

Mirco RAMACCIOTTI^{a,b}, Gianni GALLELLO^{a,c}, Carmen ARANEGUI GASCÓ^a,
Emilia HERNÁNDEZ^d y Agustín PASTOR^b

Análisis químicos de los sillares de arenisca del Castillo de Sagunto

RESUMEN: El Castillo de Sagunto es un importante complejo arquitectónico situado en la Comunidad Valenciana (España) y caracterizado por la superposición de diferentes fases de construcción desde el periodo romano republicano hasta la Edad Moderna. En este estudio se muestrean sillares de arenisca pertenecientes a las estructuras del Castillo de distintos periodos y también rocas con características macroscópicas similares recogidas de un afloramiento en el Monte Picayo. Las muestras fueron analizadas empleando espectroscopía de fluorescencia de rayos X y espectrometría de masa con plasma acoplado inductivamente para obtener las concentraciones de elementos mayoritarios y traza incluyendo tierras raras. Los datos obtenidos indican que la mayoría de las muestras tienen concentraciones de tierras raras similares a la roca del Monte Picayo, sugiriendo que la arenisca utilizada durante siglos podría derivar de esta zona. Sin embargo, diferencias en el perfil de tierras raras en algunas areniscas puede indicar la explotación de más canteras alrededor de la Sierra Calderona.

PALABRAS CLAVE: Sagunto, materiales de construcción, fases de construcción, materias primas, procedencia, arqueometría, tierras raras.

Chemical analysis of the sandstone ashlars of Sagunto Castle

ABSTRACT: Sagunto Castle is a very important architectural complex located in the Valencian Community (Spain) and characterised by the overlapping of different construction phases from the Republican Roman Period to the Modern Ages. Sandstone samples were collected from the ashlars of buildings of different historical periods together with rock from Picayo mount, where rocks with similar macroscopic features outcrop. The samples were analysed by X-ray fluorescence spectroscopy and inductively coupled plasma mass spectrometry to obtain major, trace and rare earth elements concentrations. The obtained data indicate that most of the samples have rare earth elements concentrations similar to the rocks of the Picayo mount, suggesting exploitation of the same quarry throughout the centuries. However, chemical differences in some sandstone suggest the presence of more quarries exploited in Sierra Calderona.

KEYWORDS: Sagunto, building materials, construction phases, raw materials, provenance, archaeometry, rare earth elements.

a Departament de Prehistòria, Arqueologia
i Història Antiga, Facultat de Geografia i Història,
Universitat de València.
mirco.ramacciotti@gmail.com
gianni.gallelo@uv.es
Carmen.Aranegui@uv.es

b Departament de Química Analítica, Facultat de
Química, Universitat de València.
agustin.pastor@uv.es
c Department of Archaeology, University of York.
d Museo Arqueológico de Sagunto.
hernandez_emi@gva.es

1. INTRODUCCIÓN

La caracterización de materiales de construcción en estructuras antiguas puede ofrecer indicios para contestar a preguntas relacionadas con las fases de construcción de un monumento (Uchida et al., 2007; Chiarelli et al., 2015; Secco et al., 2019) y con la procedencia de las materias primas empleadas (Uchida y Shimoda, 2013; Columbu, 2018; Columbu et al., 2018).

En este estudio se presentan los primeros resultados de los análisis químicos efectuados en algunos sillares de arenisca del Castillo de Sagunto. La ciudad de Sagunto (fig. 1) está situada 25 km al norte de Valencia (España) y fue ocupada por los iberos desde antes del siglo V a.C. Sin embargo, desde la conquista romana el castillo sufrió continuos cambios y el desarrollo de diferentes fases de construcción hasta el siglo XIX d.C. (Ripollès, 2004).

Las excavaciones del Departamento de Prehistoria, Arqueología e Historia Antigua de la Universitat de València realizadas durante los últimos cuarenta años en Sagunto han prestado atención a los materiales de construcción y recientemente han empezado a ser objeto de análisis químicos y mineralógicos (Gallello et al., 2017; Ramacciotti et al., 2018; Ramacciotti et al., 2019b). Estas excavaciones han tenido por objeto documentar tanto determinados sectores del área portuaria del Grau Vell como los complejos públicos de la antigua ciudad (Aranegui y Hernández, 1989), para las fechas comprendidas entre la fase ibérica, la romanización de época republicana y la remodelación implícita en la concesión del estatuto jurídico de municipio de ciudadanos romanos a Saguntum (CIL II, 14/305) en tiempos de Augusto (Aranegui, 2004; 2014). De estos trabajos en equipo se derivaron también monografías sobre el teatro (Hernández, 1988) y la decoración arquitectónica (Chiner, 1990), además de una pequeña guía del *Castell* y de los monumentos romanos (AA.VV., 1987), con indicaciones sobre los materiales constructivos.

De este modo se ha podido apreciar que la arquitectura del Grau Vell está realizada en adobe y madera para la época ibérica inicial y con zócalos de bolos de río dispuestos en seco durante el tránsito al período romano-republicano, material al que se suma arenisca (piedra de rodano) del Monte Picayo, que supone la explotación de una cantera que dista unos 4 km del lugar y el consiguiente transporte del material. Solo el torreón (5 m x 6,8 m) incorpora caliza dolomítica del Castillo, tallada en bloques paralelepípedicos, desde el inicio de su existencia a comienzos del siglo II a.C., en la misma fase en que se levanta allí la muralla republicana, cuando Arse-Saguntum explota la cantera local sistemáticamente. Sin embargo, el testimonio edilicio más antiguo de la explotación de la cantera del Castillo lo constituye la muralla ibérica del siglo IV a.C. que rodea un sector de unas 10 ha de la cima, de la que se conserva parcialmente la base, que alcanza unos 2,5 m de altura en algunos tramos (Rouillard, 1979).

Los primeros estudios arqueométricos en los morteros del Castillo de Sagunto (Gallello et al., 2017) y de dos áreas arqueológicas ciudadanas (Ramacciotti et al., 2018), y los análisis en los sillares de caliza y dolomitas del Castillo (Ramacciotti et al., 2019b) confirmaron la compleja historia constructiva en el área, en coincidencia con lo observado por los estudios llevados a cabo durante las anteriores campañas de excavación, destacando las reformas y reemplazo de material en la mayoría de las estructuras, así como la probable explotación de las canteras de calizas y dolomitas en los alrededores del castillo para la construcción de los edificios a lo largo en el tiempo. Sin embargo, en el Castillo de Sagunto se emplearon también sillares de arenisca, aunque parece que en menor medida. Este litotipo se encuentra en la secuencia sedimentaria del entorno de Sagunto y, en particular, una arenisca roja similar a la empleada en las estructuras estudiadas aflora en el Monte Picayo (fig. 1), 5 km al suroeste del Castillo (Goy Goy et al., 1973).

En este trabajo, se muestrearon areniscas de diferentes edificios y rocas del Monte Picayo. El conjunto fue analizado por medio de un espectrómetro portátil de fluorescencia de rayos X (pXRF) y por un espectrómetro de masas con plasma acoplado inductivamente (ICP-MS) para determinar concentraciones de elementos mayoritarios, traza y tierras raras. Además, los datos fueron procesados estadísticamente por el análisis de los componentes principales (PCA) para determinar la posible relación entre muestras arqueológicas y naturales.

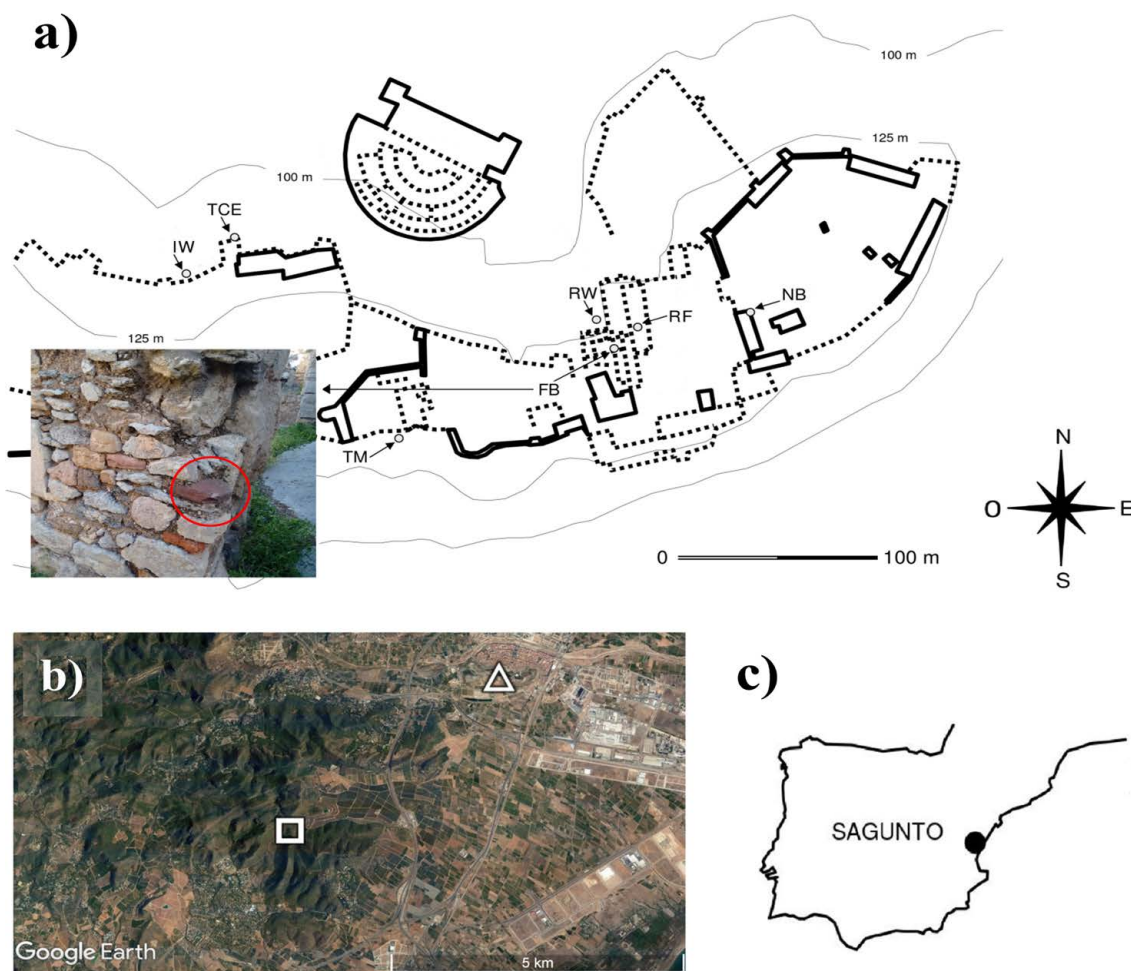


Fig. 1. a) Mapa del castillo de Sagunto y puntos de muestreo (leyenda: RF = foro republicano, RW = muralla republicana, TCE = Torre Central Estudiantes, FB = Basílica (foto: ejemplo de arenisca muestreada en el círculo), MT = Torre de la Moneda, IW = muralla islámica, NB = caserón napoleónico). b) Mapa del entorno del castillo de Sagunto (leyenda: triángulo = castillo de Sagunto, cuadrado = área de muestreo de las areniscas en el Monte Picayo). c) Localización de Sagunto en la península ibérica. Las imágenes 1a y 1c están modificadas de Ramacciotti et al. (2019b).

2. MATERIALES Y MÉTODOS

2.1. Muestreo

Diez muestras fueron tomadas de sillares de areniscas rojas oscuras y de grano fino (tabla 1). Por el relevante valor histórico del monumento, se pudo muestrear un gramo máximo de cada sillar. Una pequeña área de la superficie de cada sillar fue raspada para minimizar la recogida de roca alterada y pequeños fragmentos fueron extraídos con un cincel.

Tabla 1. Lista de las muestras, procedencia y datación del edificio.

Muestra	Edificio	Periodo
RF1S	Foro Republicano	Romano Republicano
RW1S	Muralla Republicana	Romano Republicano
TCE1S	Torre Central Estudiantes	Romano Republicano
TCE2S	Torre Central Estudiantes	Romano Republicano
TCE3S	Torre Central Estudiantes	Romano Republicano
FB1S	Basilica	Romano Imperial
MT1S	Torre de la Moneda	Periodo Islámico
IW1S	Muralla Islámica	Periodo Islámico
IW2S	Muralla Islámica	Periodo Islámico
NB1S	Caserón Napoleónico	Edad Moderna
PIC1	Afloramiento del Monte Picayo	
PIC2	Afloramiento del Monte Picayo	
PIC3	Afloramiento del Monte Picayo	

Las muestras fueron tomadas de diferentes edificios (fig. 1a) para cubrir los principales periodos de ocupación del Castillo de Sagunto desde la época romana republicana hasta la Edad Moderna. Una muestra fue recogida del foro republicano (RF) y otra de la muralla republicana (RW). Tres muestras proceden de la torre central de la plaza de estudiantes (TCE), construida en el periodo romano republicano, aunque los datos arqueológicos, así como los análisis de los morteros y de los sillares, sugieren la presencia de fases de construcciones en los periodos siguientes (Gallello et al., 2017; Ramacciotti et al., 2019a). Una muestra procede de la basílica del foro alto-Imperial (FB). El periodo Islámico está representado por tres muestras: una procedente de la torre de la Moneda (MT) y dos de la muralla islámica (IW). La muestra NB1S procede del Caserón Napoleónico (NB) de inicio del siglo XIX. Tres muestras de rocas con características macroscópicas similares a las de los sillares fueron tomadas de un afloramiento en el Monte Picayo (PIC1-3) (fig. 1b).

2.2. Análisis de los elementos mayoritarios y traza

Antes de los análisis, las muestras fueron homogenizadas y pulverizadas con un mortero de ágata. Los elementos mayoritarios se midieron con un espectrómetro portátil de fluorescencia de rayos X por energía dispersiva (pXRF). El modelo del espectrómetro es S1 Titan de Bruker (Kennewick, Washington DC, USA), equipado con un tubo de rayos X en rodio y un detector X-Flash® SDD. La aplicación Geochem-trace fue utilizada para obtener las concentraciones de Al, Si, K, Ca, Ti and Fe.

0.15 g de cada muestra pulverizada fueron llevados en disolución por digestión por ácido utilizando agua regia. Las disoluciones se midieron por espectrometría de masas por plasma acoplado inductivamente (ICP-MS). Los detalles sobre la preparación de las muestras se pueden encontrar en Gallello et al. (2017). La concentración de los elementos trazas (Ba, Bi, Cd, Cr, Co, Cu, Pb, Li, Mn, Mo, Ni, Sr, Tl, V, Zn, Sc, Y) y de los elementos de las tierras raras (REE: La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu) se midieron por un espectrómetro de masas Elan DRCII de Perkin Elmer (Concord, Ontario, Canada).

2.3. Análisis de los componentes (PCA)

El PCA se empleó para explorar el conjunto de datos reduciendo el número de variables. Los datos se autoescalaron antes de la modelización y la validación cruzada se efectuó por el método *leave one out*. La estadística multivariada se efectuó con el paquete PLS Toolbox 6.5 de Eigenvector Research Inc. (Wenatchee, WA, USA) en Matlab R2014b de Mathworks Inc. (Natick, MA, USA).

3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

3.1. Resultados de los análisis de los elementos mayoritarios y traza

La concentración de los elementos mayoritarios en las muestras, obtenidas por pXRF, se encuentran en la tabla 2.

Por lo que concierne a las muestras arqueológicas, el silicio (Si: 37 ± 4 wt%, porcentaje masa/masa), el aluminio (Al: $3,0 \pm 1,7$ wt%) y el calcio (Ca: $1,1 \pm 0,8$ wt%) son los elementos caracterizados por las concentraciones más altas. El K está entre 0,23 wt% y 3,75 wt%, y el Fe entre 0,63 wt% y 2,39 wt%. La concentración de Ti está entre 0,04 wt% y 0,39 wt%.

Las tres muestras del Monte Picayo están caracterizadas por niveles comparables de Al ($5,4 \pm 1,7$ wt%), Ca ($4,6 \pm 1,4$ wt%), Ti ($0,29 \pm 0,13$ wt%) y Fe ($1,4 \pm 0,3$ wt%). Sin embargo, muestran más bajas concentraciones de Si (29 ± 2 wt%) y más altas de K ($3,2 \pm 0,2$ wt%).

Las concentraciones de los elementos trazas, obtenidas por análisis de ICP-MS, están en la tabla 3. En las muestras arqueológicas, Cr (404 ± 245 µg/g), Mn (97 ± 67 µg/g), Ba (32 ± 18 µg/g), Sr (26 ± 11 µg/g) y Ni (15 ± 7 µg/g) son los elementos caracterizados por las concentraciones más altas. La concentración

Tabla 2. Concentraciones de los elementos mayoritarios.

Muestra	Al	Si	K	Ca	Ti	Fe
RF1S	2,52	38,69	0,92	0,66	0,07	0,73
RW1S	2,13	38,97	1,33	0,95	0,07	0,63
TCE1S	5,43	30,08	3,67	2,62	0,37	2,15
TCE2S	0,18	39,45	0,23	0,17	0,04	0,69
TCE3S	3,60	39,41	1,39	0,99	0,22	1,11
FB1S	5,87	29,53	3,75	2,68	0,39	2,39
MT1S	3,18	36,53	1,25	0,89	0,08	0,90
IW1S	2,74	37,47	1,58	1,13	0,11	1,06
IW2S	1,67	35,69	0,71	0,51	0,09	0,89
NB1S	2,57	40,00	0,86	0,61	0,09	0,87
$\mu \pm \sigma$	$3,0 \pm 1,7$	37 ± 4	$1,6 \pm 1,2$	$1,1 \pm 0,8$	$0,15 \pm 0,13$	$1,1 \pm 0,6$
PIC1	3,50	31,21	3,20	3,05	0,15	1,06
PIC2	5,97	27,22	3,07	5,06	0,33	1,71
PIC3	6,77	28,52	3,49	5,71	0,40	1,33
$\mu \pm \sigma$	$5,4 \pm 1,7$	29 ± 2	$3,2 \pm 0,2$	$4,6 \pm 1,4$	$0,29 \pm 0,13$	$1,4 \pm 0,3$

Nota: Las concentraciones elementales están expresadas en porcentaje masa/masa (wt%).

Tabla 3. Concentraciones de los elementos trazas.

Muestra	Bi	Pb	Tl	Ba	Cd	Mo	Y	Sr	Zn	Cu	Ni	Co	Mn	Cr	V	Sc	Li
RF1S	0,03	10	0,05	56	0,04	0,8	1,1	18	8	4	9	2	215	259	<LD	0,3	0,05
RW1S	0,02	7	0,016	13	0,06	14	0,8	25	17	5	11	1,1	61	490	<LD	0,4	0,8
TCE1S	0,11	3	0,2	35	0,06	9	6	29	41	4	24	6	187	445	<LD	2	11
TCE2S	0,003	4	<LD	11	0,09	30	0,7	48	5	6	21	1,8	43	1060	<LD	0,19	0,5
TCE3S	0,002	0,7	<LD	25	0,04	5	1,1	31	23	4	26	3	39	276	150	11	0,8
FB1S	0,10	11	0,4	43	0,016	1,0	6	16	36	10	18	5	174	230	9	2	10
MT1S	0,03	7	0,04	48	0,05	0,7	0,8	32	6	4	7	1,3	47	249	<LD	0,3	1,2
IW1S	0,09	12	0,10	24	0,008	1,1	2	35	6	5	10	1,3	50	337	<LD	0,2	0,4
IW2S	0,12	5	0,2	55	0,11	1,8	0,8	17	2	4	10	1,3	74	364	<LD	0,6	0,3
NB1S	0,02	1,4	0,003	10	<LD	0,9	0,5	14	5	4	10	1,2	84	335	3	0,4	0,3
μ	0,05	6	0,13	32	0,05	7	2	26	15	5	15	2,5	97	404	-	2	2
σ	0,05	4	0,13	18	0,03	9	2	26	14	2	7	1,8	67	245	-	3	4
PIC1	0,016	0,2	0,003	333	0,009	0,03	2	10	2	0,2	5	3	128	1,9	<LD	0,5	0,3
PIC2	0,05	0,6	0,06	22	0,009	0,09	5	8	7	0,2	3	1,8	59	5	2	1,4	0,9
PIC3	0,03	0,5	0,03	24	0,011	0,06	4	5	5	0,3	2	1,7	34	3	<LD	0,8	0,7
μ	0,03	0,5	0,03	126	0,009	0,06	3,5	8	5	0,23	3,3	2,2	74	3,2	-	0,9	0,6
σ	0,02	0,2	0,03	179	0,001	0,03	1,4	2	2	0,04	1,1	0,9	49	1,5	-	0,5	0,3

Nota: La concentración de los elementos está expresada en $\mu\text{g/g}$. <LD: bajo del límite de detección.

de los otros elementos es en la mayoría de los casos menor de $10 \mu\text{g/g}$ y la mayoría de las muestras tiene niveles de V menores del límite de detección. Los resultados de las muestras del Monte Picayo están en acuerdo con los obtenidos en las arqueológicas en la mayoría de los elementos. Sin embargo, las muestras geológicas tienen concentraciones menores de Pb ($0,5 \pm 0,2 \mu\text{g/g}$), Sr ($8 \pm 2 \mu\text{g/g}$), Cu ($0,23 \pm 0,04 \mu\text{g/g}$), Ni ($3,3 \pm 1,1 \mu\text{g/g}$) y Cr ($3,2 \pm 1,5 \mu\text{g/g}$).

Por lo que concierne a los elementos de las tierras raras (REE) (tabla 4), en la mayoría de las muestras el contenido total de estos elementos ($\sum\text{REE}$) está entre $7 \mu\text{g/g}$ y $13 \mu\text{g/g}$, aunque TCE1S ($92 \mu\text{g/g}$), FB1S ($167 \mu\text{g/g}$) e IW1S ($42 \mu\text{g/g}$) tienen valores anormalmente altos. $\sum\text{REE}$ está entre $15 \mu\text{g/g}$ y $55 \mu\text{g/g}$ en las muestras geológicas.

3.2. Procesamiento estadístico de los datos

La presencia de grupos entre las muestras analizadas se evaluó a través del análisis de los componentes principales (PCA).

Se realizó un primer PCA empleando como variables la concentración de todos los elementos analizados (fig. 2). El PC1 y el PC2 explican el 55.61% y el 16.36% de la variancia del conjunto de datos respectivamente. Como se puede ver en el diagrama de puntuaciones (fig. 2a), la mayoría de las muestras arqueológicas se agrupa cerca del origen de los ejes, excepto para TCE2S, que tiene valores más altos de PC2, y TCE1S y FB1S, que están juntas en el eje positivo del PC1. Es interesante notar que las

Tabla 4. Concentraciones de los elementos de las tierras raras (REE).

Muestra	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	ΣREE
RF1S	3	6	0,4	2	0,5	0,11	0,5	0,07	0,3	0,06	0,15	0,019	0,11	0,002	13
RW1S	1,8	4	0,4	1,8	0,4	0,07	0,4	0,4	0,2	0,04	0,09	0,011	0,07	0,009	10
TCE1S	18	38	4	17	3	0,5	3	4	1,9	0,3	0,7	0,08	0,5	0,07	92
TCE2S	1,5	4	0,4	1,7	0,4	0,05	0,3	0,4	0,2	0,03	0,07	0,007	0,04	0,005	9
TCE3S	0,9	1,4	0,17	0,8	1,2	0,4	1,9	1,2	0,6	0,03	0,2	0,012	0,18	0,019	9
FB1S	36	71	6	36	6	0,7	5	0,6	3	0,4	1,0	0,11	0,7	0,009	167
MT1S	2	4	0,4	2	0,4	0,07	0,4	0,05	0,2	0,04	0,10	0,011	0,07	0,001	10
IW1S	9	18	1,5	9	1,7	0,3	1,5	0,2	0,8	0,13	0,3	0,04	0,2	0,003	42
IW2S	1,4	3	0,3	1,4	0,3	0,09	0,4	0,09	0,3	0,06	0,11	0,03	0,09	0,003	7
NB1S	1,7	4	0,3	1,8	0,3	0,05	0,3	0,04	0,17	0,02	0,06	0,006	0,04	0,001	8
μ	8	15	1	7	1	0,2	1,4	0,7	0,8	0,11	0,3	0,03	0,2	0,01	37
σ	11	23	2	11	2	0,2	1,7	1,2	0,9	0,13	0,3	0,04	0,2	0,02	53
PIC1	3	6	0,7	3	0,8	0,15	0,6	0,09	0,5	0,08	0,18	0,02	0,13	0,02	15
PIC2	8	17	2	8	1,7	0,18	1,5	0,2	1,2	0,18	0,5	0,05	0,3	0,04	42
PIC3	12	24	3	11	2	0,2	1,6	0,2	1,0	0,15	0,4	0,04	0,2	0,03	55
μ	8	16	1,8	7	1,5	0,18	1,2	0,17	0,9	0,13	0,33	0,039	0,22	0,030	37

Nota: La concentración de los elementos está expresada en μg/g. ΣREE: suma de los REE.

muestras geológicas se separan de las arqueológicas y se sitúan en valores negativos de PC2. Observando la correlación del PC2 con las variables originarias (fig. 2b) y los resultados discutidos precedentemente, la diferencia entre las muestras naturales y las arqueológicas parece estar relacionada con niveles más altos de algunos elementos mayoritarios en las primeras (Al, K, Ca, Ti) y niveles más altos de algunos elementos trazas en las segundas (Pb, Cd, Mn, Sr, Cu, Ni, Cr) que, además, son más ricas en silicio. La presencia de estos elementos traza se detectó en la superficie de sillares de arenisca en edificios históricos de áreas urbanas por la contaminación antropogénica (Sabbioni y Zappia, 1992; La Russa et al., 2013), sin embargo, la evaluación del estado de conservación de los sillares no es el fin del presente estudio y necesitaría el empleo de técnicas analíticas específicas.

En un segundo modelo, se utilizaron como variables solo REE, Y y Sc (fig. 3); elementos empleados para diferenciar sedimentos y rocas caracterizadas por diferentes procedencias y origen, debido a su capacidad de distinguir diferentes condiciones de formación y su menor alterabilidad por factores diagenéticos y post-diagenéticos (Armstrong-Altring et al., 2004; Schröder y Grotzinger, 2007; Gallelo et al, 2016; L'Héritier et al., 2016; Blake et al., 2017; Orozco Köhler y Gallelo, 2017; Lecuit et al., 2018; Ramacciotti et al., 2019a).

El PC1 explica el 80,25% de la variancia total y el PC2 el 10,41%. La mayoría de las muestras se agrupan en el tercer cuadrante (fig. 3a). Una muestra de la muralla islámica (IW1S) tiene valores un poco más altos de PC1. Las muestras mencionadas caen cerca de las tres muestras geológicas. En particular, las muestras que caen en el tercer cuadrante tienen niveles de REE similares a PIC1 y IW1S a PIC3. Sin embargo, dos muestras de la Torre Central de la plaza Estudiantes (TCE1S y TCE3S) y la única muestra de la basílica (FB1S) están dispersas en el diagrama.

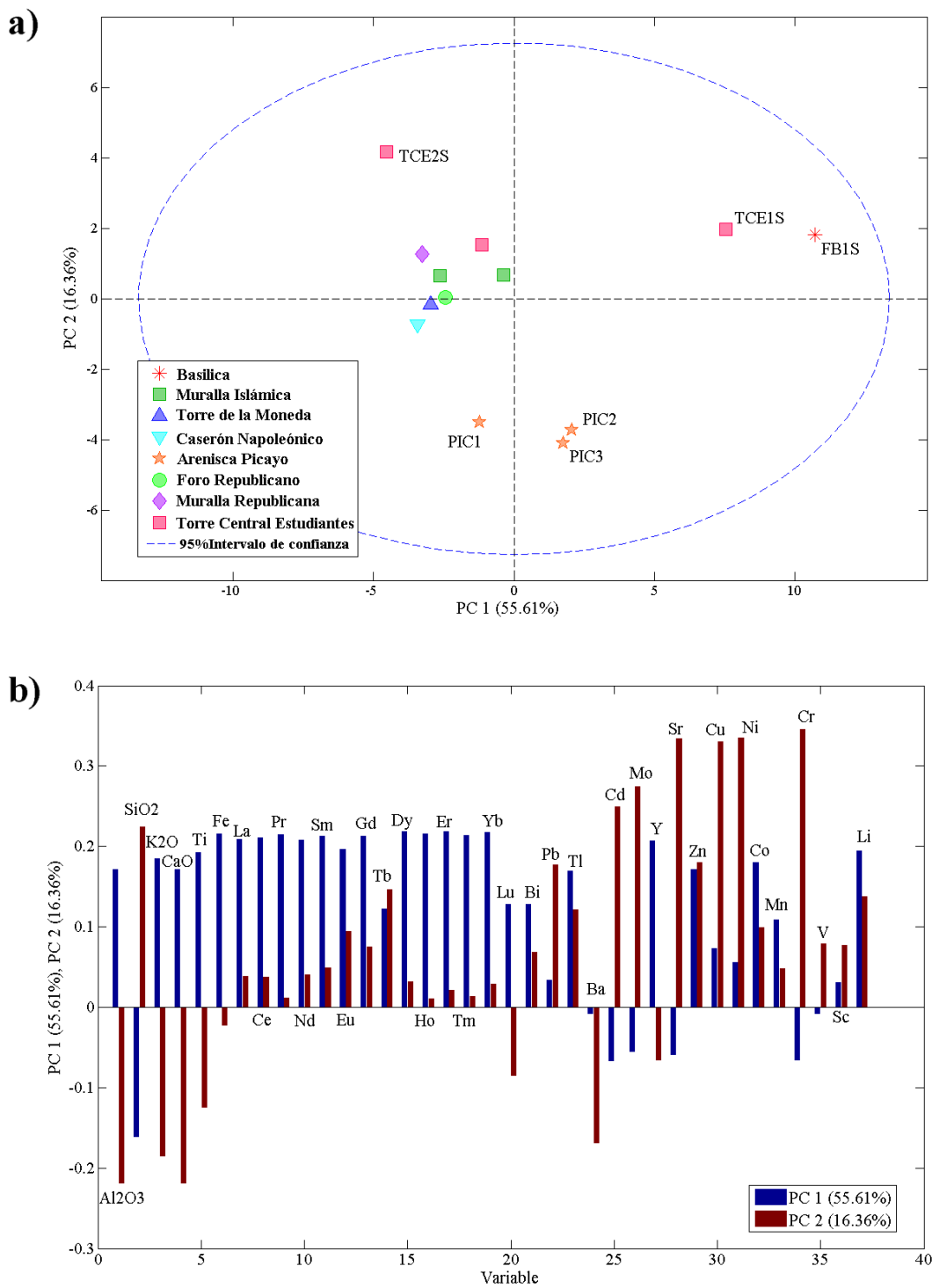


Fig. 2. PCA por los datos de todas las variables. Diagrama de puntuaciones (a) y cargas de las variables (b).

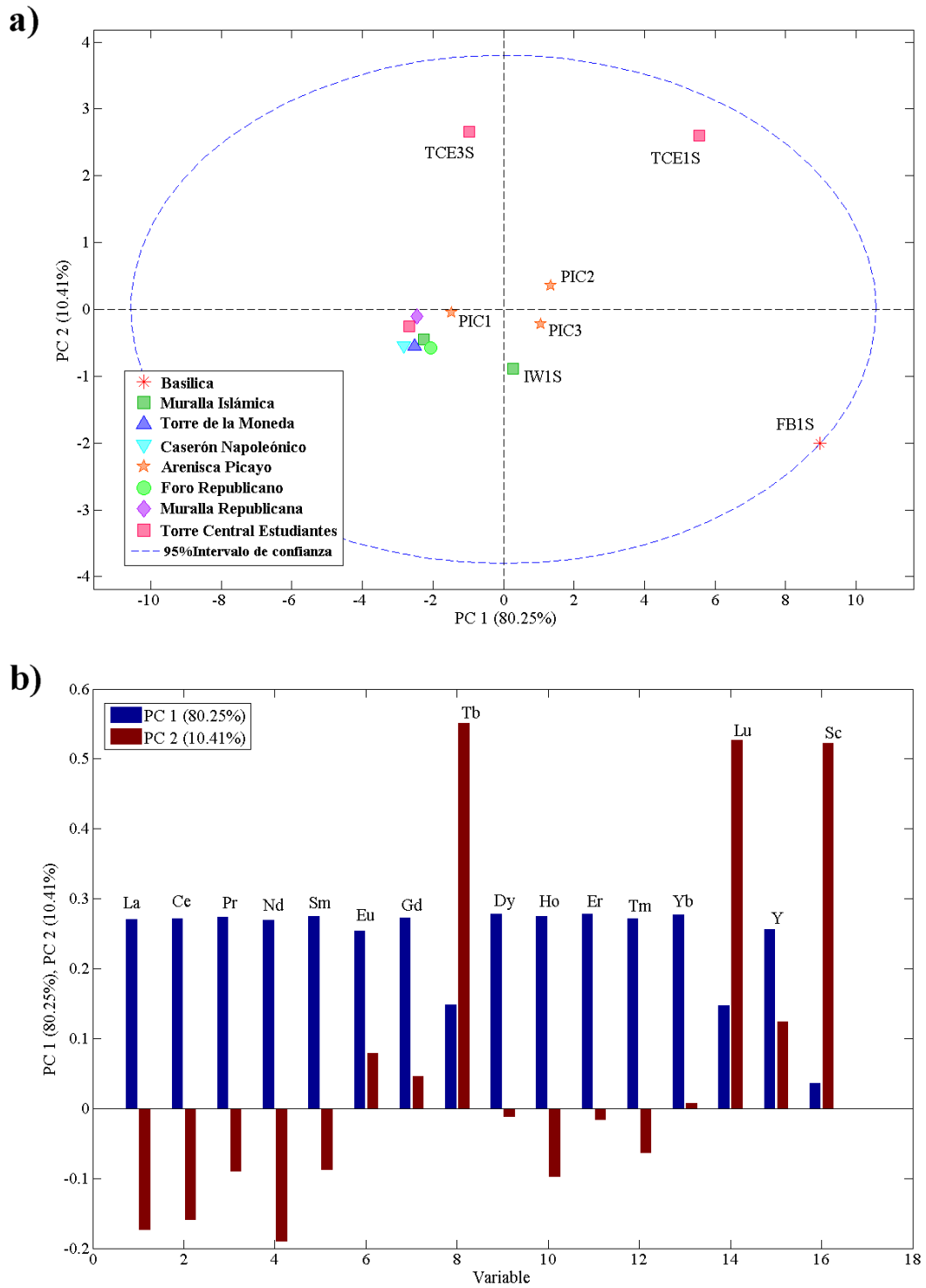


Fig. 3. PCA por los datos de REE. Diagrama de puntuaciones (a) y cargas de las variables (b).

3.3. Fases de construcción y materias primas

Los resultados de los análisis indican que en la mayoría de los edificios se emplearon materiales similares en las diferentes fases de ocupación del Castillo de Sagunto. De hecho, los muros de las estructuras romanas (TCE, RF, RW), islámicas (IW, MT) y modernas (NP) se construyeron utilizando sillares de arenisca caracterizados por una composición de tierras raras similar. Esto se puede explicar por la explotación de las mismas canteras y/o por el reemplazo de materiales para la construcción de nuevos edificios o muros. Estos sillares son similares a la arenisca del Monte Picayo desde el punto de vista macroscópico y por su composición en tierras raras, sugiriendo que las materias primas puedan haberse extraído de canteras que estaban en este monte. Al contrario, diferencias entre muestras geológicas y arqueológicas en sus contenidos en elementos mayoritarios y traza parecen estar indicando los posibles efectos de degradación en los sillares del Castillo debidos a la exposición ambiental y el efecto de la contaminación, pero más análisis son necesarios para confirmar estos datos preliminares.

Sin embargo, la presencia de tres muestras (TCE1S, TCE3S and FB1S) que no se agrupan por su composición en tierras raras con el resto deja abierta la posibilidad de materias primas diferentes. De hecho, como se confirmó en los estudios de los morteros y de los sillares de rocas carbonatadas (Gallelo et al., 2017; Ramacciotti et al., 2019a), tanto TCE como FB fueron objeto de importantes trabajos durante las fases siguientes al periodo romano.

4. CONCLUSIONES

Los resultados de los análisis sugieren que muchos de los sillares se hicieron con la misma materia prima, similar a la arenisca que aflora en el Monte Picayo. Como estas muestras se tomaron en estructuras que pertenecen al periodo romano, a la ocupación islámica y a la Edad Moderna, es posible que se explotaran las mismas canteras durante los siglos o que se emplearon materiales viejos para nuevos edificios o muros. Sin embargo, la presencia de tres muestras con diferentes características químicas estaría de acuerdo con la hipótesis de que edificios de fundación romana como TCE y FB fueron intervenidos por importantes trabajos en las fases siguientes, utilizando materias primas de distinto origen.

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen el apoyo financiero de la Generalitat Valenciana, España (proyectos PROMETEO II / 2014/077 y PROMETEO-2019-056); Ministerio de Economía y Competitividad, España - Feder (Proyecto CTQ 2014-52841-Pand Project CTQ 2012-38635). Muestran su gratitud también a todos los estudiantes de Química y Arqueología que han contribuido a la realización de este estudio. Gianni Gallelo agradece el apoyo de las ayudas Beatriz Galindo (2018) concedidas por el Ministerio de Ciencia e Innovación y el Ministerio de Universidades.

BIBLIOGRAFÍA

- AA.VV. (1987): *Guía de los monumentos romanos y del Castillo de Sagunto*. Generalitat Valenciana, Valencia.
- ARANEGUI, C. (2004): *Sagunto. Oppidum, emporio y municipio romano*. Bellaterra, Barcelona.
- ARANEGUI, C. (2014): "Saguntum". En M.H. Olcina (ed.): *Ciudades romanas valencianas*. MARQ, Alicante, p. 107-122.
- ARANEGUI, C. y HERNÁNDEZ, E. (1989): "Estudio de las fases constructivas del foro de Saguntum". En E. Hernández y C. Aranegui (ed.): *Homenatge A. Chabret 1888-1988*. Generalitat Valenciana, Valencia, p. 145-153.
- ARMSTRONG-ALTRING, J.S.; IL LEE, Y.; VERMA, S.P. y RAMASAMY, S. (2004): "Geochemistry of sandstones from the Upper Miocene Kudankulam Formation, Southern India: implications for provenance, weathering, and tectonic setting". *Journal of Sedimentary Research*, 74 (2), p. 285-297. doi: 10.1306/082803740285.

- BLAKE, J.M.; PETER, S.C. y JOHANNESSON, K.H. (2017): "Application of REE geochemical signatures for Mesozoic sediment provenance to the Gettysburg Basin, Pennsylvania". *Sedimentary Geology*, 349, p. 103-111. doi: 10.1016/j.sedgeo.2016.12.009.
- CHIARELLI, N.; MIRIELLO, D.; BIANCHI, G.; FICHERA, G.; GIAMELLO, M. y TURBANTI MEMMI, I. (2015): "Characterisation of ancient mortars from the S. Niccolò archaeological complex in Montieri (Tuscany-Italy)". *Construction and Building Materials*, 96, p. 442-460. doi: 10.1016/j.conbuildmat.2015.08.023.
- CHINER, P. (1990): *La decoración arquitectónica en Sagunto*. Generalitat Valenciana, Valencia.
- COLUMBU, S. (2018): "Petrographic and geochemical investigations on the volcanic rocks used in the Punic-Roman archaeological site of Nora (Sardinia, Italy)". *Environmental Earth Sciences*, 77, p. 577. doi: 10.1007/s12665-018-7744-4.
- COLUMBU, S.; ANTONELLI, F. y SITZIA, F. (2018): "Origin of Roman worked stones from St. Saturno Christian basilica (South Sardinia, Italy)". *Mediterranean Archaeology and Archaeometry*, 18 (5), p. 17-36. doi: 10.5281/zenodo.1256047
- GALLELLO, G.; RAMACCIOTTI, M.; LEZZERINI, M.; HERNANDEZ, E.; CALVO, E.; MORALES, A.; PASTOR, A. y DE LA GUARDIA, M. (2017): "Indirect chronology method employing rare earth elements to identify Sagunto Castle mortar construction periods". *Microchemical Journal*, 132, p. 251-261. doi: 10.1016/j.microc.2017.02.009.
- GALLELLO, G.; OROZCO, T.; PASTOR, A.; DE LA GUARDIA, M. y BERNABEU, J. (2016): "Regional provenance of dolerite prehistoric objects through mineral analysis". *Microchemical Journal*, 124, p. 167-174. doi: 10.1016/j.microc.2015.08.018.
- GOY GOY, J.L.; VEGAS MARTÍNEZ, R. y ZAZO CARDEÑA, C. (1973): "Mapa geológico de la Hoja nº 696 (Burjassot)". Mapa Geológico de España E. 1:50.000, Segunda Serie (MAGNA), 1ª ed., IGME, Madrid.
- HERNÁNDEZ, E. (1988): *El teatro romano de Sagunto*. Generalitat Valenciana, Valencia.
- LA RUSSA, M.F.; BELFIORE, C.M.; COMITE, V.; BARCA, D.; BONAZZA, L.; RUFFOLO, S.A.; CRISCI, G.M. y PEZZINO, A. (2013): "Geochemical study of black crusts as diagnostic tool in cultural heritage". *Applied Physics A*, 113, p. 1151-1162. doi: 10.1007/s00339-013-7912-z.
- LECUIT, M.; FRONTEAU, G.; BOULVAIN, F.; DECHAMPS, S.; EYSSAUTIER-CHUINE, S.; PIAVAUX, M. y YANS, J. (2018): "Geochemical characterization of 'Lorraine limestones' from the Saint-Paul Cathedral of Liège (Belgium): Assumptions for the true provenance of the building stones". *Environmental Earth Sciences*, 77, p. 166-188. doi: 10.1080/01977261.2019.1618043.
- L'HÉRITIER, M.; ARLES, A.; DISSER, A. y GRATUZE, B. (2016): "Lead it be! Identifying the construction phases of gothic cathedrals using lead analysis by LA-ICP-MS". *Journal of Archaeological Science: Reports*, 6, p. 252-265. doi: 10.1016/j.jasrep.2016.02.017.
- OROZCO KÖHLER, T. y GALLELLO, G. (2017): "Testing a new methodological approach to define the use of dolerite outcrops for prehistoric tool production in Mediterranean Iberia". En T. Pereira, X. Terradas y N. Bicho (ed.): *Raw materials exploitation in Prehistory: Sourcing, processing and distribution*. Cambridge Scholars Publishing, Newcastle upon Tyne, p. 193-205.
- RAMACCIOTTI, M.; RUBIO, S.; GALLELLO, G.; LEZZERINI, M.; COLUMBU, S.; HERNÁNDEZ, E.; MORALES-RUBIO, A.; PASTOR, A. y DE LA GUARDIA, M. (2018): "Chronological Classification of Ancient Mortars Employing Spectroscopy and Spectrometry Techniques: Sagunto (Valencia, Spain) Case". *Journal of Spectroscopy*, vol. 2018: 9736547. doi: 10.1155/2018/9736547.
- RAMACCIOTTI, M.; GALLELLO, G.; PASTOR, A.; DIEZ CASTILLO, A. y GARCÍA PUCHOL, O. (2019a): "Chert Nucleus and Cortex Characterization for Archaeological Provenance Study Tested in the Prebaetic System Region (Valencian Community, Spain)". *Lithic Technology*, 44 (3), p. 166-180. doi: 10.1080/01977261.2019.1618043.
- RAMACCIOTTI, M.; RUBIO, S.; GALLELLO, G.; LEZZERINI, M.; RANERI, S.; HERNÁNDEZ, E.; CALVO, M.; COLUMBU, S.; MORALES, A.; PASTOR, A. y DE LA GUARDIA, M. (2019b): "Chemical and mineralogical analysis on stones from Sagunto Castle (Spain)". *Journal of Archaeological Science: Reports*, 24, p. 931-938. doi: 10.1016/j.jasrep.2019.03.017.
- RIPOLLÉS, P.P. (2004): *Opulentissima Saguntum*. Bancaja, Sagunto.
- ROUILLARD, P. (1979): *Investigaciones sobre la muralla ibérica de Sagunto (Valencia)*. Servicio de Investigación Prehistórica, Diputación Provincial de Valencia (Trabajos Varios del SIP, 62), Valencia.
- SABBIONI, C. y ZAPPÀ, G. (1992): "Decay of sandstone in urban areas correlated with atmospheric aerosol". *Water, Air, and Soil Pollution*, 63 (3-4), p. 305-316. doi: 10.1007/BF00475497.

- SECCO, M.; PREVIATO, C.; ADDIS, A.; ZAGO, G.; KAMSTEEG, A.; DILARIA, S.; CANOVARO, C.; ARTIOLI, G. y BONETTO, J. (2019): "Mineralogical clustering of the structural mortars from the Sarno Baths, Pompeii: A tool to interpret construction techniques and relative chronologies". *Journal of Cultural Heritage*, 40, p. 265-273. doi: 10.1016/j.culher.2019.04.016.
- SCHRÖDER, S. y GROTZINGER, J.P. (2007): "Evidence for anoxia at the Ediacaran-Cambrian boundary: the record of redox-sensitive trace elements and rare earth elements in Oman". *Journal of the Geological Society*, 164 (1), p. 175-187. doi: 10.1144/0016-76492005-022.
- UCHIDA, E.; CUNIN, O.; SUDA, C.; UENO, A. y NAKAWAGA, T. (2007): "Consideration on the construction process and the sandstone quarries during the Angkor period based on the magnetic susceptibility". *Journal of Archaeological Science*, 34 (6), p. 924-935. doi: 10.1016/j.jas.2006.09.015.
- UCHIDA, E. y SHIMODA, I. (2013): "Quarries and transportation routes of Angkor monument sandstone blocks". *Journal of Archaeological Science*, 40 (2), p. 1158-1164. doi: 10.1016/j.jas.2012.09.036.