

## **PALEOMETRIA DO CONTEÚDO FOSSILÍFERO DE UMA CAMADA ARENÍTICA DA FORMAÇÃO ROMUALDO (BACIA DO ARARIPE)**

Renan Alfredo Machado Bantim<sup>1</sup>, Olga Alcântara Barros<sup>2</sup>, João Hermínio da Silva<sup>3</sup>, Flaviana Jorge de Lima<sup>4</sup>, Juliana Manso Sayão<sup>5</sup>, Antônio Álamo Feitosa Saraiva<sup>6</sup>

### **Resumo**

Utilizamos aqui técnicas de fluorescência e difração de raios-X para a caracterização de amostras de lenhos fósseis coletados em um afloramento da Formação Romualdo, com o objetivo de conhecer sua composição química e apontar informações que permitam compreender os mecanismos envolvidos em sua fossilização. O estudo revelou principalmente a presença de sílica e aluminossilicatos, provenientes de reações com o ambiente de deposição. Determinou-se assim, que o principal processo de fossilização envolvido foi o de silicificação. Esta é, portanto, a primeira vez que este processo é registrado em fósseis do Cretáceo da Bacia do Araripe.

**Palavras-chave:** Difração de raios-X. Fluorescência. Arenito. Lenho. Silicificação.

## **PALEOMETRY OF A FOSSILIFEROUS CONTENT FROM SANDSTONE LAYER FROM ROMUALDO FORMATION (ARARIPE BASIN)**

### **Abstract**

X-ray fluorescence and X-ray diffraction were used here in order to characterize samples of wood fossils, collected in a Romualdo Formation outcrop. The main goal was to determinate their chemical composition and better understand the mechanisms involved in the fossilization processes. X-ray fluorescence (FRX) and X-ray diffraction (DRX) were performed in the fossil material, for the identification and characterization of their compounds. It was revealed the presence of aluminosilicates and silica, belonging to reactions from the deposition environment. Therefore we determined that the main fossilization process involved was silicification. This is the first record of this preservation process through spectroscopic characterization in Cretaceous fossils of the Araripe Basin. This is therefore the first time that this process is reported in spectroscopical characterization in fossils on the Cretaceous of the Araripe Basin.

**Keywords:** X-Ray diffraction. Fluorescence. Sandstone. Wood. Silicification.

---

<sup>1</sup>Programa de Pós-Graduação em Geociências, Centro de Tecnologia e Geociências, Departamento de Geociências, Universidade Federal de Pernambuco - UFPE;

<sup>2</sup>Laboratório de Paleontologia da URCA - LPU, Departamento de Biologia, Universidade Regional do Cariri - URCA;

<sup>3</sup>Professor, Departamento de Física, Universidade Federal do Cariri - UFCA;

<sup>4</sup>Professora, Laboratório de Paleontologia da URCA - LPU, Departamento de Biologia, Universidade Regional do Cariri - URCA;

<sup>5</sup>Professora, Centro Acadêmico de Vitória, Universidade Federal de Pernambuco (CAV-UFPE);

<sup>6</sup>Professor, Laboratório de Paleontologia da URCA - LPU, Departamento de Biologia, Universidade Regional do Cariri - URCA

Autor correspondente: [renanbantimbiologo@gmail.com](mailto:renanbantimbiologo@gmail.com)

## Introdução

Fósseis provenientes da Bacia do Araripe são conhecidos mundialmente pela sua excelente preservação e diversidade paleobiológica (MAISEY, 1990; MARTILL, 2007, LIMA et al., 2014). Devido a este fator, os principais trabalhos científicos envolvendo estes fósseis, são as análises taxonômicas (MAISEY, 1993; GALLO et al., 2009, PINHEIRO et al., 2011; BANTIM et al., 2014; LIMA et al., 2014), paleoecológicas e paleoambientais (MABESOONE; TINOCO, 1993; VIANA; NEUMANN, 2002). Poucos trabalhos até o momento se utilizaram de técnicas para inferir sobre processos de fossilização ou o paleoambiente de algumas camadas fossilíferas desta bacia. Até o momento já foram publicadas a análise de escamas de peixes (LIMA et al., 2007a), um coprólito (LIMA et al., 2007b), um ramo de Gimnosperma (FILHO et al., 2011), fragmentos de ossos de um dinossauro terópode (SILVA et al., 2013) e amostras de lenhos da Formação Crato (SILVA et al., 2013).

Tendo em vista sua constituição química geral, os fósseis podem ser adequadamente estudados por técnicas analíticas tais como, infravermelho, espectroscopia Raman, difração de raios X e fluorescência de raios-X, com intuito de identificar e caracterizar os compostos que constituem o material fossilizado (PAVIA et al., 2010; SALA, 2008). Com o uso dessas técnicas pode-se elucidar a composição química de fósseis de plantas, vertebrados e invertebrados (PACHECO et al., 2011) e compreender processos de fossilização, paleoambientes e mudanças de clima (OSÉS, 2013) e trazer evidências adicionais a respeito das condições e processos tafonômicos.

O trabalho pioneiro na utilização da espectroscopia em fósseis da Bacia do Araripe submeteu à difração de raios-X e espectroscopia na região do infravermelho, amostras retiradas de escamas fósseis de um peixe da espécie *Rhacolepis bucalis* Agassiz (1841), preservado em uma concreção calcária da Formação Romualdo (LIMA et al., 2007a). Neste trabalho, foram aplicadas, portanto, técnicas de difração de raios-X e fluorescência de raios-X, tanto para a caracterização espectroscópica de fragmentos de lenhos fósseis, como para auxiliar na identificação do processo de fossilização atuante nesses organismos.

## Material e métodos

Utilizamos neste trabalho a técnica de fluorescência de raios-X, para avaliar a composição química de alguns fragmentos de lenhos fósseis. Para identificação das fases cristalinas das amostras foi utilizada a técnica de difração de raios-X. Estes lenhos foram preservados em uma acumulação nos níveis compostos por um arenito fino, esbranquiçado, calcífero e de baixa consolidação, depositado no topo da

Formação Romualdo (Fig. 1), próximo ao contato com os arenitos da Formação Araripina. As amostras analisadas foram coletadas na localidade de Sobradinho, cerca de 25 km da cidade de Jardim (Fig. 2A), no estado do Ceará (coordenadas 07° 34' 12.2" S–39° 09' 90.7" W).

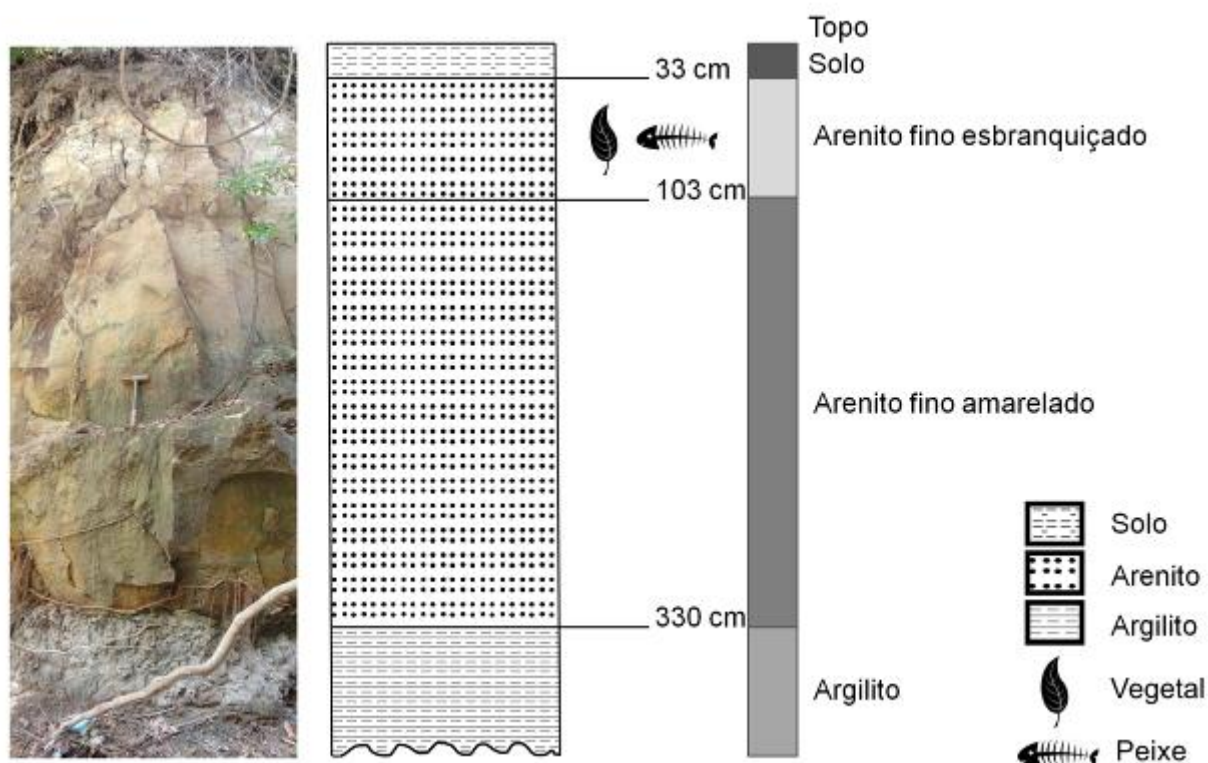


Figura 1: Perfil estratigráfico do afloramento onde foram realizadas as coletas em Sobradinho.

Após a coleta algumas amostras foram identificadas taxonomicamente, fotografadas e tombadas na coleção do Laboratório de Paleontologia da Universidade Regional do Cariri (LPU 101, 102, 103, 104 PL). Foram recolhidos pequenos fragmentos de alguns espécimes de lenhos (Fig. 2B) e da rocha matriz associada a estes fósseis, que foram macerados em almofariz com auxílio de um pistilo e posteriormente armazenados em pequenos frascos esterilizados. Estas amostras foram submetidas a análises de difração e fluorescência de raios-X. As medições de difração de raios-X (DRX) foram realizadas num equipamento modelo DMAXB da marca Rigaku, com foco geométrico Bragg-Brentano. Os espectros da Fluorescência de raios-X (FRX) foram obtidos através de um espectrômetro da marca Rigaku, modelo ZSX Mini II, operando com 40 kV e 1,2 mA, usando um tubo de Pd (Paládio). Ambas as análises foram realizadas no Laboratório de raios-X do Departamento de Física da Universidade Federal do Ceará.



Figura 2: A) Coleta no afloramento de Sobradinho (Formação Romualdo); B) Fragmentos de vegetais fósseis, incluindo restos de peixes actinopiterígeos; C) Amostra contendo restos de vegetais; D) impressão de vegetal indeterminado. Escala 10 cm.

## Geologia Regional

A Formação Romualdo, situada na porção superior do Grupo Santana, logo abaixo da Formação Araripina, apresenta um perfil de rochas que variam desde folhelhos e margas fossilíferas, com intercalações de níveis de calcários, gipsitas e até arenitos friáveis (NEUMANN; CABRERA, 1999). As margas e folhelhos de coloração cinza esverdeada apresentam concreções carbonáticas, com formatos diferentes, podendo ser esféricas, discóides e irregulares, conforme apresentado por Saraiva et al., (2007).

Este nível consiste de um importante marco estratigráfico, com continuidade lateral por toda a bacia e foi originado, possivelmente, em decorrência de um evento de mortandade em massa (FARA et al., 2005). As concreções carbonáticas da Formação Romualdo constituem o mais fossilífero nível estratigráfico da Bacia do Araripe (ASSINE, 2007; MABESOONE; TINOCO, 1993). No topo da Formação Romualdo, um nível de coquinas com a presença de moluscos marinhos e equinóides atesta um ambiente de condições marinhas (BEURLEN, 1963).

A camada onde os fragmentos de lenhos fósseis foram coletados corresponde ao topo da Formação Romualdo (HEIMHOFER; HOCHULI, 2010), sendo o afloramento composto por três níveis (Fig.1). O primeiro nível, de baixo para cima, é formado por argilito de coloração esverdeada a cinza, afossilífero. O segundo nível é composto por um arenito fino, calcífero, bastante consolidado, de coloração amarelada, com uma espessura de 227 cm. Este nível não possui fósseis preservados. O terceiro e último nível, é composto de arenito fino esbranquiçado, com uma espessura de 70 cm, contendo muitos cristais de quartzo, com granulação média a fina. Os quartzos são predominantemente leitosos, ocorrendo alguns transparentes, hialinos e foscos, com grãos subangulosos a subarredondados. Ocorre ainda, no arenito, a presença de algumas plaquetas de caulinita, biotita e moscovita.

## Resultados

De acordo com a análise de FRX, a rocha matriz (arenito) é composta por Silício (Si), Alumínio (Al), Potássio (K), Cálcio (Ca), Ferro (Fe) e Magnésio (Mg). A amostra fossilífera do fragmento de lenho mostra os seguintes elementos: Silício (Si), Alumínio (Al), Cálcio (Ca), Potássio (K), Ferro (Fe) e Magnésio (Mg) ver Tabela 1.

**Tabela 1:** Percentuais dos elementos químicos na rocha matriz e no fóssil analisado.

ELEMENTO	MATRIZ (%)	FÓSSIL (%)
Si	59,59	58,91
Al	11,99	11,16
K	9,96	7,87
Ca	7,78	9,96
Fe	6,07	7,40
Mg	3,13	3,08

Com as medidas de FRX observa-se uma grande quantidade de Silício (Si) tanto no fóssil como na rocha matriz, indicando que houve substituição da matéria orgânica do vegetal por sílica, ocorrendo, portanto, processo de silicificação. A permineralização de sílica no tecido de plantas é o modo mais comum de preservação desses organismos, sendo o quartzo microgranular e a calcedônia os principais representantes da sílica, presentes em formações geológicas do Paleozóico ao Terciário (STEIN, 1982).

Foi possível observar também uma grande quantidade de alumínio, potássio, ferro e cálcio na rocha matriz, indicando os principais componentes do feldspato e quartzo que compõem a rocha (arenito), conforme análise por difração de raios-X (DRX), (Fig. 3). Pode-se observar que o difratograma das amostras do fóssil e da rocha possuem picos de grande intensidade, que podem ser identificados como planos cristalinos da fase óxido de sílica ( $\text{SiO}_2$ ) e fases relativas aos aluminossilicatos (Fig.3).

Figura 3: Difratoograma de raios-X do fóssil e da rocha matriz, mostrando as fases majoritárias.

## Discussão

Segundo Faria (1979) o suprimento de sílica envolvido no processo de fossilização de vegetais, pode ser interpretado como proveniente de uma fonte externa, composta de materiais terrígenos, sujeitos às condições alcalinas típicas de clima árido. Estes são capazes de promover a solubilidade da sílica e sua transferência para a área de deposição. Análises de DRX realizadas em vegetais fossilizados por silicificação de diferentes partes do mundo apresentaram valores coerentes aos obtidos neste trabalho (MICHELL; TUFTS, 1973; SIGLEO, 1978). Na análise de Michell e Tufts (1973) os valores de Alumínio (Al) estavam no intervalo de 0,12 a 3,5 %, os resultados obtidos aqui apontam para uma maior quantidade de Alumínio na amostra fossilífera, com 11,16% da sua composição. Stein (1982) sugeriu que a presença do alumínio em amostras de vegetais silicificados, esteja relacionada com a fase autigênica argilosa ilita, pobremente cristalizada.

Diferentes organelas de vegetais fósseis (parede celular e lúmen) são constituídas praticamente de sílica, com valores de SiO<sub>2</sub> variando de 82,20% a 99,47% (SIGLEO, 1978). Aqui verificamos que a sílica representa 58,91% da amostra fossilífera, embora um pouco abaixo dos valores obtidos por Sigleo (1978),

ainda assim se apresenta como o principal constituinte da amostra fóssil, indicando que esse elemento se manteve relativamente constante durante o processo de preservação.

Landmesser (1994) sustenta que a ausência de matéria orgânica em fósseis silicificados confirma que o processo de silicificação se desenvolveu a elevadas temperaturas. O intemperismo de rochas silicatadas e a dissolução de cinzas vulcânicas são as principais fontes de sílica dissolvida para o desenvolvimento do processo de silicificação (OEHLER, 1971; FRAZIER; FRAZIER, 1995). Neste caso, o suprimento de sílica envolvido no processo de fossilização destes vegetais poderia ser interpretado como proveniente de uma fonte externa, composta de materiais terrígenos, sujeitos a condições alcalinas, típicas de clima árido, capazes de promover a solubilidade da sílica e a transferência desta para a área de deposição (FARIA, 1974).

Na análise pode-se identificar ainda, a presença de picos referentes à presença de Potássio (K) e Cálcio (Ca), mas em menor quantidade. Estes elementos geralmente estão presentes no solo, sob a forma iônica ( $K^+$  e  $Ca^+$ ) (VELOSO et al., 2001). Possivelmente, a presença destes elementos químicos é justificada pelo fato dos vegetais absorverem elementos do solo quando em vida através de suas raízes. A distribuição desses elementos por todo o corpo vegetal pode ser feita através do xilema e floema, permitindo observar seus traços nos fósseis mesmo que em pequena quantidade (EPSTEIN, 1975).

## **Conclusão**

Através da fluorescência de raios-X e do difratograma de raios-X foi possível afirmar que a fase cristalina predominante tanto no fóssil como na rocha matriz foi o óxido de silício ( $SiO_2$ ), indicando ser o processo de silicificação o responsável pela preservação dos vegetais fósseis dos arenitos do topo da Formação Romualdo. Esta é, portanto, a primeira vez que este processo de fossilização é reportado em caracterização espectroscópica de fósseis do Cretáceo da Bacia do Araripe.

## **Agradecimentos**

Agradecemos a Fundação Cearense de apoio ao desenvolvimento Científico e Tecnológico (FUNCAP) e ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) pelo suporte financeiro durante as coletas. Ao Programa de Pós-Graduação em Geociências da Universidade Federal de Pernambuco, pelo financiamento para trabalhos de campo (aos autores BANTIM, RAMB e LIMA,



FJ). Agradecemos ainda ao Departamento de Física da Universidade Federal do Ceará pelo auxílio durante as análises paleométricas.

## Referências

- ASSINE, M. L. Bacia do Araripe. **Boletim de Geociências**, v. 15, n. 2, p. 371-389, 2007.
- BANTIM, R. A. M.; SARAIVA, A. A. F.; OLIVEIRA, G. R.; SAYÃO, J. M. A new toothed pterosaur (Pterodactyloidea: Anhangueridae) from the Early Cretaceous Romualdo Formation, NE Brazil. **Zootaxa**, v. 38, n.69, p. 201-223, 2014.
- BEURLIN, K. Geologia e estratigrafia da chapada do Araripe. **In: Congresso Brasileiro de Geologia**, 17, Rio de Janeiro, 1963. SBG, Anais: 1-47, 963.
- EPSTEIN, E. **Nutrição mineral de plantas: princípios e perspectivas**. Rio de Janeiro, Livros Técnicos e Científicos, 1975.
- FARA, E.; SARAIVA, A. A. F.; CAMPOS, D. A.; MOREIRA, J. K. R.; SIEBRA, D. C.; KELLNER, A. W. A. Controlled excavations in the Romualdo Member of the Santana Formation (Early Cretaceous, Araripe Basin, northeastern Brazil): stratigraphic, palaeoenvironmental and palaeoecological implications. **Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology**, v. 218, p. 145-161, 2005.
- FARIA, L.E.C. **Estudo sedimentológico da Formação Pedra de Fogo - Permiano da Bacia do Maranhão**. Centro de Geociências, Universidade Federal do Pará, 70p., 1979.
- FILHO, F. E. S.; SILVA, J. H.; SARAIVA, A. A. F.; BRITO, D. D. S.; VIANA, B. C.; ABAGARO, B. T. O.; FREIRE, P. T. C. Combination of Raman, Infrared, and X-Ray Energy-Dispersion Spectroscopies and X-Ray Diffraction to Study a Fossilization Process. **Brazilian Journal of Physics**, v. 41, p. 275-280, 2011.
- FRAZIER, S.; FRAZIER, A. Whats made of quartz and goes tweet-tweet? New ideas about how petrification happens. **Lapidary Journal**, v. 49, p. 18-25, 1995.
- GALLO, V.; FIGUEIREDO, F. J.; AZEVEDO, S. A. *Santanasalmo elegans* gen. et sp. nov., a basal euteleostean fish from the Lower Cretaceous of the Araripe Basin, northeastern Brazil. **Cretaceous Research**, v. 30, p. 1357-1366, 2009.
- HEIMHOFER, U.; HOCHULI, P. A. Early Cretaceous angiosperm pollen from a low-latitude succession (Araripe Basin, NE Brazil). **Review of Paleobotany and Palynology**, v. 161, p. 105-126, 2010.
- LANDMESSER, M. Versteinertes Holz. **ExtraLapis**, v. 7, p. 1-174, 1994.
- LIMA, R. J. C.; FREIRE, P. T. C.; SASAKI, J. M.; SARAIVA, A. A.F.; LANFREDI, S.; NOBRE, M. A. L. Estudo de coprolito da bacia sedimentar do Araripe por meios de espectroscopia FT-IR e difração de Raios-X. **Química Nova**, v. 30, p. 1956-1958, 2007a.

LIMA, R. J. C.; SARAIVA, A. A.; LANFREDI, S.; NOBRE, M. A. L.; FREIRE, P. T. C.; SASAKI, J. M. Caracterização espectroscópica de peixe do período cretáceo (Bacia do Araripe). **Química Nova**, v. 30, p. 22-24, 2007b.

LIMA, F. J. L.; SARAIVA, A. A. F.; DA SILVA, M. A. P.; BANTIM, R. A. M.; SAYÃO, J. M. A new angiosperm from the Crato Formation (Araripe Basin, Brazil) and comments on the Early Cretaceous Monocotyledons. **Anais da Academia Brasileira de Ciências**, v. 86, n. 4, p. 1657-1672, 2014.

MABESOONE, J. M.; TINOCO, I. M. Paleogeology of Aptian Santana Formation (Northeastern Brazil). **Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology**, v. 14, p. 87-118, 1973.

MAISEY, J. G. **Santana Fossils: an illustrated atlas**, New Jersey. T.F.H. Publications, 1991.

MARTILL, D. M. **The Crato Fossil Beds of Brazil: Window into an Ancient World**. Cambridge University Press (Cambridge), 2007.

MAISEY, J. G. Tectonics, the Santana lagerstätten, and the implications for Late Gondwanan biogeography. In: P. Goldblatt (ed.), *Biological relationships between Africa and South America*, Yale Univ. Press, p. 435-454, 1993.

MITCHELL, R. S.; TUFTS, S. Wood opal-A tridymite-like mineral. *American Mineralogist*, v. 58, p. 717-720, 1973.

NEUMANN, V. H. M. L.; CABRERA, L. Una nueva propuesta estratigráfica para latectonosecuencia post-rifte de la cuenca de Araripe, noreste de Brasil. **Boletim de Resumos do Simpósio Cretáceo Brasileiro**, v.5, p. 279-285, 1999.

OEHLER, J. H. Hidrotermal crystallization of silica gel. **Geological Society of America Bulletin**, v. 87, p. 1143-1152, 1971.

OSÉS G. L. **Artrópodes fósseis do Membro Crato (Formação Santana, Bacia do Araripe, Eocretáceo, NE do Brasil): levantamento taxonômico, tafonômico e paleoecológico utilizando técnicas não-destrutivas**. [Monografia]. São Paulo: Universidade de São Paulo, 2013.

PACHECO M. L. A. F.; LEME J.; MACHADO A. Taphonomic analysis and geometric modelling for the reconstitution of the Ediacaran metazoan *Corumbella weneri* Hahn et al. 1982 (Tamengo Formation, Corumbá Basin, Brazil). **Journal of Taphonomy**, v. 9, n. 4, p. 269-283, 2011.

PAVIA, D. L.; GARY, M.; GEORGE S. K. **Introdução a espectroscopia**. São Paulo, Cengage learning, 2010.

PINHEIRO, F. L.; FORTIER, D. C.; SCHULTZ, C. L.; DE ANDRADE, J. A. F. G.; BANTIM, R. A. M. New information on *Tupandactylus imperator*, with comments on the relationships of Tapejaridae (Pterosauria), **Acta Palaeontologica Polonica**, v. 56 n. 3, p. 567-580, 2011.

SALA, O. **Fundamentos da Espectroscopia Raman e no Infravermelho**, 2ª. ed., São Paulo, Editora UNESP, 2008.

SARAIVA, A. A. F.; HESSEL, M. H.; GUERRA, N. C.; FARA, E. Concreções Calcárias da Formação Santana, Bacia do Araripe: uma proposta de classificação. **Estudos Geológicos**, v. 17, n. 1, p. 40-58, 2007.

SIGLEO, A. C. Geochemistry of silicified wood and associated sediments, Petrified Forest National Park, Arizona. **Chemical Geological**, v. 26, p. 151-163, 1978.

SILVA, J. H.; FILHO, F. E. S.; SARAIVA, A. A. F.; ANDRADE, N. A.; VIANA, B. C.; SAYÃO, J. M.; SARAIVA, G. D. Spectroscopic Analysis of a Theropod Dinosaur (Reptilia, Archosauria) from the Ipubi Formation, Araripe Basin, Northeastern Brazil. **Journal of Spectroscopy**, v. 1, p. 1-7, 2013.

STEIN, C. L. Silica recrystallization in petrified wood. **Journal of Sedimentary Petrology**, v. 52, p. 1277-1282, 1982.

VELOSO, A. A. C.; SOUZA, F. R. S.; PEREIRA, W. L. M.; TENÓRIO, A. R. M. Relações cálcio, magnésio e potássio sobre a produção de matéria seca de milho. **Acta Amazônica**, v. 31, p. 193-204, 2001.

VIANA, M. S. S.; NEUMANN, V. H. L. Membro Crato da Formação Santana, Chapada do Araripe, CE, riquíssimo registro de fauna e flora do Cretáceo. In: C. Schobbenhaus; D.A. Campos; E.T. Queiroz; M. Winge; M.L.C. Berbert- Born. (Eds.). Sítios Geológicos e Paleontológicos do Brasil. DNPM/CPRM - Comissão Brasileira de Sítios Geológicos e Paleobiológicos (SIGEP), Brasília 2002, 554p, 2002.

Recebido: 05/05/2015

Aceito: 14/12/2015