

Contenido, distribución y origen del azufre en los carbones albienses del distrito minero de Teruel

X. QUEROL *, J. L. FERNÁNDEZ TURIEL *, A. LÓPEZ SOLER *,
R. JUAN ** y C. RUIZ **

* *Instituto de Ciencias de la Tierra "Jaume Almera", CSIC,
c/ Martí i Franquès, s/n. 08028 Barcelona*

** *Instituto de Carboquímica, CSIC,
Plaza B. Paraíso, 4. 50004 Zaragoza*

RESUMEN

Los carbones sub-bituminosos albienses del Distrito Minero de Teruel presentan concentraciones de azufre muy elevadas. El análisis de la distribución de estas concentraciones ha puesto de manifiesto la existencia de una tendencia general vertical a disminuir, hacia techo, el contenido de azufre a nivel de serie estratigráfica y de otra variación general lateral, a nivel de cuenca, en la que el contenido de azufre de las capas de carbón se incrementa hacia el margen septentrional del distrito minero. Estas tendencias generales pueden verse frecuentemente obliteradas tanto en relación con factores tales como la potencia de capa, la permeabilidad de los interestériles o la actividad de fallas sin-sedimentarias. La tendencia general vertical es consecuente con la relación generalmente observada entre la influencia marina del medio de depósito y un mayor contenido en azufre. Este razonamiento no se cumple, sin embargo, para la tendencia general horizontal, lo cual se relaciona con el aporte masivo de sulfatos a la cuenca sedimentaria carbonífera del Albiense medio debido al desmantelamiento de las secuencias evaporíticas infra-liásicas y triásicas (facies Keuper). Esta hipótesis del reciclaje del azufre se apoya en argumentos paleogeográficos y sedimentológicos y parece ser el principal mecanismo que causó las altas concentraciones de azufre de los carbones albienses del Distrito Minero Turolense.

Palabras clave: azufre, carbón, formación Escucha, Distrito Minero de Teruel.

ABSTRACT

Albian high-sulfur sub-bituminous coals are currently worked in the Teruel Mining District. The sulfur content of these coal seams draw a general vertical trend, at the stratigraphic series level, with an upwards reduction of the sulfur content, and a horizontal trend, at the basin scale, with a sulfur content increase towards the northernmost part of the Mining District. These general variations may be disturbed by factors related to the coal seam thickness, the permeability of the interbedded sediments or the activity of synsedimentary faults. The general vertical trend of sulfur contents is explained as a consequence of the well-known marine influence in the sedimentary environment which increases the sulfur content in the influenced seams. Nevertheless, the general horizontal trend is interpreted as a consequence of the erosion of the Infra-Liassic and Upper Triassic (Keuper facies) evaporitic sequences. The hypothesis of the sulfur recycling is based on paleogeographical and sedimentological data, and it gives to the Teruel coals the characteristic high-sulfur pattern.

Key-Words: sulfur, coal, Escucha Formation, Teruel Mining District.

INTRODUCCIÓN

El Distrito Minero de Teruel tiene una larga tradición minera, que ha tenido y tiene como objetivo la explotación de carbón y arcillas, en ambos casos por lo general pertenecientes a formaciones de edad cretácica. Este distrito minero si bien se centra en la provincia de Teruel, abarca también parte de las provincias de Castellón y Tarragona, los extremos noroccidental y suroccidental respectivamente.

Los carbones explotados en el Distrito Minero Turolense forman parte mayoritariamente de la Formación Escucha (Albiense medio). Estos carbones pertenecen al rango de carbones sub-bituminosos A a C según los valores medios de poder calorífico (Norma ASTM D-388) y de humedad de capa (Teichmüller y Teichmüller, 1982), mientras que se situarían en un rango desde lignito a carbón sub-bituminoso A (mayoritariamente en el rango de carbón sub-bituminoso B y C), si se tienen en cuenta las reflectividades de huminita (0.34 a

0.50 % Rm) y los contenidos en carbono (65.6 a 80.0 % C, carbón seco y libre de cenizas), de acuerdo con Teichmüller y Teichmüller (1982).

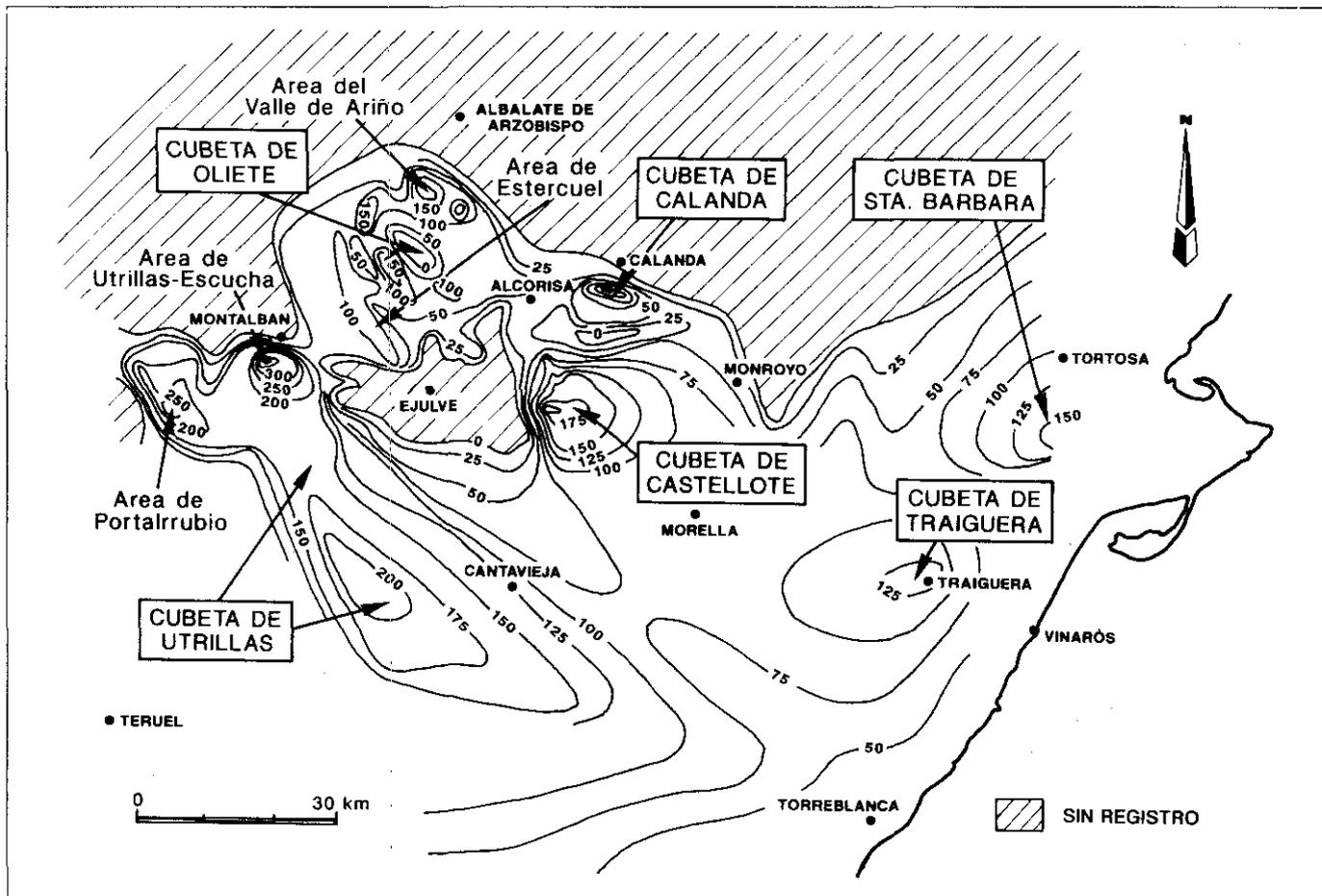
Una de las características más significativas de los carbones cretácicos turolenses es, sin duda, su elevado contenido en azufre, que incide negativamente en su aprovechamiento tanto por los problemas ambientales relacionados con su combustión en centrales térmicas, como de índole técnica, pues es frecuente la auto combustión del carbón en las explotaciones. El contenido medio de azufre total de los carbones de la Fm. Escucha está comprendido entre 6.10 y 6.50 %, concentración que supone el triple del contenido medio mundial de azufre en carbón (Bertine y Goldberg, 1971). Este elevado contenido en azufre ha motivado la investigación cuyos resultados se exponen en el presente artículo y cuyos objetivos se han centrado en la determinación del contenido en azufre de estos carbones, el análisis de su distribución y el estudio de su origen.

CONTEXTO GEOLÓGICO

El Distrito Minero Turolense se sitúa en la Zona de Enlace de las Cadenas Costeras Catalanas y la Rama Oriental de la Cordillera Ibérica. Las mayores reservas de carbón de este distrito se localizan en la formación Escucha (Albiense medio, según Querol y Solé de Porta, 1989). Esta formación fue definida por Aguilar et al. (1971), posteriormente fue redefinida y dividida en tres miembros (Cervera et al., 1976, y Pardo, 1979) y recientemente ha sido objeto de un exhaustivo estudio estratigráfico y sedimentológico que ha permitido inferir un modelo en el que las formaciones carbonosas son tratadas con especial incidencia (Querol, 1990).

De acuerdo con el último trabajo citado, la formación Escucha constituye el registro de la sedimentación en un delta - estuario cuya evolución se refleja en la existencia de tres sucesiones sedimentarias: de progradación, retrogradación y progradación deltaica. Este registro sedimentario se presenta de forma compartimentada en seis cubetas (Fig. 1) separadas por umbrales de sedimentación: 1) Cubeta de Utrillas, en la que existen dos áreas de interés minero (áreas de Utrillas - Escucha y de Portalrubio), 2) Cubeta de Castellote, 3) Cubeta de Calanda, 4) Cubeta de Oliete, en la que se distinguen dos áreas mineras (áreas del Valle de Ariño y de Esteruel), 5) Traiguera y 6) Santa Bárbara. Sólo las cuatro primeras cubetas presentan niveles carbonosos en explotación.

Dentro de la formación Escucha, Querol (1990) y Querol et al. (1991) han



reconocido facies representativas de dos ambientes generadores de depósitos carbonosos claramente diferenciados:

1) La llanura deltaica pantanosa. Constituida por turberas situadas en el sector continental del delta estuario y por tanto protegidas de la influencia de inundaciones marinas. Estas turberas dieron lugar a las capas carbonosas con mayor potencia de las explotadas en el Distrito Minero de Teruel: Capas P, O, y L del Área del Valle de Ariño, D, E, F, G y H del Área de Foz de Calanda, entre otras.

2) El cinturón de marismas. Constituido por una estrecha franja de turberas situadas en el área de transición marino - continental del delta estuario. Los depósitos carbonosos generados en este ambiente (p.ej., A, B y C de la Cubeta de Calanda, capas 1 a 6 de la Cubeta de Castellote y capas 4 a 6 de la Cubeta de Utrillas) se caracterizan por presentar potencia y continuidad lateral menor que las capas de la llanura pantanosa.

MUESTREO Y ANÁLISIS

El muestreo se ha realizado mediante la recogida de muestras según perfiles transversales a las capas de carbón, tomando en consideración los parámetros geológicos que definen su medio de depósito y su posterior evolución diagenética.

En la Cubeta de Utrillas se ha muestreado en su parte septentrional el Área de Utrillas - Escucha, donde se distinguen seis niveles carbonosos (numerados de 1 a 6 de techo a muro de la formación), y constituidos a su vez por varias capas de carbón. Solamente los dos niveles carbonosos superiores se hallan intercalados entre facies de llanura pantanosa, mientras que los cuatro basales lo están entre facies con la marcada influencia marina del cinturón de marismas. Además, en la parte meridional de la mencionada cubeta, en el área de Portalrubio, se reconocen diecisiete capas de carbón numeradas de techo a muro, de las que las nueve basales se intercalan entre facies del cinturón de marismas y las 8 superiores entre facies de llanura pantanosa. Las capas 2, 4, 5, 7, 8, 9, 14, 15, 16 y 17 han sido muestreadas para el presente estudio.

Fig. 1.—Mapa de isopacas (Querol, 1990) con la localización de las cubetas distinguidas en el registro sedimentario de la formación Escucha.

Fig. 1.—Map of thickness distribution (Querol, 1990) and location of the differentiated sub-basins in the sedimentary record of the Escucha Formation.

En la Cubeta de Castellote se encuentran numerosos niveles carbonosos, si bien sólo nueve de ellos tienen interés minero y han sido muestreados. De estos, sobre las seis capas inferiores aparecen sedimentos con influencia marina o marinos (incluso con biostromas coralinos).

En la Cubeta de Calanda se han muestreado ocho cuerpos carbonosos (denominados A a H de base a techo), estando constituidos cada uno de ellos por varias capas de carbón. Sólo los niveles A y B presentan indicios de influencia marina en los interestériles.

En la Cubeta de Oliete se encuentran dos áreas con interés minero: el Área del Valle de Ariño en el borde norte y el Área de Estercuel en el borde meridional. En la primera se explotan seis niveles de capas carbonosas (de base a techo: S, R, Q, P, L u O y N), intercalados entre facies sin influencia marina de llanura pantanosa. Igualmente intercalados entre facies de llanura pantanosa se intercalan las siete capas explotadas y muestreadas en el Área de Estercuel (de base a techo: 1, 2, 3, 4, 5, 5bis y 6).

Los métodos analíticos utilizados se describen exhaustivamente en Querol (1990). El contenido de azufre total se ha determinado con un equipo instrumental LECO, modelo SC-32, quemando 0.25 g de muestra en una corriente de oxígeno a 1250 °C. El azufre pirítico y azufre sulfato se han analizado por un método de difracción de rayos X puesto a punto en el trabajo previamente mencionado y que ha sido contrastado con el procedimiento de la Norma ASTM D 2491-84. El azufre orgánico ha sido calculado por diferencia. Además, en cada una de las muestras se han determinado la humedad (método B de la Norma ASTM 3302), las cenizas a 750 °C ("high temperature ashing" o HTA) y los contenidos de C, H y N con un equipo instrumental LECO / CHN-600. La concentración de oxígeno se ha calculado por diferencia. Los resultados obtenidos figuran en la Tabla 1. Los resultados analíticos expuestos corresponden a las medias aritméticas de las muestras de cada uno de los perfiles de capa. Los contenidos medios de cada una de las cubetas en las que se produjo el registro sedimentario de la formación Escucha se indica en la Tabla 2.

RESULTADOS Y DISCUSIÓN

De forma general, los carbones del Distrito Minero Turolense se caracterizan por altos contenidos en inertinita y materia mineral, y por el bajo contenido en huminita, si los comparamos con otros carbones subbituminosos europeos. La materia mineral está constituida principalmente por minerales de

la arcilla (caolinita, illita e interestratificados illita-esmectita), por fases con azufre (sulfuros y sulfatos), cuarzo, feldespatos y calcita (Querol et al., 1989 a y b).

En cuanto a las fases minerales con azufre, los sulfuros de hierro (pirita y marcasita) son cuantitativamente de gran importancia, pudiendo llegar a concentraciones que superan el 10 % en peso. Localmente los sulfuros de cinc (esfalerita y wurtzita) pueden llegar a ser así mismo notables. Por ejemplo, la capa 2^a - 2 del Área de Utrillas-Escucha en la Cubeta de Utrillas muestra un contenido medio de 0.35 % de sulfuros de cinc, de origen epigenético y localizados en fracturas. Las otras fases minerales con azufre que se han identificado corresponden a sulfatos. En este sentido, se ha determinado la existencia de yeso, basanita, anhidrita, jarosita, melanterita, copiapita, Mg-copiapita, epsomita, rozenita, szomolnoquita, ferrohexasulfato y amoniojarosita. Se ha observado como el azufre sulfato presenta por lo general una relación directamente proporcional al contenido en sulfuros. Ello es debido a que proviene de la meteorización de estos últimos. Además, se ha comprobado que en las capas explotadas en minería de cielo abierto el contenido de azufre sulfato suele ser mayor, como consecuencia de la mayor alteración de los sulfuros, en comparación con las capas explotadas en minería subterránea. En detalle, se observa como el mayor contenido de azufre sulfato aparece en la zona media y hacia el muro de las capas de carbón. Este hecho se produce como consecuencia de la percolación por gravedad de fluidos sobresaturados en sulfatos a través de las capas.

Se ha analizado la distribución del azufre vertical y horizontalmente, a nivel de capa y serie estratigráfica, así como a nivel de cuenca.

Por lo que se refiere a la distribución del azufre, generalmente se ha observado, tanto en turberas actuales con influencia marina, como en carbones generados a partir de turberas con esta característica, que presentan mayores contenidos de azufre que en aquellos casos en que tal influencia no existe (Williams y Keith, 1963, Smith y Batts, 1974, Casagrande et al., 1977, Altschuler et al., 1983, Cohen et al., 1984, y Given y Miller, 1985) y que, además, estos contenidos suelen ser superiores a techo de la capa carbonosa en el primer caso (Williams y Keith, 1963, Casagrande et al., 1977, Shimoyama, 1984, y Shimoyama et al., 1990). La razón está en el elevado contenido en sulfatos que presentan las aguas marinas por lo general en comparación con las continentales. Cuando las primeras son atrapadas por los sedimentos marinos, se produce una infiltración a través de las capas de carbón y tiene lugar una fuerte actividad bacteriana sulfato-reductora que reduce los sulfatos del agua marina a sulfuros, siendo esta actividad especialmente manifiesta ha-

TABLA 1

<i>Mina</i>	<i>Capa</i>	<i>Humedad</i>	<i>HTA</i>	<i>C</i>	<i>H</i>	<i>N</i>	<i>O</i>	<i>S_r</i>	<i>S_p</i>	<i>S_o</i>	<i>S_s</i>
CUBETA DE UTRILLAS / AREA DE UTRILLAS-ESCUCHA											
Sabrina	6	13.32	24.64	70.55	5.16	0.85	15.79	7.65	4.33	2.64	0.68
	5	11.59	26.78	70.67	5.39	0.89	15.65	7.45	4.51	2.51	0.43
	4	12.31	24.48	71.12	5.14	0.78	16.58	6.38	3.67	2.47	0.24
Pilar	6	11.66	22.84	71.66	5.37	0.91	16.04	6.02	3.80	1.83	0.39
Concepción	6	11.61	21.88	73.96	5.40	0.94	15.73	3.97	1.67	2.14	0.16
Los Alemanes	2 (3+4)	11.04	16.22	71.31	5.29	0.75	17.85	4.80	2.06	2.61	0.13
	2 (2) (*)	10.79	8.81	72.70	5.92	0.83	17.20	3.35	1.62	1.35	0.26
	1 (2)	9.10	6.50	73.28	5.71	0.99	17.88	2.14	0.93	0.98	0.23
Ernesto Ferrer	3	11.26	10.49	73.80	5.66	0.95	16.00	3.59	2.49	0.87	0.23
	2	10.58	20.97	73.98	5.35	0.97	15.80	3.90	1.94	1.44	0.52
	1	11.76	10.05	73.57	5.75	1.04	17.05	2.59	1.47	0.79	0.33
CUBETA DE UTRILLAS / AREA DE PORTALRUBIO											
Salomé	2	14.44	17.39	73.48	4.42	0.77	20.08	3.02	1.56	1.33	0.13
	4	9.51	30.03	73.33	4.80	0.60	18.47	8.09	6.13	2.27	0.22
	5	9.57	25.82	72.15	5.55	0.61	17.84	9.71	6.85	2.38	0.48
	7	11.47	26.33	65.44	4.99	0.64	23.46	13.50	9.48	3.23	0.79
	8	10.48	23.00	66.88	5.43	0.60	22.40	11.12	6.76	3.89	0.47
	9	9.60	23.70	75.36	5.26	0.68	14.84	5.59	2.54	2.87	0.18
	14	12.57	25.57	70.00	5.53	0.77	20.53	4.92	1.97	2.83	0.12
	15	11.76	17.07	71.15	5.35	0.63	19.30	6.09	2.37	3.54	0.18
	16	12.11	16.73	70.48	4.97	0.70	20.48	7.06	3.65	3.26	0.15
	17	12.56	24.27	76.40	5.86	0.87	13.65	5.31	3.41	1.58	0.32
	5	21.17	13.75	72.85	5.34	1.03	18.61	3.89	2.02	1.37	0.50
	5bis							7.01	5.61	1.14	0.26
	6	16.87	18.00	71.42	5.35	0.82	17.66	4.75	2.90	1.60	0.25
	7							4.40	2.34	1.83	0.23
	7bis							4.01	2.11	1.58	0.32
	8							5.31	3.09	1.96	0.26
	9	15.71	21.75	69.73	4.20	0.43	16.56	7.10	4.64	2.03	0.43
Palestina	3+4	21.89	15.54	70.30	5.42	0.77	21.66	5.48	3.92	1.31	0.25
Patricia	1+2	21.08	13.46	70.12	5.21	1.00	21.01	2.66	1.25	1.20	0.21
CUBETA DE CALANDA											
Carmen y Pura	A-1	20.27	30.86	52.61	4.09	0.56	33.56	5.74	3.85	1.40	0.49
	A-2							7.22	3.21	3.23	0.78
	B-1	17.49	27.00	56.74	4.00	0.60	24.87	6.60	3.23	2.83	0.54
	B-2							8.89	5.28	3.11	0.50

(Continúa)

TABLA 1 (Continuación)

Mina	Capa	Humedad	HTA	C	H	N	O	S _t	S _p	S _o	S _s
	D	10.79	43.15	57.36	4.05	0.56	31.66	5.53	2.58	2.06	0.89
	E-1	21.86	18.65	60.08	4.15	0.54	27.95	7.45	3.25	3.65	0.55
	E-2							5.07	2.59	1.93	0.55
	E-3							5.41	2.01	2.68	0.78
	F	22.39	14.86	56.82	3.92	0.28	31.51	4.85	1.51	2.75	0.59
	G	10.12	53.22	56.26	4.10	0.62	31.63	4.63	2.71	1.30	0.62
	H	20.29	12.56	52.93	4.00	0.83	33.81	6.21	2.17	3.84	0.20
CUBETA DE OLIETE / AREA DEL VALLE DE ARIÑO											
Santa María	R	19.97	16.52	65.23	4.82	0.89	25.35	8.55	5.25	2.58	0.71
	Q	11.49	12.87	64.42	4.94	0.73	25.59	7.43	2.96	3.76	0.71
	P	17.85	18.72	67.43	4.91	0.67	21.90	7.57	3.29	3.68	0.60
	L3	10.51	43.25	60.30	6.75	0.15	31.50	5.60	4.23	0.59	0.78
Sierra de Arcos	P	12.94	11.10	70.25	4.17	0.65	19.23	7.33	2.43	4.44	0.46
María	R	12.04	15.11	71.05	4.47	0.70	20.98	7.20	4.52	2.16	0.52
	P	19.29	16.21	66.68	4.21	0.70	24.81	8.32	4.58	2.81	0.93
Innominada	P	11.51	18.42	68.99	4.47	0.61	19.53	8.07	3.03	4.61	0.43
Alloza	O-6	10.91	28.38	66.25	4.55	0.78	25.92	5.94	3.96	1.58	0.40
	O-2	9.89	43.19	61.61	4.68	0.58	31.02	6.64	5.17	0.92	0.58
Oportuna	R	9.10	22.38	68.66	4.73	0.44	21.27	7.76	3.46	3.53	0.76
Barrabasa	R	13.36	14.13	70.68	4.69	0.65	19.58	6.58	2.01	2.98	1.59
CUBETA DE OLIETE / AREA DE ESTERCUEL											
Elvira	1	17.40	17.41	64.81	5.01	0.80	24.61	8.75	7.09	1.12	0.54
	2	22.88	25.13	61.37	4.85	0.85	26.25	0.16	7.85	1.65	0.66
Mi Viña	4	13.29	29.56	65.96	5.31	0.89	21.81	9.44	7.43	1.54	0.47
Cañizara	3+4	12.40	24.43	70.74	5.23	0.72	19.87	6.49	3.76	2.12	0.61
Luisa	3	16.23	23.50	70.69	5.23	0.79	19.93	6.42	4.34	1.45	0.63
	4	15.91	29.02	69.91	5.46	0.81	20.86	6.25	3.98	1.65	0.62
	5	15.79	16.00	66.76	5.45	0.82	23.65	6.97	4.31	2.01	0.65
	5 bis	18.78	32.11	71.19	5.61	0.66	18.06	7.61	4.46	2.68	0.47
	6	14.26	39.73	63.28	5.62	0.71	24.75	8.49	6.08	1.97	0.44

(*) > 0.12 % de azufre de ZnS.

Contenidos medios de humedad, cenizas a 750 °C (HTA), carbono, hidrógeno, nitrógeno, oxígeno (por diferencia), azufre total (S_t), azufre pirítico (S_p), azufre orgánico (S_o) y azufre sulfato (S_s), sobre base seca, de los carbones cretácicos explotados en el Distrito Minero de Teruel. Valores en % en peso; HTA referido a muestra seca; C, H, N y O referidos a muestra seca y libre de cenizas.

TABLA 2

<i>Cubeta</i>	S_i	S_p	S_o	S_s
UTRILLAS	6.07	3.50	2.25	0.32
Área de Utrillas-Escucha	4.71	2.58	1.79	0.34
Área de Portalrubio	7.44	4.42	2.72	0.30
CASTELLOTE	4.73	2.94	1.50	0.29
CALANDA	6.14	2.94	2.61	0.59
OLIETE	7.54	4.61	2.30	0.63
Área del Valle de Ariño	7.25	3.74	2.80	0.71
Área de Estercuel	7.84	5.48	1.80	0.56

Contenidos medios en azufre total (S_i), azufre pirítico (S_p), azufre orgánico (S_o) y azufre sulfato (S_s) de los carbones cretácicos que se explotan en las cubetas con registro sedimentario de la Fm. Escucha (Distrito Minero de Teruel).

Se han calculado tomando como base los datos de la Tabla 1.

cia la parte más superficial de los sedimentos, donde la mayor permeabilidad se traduce en una mayor infiltración del agua marina.

En el Distrito Minero de Teruel también se observa esta relación geoquímica entre el contenido en azufre y la influencia marina sobre el ambiente de depósito. El contenido medio de azufre total y pirítico de las capas de carbón sigue una clara tendencia a decrecer hacia techo de la Fm. Escucha en una misma localidad, siguiendo la misma tendencia que la disminución y desaparición de interestériles representativos de las facies distales del cinturón de marismas (con influencia marina), y aparición y dominio de las facies proximales de la llanura pantanosa, con aumento del aporte detrítico (minerales arcillosos principalmente) y disminución del contenido de fases diagenéticas como los sulfuros de hierro en la materia mineral.

En este contexto de serie estratigráfica en una misma localidad, las capas de carbón generadas a partir de turberas con influencia marina (cinturón de marismas) muestran contenidos superiores de azufre total a las que se generaron a partir de turberas sin tal influencia (llanura pantanosa). Las capas con influencia marina presentan una correlación positiva entre el contenido en materia mineral (reflejado por el contenido en cenizas HTA) y el de azufre total, debido a los porcentajes relativamente altos que suponen los sulfuros de hierro en la materia mineral. En consecuencia, las variaciones en el contenido de azufre total son similares a las del azufre pirítico, enriqueciéndose ambas con-

centraciones hacia techo de capa (Querol, et al., 1989a). Esta semejanza es mucho menos marcada respecto a los contenidos de azufre sulfato y orgánico.

En cambio, también en una misma serie estratigráfica, las capas de carbón sin influencia marina de la llanura pantanosa (paleogeográficamente situadas en áreas proximales dentro del aparato deltaico) tienen un menor contenido en azufre y muestran una relación ligeramente inversa entre el contenido en cenizas HTA y el de azufre total, como consecuencia del mayor contenido en azufre orgánico y minerales detríticos arcillosos. Además, a nivel de capa no se observan variaciones verticales sistemáticas de los contenidos en azufre.

Como ejemplo modélico de esta variabilidad vertical a nivel de serie estratigráfica se pueden citar las capas de carbón del Área de Utrillas-Escucha, donde las capas situadas en la base de la Fm. Escucha (capas 6ª, 5ª y 4ª) presentan un contenido medio en azufre total de 6.29 %, mientras que las capas superiores sin influencia marina (capas 3ª, 2ª y 1ª) tienen una media de azufre de 3.39 %.

En el Distrito Minero Turolense no se cumple, sin embargo, esta relación entre la influencia marina y el mayor contenido de azufre si se toman en consideración las variaciones laterales a nivel de cuenca. En este sentido, se observa como las áreas con mayor enriquecimiento en azufre (cubetas de Oliete—áreas del Valle de Ariño y Estercuel— y de Calanda) se disponen en las zonas proximales del aparato deltaico que dio lugar a los depósitos de la Fm. Escucha, donde la influencia marina es menor.

Esta anómala situación permite deducir que el contenido en sulfato de las aguas de las turberas de la llanura pantanosa en las áreas proximales del aparato deltaico era mayor que en el caso de las turberas distales del cinturón de marismas con influencia marina. Ello hace suponer que las aguas continentales albienses de este sector de la Cordillera Ibérica presentaban contenidos muy elevados de sulfatos. Este hecho podría relacionarse con el desmantelamiento de las formaciones con evaporitas infraliásicas y triásicas (facies Keuper) que se estaba produciendo en esta época y puede ser argumentado paleogeográficamente y sedimentológicamente.

Desde el punto de vista paleogeográfico, parte del área fuente del margen septentrional del delta-estuario que originó la Fm. Escucha se encontraba constituida por potentes series evaporíticas del Lías basal y del Keuper, de las que hoy en día se localizan más al norte los testimonios de mayor potencia bajo los sedimentos terciarios de la Depresión del Ebro (hasta 1500 m, según Lanaja, 1986). Hacia los bordes de la cuenca, el substrato de la Fm. Escucha y/o de la Fm. Utrillas puede estar formado por sedimentos del Keuper. La

erosión de las secuencias evaporíticas citadas pudo poner en solución una cantidad considerable de sulfatos tanto a través de la escorrentía superficial, como por flujos freáticos. Este último mecanismo ha sido puesto en evidencia actualmente en flujos hídricos subterráneos de la Cuenca del Ebro (Bayo, 1989, com. pers.). En este mismo contexto fue movilizada una gran cantidad de hierro, elemento también muy abundante en los sedimentos del Keuper.

Las capas de carbón de la Fm. Escucha de estos sectores septentrionales más próximos a las formaciones evaporíticas tienen mayores concentraciones de azufre, en especial de azufre orgánico. En el contexto paleogeográfico descrito, las turberas proximales de la llanura pantanosa actuarían como trampas sulfato-reductoras, atrapando el azufre en forma orgánica por las plantas y en forma de sulfuros de hierro singenéticos. Dado que las aguas de formación de estas zonas contienen mayor cantidad de sulfato, la cantidad de azufre de las turberas será mayor y como resultado las capas de carbón que se originen poseerán mayor concentración de este elemento.

Como argumento sedimentológico del aporte de grandes cantidades de sulfatos a las turberas precursoras de las capas de carbón de la Fm. Escucha en las zonas proximales del aparato deltaico, cabe indicar la existencia de intercalaciones de bancos microconglomeráticos de hasta dos metros de potencia en el sector noroeste del área estudiada. En estos niveles abundan los cuarzos bipiramidados con microinclusiones de anhidrita, "Jacintos de Compostela", que son típicos de las formaciones evaporíticas del Keuper. En consecuencia, estas capas reflejan la contemporaneidad de la erosión de los materiales evaporíticos del Keuper (y, por consiguiente, de los liásicos basales suprayacentes) con la sedimentación de la Fm. Escucha, al mismo tiempo que implican la disolución de un volumen muy importante de sulfatos dada la cantidad de "Jacintos de Compostela" que aparecen en estas capas.

Se ha visto como, en líneas generales, la distribución vertical del azufre en las capas de carbón de la Fm. Escucha está relacionada con la influencia marina sobre las turberas precursoras, mientras que la horizontal a nivel de cuenca parece estar controlada por el aporte de sulfatos continentales. Esta situación general, sin embargo, puede verse distorsionada por factores como la potencia de la capa carbonosa, la permeabilidad de los interestériles y la actividad de fallas sinsedimentarias. Todos estos factores enriquecen en azufre las capas de carbón.

Dentro de una misma serie con semejantes características en cuanto a medio de depósito se observa como las capas más potentes tienen concentraciones de azufre inferiores a las capas cuya potencia no excede un metro. Ejemplos ilustrativos se encuentran en la Cubeta de Castellote, donde aumen-

ta el contenido de azufre de las capas de carbón hacia techo de la serie paralelamente a la reducción de la potencia de las capas.

Otro factor perturbador de la distribución general del azufre es la permeabilidad de los interestériles de las capas de carbón. La intercalación de capas de materiales muy permeables, como arenas o microconglomerados, favorece la precipitación de sulfuros de hierro en las capas subyacentes. Un ejemplo típico es el techo de la capa P del Área del Valle de Ariño (Cubeta de Oliete), con abundantes concreciones de sulfuros de hierro y cuyos sedimentos supra-yacentes son niveles de arenas muy permeables.

Por último, cabe resaltar que a través de fallas sinsedimentarias se observan incrementos en el contenido de azufre, especialmente cuando estas aparecen combinadas con la reducción de potencias de las capas de carbón o con una permeabilidad elevada en los interestériles. Uno de estos casos aparece en el desmonte Mi Viña (Área de Estercuel), donde algunas capas de carbón disminuyen de potencia rápidamente o incluso llegan a desaparecer en relación con la actividad de fallas sinsedimentarias, mientras que el contenido en azufre pirítico se incrementa de forma considerable.

CONCLUSIONES

Los contenidos medios de azufre de las capas de carbón de la Fm. Escucha tienden a disminuir verticalmente hacia techo de las series estratigráficas, mientras que horizontalmente, a nivel de cuenca, tienden a incrementarse hacia los afloramientos más septentrionales. La tendencia vertical es coherente con la relación generalmente observada entre la influencia marina del medio de depósito y el mayor contenido en azufre de las capas de carbón generadas a partir de este medio. Respecto a la distribución horizontal a nivel de cuenca, se propone como hipótesis que la distribución del azufre viene controlada por el aporte masivo de sulfatos a la cuenca, como consecuencia del desmantelamiento de las secuencias evaporíticas infraliásicas y del Keuper. Este reciclaje del azufre sería el principal mecanismo responsable del alto contenido en azufre que muestran los carbones albienses del Distrito Minero Turolense. Finalmente, cabe resaltar que estas dos tendencias generales se ven a menudo perturbadas en relación con factores tales como la potencia de capa, la permeabilidad de los interestériles o la actividad de fallas sinsedimentarias.

AGRADECIMIENTOS

El presente trabajo ha sido elaborado en el marco del Proyecto de Investigación PB87-0463-C02-01, financiado por la CICYT, y el Plan de Formación de Personal Investigador, del Ministerio de Educación y Ciencia. Asimismo, deseamos expresar nuestro más sincero agradecimiento a las empresas mineras del Distrito Minero Turolense por facilitar el acceso a las explotaciones mineras para la realización del muestreo y los estudios estratigráficos y sedimentológicos.

BIBLIOGRAFÍA

- AGUILAR, M.J., RAMÍREZ DEL POZO, J. y RIBA, O. (1971). Algunas precisiones sobre la sedimentación y paleoecología del Cretácico inferior en la zona de Utrillas Villarroya de los Pinares (Teruel). *Est. Geol.*, 27: 497-512.
- ALTSCHULER, Z., SCHNEPFER, M., SILBER, C. y SIMON, O. (1983). Sulfur diagenesis in Eelgrades Peat and origin of pyrite in coal. *Science*, 221: 221-227.
- BERTINE, K.K. y GOLDBERG, E.D. (1971). Fossil fuel combustion and the major sedimentary cycle. *Science*, 173: 233-235.
- CASAGRANDE, D.J., SIEFERT, K., BERSCHINSKI, CH. y SUTTON, N. (1977). Sulfur in peat-forming systems of the Okefenokee Swamp and Florida Everglades. Origin of sulfur in coal. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 41: 161-167.
- CERVERA, A., PARDO, G. y VILLENA, J. (1976). Algunas precisiones litoestratigráficas sobre la formación lignitos de Escucha. *Tecniterrae*, 14: 25-33.
- COHEN, A.D., SPACKMAN, W. y DOLSEN, P. (1984). Occurrence and distribution of sulfur in peat-forming environments of Southern, Florida. *Int. J. Coal Geol.*, 4: 73-96.
- GIVEN, P.H. y MILLER, R.N. (1985). Distribution of sulfur in peats from saline environments in the Florida Everglades. *Int. J. Coal Geol.*, 5: 397-409.
- LANAJA, J.M. (1986). *Contribución de la explotación petrolífera al conocimiento de la Geología de España*. Instituto Geológico y Minero de España. 465 pp.
- PARDO, G. (1979). *Estratigrafía y sedimentología de las formaciones detríticas del Cretácico inferior terminal en el Bajo Aragón turolense*. Tesis Doctoral, Univ. Zaragoza. 450 pp.
- QUEROL X., CHINCHÓN S. y LÓPEZ SOLER A. (1989 a). Iron sulfide precipitation sequence in Albian coals from the Maestrazgo Basin, southeastern Iberian Range, northeastern Spain. *Int. J. Coal. Geol.*, 11: 171-189.
- QUEROL X., CHINCHÓN J.S. y LÓPEZ A. (1989 b). Distribución del azufre en los carbones albienses de la Cuenca del Maestrazgo. *Acta Geol. Hisp.*, 24: 21-32.
- QUEROL X. y SOLE DE PORTA N. (1989). Precisiones cronoestratigráficas sobre la

- Fm. Escucha en el sector noroeste de la cuenca del Maestrazgo, Cordillera Ibérica oriental. *Acta Geol. Hisp.*, 24: 73-82.
- QUEROL X. (1990). *Distribución de azufre y materia mineral en los carbones de la Fm. Escucha. Relaciones con los factores geológicos, sedimentológicos y diagenéticos*. Tesis Doctoral. Univ. Barcelona. 523 pp.
- QUEROL, X., SALAS, R., PARDO, G. y ARDEVOL, L. (1991). Albian coal - bearing deposits of the Iberian Range in NE Spain. In: McCabe, P. y Parrish, J. (eds.) *The controls on distribution and quality of Cretaceous coals*. Geol. Soc. America Spec. Paper (en prensa).
- SHIMOYAMA, T. (1984). Sulphur concentration in the Japanese Paleogene coal. In: Rahmani, R.A. y Flores, R.M. (eds.) *Sedimentology of coal and coal-bearing sequences*. Int. Ass. Sedim. Spec. Publ. 7, Blackwell Scient. Publ.: 361-372.
- SHIMOYAMA, T., YAMAZAKI, K. y IJIMA, A. (1990). Sulphur isotopic composition in the Paleogene coal of Japan. *Int. J. Coal Geol.*, 15: 191-217.
- SMITH, J.W. y BATTS, B.D. (1974). The distribution and isotopic composition of sulfur in coal. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 38: 121-133.
- TEICHMÜLLER, M. y TEICHMÜLLER, R. (1982). The geological basis of coal formation. In: *Stach's Textbook of Coal Petrology*. Gebrüder Borntraeger, Berlin, Stuttgart. 5-82.
- WILLIAMS, E.G. y KEITH, M.L. (1963). Relationship between sulfur in coals and the occurrence of marine roof beds. *Economic Geology*, 58: 720-729.

Manuscrito recibido: 16 diciembre 1991.

Revisión aceptada: 5 mayo 1993.