. Optical microscopy of the thermally treated clays

The optical microscopy study in transmitted light on the thermally-treated clay (SA20) test samples allowed us to complete the information on the mineralogical composition of the matrix and the temper, as well as on fabric and pores.

Based on the grain size distribution evaluated in thin sections, the sample could be assigned to semi-fine (lutitic-siltic-arenitic) ceramics ([7], [8]), while based on the ratio between the crystalline vs. the amorphous phases, the fabric could be defined as microcrystalline to microcrystalline-amorphous (in sub-sample SA20\_950), homogeneous, with rare (primary and secondary) pores.

The matrix mainly consists of thermally-transformed clay minerals and to a lesser extent of quartz, feldspars and micas. In parallel polarized light under one polar, the sample shows reddish-yellowish colours, gradually passing into brownish-reddish as the firing temperature increases. Similarly, under crossed polars, the birefringence decreases with increasing temperature.

Crystalloclasts are represented by quartz (angular to subangular), frequently displaying undulatory extinction and maximum sizes reaching 0.60 x 0.85 mm, feldspars (plagioclases and K-feldspars) (< 0.22 x 0.28 mm), micas (< 0.05 x 0.12 mm), hematite (< 0.12 x 0.22 mm) and fragments of epidote, zircon and orthopyroxenes (SA\_850). The identified lithoclasts consisted of quartzites with maximum sizes of 0.77 x 1.55 mm.

The transformations triggered by thermal treatment are evidenced by aggregation of hematite as clusters, presence of quartz crystalloclasts with corona of clay minerals (SA20\_850), changes in the micas birefringence, fissuring, marginal corrosion and vitrification of

### 3.6. Caracteristici fizice ale argilelor arse

Caracteristicile de compactitate (absorbția de apă, densitatea și porozitatea aparentă) ale probei de argilă caolinică arsă la 800°, 900° și 950°C sunt prezentate în tabelul 4. Valorile densității aparente cresc odată cu creșterea temperaturii de tratament termic, în timp ce valorile absorbției de apă și ale porozității aparente scad.

Comparând datele obținute (care variază în limite destul de restrânse) cu cele ale ceramicilor romane de la Sarmizegetusa [1] se observă valori asemănătoare (tabelul 5), sugerând posibilitatea de utilizare a argilelor plastice, caolinice, ca materie primă.

quartz crystalloclasts, as well as Fe diffusion within the matrix (SA20\_900 and SA20\_950).

### 3.6. Physical characteristics of the thermally treated clays

The compaction characteristics (water absorption capacity, density and apparent porosity) of the kaolinitic clay sample fired at 800°, 900° and 950° C are presented in Table 4. The values of apparent density increase as firing temperature increases, while adsorption capacity and apparent porosity show a reverse trend.

By comparing the current results (showing limited variation) with those obtained on Roman

Tabelul 4

Caracteristicile fizice ale argilelor arse studiate / *Physical characteristics of the studied fired clays*

Proba / Sample (_T°)	Densitate aparentă Apparent density [g/cm <sup>3</sup> ]	Absorbția de apă Water adsorption [%]	Porozitatea aparentă Apparent porosity [%]
SA20_800	1.95	13.88	27.15
SA20_850	1.95	13.71	26.77
SA20_900	1.96	13.56	26.64
SA20_950	1.99	12.82	25.61

Tabelul 5

Comparație între caracteristicile fizice ale materialelor tegulare și argilele arse  
*Comparison between physical characteristics of the tegular material and the fired clay samples*

Caracteristici fizice / <i>Physical characteristics</i>	cărămizi / țigle bricks / tiles	argilă arsă fired clays (800° - 950°C)
Densitate aparentă / <i>Apparent density, g/cm<sup>3</sup></i>	1.79 – 2.00	1.95 – 2.00
Absorbția de apă / <i>Water adsorption, %</i>	12.55 – 19.19	12.82 – 13.89
Porozitatea aparentă / <i>Apparent porosity, %</i>	24.22 – 35.62	25.61 – 27.16

## 4. Concluzii

Pe baza caracteristicilor mineralogice, chimice și tehnologice ale argilelor analizate, comparativ cu cele ale materialului tegular de la Ulpia Traiana Sarmizegetusa, se poate presupune că materia primă argiloasă utilizată la obținerea produselor ceramice (cărămizi și țigle) este reprezentată de argilele plastice, caolinice din apropierea sitului arheologic (cca. 250 m sud de zidul orașului).

Din punct de vedere mineralogic argilele plastice analizate prezintă conținutul cel mai ridicat de caolin (21,51%) care împreună cu celelalte minerale filosilicatic (illit, smectit/vermiculit, clorite) reprezintă 38,48% din masa rocii.

Comparativ cu celelalte probe de rocă argiloasă studiate, caracteristicile granulometrice ale argilelor caolinice scot în evidență predominarea fracției fine argiloase (60,50%) și participarea cea mai redusă a fracției nisipoase (12,20%).

În cazul epruvetelor confecționate din argilele caolinice și arse la temperaturi mai mari de 850°C s-au pus în evidență o serie de transformări mineralogice și fenomene de topire/vitrificare. Acestea constau în distrugerea parțială a rețelelor cristaline, în principal ale

ceramics from Sarmizegetusa [1] one can notice similar values (Table 5), pointing to the plastic, kaolinitic clay as potential raw material in this case.

## 4. Conclusions

Based on the mineralogical, chemical and technological characteristics of the studied clays, as compared to the similar features of the previously-investigated tegular material from Ulpia Traiana Sarmizegetusa, one can state that the clay raw material used in the case of this ceramics (bricks and tiles) was represented by the plastic, kaolinitic clays located in the vicinity of the archeological site (at about 250 m south from the city wall). Mineralogically, the investigated plastic clays show the highest kaolinite content (21.51 %) to which adds the other phyllosilicate minerals (illite, smectite/vermiculite, chlorites) building-up 38.48 % of the rock mass. As compared to the other studied clay samples, the kaolinitic clays evidence a dominant fine clay size fraction (60.50 %) and the minimum amount of sand size fraction (12.20 %). In the case of the test samples obtained by shaping the kaolinitic clay, then fired at temperatures exceeding 850° C, a series of mineralogical transformations and melt/vitrification processes have been evidenced. They consisted



mineralelor argiloase și apariția de coroane de reacție în jurul cristaloclastelor de cuarț. De asemenea, are loc aglomerarea hematitului sub formă de agregate, scăderea birefrinței micelor, difuzia fierului din matrice în cristaloclastele de cuarț și/sau fisurarea, corodarea și topirea marginală a acestora.

Caracteristicile fizice determinate pe probele arse (densitatea aparentă, absorbția de apă și porozitatea aparentă) sunt comparabile cu cele ale materialului tegular analizat anterior. Astfel, caracteristicile argilelor caolinice arată că acestea puteau fi utilizate ca materie primă, fără să necesite îmbunătățiri/adaosuri, ci doar omogenizare în timp. Altfel spus, dintr-o tranșă de argilă preparată puteau fi confecționate produse ceramice de orice tip, în funcție de fasonarea și condițiile de tratament termic.

### Mulțumiri

Autorii mulțumesc pentru sprijinul tehnic oferit de către Institut für Angewandte Geologie (Universität für Bodenkultur) Wien, S.C. Electroceramica Turda și Grant PN II 2241/2008 (UEFISCU-CNCSIS).

### REFERENCES

1. M. Benea, M. Gorea and N. Har, Tegular materials from Sarmizegetusa. 1. Mineralogical and physical characteristics, *Romanian Journal of Materials*, 2007, **37**(3), 219.
2. L. Brezeanu and V. Ceteau, Considerations on the building technique of the Dacians in the 1<sup>st</sup> millennium B.C., *Romanian Journal of Materials*, 2003, **33**(4), 316.
3. V. Burghilea, M.A. Melinescu, G. Dumitrașcu, I. Vlaicu and I.M. Popescu, Chromatic characteristics of Cucuteni ceramics–Scânteia A<sub>2</sub>, *Romanian Journal of Materials*, 2003, **33**(4), 251.
4. D.M. Moore and R.C. Reynolds, *X-Ray Diffraction and the identification and Analysis of Clay Minerals*, 2<sup>nd</sup> ed. Oxford University Press, 1997, New York.
5. G. Riedmüller, Neoformations and transformations of clay minerals in tectonic shear zones, *TMPM Tschermaks Min. Petr. Mitt.*, 1978, **25**, 219.

in collapse of the crystalline networks, especially those of the clay minerals and formation of reaction corona around quartz crystalloclasts. Also, clustering of hematite aggregates, decreasing of micas birefringence, Fe diffusion from the matrix into quartz crystalloclasts and/or their fissuring, corrosion and marginal vitrification are all thermally-induced features. Physical properties measured on the fired samples (apparent density, water adsorption capacity and apparent porosity) are comparable to those defined for the previously-investigated tegular material. Thus, the specific features identified in the case of the kaolinic clays recommend them as raw materials that would have not required enrichment/addition, only temporary homogenisation. To summarize, from the same batch of processed clay different type of ceramics could have been obtained, following specific shaping and thermal treatment patterns.

### Acknowledgements

The authors highly appreciate the technical support provided by the Institut für Angewandte Geologie (Universität für Bodenkultur) Wien, S.C. Electroceramica Turda and Grant PN II 2241/2008 (UEFISCU-CNCSIS).

\*\*\*\*\*

6. H. Tributh, Qualitative und quantitative Bestimmung der Tonminerale in Bodentonen. In: *Identifizierung und Charakterisierung von Tonmineralen* (H. Tributh & G. Lagaly, eds.), Beiträge zur Jahrestagung der DTTG, Giessen, 1991, p. 37.
7. C. Ionescu, L. Ghergari and O. Țentea, Interdisciplinary (mineralogical–geological–archaeological) study on the tegular material belonging to the Legion XIII Gemina from ALBURNUS MAIOR (Roșia Montană) and APULUM (Alba Iulia): possible raw materials sources, *Archeological Research*, 2006, **13**, 413.
8. C. Ionescu and L. Ghergari, Small glossary of geological terms used in the study of archaeological ceramics (in Romanian), *Archeological Research*, 2006, **13**, 451.

\*\*\*\*\*

## MANIFESTĂRI ȘTIINȚIFICE / SCIENTIFIC EVENTS

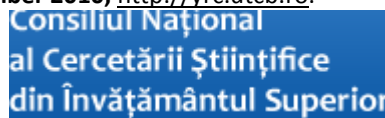


Universitatea Tehnică de Construcții București



Departamentul de Cercetare - Proiectare în Construcții

Organizează: **THE FIRST CONFERENCE OF YOUNG RESEARCHERS FROM TECHNICAL UNIVERSITY OF CIVIL ENGINEERING OF BUCHAREST, 18 -19 November 2010, <http://yrc.utcb.ro>.**



\*\*\*\*\*