



**UNIVERSIDADE FEDERAL DO CEARÁ**  
**CENTRO DE CIÊNCIAS**  
**DEPARTAMENTO DE GEOLOGIA**  
**PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM GEOLOGIA**

**MARCOS ANTÔNIO PIMENTEL DE SOUSA**

**ASSINATURAS ISOTÓPICAS DOS CALCÁRIOS FOSSILÍFEROS DA FORMAÇÃO  
CRATO DA BACIA SEDIMENTAR DO ARARIPE, BRASIL: REVISÃO, DADOS  
NOVOS E IMPLICAÇÕES FORENSES**

**FORTALEZA**

**2024**

MARCOS ANTÔNIO PIMENTEL DE SOUSA

ASSINATURAS ISOTÓPICAS DOS CALCÁRIOS FOSSILÍFEROS DA FORMAÇÃO  
CRATO DA BACIA SEDIMENTAR DO ARARIPE, BRASIL: REVISÃO, DADOS NOVOS  
E IMPLICAÇÕES FORENSES

Dissertação apresentada à Coordenação do Curso de Pós-Graduação em Geologia da Universidade Federal do Ceará, como requisito parcial à obtenção do título de Mestre em Geologia. Área de concentração: Geologia Sedimentar e Paleontologia.

Orientador: Prof. Dr. Daniel Rodrigues do Nascimento Junior.

Coorientadora: Profa. Dra. Anelize Manuela Bahniuk Rumbelsperger.

FORTALEZA

2024

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação  
Universidade Federal do Ceará  
Sistema de Bibliotecas  
Gerada automaticamente pelo módulo Catalog, mediante os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

---

S697a Sousa, Marcos Antônio Pimentel de.

Assinaturas isotópicas dos calcários fossilíferos da Formação Crato da Bacia Sedimentar do Araripe, Brasil : revisão, dados novos e implicações forenses / Marcos Antônio Pimentel de Sousa. – 2024.  
90 f. : il. color.

Dissertação (mestrado) – Universidade Federal do Ceará, Centro de Ciências, Programa de Pós-Graduação em Geologia, Fortaleza, 2024.

Orientação: Prof. Dr. Daniel Rodrigues do Nascimento Junior.

Coorientação: Profa. Dra. Anelize Manuela Bahniuk Rumbelsperger.

1. Formação Crato. 2. Isótopos estáveis. 3. Escavações paleontológicas. 4. Fóssil. 5. Tráfico de fósseis. I. Título.

CDD 551

---

MARCOS ANTÔNIO PIMENTEL DE SOUSA

ASSINATURAS ISOTÓPICAS DOS CALCÁRIOS FOSSILÍFEROS DA FORMAÇÃO  
CRATO DA BACIA SEDIMENTAR DO ARARIPE, BRASIL: REVISÃO, DADOS NOVOS  
E IMPLICAÇÕES FORENSES

Dissertação apresentada à Coordenação do Curso de Pós-Graduação em Geologia da Universidade Federal do Ceará, como requisito parcial à obtenção do título de Mestre em Geologia. Área de concentração: Geologia Sedimentar e Paleontologia.

Aprovada em: 02/05/2024.

BANCA EXAMINADORA

---

Prof. Dr. Daniel Rodrigues do Nascimento Junior (Orientador)  
Universidade Federal do Ceará (UFC)

---

Prof. Dr. Wellington Ferreira da Silva Filho  
Universidade Federal do Ceará (UFC)

---

Prof. Dr. Fábio Augusto da Silva Salvador  
Departamento de Polícia Federal (USP)

## AGRADECIMENTOS

Ao meu orientador, o Professor Dr. Daniel Rodrigues do Nascimento Júnior, pela orientação, acompanhamento, incentivo, apoio e acolhimento nos momentos mais necessários deste estudo. À minha coorientadora, a Prof<sup>a</sup>. Dr<sup>a</sup>. Anelize Manuela Bahniuk Rumbelsperger, pelo apoio e incentivo ao desenvolvimento deste trabalho.

Aos pesquisadores Virgínio Neumann (UFPE), Ulrich Heimhofer (Leibniz Universität Hannover, Alemanha) e Filipe Varejão (UFOP), por gentilmente compartilharem os dados isotópicos brutos de seus trabalhos, sem os quais esta dissertação não seria possível.

Ao Perito Criminal Federal Dr. Fábio Augusto da Silva Salvador, pelo apoio e incentivo na realização deste trabalho.

Ao Professor Dr. Wellington Ferreira da Silva Filho, pela colaboração nos trabalhos de campo.

Ao Professor Dr. Allysson Pontes Pinheiro, Diretor do Museu de Paleontologia Plácido Cidade Nunes (MPPCN), por ter franqueado acesso ao acervo de fósseis do museu e apoiado a realização dos trabalhos.

Ao Técnico de Laboratório do Departamento de Geologia da Universidade Federal do Ceará, Joel Pedrosa, pela colaboração na coleta e preparação de amostras.

Ao Gestor de Coleção do Museu de Paleontologia Plácido Cidade Núvens (MPPCN), Francisco Pinheiro da Silva Júnior, pelo apoio e colaboração nas coletas de amostras do acervo do museu.

A minha esposa e filhas pelo apoio incondicional, familiares e amigos que contribuíram de forma significativa com seu incentivo e sempre acreditaram no meu potencial, tornando os momentos difíceis motivos para superar e continuar seguindo.

Destino também o meu agradecimento aos trabalhadores da Pedreira do Aurélio, em Nova Olinda/CE, que nos trabalhos de campo se prontificaram e gentilmente colaboraram nas coletas de amostras do calcário laminado da frente de lavra e passaram as informações necessárias para realização da pesquisa que possibilitou a elaboração desta dissertação.

O presente trabalho foi realizado com apoio da Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior - Brasil (CAPES) – Código de Financiamento 001. Projeto: “Towards an integrated analysis of the Early Cretaceous Crato Fossil Lagerstätte (Ceará, Brazil)” (Capes Proc. 88881.198776/2018-01).

Ao Departamento de Geologia (DEGEO) e ao Programa de Pós-Graduação em Geologia da Universidade Federal do Ceará, pelo apoio.

A todos o meu muito obrigado!

## RESUMO

A Formação Crato é reconhecida como um depósito calcário lacustre do Cretáceo rico em fósseis excepcionalmente bem preservados (*lagerstätte*), contendo vários espécimes de organismos fossilizados, incluindo vertebrados como pterossauros, dinossauros e anuros. A despeito da legislação brasileira ter proibido sua comercialização desde os anos de 1940, esses fósseis têm sido alvo de traficantes há décadas. A identificação precisa da origem dos fósseis apreendidos em operações é fundamental nas investigações policiais no combate ao tráfico que, no Brasil, é responsabilidade da Polícia Federal. Este estudo visa contribuir com este esforço no desenvolvimento de um método prático, preciso e minimamente destrutivo para a identificação da origem dos fósseis de grandes vertebrados da Formação Crato. O método se baseia na análise de isótopos estáveis de carbono ( $\delta^{13}\text{C}_{\text{V-PDB}}$ ) e oxigênio ( $\delta^{18}\text{O}_{\text{V-PDB}}$ ) de seu calcário hospedeiro. Para tanto, foram compilados dados isotópicos tanto de pesquisas previamente publicadas, como de novas análises, totalizando 239 amostras. As análises focaram em sucessivas aproximações geográficas e estratigráficas ao nível da camada que abriga esses fósseis. A Formação Crato é uma unidade estratigráfica formal de 70 m de espessura, dividida informalmente em seis unidades carbonáticas, da base para o topo, C1 a C6). O *lagerstätte* é localizado na unidade carbonática superior (C6), que tem cerca de 10 m de espessura. Dentro dela, grandes fósseis de vertebrados são atribuídos a um nível basal de aproximadamente 2 metros de espessura, denominado informalmente de "sete cortes". Para comparação, o presente estudo também incluiu dados isotópicos de calcários lacustres de unidades estratigráficas similares do Brasil (Formação Codó) e dos Estados Unidos (Formação Green River), totalizando 26 amostras. Os resultados mostraram que o nível estratigráfico específico dentro da Formação Crato que abriga os fósseis de vertebrados mais valorizados, o etnoestrato "7 cortes", destaca-se dos demais devido a valores isotópicos estatisticamente consistentes e estreita variabilidade. Sua distinção é evidente quando comparada com calcários de outras bacias e mesmo entre diferentes seções dentro da mesma unidade carbonática (C6). Nesse sentido, os padrões estatísticos de  $\delta^{18}\text{O}_{\text{V-PDB}}$  e  $\delta^{13}\text{C}_{\text{V-PDB}}$  obtidos para o estrato "sete cortes" foram, respectivamente: médias aritméticas -5,9‰ e +0,9‰; desvios-padrões 0,8 e 0,6; medianas -5,9‰ e +0,7‰; e amplitudes interquartis 1,5 e 1,2. Até o momento, o método apresentado parece ter potencial significativo não apenas para investigações forenses, mas também para rastrear posições estratigráficas específicas de fósseis que tenham sido coletados sem uma documentação adequada de sua localização.

**Palavras-chave:** *Lagerstätte* fóssil; Formação Crato; tráfico de fósseis; assinatura de isótopos estáveis.



## ABSTRACT

The Crato Formation is recognized as a Cretaceous lacustrine limestone rich in exceptionally well-preserved fossils (*lagerstätte*), containing several species of fossilized organisms, including vertebrates such as pterosaurs, dinosaurs, and anurans. Despite the Brazilian law prohibiting their commercialization since the 1940s, these fossils have been targeted by traffickers for decades. Accurate identification of fossil origin is crucial for the police investigations combating this trafficking that, in Brazil, is the responsibility of the Federal Police. This study aims to contribute to this effort by developing a practical, accurate, and minimally destructive method for identifying the origin of the large vertebrate fossils of the Crato Formation. The method relies on the analysis of stable carbon ( $\delta^{13}\text{C}_{\text{V-PDB}}$ ) and oxygen ( $\delta^{18}\text{O}_{\text{V-PDB}}$ ) isotopes in the host limestone. For that, the present study compiled data from both previously published research and new analyses, totalizing 239 samples. The analyses focused on progressively narrowing down the geographic and stratigraphic origin within the fossil-bearing layer. The Crato Formation is a formal, 70-meter-thick stratigraphic unit informally divided into six carbonate units (C1 to C6) from bottom to top. The *lagerstätte* is located in the uppermost unit (C6), which is about 10 meters thick. Within the C6 unit, large vertebrate fossils are assigned to a basal 2-meter level called the "*sete cortes*" layer. For comparison, the study also included isotopic data from lacustrine limestones of similar stratigraphic units from Brazil (Codó Formation) and the United States (Green River Formation), totalizing 26 samples. The results showed that the specific stratigraphic level within the Crato Formation containing the most valuable vertebrate fossils, the "*sete cortes*" layer, has statistically distinct and narrowly variable isotopic values. This distinctiveness is evident when compared to limestones from other basins and even from different sections within the same carbonate unit (C6). In this sense, the statistical patterns of  $\delta^{18}\text{O}_{\text{V-PDB}}$  and  $\delta^{13}\text{C}_{\text{V-PDB}}$  obtained for the "*sete cortes*" ethnostratum were, respectively: arithmetic averages of  $-5.9\text{‰}$  and  $+0.9\text{‰}$ ; standard deviations of 0.8 and 0.6; medians of  $-5.9\text{‰}$  and  $+0.7\text{‰}$ ; and interquartile ranges of 1.5 and 1.2. Hitherto, the presented method seems to have significant potential for both forensic investigations and tracing the specific stratigraphic origin of fossils eventually collected without proper documentation of their location.

**Keywords:** Fossil *Lagerstätte*; Crato Formation; fossil trafficking; stable isotopes signature.

## LISTA DE FIGURAS

Figura 1 -	Mapa geológico de localização da área de estudo nos municípios de Santana do Cariri (CE) e Nova Olinda (CE) .....	16
Figura 2 -	Localização do Geoparque Araripe e dos seus 9 geossítios .....	18
Figura 3 -	Marco do Geossítio Parque dos Pterossauros .....	19
Figura 4 -	Escavação na Fm. Romualdo .....	20
Figura 5 -	Concreção calcária típica da Fm. Romualdo com peixe fóssil <i>Vinctifer comptoni</i> .....	20
Figura 6 -	Fóssil de inseto da ordem Ephemeroptera em calcário da Fm. Crato .....	20
Figura 7 -	Fóssil do dinossauro <i>Ubiraja jubatus</i> no calcário laminado da Formação Crato .....	21
Figura 8 -	Lavra da pedra Cariri na área do Geossítio Pedra Cariri .....	21
Figura 9 -	Coluna Estratigráfica da Bacia Sedimentar do Araripe e posicionamento dos geossítios com as unidades estratigráficas formais .....	22
Figura 10 -	Representação dos fracionamentos isotópicos do hidrogênio e do oxigênio ....	26
Figura 11 -	Representação dos fracionamentos isotópicos do carbono .....	27
Figura 12 -	Esquema de funcionamento de um espectrômetro de massa de razão isotópica (IRMS) .....	28
Figura 13 -	Laboratório de Isótopos Estáveis da Universidade Federal de Pernambuco (LABISE/UFPE) .....	29
Figura 14 -	<i>Isoscapes</i> de oxigênio e hidrogênio da precipitação para a América Latina ...	30
Figura 15 -	Percursos de “Saltair Sally” identificados por <i>isoscapes</i> .....	32
Figura 16 -	Gráficos de tendências de covariâncias isotópicas de carbono e oxigênio de carbonatos primários de lagos fechados e lagos abertos mostrando as diferenças. Cada lago com sua identidade isotópica .....	34
Figura 17 -	Mapa geológico da Província Borborema .....	37
Figura 18 -	Coluna Estratigráfica adotada neste trabalho .....	38
Figura 19 -	Mapa geológico da Bacia do Araripe com seção geológica e estratigráfica .....	38
Figura 20 -	Aspecto de uma frente de lavra do calcário laminado da Formação Crato (Pedra Cariri, nome comercial) no Município de Nova Olinda (CE) .....	40

Figura 21 - Coletas de amostras do calcário fossilífero da Formação Crato no Museu de Paleontologia da Universidade Regional do Cariri em Santana do Cariri (URCA) .....	42
--	----

## SUMÁRIO

<b>1</b>	<b>INTRODUÇÃO</b> .....	11
<b>1.1</b>	<b>Objetivos</b> .....	13
<b>1.2</b>	<b>Contexto forense</b> .....	14
<b>1.3</b>	<b>Área de estudo</b> .....	15
<b>1.3.1</b>	<i>Araripe Geoparque Mundial da UNESCO</i> .....	17
<b>1.4</b>	<b>Fundamentação teórica</b> .....	23
<b>1.4.1</b>	<i>Teoria isotópica</i> .....	23
<b>1.4.2</b>	<i>Isoscapes</i> .....	30
<b>1.4.3</b>	<i>Aplicações de isótopos estáveis nas ciências forenses</i> .....	31
<b>1.4.4</b>	<i>Características isotópicas dos carbonatos lacustres</i> .....	32
<b>2</b>	<b>CONTEXTO GEOLÓGICO</b> .....	35
<b>3</b>	<b>MATERIAIS E MÉTODOS</b> .....	41
<b>3.1</b>	<b>Apresentação das fases da pesquisa</b> .....	41
<b>3.2</b>	<b>Etapas do trabalho realizado</b> .....	42
<b>3.3</b>	<b>Método de utilização das unidades informais</b> .....	43
<b>3.4</b>	<b>Análises estatísticas utilizadas para a identificação dos parâmetros isotópicos</b>	44
<b>4</b>	<b>RESULTADOS E DISCUSSÕES</b> .....	46
<b>5</b>	<b>CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES</b> .....	78
	<b>REFERÊNCIAS</b> .....	80
	<b>APÊNDICE A – SUBMISSÃO DE ARTIGO</b> .....	87

## 1 INTRODUÇÃO

A Formação Crato é um importante sítio geológico e paleontológico do país e do mundo. Constituinte da Bacia Sedimentar do Araripe, situada no nordeste do Brasil, entre os estados do Ceará, Pernambuco e Piauí, este rico patrimônio geológico tem sido alvo de explorações predatórias pela mineração descontrolada e por coletas ilegais e contrabando de espécimes fósseis ao longo dos últimos 200 anos.

Litologicamente, a Formação Crato se caracteriza por se constituir de uma sucessão mista carbonato-siliciclástica, com camadas intercaladas de calcários finamente laminados, formada durante o Aptiano (cerca de 120 milhões de anos), em ambiente lacustre com influências de ambiente marinho marginal (Varejão *et al.*, 2020). Esta unidade litológica possui conteúdo fóssilífero rico e excepcionalmente bem preservado, inclusive com preservação de tecidos moles, fato que a classifica na categoria de *Konservat-Lagerstätte* (Seilacher, 1970). Os principais afloramentos dos calcários laminados estão situados em pedreiras de extração do material que é destinado às indústrias de cimento e de rochas para revestimentos e ornamentais, além das margens dos rios que cortam a escarpa; (Viana; Neumann, 2002).

A história das pesquisas paleontológicas na Bacia do Araripe teve início em 1823, com o primeiro registro de fósseis da região realizado pelos estudiosos Spix e Martius, que chefiaram uma missão científica enviada pelo Rei da Baviera Maximiliano José I para estudar as riquezas do Novo Mundo. Estes autores notificaram a ocorrência de peixes em concreções calcárias e em calcários laminados das Formações Romualdo e Crato (Viana; Neumann, 2002), embora não tenham visitado sua região de ocorrência. Desde então, inúmeros pesquisadores têm realizado estudos e refinado os conhecimentos a respeito da gênese e constituição dessa que é umas das maiores jazidas paleontológicas do planeta. Ao mesmo tempo, a grande área de exposição dos afloramentos, a abundância e os elevados níveis de preservação destes fósseis têm atraído curiosos, cientistas e traficantes de fósseis ao longo dos anos.

Nos dias atuais, proliferam denúncias de que pesquisadores e cientistas, nacionais e estrangeiros, sem as devidas autorizações, se utilizam dos serviços de "peixeiros", nativos que garimpam fósseis na região, para se apropriarem de peças e as levarem para seus laboratórios e acervos. Além disso, traficantes de fósseis adquirem espécimes por preços irrisórios, cerca de R\$ 20,00, e os encaminham para venda por meio da rede mundial de computadores em sites de anúncios comerciais, como o eBay. Fósseis de cigarras e libélulas são ofertados por cerca de R\$ 4.000,00 (Costa, 2023).

Um fóssil de pterossauro, o *Tupandactylus imperator*, foi anunciado, em uma plataforma de leilões online, por uma vendedora alemã, a Annesuse Raquet, pelo preço mínimo de 23.400,00 € (vinte e três mil e quatrocentos euros); o espécime é descrito no *site* pelo expert em história natural, Manuel Quiring, como originário da Formação Crato e que viveu entre 113 e 125 milhões de anos (Catalina, 2020). Outro caso de ampla repercussão, na imprensa local e no meio acadêmico nacional, foi o ocorrido com uma nova espécie de dinossauro denominada de *Ubirajara jubatus*, cuja descoberta foi resultado de análises de peças do calcário laminado da Formação Crato feita por uma equipe internacional de pesquisadores. O anúncio foi feito na revista *Cretaceous Research*. O espécime, descrito como uma ave primitiva, tinha o tamanho de uma galinha, era bípede e coberto por penas rudimentares e encontrava-se no Museu de História Natural de Karlsruhe, na Alemanha. Este fato despertou a atenção de pesquisadores brasileiros que denunciaram a retirada ilegal do fóssil, gerando grande campanha nas redes sociais pela devolução do espécime; o Ministério Público Federal de Juazeiro do Norte instaurou procedimento para investigar a saída do fóssil e solicitou às autoridades alemãs a apreensão e repatriação do material (Andrade, 2021). Consequentemente, a publicação foi retirada, e o fóssil foi recentemente repatriado para o Brasil e confiado aos cuidados do Museu de Paleontologia da Universidade Regional do Cariri, situado na cidade de Santana do Cariri/CE (Leite, 2023).

Os fósseis são propriedade da União, conforme o inciso X, do artigo 20 da Constituição Federal de 1988 (Brasil, 1988) e o Decreto Lei nº 4.146/42 (Brasil, 1942), pois são considerados bens culturais, e sua extração depende de autorização prévia da Agência Nacional de Mineração (ANM), antigo Departamento Nacional da Produção Mineral (DNPM). Comete crime contra o patrimônio, na modalidade de usurpação, quem explora bens pertencentes à União sem autorização legal ou em desacordo com os títulos autorizativos, de acordo com o art. 2º da Lei nº 8.176/91 (Brasil, 1991). Os infratores da norma estão sujeitos a penas que variam de um a cinco anos de prisão e multa.

De acordo com o Decreto nº 98.830 de 15 de janeiro 1990 (Brasil, 1990), compete ao Ministério da Ciência e Tecnologia avaliar e autorizar, as atividades, coletas e estudos de espécimes biológicos e minerais por estrangeiros no território nacional. Essas atividades estão condicionadas a coparticipação e corresponsabilidade de instituição brasileira de elevado e reconhecido conceito técnico-científico no campo de pesquisa correlacionado ao trabalho a ser desenvolvido.

A Polícia Federal tem intensificado a repressão ao tráfico de fósseis, realizando diversas operações, como a recente "Santana Raptor", uma menção ao dinossauro fóssil

*Santanaraptor placidus*. Concluída em 2022, a operação resultou no indiciamento e prisão de três pessoas e no resgate de 237 fósseis que foram entregues ao Museu de Paleontologia da Universidade Regional do Cariri (URCA), em cumprimento a decisão judicial. Nos últimos 14 anos, a atuação da PF resultou na apreensão de 23.688 espécimes fósseis e na realização de 55 laudos de exame, conforme dados da Superintendência da Polícia Federal no Ceará (Ministério da Justiça, 2024).

Nos Estados Unidos da América e em alguns países europeus, a venda de fósseis é lícita, portanto, para que o Ministério Público requeira a repatriação dos espécimes contrabandeados, é necessário que a sua origem seja provada de forma inequívoca. Muitos dos fósseis extraídos ilegalmente, apreendidos e contrabandeados, exibem características litológicas das rochas hospedeiras semelhantes às dos espécimes já identificados e catalogados ocorrentes nas Formações Crato e Romualdo do preenchimento sedimentar da Chapada do Araripe.

O grande desafio para preservar esse imenso patrimônio geológico e cultural reside na implementação de medidas de conservação que protejam esse geopatrimônio tanto da ação predatória de lavras de calcário quanto do tráfico e contrabando de fósseis. Além disso, é necessário empreender esforços no âmbito jurídico para resgatar espécimes fósseis que estejam ilegalmente depositados em coleções particulares e acervos de instituições não autorizadas.

## 1.1 Objetivos

O objetivo geral do trabalho é **constituir uma metodologia de identificação da origem geográfica dos fósseis de grandes vertebrados oriundos da Formação Crato da Bacia do Araripe, com base nas razões isotópicas de carbono e oxigênio dos seus calcários fossilíferos.**

O método isotópico aqui proposto poderá ser utilizado nos procedimentos investigativos policiais de repressão às extrações ilegais, ao tráfico, ao contrabando e nos resgates de espécimes fósseis, para destiná-los às instituições públicas nacionais. Paralelamente, a coleção, revisão e discriminação desses dados isotópicos por camadas informais que integram a Formação Crato (unidades carbonáticas de Neumann, 1999 e sub-unidades identificadas na cultura dos trabalhadores de pedra Cariri por Corecco *et al.*, 2022) servirão de base interpretativa para a evolução geológica da Bacia do Araripe, em geral, e da Formação Crato em particular, visando constituir um banco de dados. O banco de dados será alimentado

de dados brutos previamente obtidos de pesquisas anteriores, quando consentido pelos autores, além de dados novos resultantes da presente pesquisa e de trabalhos posteriores, cujas análises, já em curso, envolvem tanto amostras de calcário sem fósseis, coletadas em campo, como fossilíferas, obtidas de coleções.

Para conseguir alcançar o objetivo principal, foram utilizados dados isotópicos de trabalhos anteriormente publicados e cedidos por alguns autores de referência. Após trabalhos de revisão e análises estatísticas desses dados, os seguintes objetivos específicos foram traçados:

- a) Formar um banco de dados de razões isotópicas de carbono e oxigênio da Formação Crato;
- b) Definir a área geográfica e estratigráfica de um estrato da Formação Crato onde ocorrem preferencialmente fósseis de grandes vertebrados. Este estrato constitui uma camada definida informalmente como etnoestrato “sete cortes” (Corecco *et al.*, 2022), posicionado na porção basal da unidade carbonática de topo da Formação Crato, também definida informalmente como C6 (Neumann, 1999), esta considerada um *Fossil Konservat Lagerstätte* (Viana; Neumann, 2002);
- c) Obter padrões estatísticos de medidas de tendência central e variabilidade das razões isotópicas de carbono e oxigênio dos calcários da Formação Crato em diferentes contextos geográficos e estratigráficos;
- d) Obter e analisar os mesmos padrões estatísticos a partir de unidades estratigráficas calcárias fossilíferas semelhantes, seja no Brasil ou internacionalmente, para fins de comparação.

## 1.2 Contexto forense

Este estudo se insere no campo da Geologia Forense, que utiliza conhecimentos e técnicas da geologia para solucionar crimes. No caso específico, trata-se do crime contra o patrimônio público na modalidade de usurpação, conforme o Art. 2º da Lei nº 8.176/91 (Brasil, 1991), com fundamento no Art. 20 da Constituição Federal de 1988 (Brasil, 1988).

Para configurar este delito, é crucial identificar a origem geográfica do fóssil apreendido pela Polícia Federal. Atualmente, essa atribuição geográfica é feita por peritos criminais federais, que caracterizam e identificam a origem da peça com base nas características litológicas macroscópicas da rocha que o envolve. No entanto, essa base apresenta limitações, pois rochas semelhantes com conteúdo fossilífero podem ser encontradas em outros sítios paleontológicos no Brasil e no mundo.



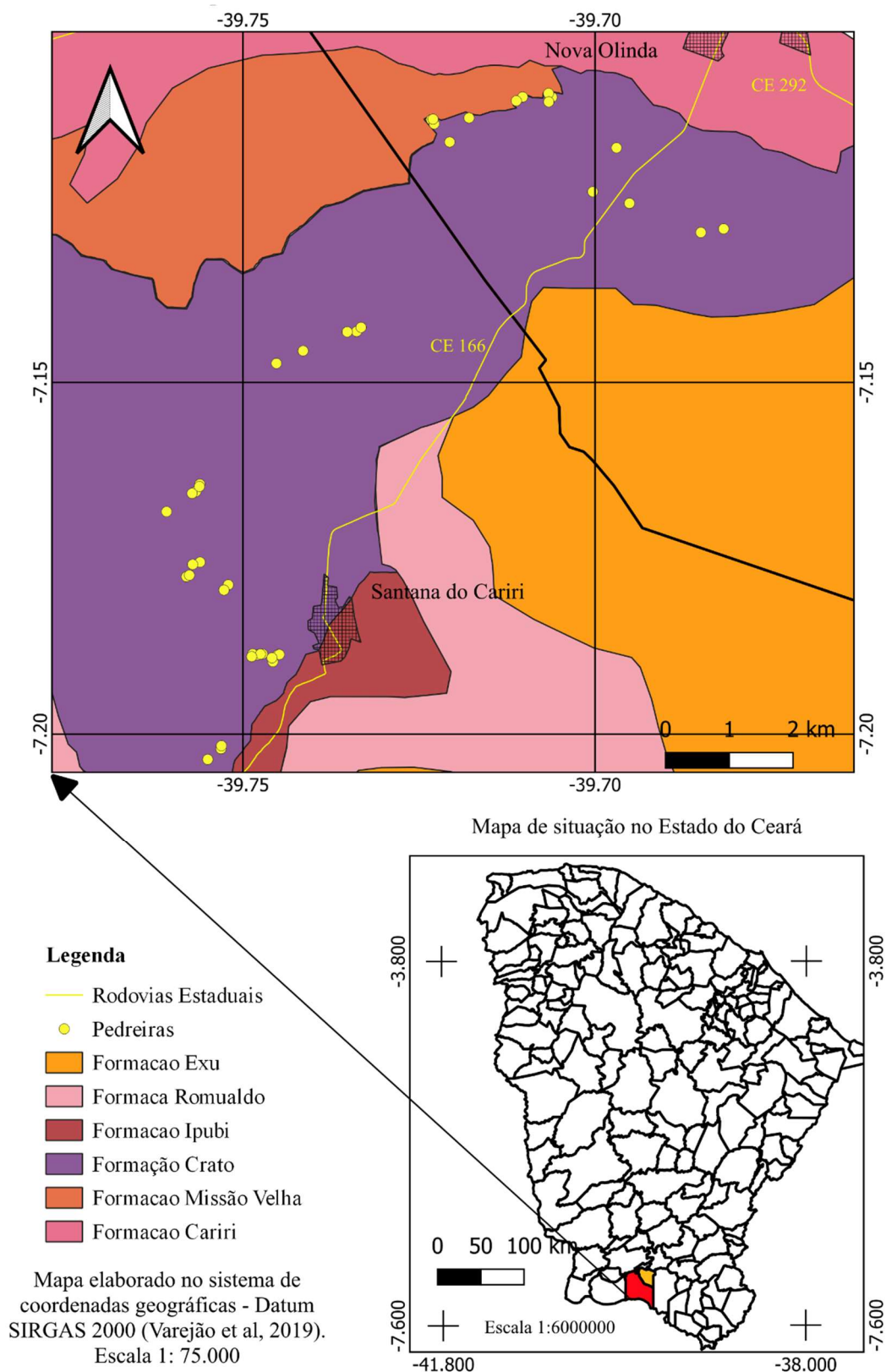
Este estudo busca oferecer uma resposta mais robusta ao frequente questionamento das autoridades policiais sobre a origem geográfica dos fósseis apreendidos. Ao complementar a análise litológica com uma assinatura geoquímica, composta pelas razões isotópicas dos elementos carbono e oxigênio das rochas hospedeiras, a precisão da identificação pode ser consideravelmente elevada, fortalecendo a assertiva pericial. Vale salientar que a atribuição geográfica, baseada em características litológicas e isotópicas, integrará um conjunto de provas que determinará a materialidade, ou não, do crime de usurpação do patrimônio público.

### **1.3 Área de estudo**

A área imediata que é objeto do estudo situa-se na região sul do Estado do Ceará, a cerca de 500 km de Fortaleza, nas proximidades das cidades de Nova Olinda e Santana do Cariri (Figura 1). Por se tratar de uma pesquisa que enfoca um recurso natural, um patrimônio geológico representado pelos calcários fossilíferos da Bacia Sedimentar do Araripe, o perímetro não corresponde à divisão política municipal. Trata-se de um recorte geográfico de aproximadamente 140 km<sup>2</sup>, estando seus vértices localizados entre as latitudes 7,09° e 7,21° sul e longitudes 39,77° e 39,67° oeste. Nesta área, afloram os calcários da unidade de topo da Formação Crato, a camada C6 de Neumann (1999), e também se localizam as principais pedreiras de extração da chamada “Pedra Cariri”, nome comercial do calcário laminado onde são encontrados e, muitas vezes, danificados e extraviados espécimes fósseis (Viana; Neumann, 2002).

O acesso rodoviário à área, a partir de Fortaleza (CE), pode ser efetuado pela rodovia federal BR 116 até o município de Juazeiro do Norte. A partir de então, se prossegue pela rodovia federal BR 230 até chegar a Nova Olinda.

Figura 1 – Mapa geológico de localização da área de estudo nos municípios de Santana do Cariri (CE) e Nova Olinda (CE)



Dados coletados do sítio eletrônico do Instituto de Pesquisa e Estratégia Econômica do Ceará (IPECE, 2022) apresentam a área em estudo com duas formas de relevo predominantes: a Depressão Sertaneja e a Chapada do Araripe, com climas e vegetações correspondentes a cada um desses dois compartimentos. O primeiro tem clima tropical quente semiárido/vegetação caducifólia espinhosa (caatinga), e, o segundo, clima tropical quente subúmido/floresta subperenifólia tropical pluvial (mata úmida). As temperaturas médias anuais variam de 24° C a 26° C, com índice de pluviosidade média anual histórica em torno de 900 mm. O período chuvoso se concentra entre os meses de janeiro a maio. Na economia, o setor de serviços tem a maior participação no valor adicionado bruto, ou seja, o valor que cada setor da economia acresce ao valor final de tudo o que foi produzido na região, com cerca de 51,2% das atividades ligadas aos serviços públicos, turismo, cultura e artesanato, seguidos da participação da agropecuária e extrativismo mineral com 14,7% e da indústria com 6%. Santana do Cariri se sobressai no turismo científico, embora ambas as cidades possuam geossítios de elevado interesse paleontológico integrantes do Araripe Geoparque Mundial da UNESCO; o Museu de Paleontologia Plácido Cidade Nuvens, ligado à Universidade Regional do Cariri (URCA), no entanto, se localiza em Santana do Cariri.

A exploração do calcário laminado, utilizado como matéria-prima na produção de ladrilhos e outros artefatos, configura-se como a principal atividade econômica dos municípios em questão, complementando-se com a agropecuária de subsistência. Nas frentes de lavra, métodos rudimentares provocam altos índices de desperdício de material, chegando a 70%. Em contrapartida, a mão de obra, exposta a condições insalubres de trabalho, recebe em média um salário mínimo mensal, sustentando mais de 2 mil famílias. Apesar dos impactos socioambientais, a atividade gera em Nova Olinda, por exemplo, uma receita anual superior a R\$ 12 milhões (IBRAM, 2013).

### ***1.3.1 Araripe Geoparque Mundial da UNESCO***

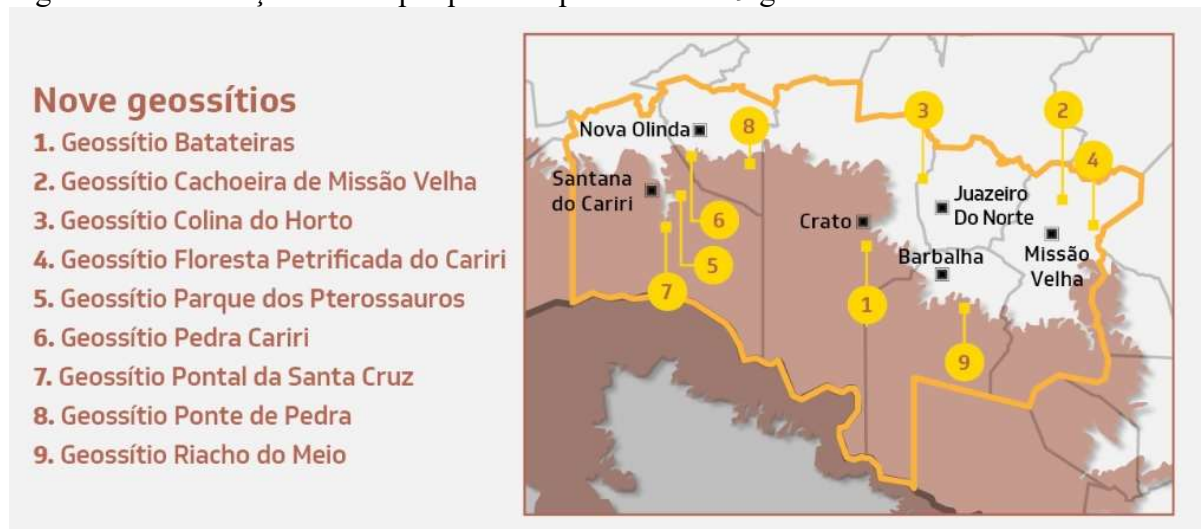
Geoparques são definidos como territórios únicos com patrimônio geológico de relevância internacional, administrados com base em um conceito holístico de proteção, educação e desenvolvimento sustentável (UNESCO, 2016). Oficialmente, os geoparques começaram a ser criados a partir dos anos 2000, organizados pela Rede Global de Geoparques (GGN) e sob tutela da Organização das Nações Unidas para a Educação, a Ciência e a Cultura (UNESCO). Contudo, é somente a partir de 2015 que os geoparques passam a constituir um

programa específico dentro da UNESCO, o Programa Internacional de Geociências e Geoparques (IGGP). A área de estudo está inserida no território do Araripe Geoparque Mundial da UNESCO, que cobre uma área de 3.796 km<sup>2</sup> e abrange seis municípios cearenses: Crato, Juazeiro do Norte, Barbalha, Missão Velha, Nova Olinda e Santana do Cariri (Lima *et al.*, 2012).

O Araripe Geoparque foi uma iniciativa da URCA que, com o apoio do Governo do Estado do Ceará, o submeteu à certificação da Rede Global de Geoparques (GGN), tendo sido oficialmente certificado em 2006. Foi assim o primeiro geoparque das Américas e do Brasil, sendo constituído por nove geossítios: Parque dos Pterossauros, Pedra Cariri, Floresta Petrificada, Colina do Horto, Ponte de Pedra, Cachoeira de Missão Velha, Pontal de Santa Cruz, Riacho do Meio e Batateiras. Em conjunto, conectam a diversidade paleontológica, ambiental, histórica e cultural da região, formando uma rede de proteção de paisagens naturais e de patrimônios geológicos, arqueológicos e paleontológicos (Falcão, 2021).

Os geossítios são locais que possuem grande interesse geológico, que se conjugam com valores ecológicos, arqueológicos, históricos e culturais (Brilha, 2005). Os geossítios Parque dos Pterossauros, Pedra Cariri e Floresta de Pedra se destacam por apresentarem grande interesse geológico/paleontológico. Os demais, além do valor geológico, sobressaem-se com valores histórico, cultural e ecológico.

Figura 2 - Localização do Geoparque Araripe e dos seus 9 geossítios



Fonte: Falcão (2021).

Os geossítios Pedra Cariri e Parque dos Pterossauros se destacam pela riqueza paleontológica, situados em áreas onde afloram as Formações Crato e Romualdo, respetivamente. Estas são constituídas por rochas calcárias que contêm fósseis de idade Eocretácea (cerca de 115 a 120 milhões de anos) em grande quantidade e em excepcionais graus

de conservação, sendo por isso classificadas pela terminologia alemã *Konservat lagerstätten*. (Seilacher, 1990). Estão entre as maiores e mais importantes jazidas fossilíferas do mundo (Falcão, 2021).

O Geossítio Pedra Cariri localiza-se nas margens da rodovia CE-255, no município de Nova Olinda. Situa-se na antiga Pedreira Triunfo, de onde extraía-se a Pedra Cariri, nome comercial do calcário laminado da Formação Crato, portador de uma ampla variedade de espécimes fósseis. O Geossítio Parque dos Pterossauros está situado a uma distância de cerca de 2,5 km da cidade de Santana do Cariri. Abrange uma área de 18,2 ha, onde afloram litologias da Formação Romualdo que, assim como a Formação Crato, também é famosa por possuir fósseis em extraordinárias condições de conservação, neste caso, em concreções calcárias. O Geossítio Floresta Petrificada, situado a aproximadamente 6 km da cidade de Missão Velha, possui grande valor paleobotânico, com troncos de antigas árvores coníferas petrificados (Cordeiro; Macedo; Bastos, 2015) (Figura 3, Figura 4, Figura 5, Figura 6, Figura 7 e Figura 8).

Figura 3 – Marco do Geossítio Parque dos Pterossauros



Fonte: Autor.

Figura 4 – Escavação na Fm. Romualdo



Fonte: Autor.

Figura 5 – Concreção calcária típica da Fm. Romualdo com peixe fóssil *Vinctifer comptoni*



Fonte: Autor.

Figura 6 – Fóssil de inseto da ordem Ephemeroptera em calcário da Fm. Crato



Fonte: Autor.

Figura 7 – Fóssil do dinossauro *Ubirajara jubatus* no calcário laminado da Formação Crato



Fonte: Autor.

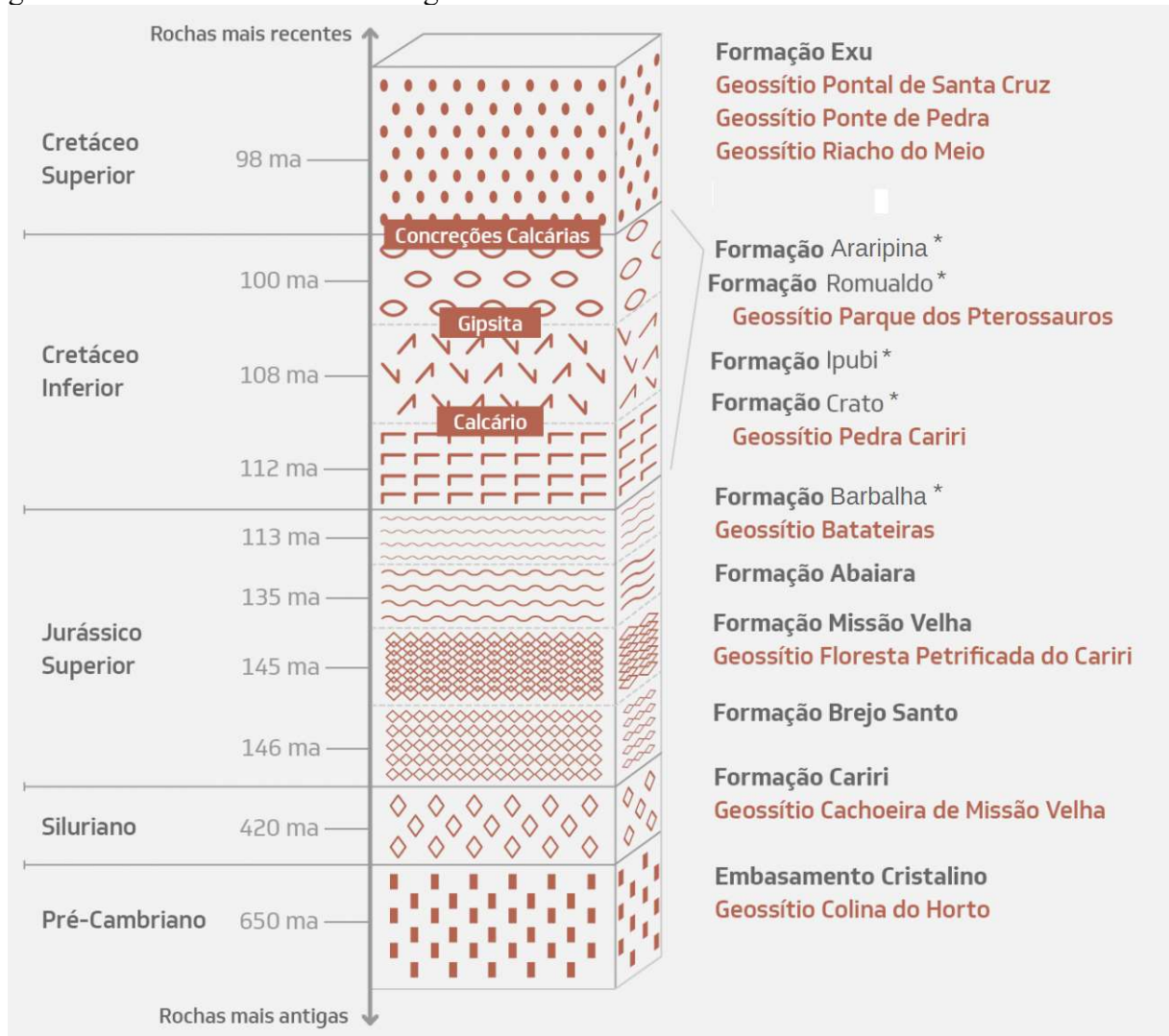
Figura 8 – Lavra da pedra Cariri na área do Geossítio Pedra Cariri



Fonte: Autor.

Os geossítios estão relacionados às unidades estratigráficas da Bacia Sedimentar do Araripe, como mostra a Figura 9.

Figura 9 – Coluna Estratigráfica da Bacia Sedimentar do Araripe e posicionamento dos geossítios com as unidades estratigráficas formais



Fonte: Falcão (2021), atualizada (\*) com base em Assine *et al.* (2014).

Importante ressaltar que a legislação brasileira não reconhece a categoria de geoparque e que não deve ser confundida com a unidade de conservação denominada Parque Nacional, que é definida pela Lei nº 9.985 de 18 de julho de 2000 (Brasil, 2000), que institui o Sistema Nacional de Unidades de Conservação da Natureza. Parque Nacional é uma unidade de proteção integral de posse e domínio público, devendo ser as propriedades particulares incluídas em seus domínios desapropriadas e as comunidades existentes retiradas, conforme a lei. Têm como função básica a preservação de ecossistemas naturais de grande relevância ecológica e beleza cênica, com a possibilidade de realização de pesquisas científicas, atividades de educação e turismo ecológico. Já o geoparque deve integrar as comunidades locais e envolvê-las em projetos e atividades de proteção do patrimônio geológico. Mas nada impede



que um geoparque possa abranger várias unidades de conservação e áreas protegidas por lei.

## 1.4 Fundamentação teórica

### 1.4.1 Teoria isotópica

Isótopos são átomos cujos núcleos atômicos possuem o mesmo número de prótons (número atômico  $Z$ ) e diferentes números de nêutrons ( $N$ ) e, por consequência, diferentes massas atômicas ( $A = Z + N$ ). A palavra isótopo é derivada do idioma grego, significando “o mesmo lugar”, pois ocupam a mesma posição na tabela periódica. O número de nêutrons de um dado elemento não afeta de maneira significativa as suas propriedades químicas nem de seus compostos, mas pode provocar sutis alterações químicas e físicas (densidade, ponto de fusão, ligações com outros elementos) em função da diferença de massa. Existem dois tipos fundamentais de isótopos: estáveis e instáveis, sendo cerca de 300 estáveis e 1200 instáveis (radioativos). Somente 21 elementos têm um único isótopo (puros), enquanto os demais são uma mistura de no mínimo, dois isótopos. A abundância relativa de isótopos de um mesmo elemento pode variar substancialmente, sendo o isótopo leve o predominante, enquanto os demais, pesados, são traços. Esta proporção é determinada por dois fenômenos: i. o decaimento radioativo, que são reações nucleares espontâneas, consubstanciadas por emissões de radiações  $\alpha$ -,  $\beta$ - e/ou  $\gamma$ , podendo envolver capturas de elétrons, ocorrentes com os isótopos instáveis (radioativos); e ii. o fracionamento, que afeta os isótopos estáveis. Este último é provocado por efeitos isotópicos que provocam a substituição de qualquer átomo por um de seus isótopos estáveis. Esta troca ocasiona pequenas mudanças no seu comportamento químico e físico. As proporções relativas entre os isótopos em uma dada molécula, ou substância, ou seja, as razões isotópicas, constituem as assinaturas isotópicas (“impressões digitais” isotópicas), que caracterizam certa matéria (Hoefs, 2004).

Harold Urey, em 1948, propôs a forma de expressar essa razão isotópica em relação a um padrão e multiplicar por mil a diferença entre essas razões, passando a representar essa diferença pela letra grega “ $\delta$ ” (delta), que é o resultado da equação:  $\delta(\text{‰}) = ((R_{\text{amostra}}/R_{\text{padrão}}) - 1) \times 1000$ , onde  $R_{\text{amostra}}$  e  $R_{\text{padrão}}$  são as razões isotópicas entre o isótopo pesado sobre o isótopo leve; sendo as razões isotópicas dos elementos carbono, nitrogênio, oxigênio e hidrogênio representadas por  $^{13}\text{C}:^{12}\text{C}$ ,  $^{15}\text{N}:^{14}\text{N}$ ,  $^{18}\text{O}:^{16}\text{O}$  e  $\text{D}:\text{H}$  ( $^2\text{H}/^1\text{H}$ ), respectivamente. Os padrões são internacionalmente reconhecidos e estabelecidos por agências internacionais (Martinelli *et al.*,

2020).

Tabela 1 – Abundâncias, razões isotópicas e padrões aceitos internacionalmente dos principais isótopos estáveis

Elementos	Isótopos	Abundâncias	Razões	Padrões
Hidrogênio	$^1\text{H}$	99,985%	$^2\text{H}/^1\text{H}$	V-SMOW <sup>a</sup>
	$^2\text{H}$ (D)	0,015		0,00015576
Carbono	$^{12}\text{C}$	98,98	$^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$	V-PDB <sup>b</sup>
	$^{13}\text{C}$	1,11		0,0112372
Nitrogênio	$^{14}\text{N}$	99,63	$^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$	N2 - atm <sup>c</sup>
	$^{15}\text{N}$	0,37		0,0036765
Oxigênio	$^{16}\text{O}$	99,759	$^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$	V-SMOW
	$^{18}\text{O}$	0,204		0,00200052

Fonte: Adaptado de Dawson *et al.* (2007) *apud* Barbosa (2012) e Martinelli *et al.* (2020).

Legenda: a) Vienna - Standard Mean Ocean Water (V-SMOW); b) Vienna - Padrão do fóssil Belemnite da Formação PeeDee (V-PDB); c) Gás atmosférico N<sub>2</sub>.

Observando a equação de delta acima, constata-se que um valor negativo de “ $\delta$ ” indica que a amostra é relativamente enriquecida no isótopo leve, ou empobrecida no isótopo pesado, ao passo que valores positivos de “ $\delta$ ” indicam que a amostra é relativamente enriquecida no isótopo pesado e empobrecida de isótopo leve.

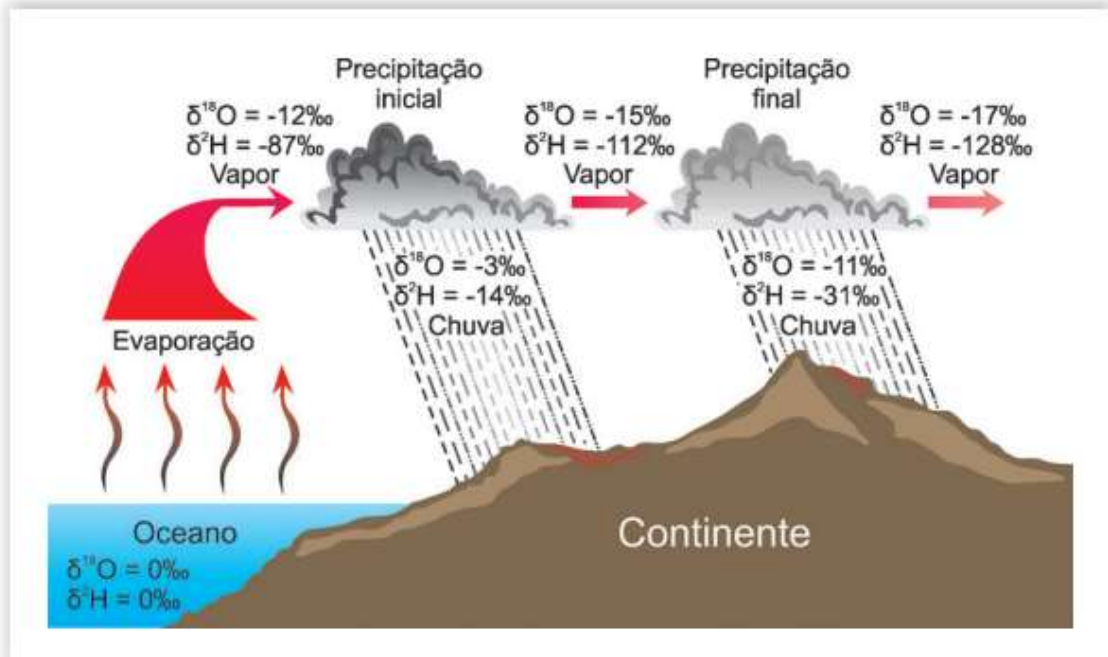
A utilização de análises de razões isotópicas como indicadores de origem geográfica de vestígios e processos vêm se estabelecendo e adquirindo relevância no campo da ciência forense nos últimos tempos, a despeito de uma longa história de aplicação nos campos da geoquímica, biologia, ecologia, e meio ambiente. É uma ferramenta que vem adicionar uma “impressão digital” isotópica no conjunto das evidências em uma investigação forense. Existe um grupo de elementos que estão disponíveis para realizar análises de razões isotópicas que podem caracterizar um espécime. O foco tem sido as análises de proporções de isótopos estáveis que são relativamente abundantes: hidrogênio ( $\delta^2\text{H}$ ), carbono ( $\delta^{13}\text{C}$ ), nitrogênio ( $\delta^{14}\text{N}$ ), oxigênio ( $\delta^{18}\text{O}$ ) e enxofre ( $\delta^{34}\text{S}$ ), embora possam ser utilizados isótopos mais raros, como o chumbo (Pb) e o estrôncio (Sr). A informação fornecida por cada elemento é frequentemente única e quando interpretada em combinação, as proporções de isótopos estáveis de múltiplos elementos podem fornecer informações que não podem ser adquiridas por meio de outras técnicas de identificação (Chesson *et al.*, 2014).

A essência da técnica de análises de razões isotópicas deve-se ao fracionamento isotópico. Martinelli *et al.* (2020, p. 16) o define como “a variação na proporção entre isótopos estáveis em um determinado composto ao passar por um processo físico-químico, que pode estar associado a um efeito termodinâmico ou cinético”. Os dois principais mecanismos que

produzem o fracionamento são: reações de trocas isotópicas (efeitos termodinâmicos) e processos cinéticos. Trocas isotópicas incluem vários mecanismos físico-químicos com mudança na energia livre do sistema, evidentes em processos em que não há quebra ou formações de ligações químicas, como durante mudanças de estado da água (sólido – líquido – vapor), ocorrendo como resultado das diferenças de pressão de vapor das moléculas de água. O efeito cinético acontece com isótopos de diferentes taxas de reação, relacionados com processos biológicos e processos físicos como a difusão (Hoefs, 2004).

Como exemplo, as razões isotópicas de hidrogênio e oxigênio na água variam amplamente por causa dos efeitos isotópicos associados a evaporação e condensação. O vapor de água é enriquecido de isótopos leves de  $^1\text{H}$  e  $^{16}\text{O}$  e o corpo hídrico, do qual deriva, é enriquecido em isótopos pesados de  $^2\text{H}$  (deutério) e  $^{18}\text{O}$ . Assim, à medida que o vapor d'água oriundo do oceano se dirige ao continente onde ocorrem as precipitações, o fracionamento vai ocorrendo com a precipitação em proporções relativas maiores dos isótopos pesados, devido ao efeito da gravidade. Esse mecanismo provoca diferenças entre as proporções isotópicas da água, fazendo com que a origem da água possa ser rastreada; este efeito é denominado de continentalidade. A temperatura e a elevação também interferem nesse mecanismo, o vapor de água com isótopos mais leves ( $^{16}\text{O}$  e  $^1\text{H}$ ) tende a condensar e precipitar em altitudes mais elevadas, enquanto o vapor de água com isótopos mais pesados tende a permanecer na atmosfera. Isso leva a um enriquecimento de  $^{16}\text{O}$  e  $^1\text{H}$  em águas em altitudes mais elevadas (Bowen, 2010). Estes fracionamentos diferenciais proporcionam identificações geográficas para a água coletada em cada local (Figura 10).

Figura 10 – Representação dos fracionamentos isotópicos do hidrogênio e do oxigênio



Fonte: InfoAgronomo (c2024).

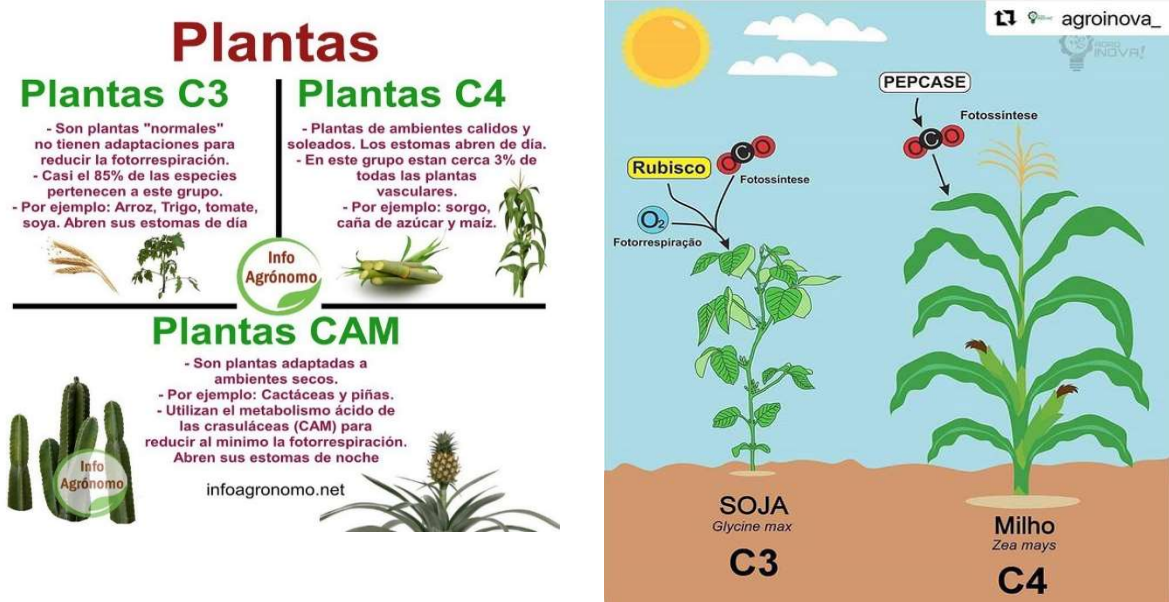
Nota: Efeito continentalidade, à medida que o vapor de água avança pelo continente as razões isotópicas de hidrogênio e oxigênio tornam-se mais negativas.

O carbono, por sua vez, possui dois isótopos estáveis,  $^{12}\text{C}$  e  $^{13}\text{C}$ , que ocorrem nos percentuais naturais médios de 98,9% e 1,2%, respectivamente. São desigualmente distribuídos nos diferentes compostos. Esse fracionamento é revelado pelos mecanismos envolvidos na transformação do carbono. A proporção  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  em tecidos vegetais é comumente menor que a ocorrente no dióxido de carbono atmosférico, indicando que ocorre discriminação quando da incorporação de  $\text{CO}_2$  na biomassa. O  $\text{CO}_2$  é absorvido pelos vegetais conforme os ciclos fotossintéticos  $\text{C}_3$  (Benson-Calvin),  $\text{C}_4$  (Hatch-Slack) ou CAM (*Crassulacean Acid Metabolism*), próprios de certos grupos de vegetais (Meyers, 1997). Em plantas do tipo  $\text{C}_3$  (arroz, cevada, trigo, soja, leguminosas, gramíneas temperadas e frutíferas em geral), o  $\delta^{13}\text{C}$  varia entre -22‰ e -34‰; nas plantas  $\text{C}_4$  (cana de açúcar, milho e gramíneas tropicais) o  $\delta^{13}\text{C}$  varia entre -9‰ a -16‰ (Farquhar; Ehleringer; Hubick, 1989). Estas razões, que caracterizam os respectivos tipos vegetais, são transmitidas em determinadas taxas aos níveis tróficos de animais, passando dos herbívoros aos carnívoros em cada nível da cadeia alimentar, constituindo razões isotópicas características (Figura 11).

Dessa forma, processos químicos, físicos e biológicos produzem razões isotópicas específicas que podem ser utilizadas como marcadores de origem, indicadores de grau de pureza de espécimes e tipos de processos de produção nos quais os fatores das reações, com suas

respectivas razões isotópicas, foram envolvidos.

Figura 11 – Representação dos fracionamentos isotópicos do carbono



Fonte: InfoAgronomo (c2024).

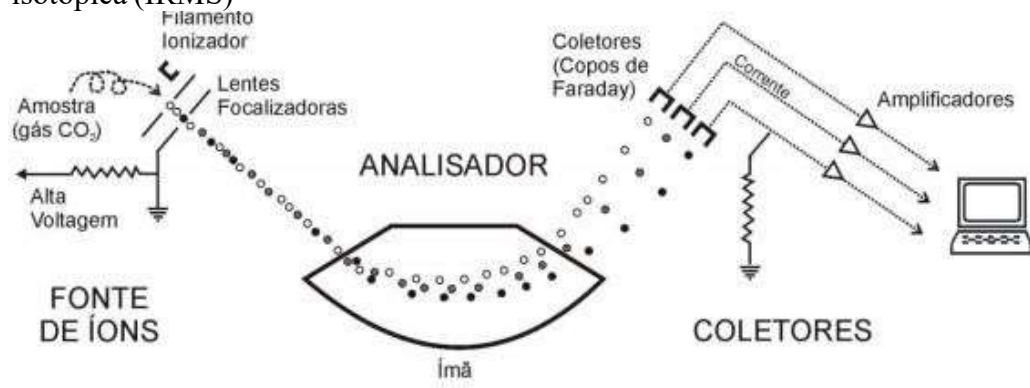
Nota: Durante o processo de fotossíntese os vegetais absorvem preferencialmente o <sup>12</sup>C (isótopo leve) do CO<sub>2</sub> atmosférico de acordo os ciclos fotossintéticos C<sub>3</sub>, C<sub>4</sub> e CAM (*Crassulacean Acid Metabolism*) próprios de certos grupos de vegetais.

O carbono possui isótopos estáveis, <sup>12</sup>C e <sup>13</sup>C, com aplicações conhecidas na caracterização geográfica de alimentos devido a incorporação seletiva de <sup>12</sup>C nos tecidos vegetais por meio do processo de fotossíntese, como foi tratado acima. O isótopo de nitrogênio <sup>15</sup>N também tem uso semelhante, mas com incorporação aos tecidos vegetais a partir do modo de fixação a depender das espécies vegetais e da composição do solo. As razões isotópicas dos isótopos <sup>18</sup>O e <sup>2</sup>H, nos espécimes, dependem da composição da água que é afetada por fatores climáticos e geográficos. Os isótopos de enxofre e estrôncio são tidos como indicadores efetivos de origem geográfica, tendo em vista que não sofrem fracionamento biológico significativo e estão vinculados a constituição do substrato geológico (Caxito; Silva, 2015).

As razões isotópicas são identificadas por meio de um instrumento chamado espectrômetro de massa de razão isotópica. É composto basicamente por três partes: uma fonte de íons, um analisador e um conjunto coletor. A amostra é ionizada na fonte de íons; estes são acelerados ao passarem por um tubo de fluxo, sob a ação de campos elétricos emagnéticos. Em seguida, são desviados na proporção de sua razão massa/carga e atingem os coletores posicionados no outro extremo do aparelho. As abundâncias relativas de moléculas são encontradas medindo as correntes geradas por esses feixes de íons, utilizando um conversor

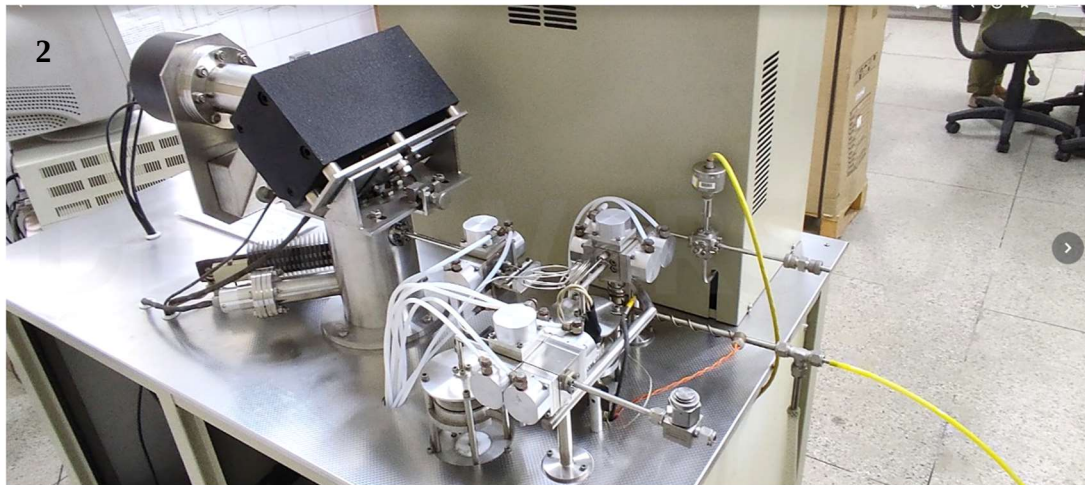
de voltagem para frequência, e transferidas para um computador, que calcula as razões isotópicas correspondentes (Caxito; Silva, 2015) (Figura 12 e Figura 13).

Figura 12 – Esquema de funcionamento de um espectrômetro de massa de razão isotópica (IRMS)



Fonte: Caxito; Silva (2015, p. 13).

Figura 13 – Laboratório de Isótopos Estáveis da Universidade Federal de Pernambuco (LABISE/UFPE)



Fonte: Autor.

Legenda: 1) linha de extração de alto vácuo de C e O para carbonatos; 2 e 3) Espectrômetro de massa de razão isotópica com fonte de gás (SIRA II – VG).

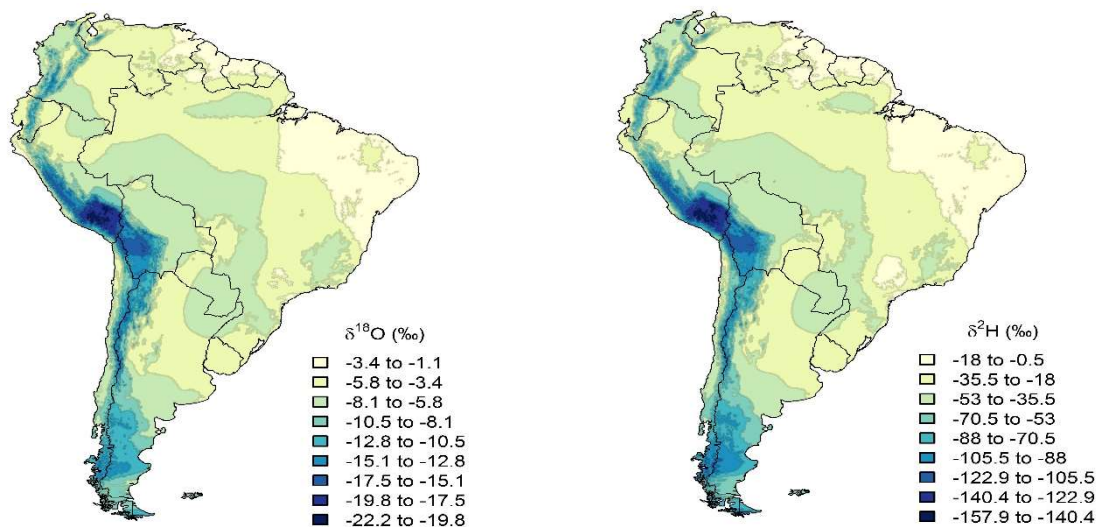
### 1.4.2 Isoscapes

*Isoscapes* (paisagens isotópicas) são mapas que mostram e preveem a distribuição da variação isotópica ambiental. Estas variações estão relacionadas a fatores que influenciam os fracionamentos e discriminações isotópicas. *Isoscapes* globais de  $\delta^{18}\text{O}$ ,  $\delta^2\text{H}$ ,  $\delta^{13}\text{C}$  e  $\delta^{15}\text{N}$  são muito utilizadas na literatura. Por exemplo, o ciclo hidrológico com eventos de evaporação e precipitação, em função da altitude e latitude, influenciam as razões isotópicas do oxigênio e do hidrogênio e os diferentes processos fotossintéticos ( $\text{C}_3$ ,  $\text{C}_4$  e CAM) determinam faixas de razões isotópicas características das coberturas vegetais que são distribuídas no espaço geográfico (Costa; Sena-Souza; Nardoto, 2019).

Os mapas de *isoscapes* são elaborados a partir de dados coletados e georreferenciados que são plotados em uma base cartográfica por meio de programas de geoprocessamento. Os valores de locais não monitorados podem ser estimados pela técnica da *krigagem* (interpolação que realiza a predição de medições em locais desconhecidos com base em dados conhecidos), o que pode ser uma implementação importante para estudos em escalas regionais e locais, se as *isoscapes* forem baseados em um modelo robusto e bem estudado (Bowen, 2010).

As *isoscapes* têm sido utilizadas em várias áreas científicas como as ciências forenses, no estudo das mudanças climáticas, na movimentação de animais, nos estudos do ciclo hidrológico e antropologia (Figura 14).

Figura 14 – *Isoscapes* de oxigênio e hidrogênio da precipitação para a América Latina



Fonte: Bowen (2010).

Nota: Observar os valores mais negativos de ambas as razões isotópicas para o interior do continente e nas regiões de maiores altitudes.

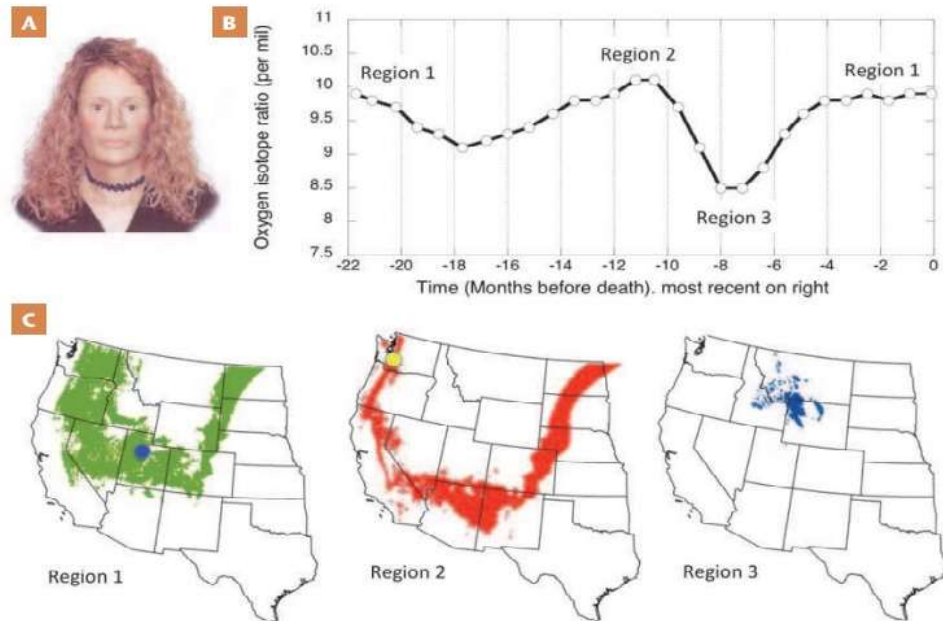


### ***1.4.3 Aplicações de isótopos estáveis nas ciências forenses***

As ciências forenses têm utilizado o método de identificações de razões isotópicas como uma eficiente ferramenta de investigação criminal em vários campos. Apresenta-se como uma técnica minimamente destrutiva, ou seja, que preserva quase que totalmente o objeto questionado e que apresenta resultados em tempo relativamente curto, a depender da disponibilidade de meios, habilidade de técnicas de coleta de amostras e de um laboratório equipado com espectrômetro de massa de razão isotópica.

Exemplos de aplicação são os casos de adulterações de produtos e de identificações de pessoas mortas. No primeiro caso, podem ser identificadas e comprovadas substituições de ingredientes para baratear os custos de produção e elevar os lucros dos fornecedores, como ocorre com o mel de abelhas (oriundo de plantas de ciclo fotossintético  $C_3$ , que têm razões isotópicas de carbono no intervalo de  $-28\%$  a  $-23\%$ ) que é adicionado ou substituído por mel de cana-de-açúcar ou por xarope de milho (derivados de plantas de ciclo fotossintético  $C_4$ , caracterizadas por isotópicas de carbono de  $-14\%$  a  $-10\%$ ). No segundo, cita-se o caso conhecido como “Saltair Sally” que recebeu ampla divulgação na imprensa norte-americana no ano de 2012; refere-se à identificação de um cadáver de uma mulher desconhecida encontrada enterrada perto de uma rodovia no deserto a oeste de Salt Lake City, Utah/EUA. Sequências de razões isotópicas de oxigênio de seus fios de cabelos indicaram que ela era uma viajante e que poderia ter residido em Salt Lake City (região 1 e ponto azul da figura 15), mas ninguém desta cidade se apresentou para identificá-la como pessoa desaparecida. Quando as mesmas sequências de razões isotópicas foram cruzadas com um mapa de *isoscapes* da região, foi possível traçar um percurso feito por Saltair Sally e identificar duas outras localidades onde ela viveu ou visitou antes de sua morte (regiões 2 e 3, da figura 15). Os investigadores enviaram inquéritos para as maiores cidades da região coberta pelo mapa de *isocapes*. Em agosto de 2012, receberam uma resposta positiva, um familiar residente em Seattle (região 2 e ponto amarelo da figura 15) que a reconheceu como sendo Nikole Bakoles, a partir das características divulgadas pela polícia, fato que foi confirmado por análises genéticas posteriores (Ehleringer *et al.*, 2015).

Figura 15 – Percursos de “Saltair Sally” identificados por isoscapes



Fonte: Ehleringer *et al.* (2015).

Legenda: (A) Esboço artístico de Saltair Sally. (B) Plotagem das mudanças das razões isotópicas de oxigênio de Saltair Sally nos últimos 22 meses obtidas de seus fios de cabelo. (C) Mapa das isoscapes das três regiões que Saltair Sally percorreu antes de sua morte. O ponto azul na região 1 é Salt Lake City (Utha) onde o corpo de Saltair Sally foi encontrado e o ponto amarelo na região 2 é Seattle (Washington), sua cidade natal.

#### 1.4.4 Características isotópicas dos carbonatos lacustres

Depósitos sedimentares lacustres são formados por grãos minerais clásticos, componentes orgânicos oriundos da bacia do lago, minerais endogênicos (precipitados da coluna d'água e diagenéticos precipitados da água dos poros dos sedimentos). Muitos desses minerais carbonáticos biogênicos e autigênicos (endogênicos e diagenéticos) podem preservar sinais geoquímicos que integram o registro geológico permanente das condições ambientais do lago no momento da precipitação. Dentre esses sinais destacam-se as composições isotópicas dos carbonatos que representam arquivos de informações paleoclimáticas. Estudos experimentais confirmaram que tanto carbonatos não marinhos biogênicos, quanto abiogênicos, se formam em equilíbrio isotópico com seu meio de crescimento. Isso significa que o mineral pode refletir de forma confiável a composição e as condições físico-químicas do meio em que foi formado (Kelts; Talbot, 1990).

Minerais carbonáticos são componentes comuns em lagos, mesmo naqueles situados em bacias hidrográficas pobres em rochas carbonáticas, pois cálcio e bicarbonato são os dois íons mais comuns liberados pelo intemperismo químico de quase todos os tipos de

terreno e geralmente estão presentes nas águas do lago em concentrações suficientes para permitir a precipitação de algum carbonato, quando as condições adequadas ocorrem. Estas precipitações ocorrem sob influências de fatores ambientais específicos de cada bacia, que tornam os minerais carbonáticos registros permanentes das condições ambientais do lago no momento da precipitação. As informações contidas nesses minerais podem ser acessadas a partir das análises de elementos traços que provêm do corpo d'água e são absorvidos durante a precipitação dos carbonatos, tais como Na, K, Al, P, Fe, Mn, das razões molares de Mg/Ca e Sr/Ca, que permitem estimar a temperatura e a salinidade do ambiente, e das razões isotópicas de carbono ( $\delta^{13}\text{C}$ ), oxigênio ( $\delta^{18}\text{O}$ ) e estrôncio ( $\delta^{87}\text{Sr}$ ) (Talbot, 1990).

Dentre as referidas análises, os principais indicadores (proxies) das condições ambientais do lago são os valores das razões isotópicas de carbono ( $\delta^{13}\text{C}$ ) e oxigênio ( $\delta^{18}\text{O}$ ) dos sedimentos químicos precipitados, pois permitem estimativas sobre a temperatura da água, a salinidade, produtividade e disponibilidades de nutrientes, que possibilitam reconstituições ambientais e da estratigrafia isotópica (Rodrigues; Fauth, 2015).

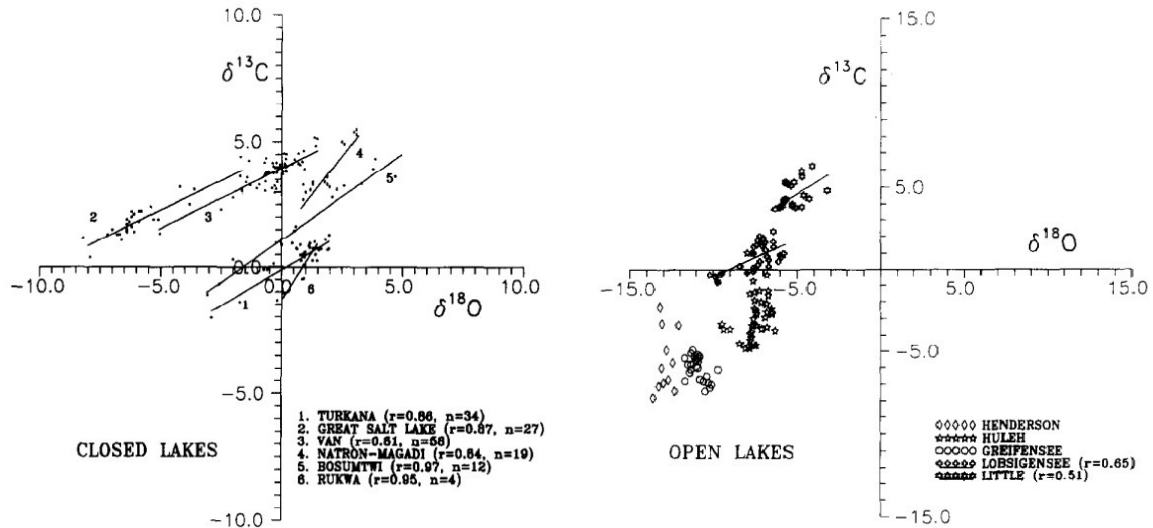
Mesmo presentes em pequenas proporções, esses minerais fornecem informações refinadas sobre a evolução e mudanças ambientais ocorridas no momento de sua precipitação. Através do uso de técnicas analíticas modernas, é possível identificar a mineralogia, a geoquímica de oligoelementos e as razões isotópicas desses minerais.

Kelts e Talbot (1990) destacam que os isótopos de oxigênio e carbono estão ligados com forças suficientes para reter registros das condições ambientais do tempo de sua formação e que a composição isotópica do oxigênio é fortemente influenciada pelas temperaturas da água do influxo da bacia e do momento da precipitação dos carbonatos; enquanto a composição isotópica do carbono sofre grande influência da produção e degradação da matéria orgânica do lago.

Talbot (1990), após revisar variações isotópicas de carbono e oxigênio em diversos carbonatos lacustres, afirma que não há dois lagos iguais, cada um responde de forma diferente aos fatores ambientais externos e, portanto, registrarão essas mudanças de uma forma ligeiramente diferente. Demonstra que uma característica marcante de muitos conjuntos de análises é a tendência de covariância das proporções isotópicas de carbono e oxigênio em menor ou maior grau. Lagos hidrologicamente abertos, com pouco tempo de residência do corpo d'água, mostram pouca ou nenhuma correlação entre  $\delta^{13}\text{C}$  e  $\delta^{18}\text{O}$  e lagos fechados, com longo tempo de residência, a correlação entre  $\delta^{13}\text{C}$  e  $\delta^{18}\text{O}$  ( $r \geq 0.7$ ). Cada lago tem uma única identidade isotópica definida por sua tendência covariante, a qual é função da geografia, do

clima, da hidrologia e da história do corpo d'água. Tendências da covariância podem ser usadas para traçar a história hidrológica da bacia e correlacionar conteúdos sedimentares dos carbonatos (Figura 16).

Figura 16 – Gráficos de tendências de covariâncias isotópicas de carbono e oxigênio de carbonatos primários de lagos fechados e lagos abertos, mostrando as diferenças. Cada lago com sua identidade isotópica



Fonte: Talbot (1990, p. 263-264).

As rochas sedimentares, incluindo as carbonáticas, apresentam assinaturas de  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  com elevada heterogeneidade. Essa característica se deve à presença de grande variedade de minerais clásticos oriundos de diversas rochas pré-existentes, cada qual com sua própria assinatura isotópica herdada da rocha-fonte (Quaggio *et al.*, 2021). Adicionalmente, o estrôncio possui massa atômica relativamente alta, o que torna o fracionamento isotópico provocado por processos geológicos superficiais e biológicos muito menor em comparação com elementos de massa mais baixa, H, C, O e S. Essa resistência ao fracionamento confere ao estrôncio um caráter conservativo, tornando a razão isotópica  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  menos adequada como indicador de origem geográfica de rochas carbonáticas (Capo *et al.*, 1997).

## 2 CONTEXTO GEOLÓGICO

A Bacia Sedimentar do Araripe, situada no interior do Nordeste do Brasil, ocupa parte dos Estados do Piauí, Pernambuco e Ceará, abrangendo uma área de cerca de 9.000 km<sup>2</sup>. Apresenta-se de forma alongada no sentido leste-oeste, com cerca de 160 km de extensão e 50 km de largura. Está situada entre os meridianos 38° 30' e 40° 50' de longitude W e os paralelos 7° 05' e 7° 50' de latitude S. Geomorficamente, a bacia se destaca na paisagem pelo platô da Chapada do Araripe e pelo Vale do Cariri que a bordeja a leste. A elevação do platô perfaz um planalto que tem bordas escarpadas e suave declínio na direção oeste. A Bacia do Araripe assenta-se sobre terrenos Pré-Cambrianos da Zona Transversal da Província Borborema (Viana; Neumann, 2002).

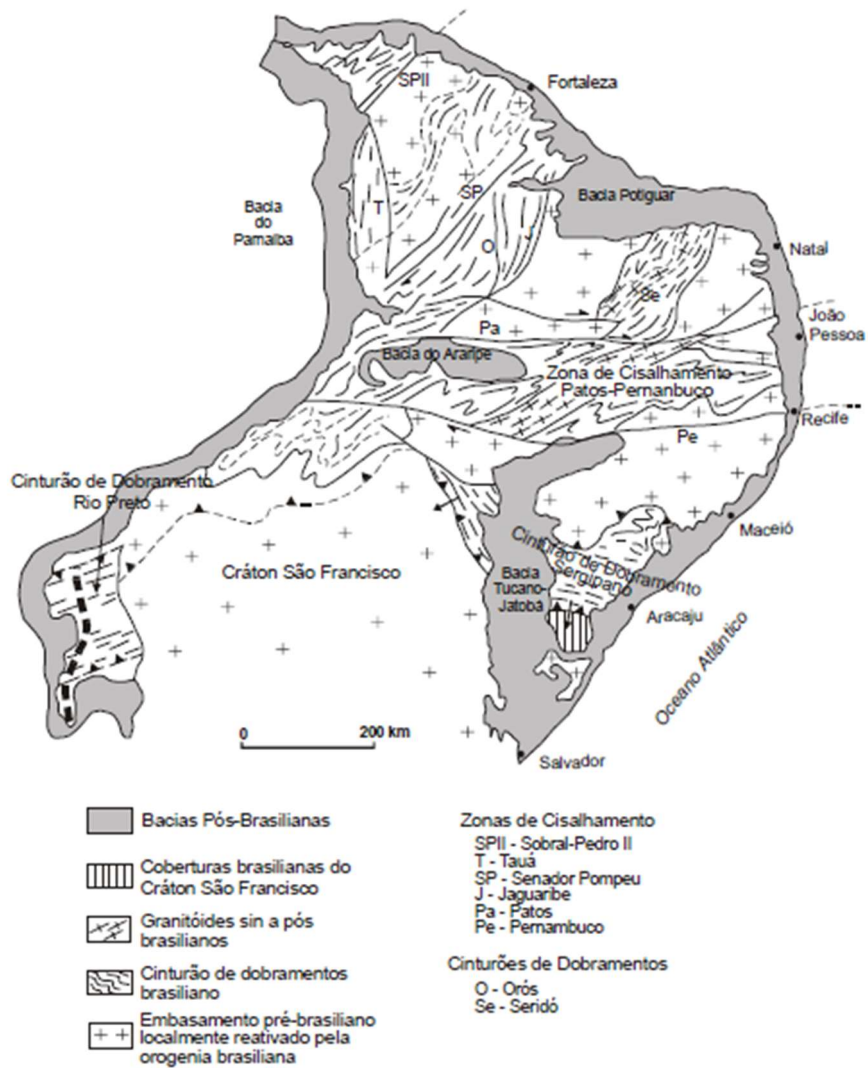
A Província Borborema é compreendida como um escudo cristalino de formação complexa onde ocorreram colisões e amalgamação de microplacas que formaram o supercontinente Gondwana no final da orogênese Brasiliana (580 – 540 Ma) (Almeida; Leonardos; Valença, 1967). Sobre a província, a Bacia do Araripe desenvolveu-se por movimentos tectônicos que ocasionaram a fragmentação do supercontinente Gondwana e a abertura do Oceano Atlântico entre o final do Jurássico Superior e o início do Cretáceo Inferior (150-110 Ma). Estes esforços provocaram a reativação de falhas do embasamento cristalino, que culminaram com a abertura de depressões e formação das bacias interiores do nordeste brasileiro, das quais a Bacia do Araripe é a maior. Ela é delimitada pelos lineamentos de Patos, ao norte, e Pernambuco, ao sul, e foi preenchida por sedimentos fluviais, lacustres e marinhos (Assine, 2007) (Figura 17).

O arcabouço estratigráfico da Bacia do Araripe consiste em sucessões geradas em regimes tectônicos distintos. Adotando o esquema de subdivisão tectonostratigráfica proposto por Ponte e Ponte Filho (1996) e complementado por Assine (2007) e Assine et al (2014), as sequências são classificadas em: Paleozoica, representada pela Formação Cariri; pré-rift, englobando as duas primeiras unidades do Grupo Vale do Cariri (Formações Brejo Santo e Missão Velha); rift, representada pela Formação Abaiara; pós-rift I, abrangendo todo o Grupo Santana (Formações Barbalha, Crato, Ipubi e Romualdo); e pós-rift II, representada pelo Grupo Araripe (Formações Araripina e Exu). As sequências Paleozóica, pré-rift e rift afloram no Vale do Cariri e as sequências pós-rift I e II, na Chapada, conforme mostram as Figuras 18 e 19.

Fambrini *et al.* (2020) apresentam uma atualização recente da coluna estratigráfica da Bacia do Araripe, sendo esta constituída, da base para o topo, pela Formação Cariri e pelo

Supergrupo Araripe, com os grupos Juazeiro do Norte, Santana e Chapada. A Formação Cariri é composta por arenitos médios a grossos fluviais de idade neordoviciana a eossiluriana (era Paleozoica) depositados sobre o embasamento cristalino; O Grupo Juazeiro do Norte é formado pelas Formações Brejo Santo, Missão Velha e Abaiara, que são constituídas por sedimentos argilosos e arenosos; o Grupo Santana engloba as formações Barbalha, Crato, Ipubi e Romualdo, que são formadas basicamente por sedimentos areno-argilosos, calcários laminados, evaporitos (gipsita) e arenitos interestratificados com folhelhos, contendo concreções calcárias, respectivamente; o Grupo Chapada é formado pelas formações Araripina e Exu, constituídas por siltitos, argilitos e arenitos. Estas sequências litológicas estão assentadas sobre *horsts* e grábens, estando a bacia dividida em duas sub-bacias separadas pelo Alto de Dom Leme: Cariri, ao leste e Serrolândia, ao oeste, conforme mostra o mapa na Figura 18 (Assine, 1992, 2007).

Figura 17 – Mapa geológico da Província Borborema.



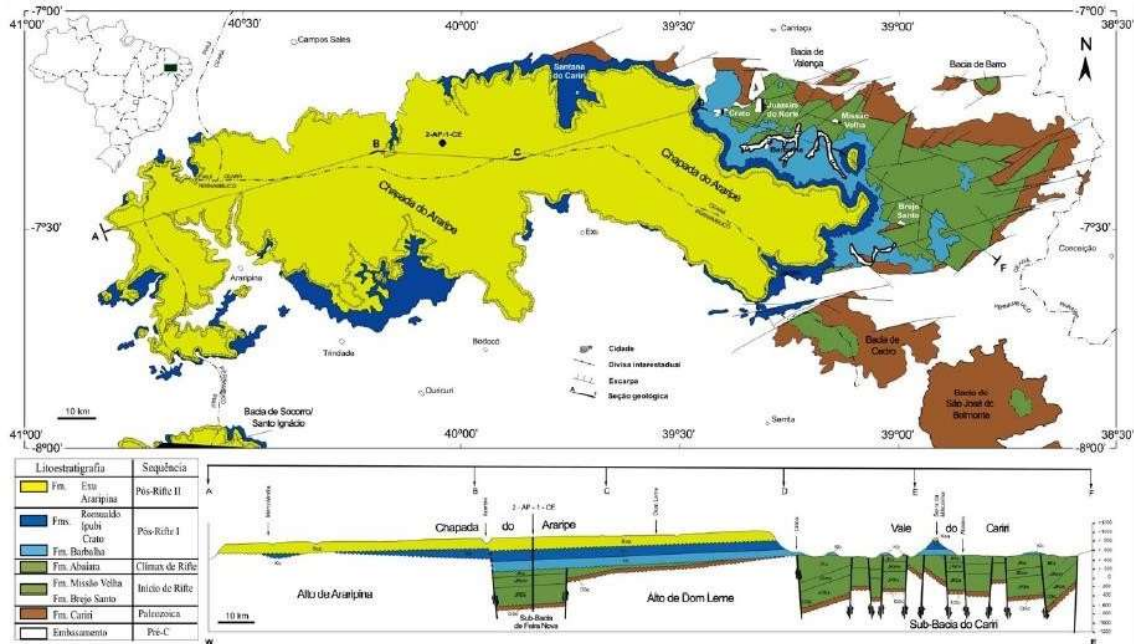
Fonte: Felix (2017), adaptado de Trompette (1994).

Figura 18 – Coluna Estratigráfica adotada neste trabalho

<b>MESOZOICO</b>	<b>CRETÁCEO</b>	<b>ALBIANO CENOMANIANO</b>	<b>PÓS_RIFT II</b>	<b>Grupo Araripe</b>	<b>Formação Exu Formação Araripina</b>
		<b>APTIANO</b>	<b>PÓS_RIFT I</b>	<b>Grupo Santana</b>	<b>Formação Romualdo Formação Ipubi Formação Crato Formação Barbalha</b>
		<b>DISCORDÂNCIA PRÉ-APTIANO</b>			
	<b>HALTERIANO/ BERRIASIANO</b>	<b>RIFT</b>	<b>Grupo Vale do Cariri</b>	<b>Formação Abaiara</b>	
	<b>JURÁSSICO</b>	<b>PRÉ-RIFT</b>		<b>Formação Missão Velha Formação Brejo Santo</b>	
<b>DISCORDÂNCIA PRÉ- MEZOZOICO</b>					
<b>PALEOZOICO</b>	<b>DEVONIANO</b>	<b>BETA</b>	<b>Formação Cariri</b>		
<b>DISCORDÂNCIA PRÉ-FANEROZOICO</b>					
<b>PRÉ-CAMBRIANO</b>	<b>PROTEROZOICO</b>	<b>EMBASAMENTO CRISTALINO</b>			

Fonte: Neumann e Assine (2015).

Figura 19 – Mapa geológico da Bacia do Araripe com seção geológica e estratigráfica



Fonte: adaptado de Assine *et al.* (2014) por Fambrini *et al.* (2020).

A Formação Crato aflora principalmente na escarpa nordeste da Chapada do Araripe (sub- bacia Cariri), desde a cidade de Santana do Cariri até Porteiras, mas estende-se por baixo da chapada, estando, em sua maior parte em subsuperfície, conforme atestado por sondagens de poços (Assine, 2007). Informalmente, a formação foi subdividida em seis unidades carbonáticas, denominadas de C1 a C6 (Neumann, 1999). Pioneiramente, Neumann (1999) reconheceu duas fácies deposicionais principais (ou microfácies, conforme Flügel, 2004) que



seriam reconhecíveis ao nível microscópico: calcário laminado e ritmito argila-carbonato. Mais tarde, as mesmas fácies (microfácies) seriam identificadas também por outros autores, como Heimhofer et al. (2010), sendo a fácies calcário laminado (*laminated limestone*, LL) tida como a mais abundante, e a fácies ritmito argila-carbonato (*clay-carbonate rhythmite*, CCR), a mais rara e restrita às unidades C3 e C6, principalmente em sua base (Neumann, 1999; Nascimento et al., 2022). Os principais afloramentos dos calcários laminados estão situados nas margens dos rios que cortam a escarpa e nas pedreiras de extração da matéria que é destinada às indústrias de cimento e de rochas ornamentais. À exploração do calcário da Formação Crato atribui-se a perda de algum conteúdo fóssilífero, embora tido como comum e menos relevante, como no caso de pequenos peixes do gênero *Dastilbe sp.*; no entanto, ela é, ao mesmo tempo, a principal responsável por revelar novos fósseis de grande relevância, mais raros, como é o caso dos vertebrados em geral (Neumann, 1999; Viana; Neumann, 2002).

A unidade carbonática de topo da Formação Crato – C6 – é a mais extensa e aflorante, e onde ocorre o maior número de fósseis em melhores condições de conservação (*Konservat lagerstätte*) (Viana; Neumann, 2002). Historicamente, porém, os trabalhos paleontológicos da Formação Crato frequentemente se limitam a localizá-los de forma genérica, ainda que a formação possua cerca de 70 m de espessura (Assine, 2007). Quando muito, sua *lagerstätte* é mencionada, como referência à unidade carbonática de topo, C6, mas que ainda possui ao menos 10 m de espessura de calcário (Neumann, 1999). Foi levando em conta a necessidade de melhorar a abordagem estratigráfica em trabalhos paleontológicos da formação que Corecco et al. (2022) propuseram uma nova subdivisão informal, dedicada à unidade C6, em estratos cujas designações seguem expressões tradicionalmente usadas por trabalhadores das pedreiras de Nova Olinda/CE que lavram a “Pedra Cariri” (nome comercial do calcário laminado, Figura 20). As denominações refletem interpretações não-técnicas, tradicionais e culturais dos trabalhadores que têm por base as características físicas (cor e tenacidade, por exemplo) e designações vulgares de seu conteúdo fóssilífero (“piaba”, “besouro” etc.). Tal sistemática se enquadra no campo da etnoestratigrafia (etnociência), estando em conformidade com preceitos de unidades paraestratigráficas do Comitê Estratigráfico Norte Americano (NACSN, 1983, 2005), do Código Estratigráfico Brasileiro (Petri et al., 1986a, 1986b) e, parcialmente, com os do Guia Estratigráfico Internacional (ISSC, 2010).

Figura 20 – Aspecto de uma frente de lavra do calcário laminado da Formação Crato (Pedra Cariri, nome comercial) no Município de Nova Olinda (CE)



Fonte: Autor.

### 3 MATERIAIS E MÉTODOS

Neste capítulo apresenta-se detalhadamente os passos realizados durante a execução do trabalho de pesquisa.

#### 3.1 Apresentação das fases da pesquisa

Na primeira fase, em linhas gerais, foi realizada uma revisão e formação de um banco de dados de razões isotópicas de carbono e oxigênio coletadas de trabalhos historicamente publicados que pesquisaram as formações Crato (Bacia do Araripe/CE), Codó (Bacia do Parnaíba/MA) e Green River (EUA). As três têm em comum serem constituídas por calcários laminados fossilíferos. Os dados de razões isotópicas de carbono e oxigênio das duas últimas foram utilizados como material de cotejo com os dados da primeira, para seguir uma metodologia utilizada pela ciência forense. Os resultados obtidos estão expressos no artigo científico intitulado: “*Isotopic Signatures of Fossiliferous Limestones from the Crato Formation, Araripe Basin, Brazil: An Review with Forensic Implications*”, que foi recentemente submetido a uma revista científica e é apresentado no capítulo 4 desta Dissertação. A presente Dissertação de Mestrado foi concluída, seguindo o atual Regimento do Programa de Pós-Graduação em Geologia da UFC, com a conclusão da primeira fase, incluindo a submissão do artigo relatado.

Este estudo terá continuidade com a realização de uma segunda fase da pesquisa, já em curso. Nessa oportunidade, serão utilizados dados de razões isotópicas de carbono e oxigênio de 46 amostras de calcário da Formação Crato. Destas amostras, 36 (trinta e seis) foram oriundas de 16 rochas hospedeiras de espécimes fósseis de vertebrados (pterossauros e anuros) existentes no acervo do Museu de Paleontologia da Universidade Regional do Cariri (URCA), e que foram disponibilizadas ao autor para realizar as coletas (figura 21); e outras 6 (seis) amostras foram coletadas pelo próprio autor em uma cava recém-aberta do etnoestrato “7 cortes”, base da unidade carbonática de topo (C6) da Formação Crato (Neumann, 1999; Corecco *et al.*, 2022) situado na Pedreira do Aurélio (7° 6' 42,76"/39° 41' 51,12"), no Município de Nova Olinda. Os resultados da segunda fase serão utilizados, futuramente, para a aferição da hipótese consignada no projeto de pesquisa, na primeira fase, de que seja possível atribuir de forma probabilística a origem geográfica dos fósseis mais estimados, principalmente de grandes vertebrados, oriundos da Formação Crato, por meio das razões de isotópicas de

carbono e oxigênio constituintes dos seus calcários portadores.

Figura 21 – Coletas de amostras do calcário fossilífero da Formação Crato no Museu de Paleontologia da Universidade Regional do Cariri em Santana do Cariri (URCA).



Fonte: Autor.

### 3.2 Etapas do trabalho realizado

A primeira etapa consistiu em levantamentos bibliográficos sobre a geologia regional e local, para a expansão dos conhecimentos sobre a Bacia Sedimentar do Araripe, ao passo em que foram coletados dados de razões isotópicas de carbono e oxigênio de depósitos calcários dos trabalhos de Neumann (1999), Heimhofer *et al.* (2010), Bahniuk *et al.* (2015), Della Porta (2015), Silveira (2019) e Varejão *et al.* (2021a). As rochas analisadas por eles são todas de calcários tidos como predominantemente lacustres e foram estudadas pelos autores para diferentes finalidades como, por exemplo, identificar sua conectividade a outros sistemas deposicionais, suas condições de salinidade, sua correlação com diferentes locais, efeitos diagenéticos, dentre outros. Ao todo, foram levantados dados referentes a 239 amostras, das quais 213 são da Formação Crato; 11, da Formação Codó e 12, da Formação Green River.

Na segunda etapa, tratou-se de definir geograficamente e estratigraficamente a porção da Formação Crato considerada a camada fóssil *Konservat Lagerstätte*. Foi feito um recorte geográfico para definir a área imediata de estudo, com cerca de 140 km<sup>2</sup>, usando como critérios as localizações dos afloramentos da unidade carbonática de topo da Formação Crato (C6) (Neumann, 1999; Vianna; Neumann, 2002), e das principais pedreiras de exploração de calcário laminado da Fm. Crato (“Pedra Cariri”, nome comercial do minério) situadas entre as cidades de Nova Olinda/CE e Santana do Cariri/CE (Figura 1). Estratigraficamente, também foi definida a posição do nível informal denominado etnoestrato “sete cortes” (Corecco *et al.*, 2022), tido como hospedeiro preferencial dos fósseis de grandes vertebrados (Felix, 2017;

Varejão *et al.* 2021a) e que se posiciona na base da unidade carbonática de topo da Fm. Crato (C6) (Viana; Neumann, 2002).

Na terceira etapa, os dados obtidos da Fm. Crato (Neumann, 1999; Heimhofer *et al.*, 2010; Silveira, 2019; Varejão *et al.*, 2021a) foram tratados estatisticamente, buscando identificar intervalos de  $\delta^{18}\text{O}_{\text{V-PDB}}$  e  $\delta^{13}\text{C}_{\text{V-PDB}}$  próprios dessa unidade, procurando otimizar, em aproximações sucessivas e cada vez mais restritivas, o intervalo característico do etnoestrato “sete cortes”. Por sua vez, as razões isotópicas de carbono e oxigênio das formações Codó (Bacia do Parnaíba) (Bahniuk *et al.*, 2014) e Green River (EUA) (Della Porta, 2015) foram utilizados para realizar cotejos com os dados da Fm. Crato.

Ao conjunto de dados da Formação Green River da Bacia do Uinta (Ninemile Canyon) em Utah e da Bacia do Rio Verde em Wyoming, publicados por Della Porta (2015), foram acrescentadas três novas análises conduzidas para este estudo em calcários laminados contendo fósseis de peixes da Bacia Fóssil (Kemmerer) em Wyoming, com as medidas isotópicas de oxigênio e carbono sendo referidas aqui.

As análises acima referidas foram realizadas em colaboração com a Professora Giovanna Della Porta, usando um dispositivo automatizado de preparação de carbonato (Gasbench II) e um espectrômetro de massa de fluxo contínuo Thermo Fisher Scientific Delta V Advantage no Departamento de Ciências da Terra da Universidade de Milão. Amostras de carbonato em pó foram tratadas com ácido ortofosfórico 99% a 70°C. As composições isotópicas de carbono e oxigênio são expressas na notação delta convencional calibrada para o padrão Vienna Pee-Dee Belemnite (V-PDB) pelas normas internacionais IAEA 603 e NBS-18. O erro analítico para essas análises gira em torno de  $\pm 0,1\%$  para os valores de  $\delta^{13}\text{C}$  e  $\delta^{18}\text{O}$ .

### 3. 3 Método de utilização das unidades informais

Com o objetivo de definir horizontes estratigráficos mais específicos no interior da Formação Crato que é parte integrante do Grupo Santana (Assine, 2014) e não possui subdivisões formais (membros e camadas), duas subdivisões informais foram utilizadas.

A primeira divisão informal foi proposta por Neumann (1999). O autor identificou 6 unidades carbonáticas na Formação Crato, constituídas por corpos calcários mais contínuos, denominadas C1 até C6 da base para o topo, e que são intercaladas por sedimentos siliciclásticos. Neumann (1999) e Neumann *et al.* (2003) ainda distinguiram duas fácies deposicionais dentro dos calcários destas unidades carbonáticas: ritmito argila-carbonato e calcário laminado, e que

seriam melhor reconhecidas no nível microscópico (microfácies).

A segunda subdivisão informal adotada aqui foi a proposta originalmente por Corecco *et al.* (2022), onde a unidade carbonática de topo da Formação Crato (C6), que contém fósseis em grande quantidade e em elevado grau de conservação, reconhecida com a denominação *fossil Konservat lagerstätte* (Viana; Neumann, 2002), foi subdividida em onze estratos. Estes possuem denominações que seguem expressões tradicionalmente usadas por trabalhadores das pedreiras de Nova Olinda que lavram a “Pedra Cariri” (nome comercial do calcário laminado), conforme demonstrado no capítulo 2 (Contexto geológico). Os níveis que recebem denominações etnoestratigráficas são denominados etnoestratos ou etnocamadas. Dentre os etnoestratos, o denominado “sete cortes” é o alvo do presente estudo, pois é considerado o que abriga os fósseis mais estimados pelo tráfico (grandes vertebrados), segundo relatos dos próprios trabalhadores das pedreiras. As localizações mais frequentes de certos fósseis é também conhecida por pesquisadores há anos a partir de relatos dos trabalhadores das pedreiras, eventualmente registradas em colunas estratigráficas (Felix, 2017; Varejão *et al.*, 2021).

Nenhuma das bases de dados isotópicos da Formação Crato usadas (Neumann, 1999; Heimhofer *et al.*, 2010; Silveira, 2019; Varejão *et al.*, 2021a) segue completamente a proposta da uniformização da nomenclatura estratigráfica proposta acima. Portanto, sua equivalência precisou ser checada caso a caso em função da localização geográfica de suas colunas estratigráficas, das espessuras medidas, das fácies descritas e de eventuais elementos discriminatórios de níveis particulares, como no caso de ocorrências de certos fósseis mais específicos e estruturas geológicas.

### **3.4 Análises estatísticas utilizadas para a identificação dos parâmetros isotópicos**

A análise estatística das razões isotópicas de carbono e oxigênio em calcários laminados assume um papel fundamental na caracterização e individualização de suas camadas e agrupamentos. Para ressaltar as tendências características de cada distribuição isoladamente, ou em confronto com outras, foram utilizadas as medidas de posição e medidas de variabilidade ou dispersão. As primeiras são a média aritmética, a mediana e os quartis; entre as de segundo tipo são a amplitude, desvio padrão, variância amostral e coeficientes de correlação linear (Witte; Witte, 2005; Moreira; Santos; Moreira, 2021). Tais medidas foram utilizadas para construir gráficos de dispersão (*scatterplots*) e de caixa (*boxplots*) que revelam as relações entre

as razões isotópicas, suas tendências de correlação e a variabilidade dos dados.

O uso da correlação estatística ( $r$ ), em particular, se justifica também pelo fato de que trabalhos de pesquisa isotópica voltados para interpretações baseadas no fracionamento isotópico conjunto de carbono e oxigênio (por exemplo, condições hidrológicas, climáticas etc.) frequentemente se valem da covariância ( $r^2$ ) entre os mesmos elementos (i.e., Talbot, 1990), parâmetro que possui uma relação direta (quadrática) com a correlação. Ademais, apesar de testes de hipóteses serem aplicáveis à correlação, vale lembrar que seu coeficiente não implica, por si só, em uma relação de causa e efeito entre as variáveis envolvidas, mas meramente um determinado grau de ordenação ou previsibilidade (Witte; Witte, 2005, p. 125).

Utilizando estas ferramentas, em conjunto com o conhecimento das características geológicas e estratigráficas, o estudo realizou análises sucessivas, partindo da Formação Crato como um todo e considerando suas subdivisões em unidades informais. O objetivo final foi identificar os parâmetros estatísticos das razões isotópicas de carbono e oxigênio específicos do etnoestrato “sete cortes”, que seria destacado por abrigar preferencialmente fósseis de grandes vertebrados (Felix, 2017).

As análises estatísticas realizadas demonstraram as características distintas das Formações Crato, Codó e Green River, de agrupamentos das unidades carbonáticas da Formação Crato (C1-C6), das diferenças geográficas na localização da unidade C6, das fácies deposicionais da unidade carbonática C6 (LL e CCR, nas siglas em inglês) e do etnoestrato “sete cortes”. Os parâmetros estatísticos de razões isotópicas de carbono e oxigênio ( $\delta^{13}\text{C}_{\text{VPDB}}$  e  $\delta^{18}\text{O}_{\text{VPDB}}$ ), com enfoque principalmente nas medidas de tendência central e variabilidade, foram as principais ferramentas nesse aspecto.

#### 4 RESULTADOS E DISCUSSÕES

Os resultados obtidos na pesquisa estão expressos na forma do artigo científico denominado: *Isotopic signatures of fossiliferous limestones from the Crato Formation, Araripe Basin, Brazil: an isotopic review with forensic implications* em inglês, que foi submetido a publicação no periódico científico *Forensic Science International (Elsevier)* (Apêndice A) (<https://www.sciencedirect.com/journal/forensic-science-international>), na forma como aqui é apresentado.



## **Isotopic Signatures of Fossiliferous Limestones from the Crato Formation, Araripe Basin, Brazil: A Review with Forensic Implications**

Marcos Antônio Pimentel de Sousa<sup>1</sup>, Daniel Rodrigues do Nascimento Jr.<sup>2</sup>, Anelize Manuela Bahniuk<sup>3</sup>, Giovanna Della Porta<sup>4</sup>

1. Graduate Program in Geology, Federal University of Ceará, Brazil.
2. Department of Geology, Federal University of Ceará, Brazil.
3. Department of Geology, Federal University of Paraná, Brazil.
4. Department of Earth Sciences, University of Milan, Italy.

### **ABSTRACT**

The Crato Formation in Northeast Brazil is a globally renowned deposit of a lacustrine limestone rich in well-preserved Cretaceous fossils of various organisms, including highly prized vertebrates like pterosaurs, dinosaurs, and anurans. However, fossil traffickers have targeted this paleontological patrimony for decades, as Brazilian law has prohibited its commercialization since the 1940s. The Brazilian Federal Police is the competent public agency responsible for combating fossil trafficking, and the accurate identification of the origin of fossils is crucial in police investigations. In this context, the present study aims to contribute statistical parameters of stable carbon ( $\delta^{13}\text{C}$ ) and oxygen ( $\delta^{18}\text{O}$ ) isotopes from its host limestone, aiming for a practical, precise, and minimally destructive method to identify rock and fossil specimens from the Crato Formation. To achieve this, isotopic data from historically published works were compiled, and new analyses were conducted, aiming to successive geographical and stratigraphic approximations onto the main vertebrate fossiliferous level. This is important because Crato Formation is a formal 70-m-thick unit informally divided into six carbonate units from the bottom to the top (C1 to C6). The lagerstätte layer is the top unit (C6), which is about 10 m thick. Inside it, for its turn, large vertebrate fossils occur mainly in a basal level approximately 2 meters thick, termed "sete cortes" ethnostratum. Parallely, isotopic data from laminated lacustrine limestones of similar stratigraphic units from Brazil (Codó Formation) and the United States (Green River Formation) were also included for comparison. The results showed that the stratigraphic level of the Crato Formation, which hosts the most prized vertebrate fossils, stands out from the others due to statistically consistent isotopic values and narrow variability, not only in comparison with limestones from other basins but also within the same unit. In this sense, the statistical patterns of  $\delta^{18}\text{O}_{\text{V-PDB}}$  and  $\delta^{13}\text{C}_{\text{V-PDB}}$  obtained for the ethnostratum "sete cortes" were, respectively: arithmetic means  $-5.9\text{‰}$  and  $+0.9\text{‰}$ ; standard deviations 0.7 and 0.6; medians  $-5.8\text{‰}$  and  $+0.7\text{‰}$ ; and interquartile ranges 1.4 and 1.2. These findings are very useful not only for forensic investigations but also to track specific stratigraphic positions of fossils that were collected without any control of its locations.

**Keywords:** Fossil lagerstätte, Crato Formation, Fossil trafficking, Stable isotopes.

## INTRODUCTION

The Crato Formation represents a significant stratigraphic unit housing one of the world's paramount geological and paleontological sites from the Cretaceous period. Situated within the Araripe Basin, it is located in northeastern Brazil, bordering the states of Ceará, Pernambuco, and Piauí. Lithologically, the Crato Formation is characterized by a mixed carbonate-siliciclastic succession, featuring intercalated layers of finely laminated limestones. Deposited during the Aptian stage, approximately 120 million years ago, it primarily formed within a lacustrine depositional system, eventually influenced by marginal marine sedimentation as well (VAREJÃO, et al., 2021) (Varejão *et al.*, 2021). The laminated limestone beds harbor a wealth of exceptionally well-preserved fossils, occasionally including soft tissues, thus designating this sedimentary succession as a *Konservat-Lagerstätte* (Kunzmann *et al.*, 2021)

Paleontological exploration in the Araripe Basin commenced in 1823 with researchers J.B. von Spix and C.F.P. von Martius, who led a scientific expedition dispatched by King Maximiliano José I of Bavaria to investigate the treasures of the New World. During their expedition, they documented the presence of fossils in the region, notably reporting fish fossils found within limestone layers now attributed to the Romualdo formation (Viana and Neumann, 2002; Nascimento *et al.*, 2021). Since then, numerous researchers have undertaken studies to enhance understanding of the origin and composition of fossils within the basin, with particular focus on the Crato Formation. The basin's extensive outcrop exposures, abundance of well-preserved fossils, and exceptional level of preservation have attracted both curious individuals and dedicated scientists, alongside illicit fossil traffickers, over the years. Consequently, this valuable geological heritage has been subjected to predatory exploitation through uncontrolled mining and the illegal collection and smuggling of fossil specimens over the past two centuries (Viana and Neumann, 2002).

Recently, there have been reports indicating that both national and foreign researchers and scientists, lacking the proper authorizations, engage "peixeiros," locals who extract fossils in the region, to obtain specimens that are then transported to their laboratories and collections outside Brazil. Moreover, fossil traffickers have negotiated these specimens online through commercial platforms such as eBay (Catalina, 2020). Among the noteworthy recent cases is the one involving a pterosaur fossil, *Tupandactylus imperator*, which was listed on an online auction platform with a starting price of €23,400 (Catalina, 2020; 2022). Another

case that drew significant attention worldwide in the press and the academic community was the discovery of a new dinosaur species named *Ubirajara jubatus*, identified through the examination of specimens exported from the laminated limestone of the Crato Formation by an international team of researchers. Their findings were originally published in the *Cretaceous Research* journal. Described as a primitive bird, the specimen was chicken-sized, bipedal, and adorned with rudimentary feathers. This discovery alarmed Brazilian researchers, who reported the illegal extraction of the fossil, prompting a social media campaign for its repatriation. Subsequently, the Federal Public Ministry of Juazeiro do Norte (State of Ceará) launched an investigation into the fossil's removal and requested the authorities in the country where it was located to seize and return the material (Andrade, 2021). Consequently, the publication was retracted, and the fossil was recently repatriated to Brazil and entrusted to the care of the Plácido Cidade Nuvens Paleontological Museum.

According to Brazilian laws, fossils found and collected within the national territory belong to the nation, as per Decree-Law n. 4,146/42 (Brasil, 1942) and Article 20, paragraph X of the Federal Constitution of 1988 (Brasil, 1988), classifying them as cultural assets. Their extraction requires prior authorization from the National Mining Agency (ANM), formerly known as the National Department of Mineral Production (DNPM). Exploring federal property without legal authorization or in violation of authorizing titles constitutes a crime against public property, specifically usurpation, as defined in Article 2 of Law n. 8,176/91 (Brasil, 1991). Violators of the law are subject to penalties ranging from one to five years of imprisonment and a fine. According to Decree n. 98,830 of January 15, 1990 [11] (Brasil, 1990), the Ministry of Science and Technology is responsible for assessing and authorizing activities involving the collection and study of biological and mineral specimens by foreigners for research purposes within the national territory. These activities are contingent on the co-participation and co-responsibility of Brazilian institutions with a high and recognized technical-scientific expertise in the field of research related to the work to be carried out.

The Brazilian Federal Police is the responsible authority in Brazil for combating illegal practices involving natural heritage. In the last 10 years, 23,677 fossil specimens were seized, and 44 fossil examination reports were conducted, according to the data collected from the Superintendence of the Federal Police in the State of Ceará (Ministério da Justiça, 2021). However, in the United States of America and some European countries, the sale of fossils is legal. Therefore, for the Brazilian Public Ministry to request the repatriation of specimens allegedly smuggled from Brazil, their origin must be unequivocally proven. Many illegally

extracted fossils, seized, and smuggled, exhibit specific and lithological characteristics of the host rocks similar to those of the already identified and cataloged sedimentary rock materials occurring in the Crato Formation of the Araripe Basin. On the other hand, similar fossiliferous limestones exist in other regions of Brazil and worldwide, making their distinction sometimes requiring meticulous potentially expensive, and time-consuming studies.

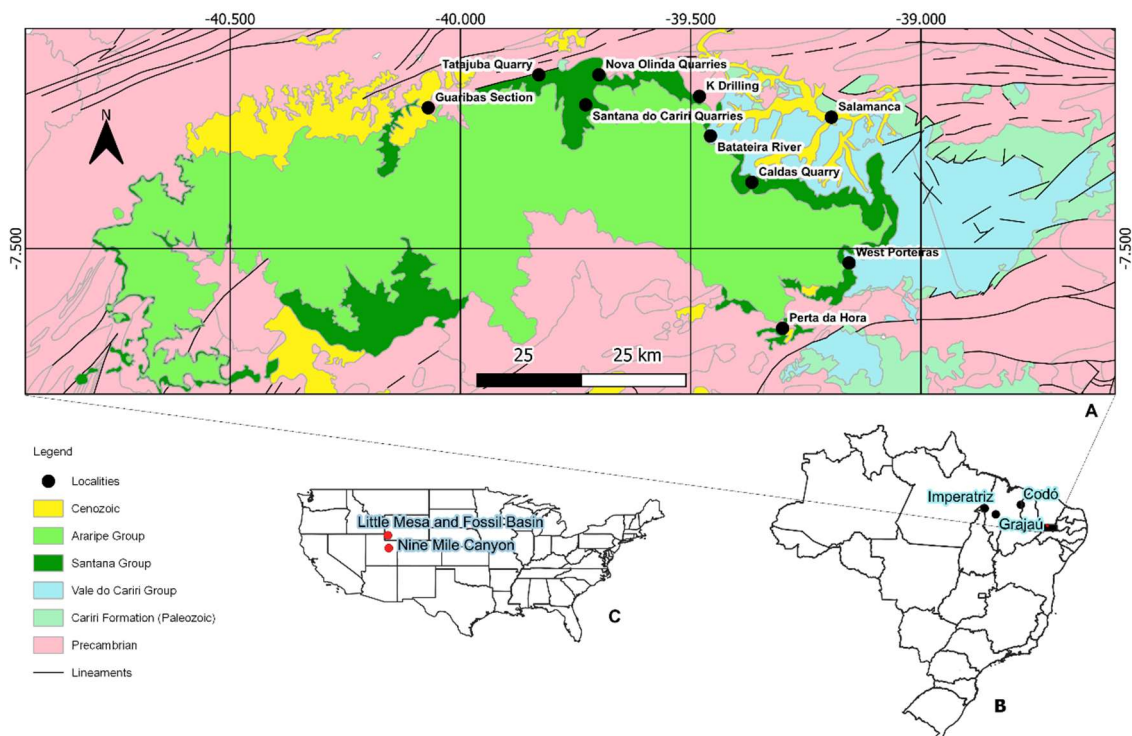
Given the facts described, the aim of this research is to determine the stable carbon and oxygen isotopic signatures distinctive of the most prized fossiliferous limestones of the Crato Formation. These signatures will be used as an additional identifier of the geographical origin of specimens seized by the Federal Police. Thus, this study has the potential to contribute to the recovery of illegally smuggled fossil specimens through a relatively quick and cost-effective method, providing concrete evidence of the crime of usurpation of public property. It also offers support for the creation of a database that can serve as a resource for researchers and investigators.

## **GEOLOGICAL CONTEXT**

The Araripe Sedimentary Basin occupies a portion of northeastern Brazil, spanning across the states of Piauí, Pernambuco, and Ceará. With an area of approximately 9,000 km<sup>2</sup>, it extends between longitudes 38°30'W and 40°50'W and latitudes 7°05'S and 7°50'S. Elongated in an east-west direction, the basin measures roughly 160 km in length and 50 km in width, reaching elevations of up to 900 m. Classified as a plateau, this geomorphological feature stands out prominently in the regional landscape due to its elevated position, steep escarpments, and gentle westward slope (Assine, 2007). The basin has long been interpreted as an aborted rift basin (Ponte and Appi, 1990; Assine, 1992), with its development attributed to the extensional and strike-slip tectonics [16] (Rosa *et al.*, 2023) associated with the opening of the South Atlantic Ocean during the Wealdenian Reactivation (Almeida, 1967). The opening initiated in the Late Jurassic and persisted into the Early Cretaceous. The basin is situated within Precambrian terranes of Borborema Province, bounded by the Patos Lineament to the north and the Pernambuco Lineament to the south. The origin and evolution of the Araripe Basin were governed by extensional tectonics, ultimately creating the largest of the Mesozoic interior basins in northeastern Brazil. Its deposits encompass mainly fluvial and lacustrine environments characterized by sequences developed during distinct stages (Assine, 2007). Adopting the tectonostratigraphic subdivision scheme proposed by Ponte and Ponte Filho

(1996), and supplemented by Assine (2007), the sequences are classified as: Paleozoic, represented by the Cariri Formation; Pre-Rift, encompassing the first two units of the Vale do Cariri Group (Brejo Santo and Missão Velha formations); Rift, represented by the Abaiara Formation; Post-Rift I, spanning the entire Santana Group (Barbalha, Crato, Ipubi, and Romualdo formations); and Post-Rift II, represented by the Araripe Group (Araripina and Exu formations) (Figure 1).

Figure 1 - Location of samples of lacustrine limestone collected for stable isotope analyses. (A) Simplified geological map of the Araripe Basin and its location in Brazil (B) in relation to location of the samples from the Codó Formation (Parnaíba Basin). In (C), the locations of samples from the Green River Formation in Utah and Wyoming (USA).



Source: Assine *et al.* (2014).

Recent studies have proposed refinements on the sequences of pre-rift and rift phases of the Araripe Basin (i.e., Prosser, 1993). In this sense, Fambrini *et al.* (2020) reclassified the basal units (Vale do Cariri Group) as follows: i. Rift initiation (Late Jurassic) – including Brejo Santo Formation and the lower half of the Missão Velha Formation, representing the initial subsidence phase; ii. Rift Climax (Early Cretaceous) – encompassing the upper half of the Missão Velha Formation and the Abaiara Formation, thus corresponding to the period of

maximum extension of the basin. The other sequences were maintained from previous classifications.

## STRATIGRAPHY OF THE CRATO FORMATION

The Crato Formation, part of the Santana Group (Assine *et al.*, 2014), comprises laminated limestone beds deposited in a lacustrine setting (Neumann *et al.*, 2008). However, alternating siliciclastic lithofacies, such as marls, shales, siltstones, and sandstones are also present, especially at transitional boundaries (Neumann, 1999). These lithologies are interpreted as shallow lacustrine deposits potentially linked to associated alluvial systems, deltas, or fan deltas (Neumann, 1999; Santos *et al.*, 2017). The presence of specific microfossils (Chagas, 2017; Goldberg *et al.*, 2019) and sedimentary structures within some siliciclastic beds suggest sporadic marine incursions into lacustrine system. Nevertheless, these incursions were likely limited in both duration and extent (Salgado-Campos *et al.*, 2021; Varejão *et al.*, 2021b).

Pioneeringly work by Neumann (1999) identified six major carbonate units (C1-C6) within the Crato Formation based on studies in quarries, outcrops, and wells. These units represent cycles of lacustrine expansion and retreat driven by climatic variations over timescales of 200-500 ka (Neumann and Cabrera, 2002). Among these, the uppermost unit, C6, host the renowned fossil-bearing *lagerstätte* and exhibits the widest geographical extent within the Cariri Valley (Neumann, 1999, Viana & Neumann, 2002).

However, most paleontological studies have lacked stratigraphic precision, often solely referencing “laminated limestone” or the “*lagerstätte*” of the Crato Formation without specifying the carbonate unit or specific level within it (Kunzmann *et al.*, 2021). To address this, Corecco *et al.* (2022) adopted the informal nomenclature used by quarry workers for specific levels within the commercially exploited limestone of the C6 unit (“Pedra Cariri”), an approach known as ethnostratigraphy. This nomenclature considers not only physical characteristics like cutting quality and color but also the fossil content. Through field interviews and laboratorial analysis, Corecco *et al.* (2022) defined 17 ethnostrata within the C6 limestone.

Among these ethnostrata, the called “sete cortes” (“seven cuts”) is particularly significant as it harbors diverse vertebrate fossils, highlighting anurans, lizards, dinosaurs, and pterosaurs. Its name stems from the standard thickness of quarried slabs (10 cm) due to its seven commercially valuable “cuts” at the base of C6. Located soon above the local water table at

Nova Olinda quarries, “sete cortes” extends at least 1 m further down for a total thickness of 1.7 m. Additionally, it is characterized by an overall gray-blue color with rhythmic laminations ranging from gray to beige colors (Corecco *et al.*, 2022; Felix, 2017).

Informal stratigraphic designations like Neumann (1999) carbonate units and Corecco *et al.* (2022) ethnostrata hold value and recognition within both the International Stratigraphic Guide (Salvador, 1994) and local codes (i.e., Petri, 1986). The U.S. Stratigraphic Nomenclature Committee (NACSN, 1983) categorizes them as parastratigraphic units. These informal units are typically described using lower-case common nouns, adjectives, or geographic terms (NACSN, 2005).

Figure 2 - Mining front of laminated limestone from the Crato Formation in the Nova Olinda quarry.



Source: Author.

Figure 3 - Appearance of the “sete cortes” (“seven-cuts”) layer on the mining front in the Nova Olinda quarry



Source: Author.

Note the cut lines separating 10 cm thick slabs.

Figure 4 - Fossil pterosaur crest of an unidentified species, in the laminated limestone of the Crato Formation



Source: Author.

Note: It was seized by the Federal Police in the *Santanaraptor* operation. The piece is now housed at the Plácido Cidade Nuvens Paleontology Museum in Santana do Cariri, State of Ceará, Brazil



Figure 5 - Green River Formation laminated mudstone with fish fossil analyzed in Milan



Source: Della Porta (2015).

Figure 6 – Codó Formation laminated mudstone with fish fossil *Codoichthys carnavalii* UFRJ DG - 1166P



Source: Lindoso (2016, p. 130).

## PREVIOUS ISOTOPIC STUDIES OF $\Delta^{18}\text{O}_{\text{VPDB}}$ AND $\Delta^{13}\text{C}_{\text{VPDB}}$ IN THE CRATO FORMATION LIMESTONES

Neumann (1999) spearheaded the initial stable oxygen and carbon isotope investigation within the Crato Formation, marking the most comprehensive endeavor to date in terms of sample quantity, geographical distribution, and stratigraphic coverage. Distinguished by its incorporation of isotopic analyses spanning carbonate units from C1 to C5, Neumann's study diverged from the predominant focus on the unit C6, renowned for housing the fossil *lagerstätte* (Kunzmann *et al.*, 2021). A total of 106 isotope analyses were conducted on 72 carbonate rock samples sourced from quarries, wells, and outcrops, primarily comprising laminated limestone and clay-carbonate rhythmites, alongside marls and diagenetic features such as concretions and cone-in-cone structures. As a result, Neumann (1999) derived  $\delta^{13}\text{C}$

(VPDB) carbon values ranging from +3.2‰ to +11.3‰ and  $\delta^{18}\text{O}$  (VPDB) oxygen values from -8.4‰ to -1.6‰. Drawing from the isotopic range delineated by Scoffin (1987), Neumann (1999) interpreted his findings as bolstering a lacustrine origin for the formation. Furthermore, the author suggested the likelihood of the lacustrine system functioning as a hydrologically closed entity, citing positive and relatively high covariance indices observed between carbon and oxygen isotope ratios, particularly notable in carbonate units C3 and C6.

Heimhofer *et al.* (2010) undertook a study investigating the sedimentary and paleoenvironmental conditions prevalent during the deposition of the fossil-rich strata within the Crato Formation. They highlighted variations in thickness and color observed in the laminated limestone and clay-carbonate facies. Specifically focusing on the primary fossil-bearing interval of carbonate unit C6 (later identified as the ethnostratum "sete cortes" by Corecco *et al.*, 2022), the researchers analyzed samples from three stratigraphic sections located in quarries in Caldas (Barbalha, CE), south of Nova Olinda, and Tatajuba (Santana do Cariri, CE). Through the integration of isotopic analyses with other petrographic and geochemical methods, Heimhofer *et al.* (2010) corroborated Neumann's (1999) interpretation of a closed lake system, while also noting the influx of meteoric continental waters and a low contribution of carbon from soil. Their  $\delta^{18}\text{O}$  (VPDB) values ranged from -7.1‰ to -5.1‰, and for  $\delta^{13}\text{C}$  (VPDB), from -0.1‰ to +1.9‰, exhibiting positive and relatively high covariance, consistent with Neumann (1999).

Silveira (2019) conducted stratigraphic, sedimentological, and geochemical analyses of the limestones soon above the "sete cortes" ethnostratum, within the carbonate unit C6, with the aim of investigating the mode of limestone precipitation during the Early Cretaceous, whether orthochemical, biogenic, or both, and the possibility of diagenetic and pedogenic effects under shallow deposition conditions. Silveira (2019) analyzed isotopic ratios from 38 samples taken from quarries and outcrops at seven locations, obtaining values ranging from -18.2‰ to +2‰ for  $\delta^{13}\text{C}$  (VPDB) and from -8.3‰ to +0.2‰ for  $\delta^{18}\text{O}$  (VPDB). Silveira (2019) interpreted the low negative  $\delta^{13}\text{C}$  values as resulting from subaerial exposure, incipient soil development, and reworking, possibly influenced by meteoric waters, but did not assess the modes of carbonate precipitation.

Lastly, Varejão *et al.* (2021) undertook an integrated examination encompassing stratigraphic, sedimentological, paleontological, and geochemical analyses within the Santana Group, extending to stratigraphic units both above and below the Crato Formation (Santana Group). Their investigation of the Santana Group was complemented with data from basins

situated farther south (Tucano and Jatobá), enabling a comprehensive assessment of the collective evolutionary trajectory over time. Focusing specifically on the Crato Formation, Varejão *et al.* (2021) scrutinized the laminated limestone and clay-carbonate rhythmite facies, including their internal stromatolitic structures. However, their analysis was confined to levels positioned above the "sete cortes" ethnostratum (Corecco *et al.*, 2022) within carbonate unit C6, conducted at four locations in the State of Ceará (Nova Olinda, Guaribas, Batateira, and Salamanca). The authors suggested hyper-saline lake conditions, deduced from carbonate stable isotope values akin to those observed in modern and ancient lacustrine limestones. Nonetheless, unlike the characteristic covariance typically indicative of closed lake systems, as identified by Neumann (1999) and Heimhofer *et al.* (2010), their  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\delta^{13}\text{C}$  values did not exhibit such traits. Varejão *et al.* (2021) proposed that the diagenetic influence of meteoric waters on the marginal lacustrine system during deposition might have impacted their results, albeit they deemed it sufficiently minor not to challenge their paleoenvironmental interpretations. The isotopic ratios they obtained ranged from -8.6‰ to -0.2‰ for  $\delta^{18}\text{O}$  and from -3.1‰ to +1.5‰ for  $\delta^{13}\text{C}$ . Similar to Silveira's (2019) findings, the carbon isotopic ratios observed by Varejão *et al.* (2021) were notable for their negative values, reflecting the influence of meteoric waters as interpreted in the broader context of their study.

## **MATERIALS AND METHODS**

This research collected carbon and oxygen isotopic ratio data from studies previously published by Neumann (1999), Heimhofer *et al.* (2010), Della Porta (2015), Bahniuk *et al.* (2015), Silveira (2019), and Varejão *et al.* (2021). The samples analyzed for carbon and oxygen stable isotopes by these researchers primarily originate from lacustrine limestones across various localities and stratigraphic ages. These lacustrine carbonates and associated microbialites have been studied for diverse purposes, including establishing connectivity with other depositional systems, determining salinity conditions, correlating with different locations, assessing diagenetic effects, and investigating modes of carbonate precipitation, whether physicochemical or biogenic. However, these studies also examined several visually distinct facies and structures within the fossiliferous laminated limestones of the Crato Formation. Consequently, they present an exotic perspective from an isotopic standpoint. Therefore, considering that initial approximations in forensic investigation often rely on visual similarity, only data from finely millimeter-laminated limestones, calcilutites, or mudstones were selected.

Depositional facies within the Crato Formation, specifically laminated limestones (LL) and clay-carbonate rhythmites (CCR), as classified by some authors (Neumann, 1999; Varejão *et al.*, 2021), were individually considered in the analysis, despite lacking noticeable differences at the macroscopic level.

In this study, data from the Crato Formation (Neumann, 1999; Heimhofer *et al.*, 2010; Silveira, 2019; Varejão *et al.*, 2021) were subjected to statistical analysis to delineate ranges of  $\delta^{18}\text{O}_{\text{VPDB}}$  and  $\delta^{13}\text{C}_{\text{VPDB}}$  isotopic ratio values characteristic of this formation. The aim was to refine, through successive and increasingly stringent approximations, the distinctive isotopic range of the stratum housing the most coveted fossils, particularly vertebrates, which are prime targets for traffickers and collectors. Additionally, isotopic data from the Codó Formation (Lower Cretaceous, Parnaíba Basin: Bahniuk *et al.*, 2015) and the Green River Formation (Eocene, USA: Leggitt and Cushman, 2001; Della Porta, 2015) lacustrine deposits were utilized for comparisons with the Crato Formation. These comparisons were based on visually similar units in terms of lithology and depositional textures, both nationally and internationally (refer to Table 1). Specifically, data from the Green River Formation in the Uinta Basin (Nine Mile Canyon) in Utah and the Green River Basin in Wyoming, as published in Della Porta (2015), were integrated with three new analyses conducted for this study on laminated mudstone containing fish fossils from the Fossil Basin (Kemmerer) in Wyoming, with the isotopic oxygen and carbon averages being referenced accordingly.

Additionally, new stable oxygen and carbon isotope analyses of three samples of the Green River Formation were performed using an automated carbonate preparation device (Gasbench II) and a Thermo Fisher Scientific Delta V Advantage continuous flow mass spectrometer at the Department of Earth Sciences, University of Milan. Carbonate powder samples were reacted with > 99% orthophosphoric acid at 70°C. The carbon and oxygen isotope compositions are expressed in the conventional delta notation calibrated to the Vienna Pee-Dee Belemnite (V-PDB) scale by the international standards IAEA 603 and NBS-18. Analytical reproducibility for these analyses was better than  $\pm 0.1\%$  for both  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\delta^{13}\text{C}$  values.

Table 1 - Location, stratigraphic units, and authors of the collected studies and this work. C1 to C6 units and seven cuts ethnostratum refer to Crato Formation samples. See text for explanation.

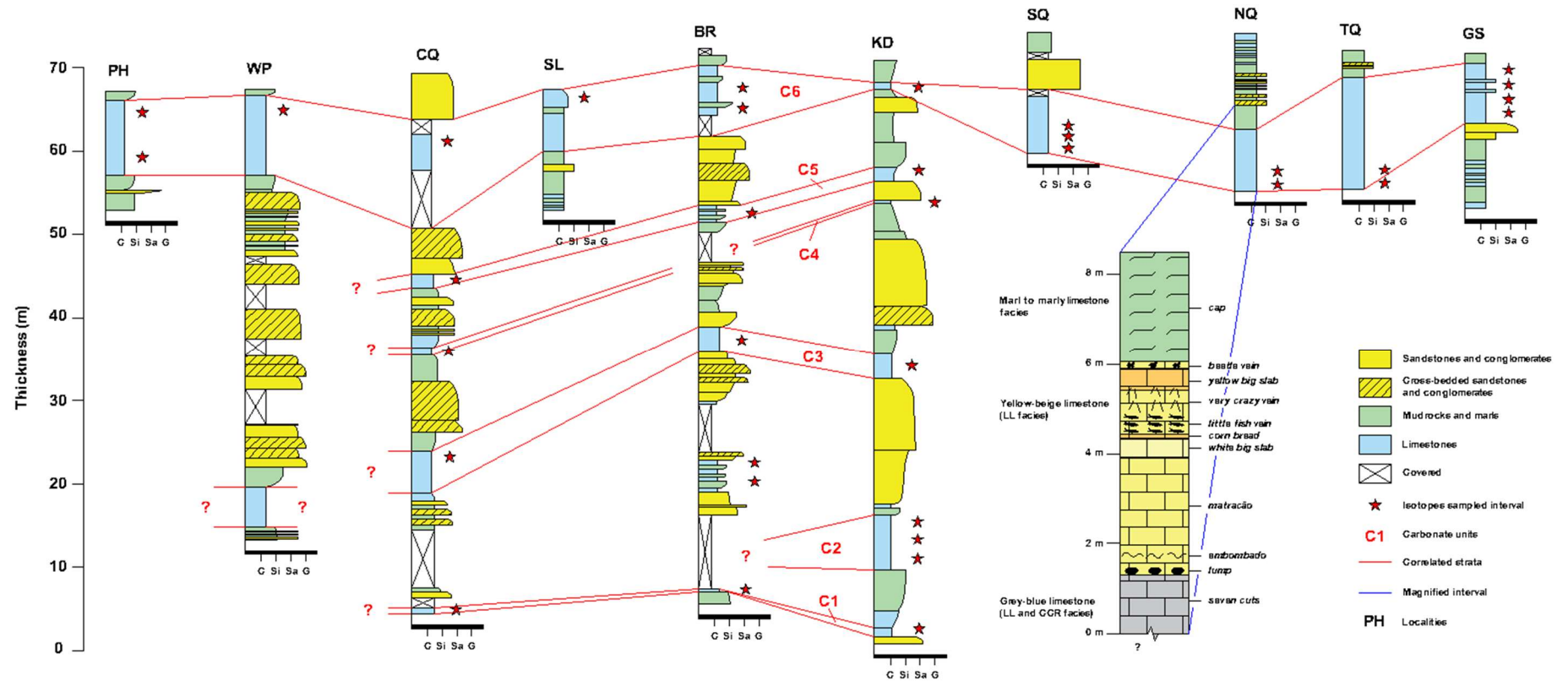
Locality	City (State)	Sampled interval	Latitude	Longitude	Authors
Nine Mile Canyon, Little Mesa and Fossil Basin	Duchesne (Utah), La Barge and Kemmerer (Wyoming) (USA)	Green River Fm.	39°47.1' N 38°38.3' N 41°47.3' N	110°23.8' W 108°21.1' W 110°32.2' W	Della Porta (2015) and this work
Codó, Grajaú and Imperatriz	Codó, Grajaú and Imperatriz (Maranhão)	Codó Fm.	4°33.6' S, 5°44.7' S and 5°31.6' S	43°57.7' W, 46°6.6' W and 47°29.4' W	Bahniuk et al. (2014)
Guaribas Section	Araripe (Ceará)	C6 unit (except seven cuts)	7°11.7' S	40°4.2' W	Varejão et al. (2021)
Salamanca	Missão Velha (Ceará)	C6 unit (except seven cuts)	7°12.9' S	39°11.7' W	Varejão et al. (2021)
Perta da Hora	Serrita (Pernambuco)	C6 unit (except seven cuts)	7°40.4' S	39°18.0' W	Neumann (1999)
West Porteiras	Porteiras (Ceará)	C6 unit (except seven cuts)	7°31.9' S	39°9.4' W	Neumann (1999), Silveira (2019)
K Drilling	Crato (Ceará)	C1-C5 units	7°10.2' S	39°28.9' W	Neumann (1999)
Caldas Quarry	Barbalha (Ceará)	C3 and C6 units (except seven cuts)	7°21.4' S	39°22.0' W	Silveira (2019)
Batateira River	Crato (Ceará)	C3-C6 units (except seven Cuts)	7°15.3' S	39°27.4' W	Neumann (1999), Silveira (2019), Varejão et al. (2021)
Santana do Cariri Quarries	Santana do Cariri (Ceará)	C6 unit (except seven Cuts)	7°11.3' S	39°43.7' W	Silveira (2019)
Nova Olinda Quarries	Nova Olinda (Ceará)	C6 unit (include seven cuts)	7°7.4' S	39°42.0' W	Heimhofer et al. (2010), Varejão et al. (2021)
Tatajuba Quarry	Santana do Cariri (Ceará)	seven cuts ethnostratum	7°7.4' S	39°49.8' W	Heimhofer et al. (2010)

Source: Author.

The data were organized according to both geographical and stratigraphic criteria. Geographically, the initial grouping involved comparing the Crato Formation with the Codó Formation (Bahniuk *et al.*, 2015) and the Green River Formation (Della Porta, 2015). Subsequently, the data from the Crato Formation itself were stratigraphically categorized, with a separation between those from the carbonate unit C6 and those from units C1-C5 (Neumann, 1999). The subsequent grouping employed a mixed approach, focusing solely on data from the

carbonate unit C6, which has the broadest geographic distribution, organized by occurrence across ten localities. However, in two of these locations, only data from the ethnostratum "sete cortes" (base of the unit C6; Corecco *et al.*, 2022) were included. Following this, a stratigraphic criterion was applied, grouping data exclusively from the unit C6 and comparing samples from the "sete cortes" ethnostratum with those from the other levels above it (Silveira, 2019). Finally, data from the Crato Formation were grouped once again based on their depositional facies within the carbonate unit C6, distinguishing between those from the laminated limestone facies and clay-carbonate rhythmite facies as recognized from previous studies (Neumann, 1999; Heimhofer *et al.*, 2010; Varejão *et al.*, 2021) (Figure 7).

Figure 7 - Simplified stratigraphic columns and vertical location of isotopic samples for the Crato Formation from ten different localities in the Cariri Valley, Araripe Basin, Brazil. See Table 1 for the geographic coordinates of the locations. Location symbols: PH - Perta da Hora; WP - West Porteiras; CQ - Caldas Quarry; SL - Salamanca; BR - Batateira River; KD - K-Drilling; SQ - Santana do Cariri Quarries; NQ - Nova Olinda Quarries; TQ - Tatajuba Quarry; GS - Guaritas Section. Data from Neumann (1999), Heimhofer *et al.* (2010), Silveira (2019), and Varejão *et al.* (2021). Correlation and carbonate units are based on Neumann (1999), and the highlighted enlarged section of unit C6 in Nova Olinda with the interpretation of ethnostrata is based on Corecco *et al.* (2022).



Source: Data from Neumann (1999), Heimhofer *et al.* (2010), Silveira (2019), and Varejão *et al.* (2021).

A statistical summary was compiled for all groupings of isotopic data, outlining their central tendency measures and variability. For discrete values within the groups, correlation graphs depicting the relationship between the isotopes and box plots were generated for comparison. Regarding correlation analysis, the linear correlation coefficient ( $r$ ) was assessed for significance level or Type I error ( $p$ ), representing the probability of erroneously rejecting a true null hypothesis ( $H_0$ ). In this context,  $H_0$  posits the absence of a significant correlation ( $r \approx 0$ ), while  $p$  indicates a nonexistent correlation (Witte and Witte, 2005). As for the box plots, they were segregated into oxygen and carbon isotope datasets, incorporating whiskers and identifying potential outliers, values above and below up to 1.5 times the interquartile range (IQR). All statistical analyses and graphical representations were conducted using the Minitab 15 software.

Table 2 - Statistical summary of the referenced samples and their groupings. Data are from the researched studies and the present work (see the text for explanation).

Group	n	Max	Min	Mean	SD	Q1	Median	Q3	IQR
$\delta^{18}\text{O}$ Crato	213	8.7	-8.4	-5.0	3.5	-6.8	-6.0	-5.2	1.6
$\delta^{13}\text{C}$ Crato	213	11.0	-18.2	-1.3	4.4	-1.6	0.3	0.9	2.5
$\delta^{18}\text{O}$ Codó	11	-1.0	-7.8	-5.3	2.7	-7.5	-6.9	-2.3	5.3
$\delta^{13}\text{C}$ Codó	11	2.5	-13.4	-4.7	5.0	-7.4	-6.8	0.0	7.4
$\delta^{18}\text{O}$ Green R	15	-2.2	-8.3	-4.8	1.9	-5.7	-4.5	-3.6	2.1
$\delta^{13}\text{C}$ Green R	15	3.7	-4.5	-0.1	1.7	-0.9	0.2	0.5	1.4
$\delta^{18}\text{O}$ C6	170	0.2	-8.3	-5.7	1.5	-6.8	-6.0	-5.3	1.5
$\delta^{13}\text{C}$ C6	170	11.0	-18.2	-1.5	4.8	-1.9	0.4	1.0	2.9
$\delta^{18}\text{O}$ C1-5	43	8.7	-8.4	-2.1	6.6	-6.9	-6.1	6.1	13.0
$\delta^{13}\text{C}$ C1-5	43	1.1	-7.2	-0.6	1.9	-1.2	0.0	0.7	1.9
$\delta^{18}\text{O}$ C6 BR	10	-3.4	-7.8	-6.3	1.2	-7.0	-6.5	-6.0	1.0
$\delta^{13}\text{C}$ C6 BR	10	1.1	-13.9	-9.5	5.7	-13.8	-13.4	-4.7	9.1
$\delta^{18}\text{O}$ C6 WP	12	-1.6	-7.2	-4.0	2.1	-6.1	-3.9	-2.1	4.0
$\delta^{13}\text{C}$ C6 WP	12	3.2	-18.2	-4.2	6.7	-7.2	-3.6	2.0	9.2
$\delta^{18}\text{O}$ C6 PH	8	-0.5	-7.2	-4.0	2.6	-6.9	-3.6	-1.7	5.3
$\delta^{13}\text{C}$ C6 PH	8	11.0	-10.0	-2.5	6.1	-5.5	-3.6	-0.9	4.7
$\delta^{18}\text{O}$ C6 SQ	13	0.2	-8.3	-6.1	2.0	-6.9	-6.7	-6.1	0.8
$\delta^{13}\text{C}$ C6 SQ	13	-1.8	-14.5	-11.1	4.2	-13.7	-12.7	-8.4	5.3
$\delta^{18}\text{O}$ C6 CQ	4	-2.4	-3.7	-2.9	0.6	-3.6	-2.7	-2.4	1.2
$\delta^{13}\text{C}$ C6 CQ	4	-0.4	-3.3	-1.8	1.2	-2.9	-1.7	-0.7	2.2
$\delta^{18}\text{O}$ 7C NQ	10	-5.3	-5.9	-5.6	0.2	-5.6	-5.5	-5.4	0.2
$\delta^{13}\text{C}$ 7C NQ	10	1.3	0.8	1.1	0.1	1.0	1.2	1.2	0.2
$\delta^{18}\text{O}$ 7C TQ	60	-5.1	-7.1	-6.1	0.7	-6.8	-6.1	-5.3	1.5
$\delta^{13}\text{C}$ 7C TQ	60	1.9	-0.1	0.9	0.7	0.3	0.6	1.7	1.4
$\delta^{18}\text{O}$ 7C	74	-3.5	-7.4	-5.9	0.8	-6.8	-5.9	-5.3	1.5
$\delta^{13}\text{C}$ 7C	74	1.9	-0.1	0.9	0.6	0.4	0.7	1.7	1.2
$\delta^{18}\text{O}$ above 7C	58	0.2	-8.3	-5.7	1.8	-6.8	-6.2	-4.8	2.0
$\delta^{13}\text{C}$ above 7C	58	3.2	-18.2	-5.1	6.2	-12.8	-3.1	0.4	13.2
$\delta^{18}\text{O}$ LL	113	0.2	-8.3	-5.9	1.4	-6.8	-6.2	-5.5	1.3
$\delta^{13}\text{C}$ LL	113	3.2	-18.2	-2.3	5.3	-3.3	0.3	0.7	4.1
$\delta^{18}\text{O}$ CCR	28	-2.1	-8.2	-5.4	1.3	-5.6	-5.3	-5.2	0.4
$\delta^{13}\text{C}$ CCR	28	2.4	-2.0	1.3	1.0	0.5	1.8	1.8	1.3

Source: Author.



## RESULTS AND DISCUSSIONS

### *General Description of Groupings*

The limestone samples from the Crato Formation displayed considerable variability in oxygen and carbon isotopic compositions across the various studies compiled. As evidenced by this variability, the overall range of values extends to 17.1‰ for  $\delta^{18}\text{O}$  and 29.22‰ for  $\delta^{13}\text{C}$ . Even when accounting for more representative values within the unit, with an average of -5.0‰ for oxygen and -1.3‰ for carbon, accompanied by a standard deviation of 3.5‰ for oxygen and 4.3‰ for carbon, the findings suggest a significant potential for overlap between these values and those observed in discrete analyses of randomly selected samples from the Codó and Green River formations. This likelihood of overlap is further accentuated by the Crato Formation's broader range of isotopic values compared to those of the Codó and Green River formations, attributable to both its larger sample size ( $n=213$ ) and the varying geographical and stratigraphic collection conditions (Table 2).

Nevertheless, the Crato Formation exhibits a distinct linear correlation pattern between its oxygen and carbon isotopic values, which is notably weaker ( $r= +0.109$ ,  $p= 0.115$ ) compared to that of the Codó Formation ( $r= -0.713$ ,  $p= 0.014$ ) and the Green River Formation ( $r= +0.537$ ,  $p= 0.109$ ). Moreover, its positive correlation contrasts with that of the Codó Formation. Once again, the disparate sample conditions within the Crato Formation manifest in the weak linear correlation between  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\delta^{13}\text{C}$ . Nonetheless, some previous studies have reported robust linear correlation indices and corresponding covariance between oxygen and carbon isotopic data from the Crato Formation. The presence of such indices would suggest its endorheic and arid hydrological conditions during the Early Cretaceous in the Araripe basin (Neumann, 1999; Heimhofer *et al.*, 2010).

The Crato Formation stands out for its significantly broader range and greater variability in data compared to other formations, particularly evident in its abundance of outliers. However, despite its larger sample size and varying geographical and stratigraphic conditions, the Crato Formation exhibits smaller IQR values in three out of four instances, measuring only 1.6‰ for oxygen and 2.5‰ for carbon. This indicates a statistically more cohesive grouping within the overall sample set of the Crato Formation, as illustrated in the Figure 8.

Upon reorganizing the data from the Crato Formation for comparison, there is a marginal enhancement in the linear correlation indices. The significance level slightly decreases

for the carbonate unit C6 in contrast to the aggregated result for the carbonate units C1-C5 ( $p=0.091$  vs.  $0.270$ ), while the overall linear correlation slightly increases in the latter group ( $r=+0.172$  vs.  $+0.130$ ). The positions and IQRs of the unit C6 closely resemble those of the entire Crato Formation, likely because most data (80%) in prior studies are concentrated on the unit housing the fossil-rich *lagerstätte* (Viana and Neumann, 2002). However, the prevalence of extreme values in the oxygen isotopic ratio persists notably within unit C6. In contrast, despite its smaller sample size, the group comprising the other carbonate units exhibits substantially larger IQRs, surpassing 10‰ for oxygen (Figure 9).

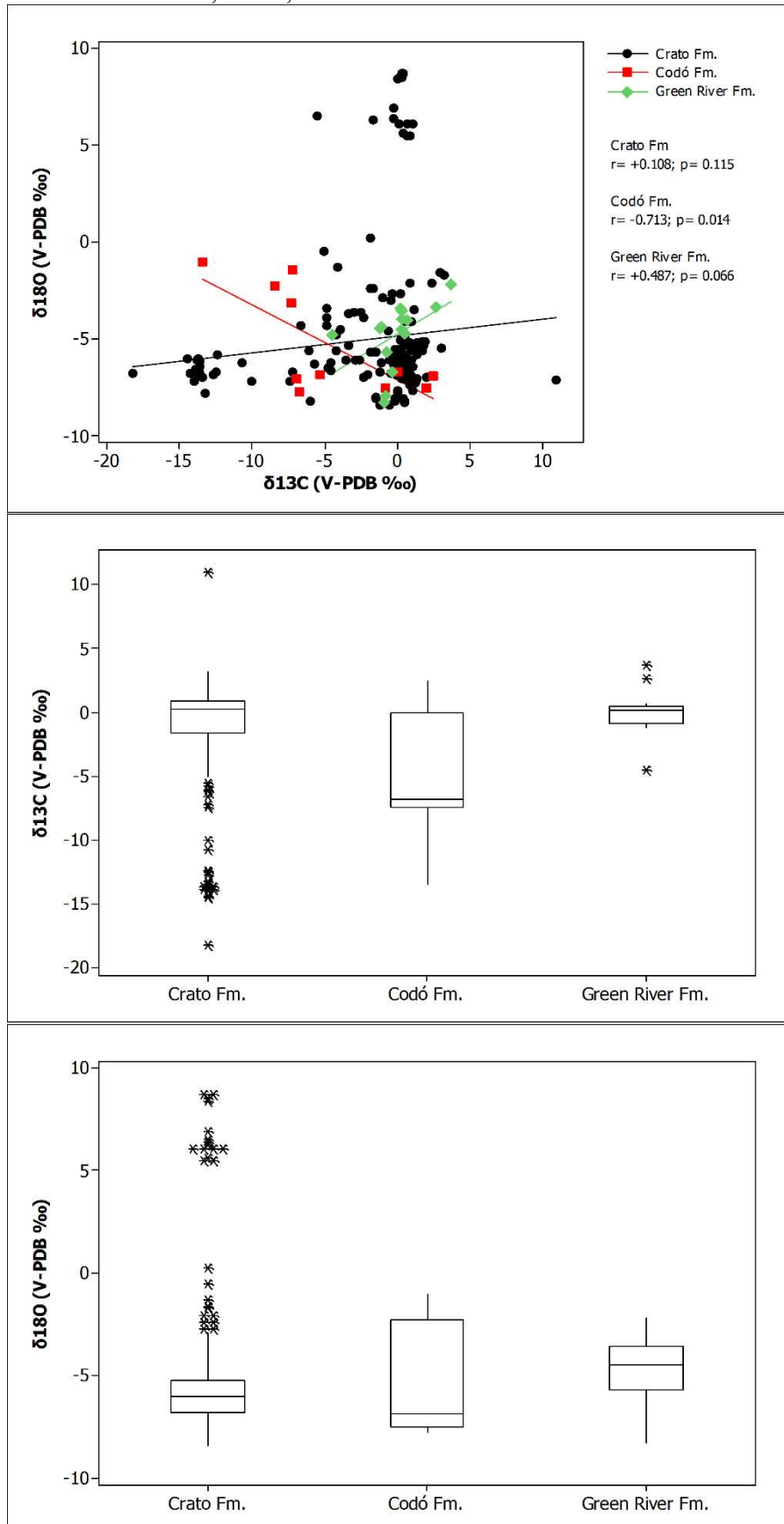
When comparing seven different sites where the C6 carbonate unit of the Crato Formation occurs in the Cariri Valley, a significant heterogeneity in the linear correlation between oxygen and carbon isotopic data becomes apparent. This heterogeneity is reflected in the correlation index ( $r$ ), which ranges from  $+0.135$  at the Batateira River to  $+0.915$  in the West Porteiras, and displays negative values at the Perta da Hora (PE) and Nova Olinda Quarries. Similarly, the significance index ( $p$ ) varies from  $0.709$  at the Batateira River to  $0.00$  in the West Porteiras and Tatajuba Quarries. In terms of box plots, the lowest IQRs are observed for the Nova Olinda and Tatajuba quarries datasets. There, in all instances, a notable improvement in restricting the variability of isotopic values compared to the C6 unit occur, particularly through the elimination of extreme values and the reduction of the IQR in the Nova Olinda samples, departing from over 1‰ to approximately 0.2‰. It's worth noting, however, that the data from the C6 unit for the Nova Olinda and Tatajuba localities, in this analysis, are limited to those of the "sete cortes" ethnostratum (Corecco *et al.*, 2022), which represents the richest stratigraphic level housing the most esteemed fossils, generally vertebrates. Additionally, the number of Tatajuba samples ( $n=60$ ) is notably higher than in the other localities (Figure 10).

When comparing the isotopic ratio values of the carbonate unit C6 confined to the "sete cortes" ethnostratum with those from the same carbonate unit but positioned above that ethnostratum, it becomes evident that the latter exhibits a lower correlation level, with  $r=+0.340$  and  $p=0.009$ , in contrast to  $r=+0.547$  and  $p=0.00$ . Furthermore, the IQRs of the "sete cortes" ethnostratum are notably smaller for both oxygen and carbon, suggesting reduced data variability and greater homogeneity (Figure 11).

When comparing samples attributed to the depositional facies of the unit C6, namely clay-carbonate rhythmite (CCR) and laminated limestone (LL), they exhibited lower overall correlation levels and greater data variability compared to the previous analysis between the "sete cortes" ethnostratum and the remaining C6 unit above it. The oxygen and carbon isotopic ratio values of the two facies indicate that the CCR facies has a higher correlation level

( $r=+0.501$ ,  $p=0.007$ ) than the LL facies ( $r=+0.166$ ,  $p=0.08$ ), suggesting less dispersion in the former despite the disparity in the number of samples (LL:  $n=113$ ; CCR:  $n=28$ ). The notable increase in the number of outliers in the boxplots further underscores the overall greater data dispersion of the two facies compared to the diagrams from the previous analysis (Figure 12).

Figure 8 - Scatterplot and boxplots for oxygen and carbon isotopic ratios of the Crato, Codó, and Green River formations



Source: Author.

Figure 9 – Scatterplot and boxplots for oxygen and carbon isotopic ratios of the Crato Formation comparing the carbonate unit C6 with the other carbonate units from C1 to C5

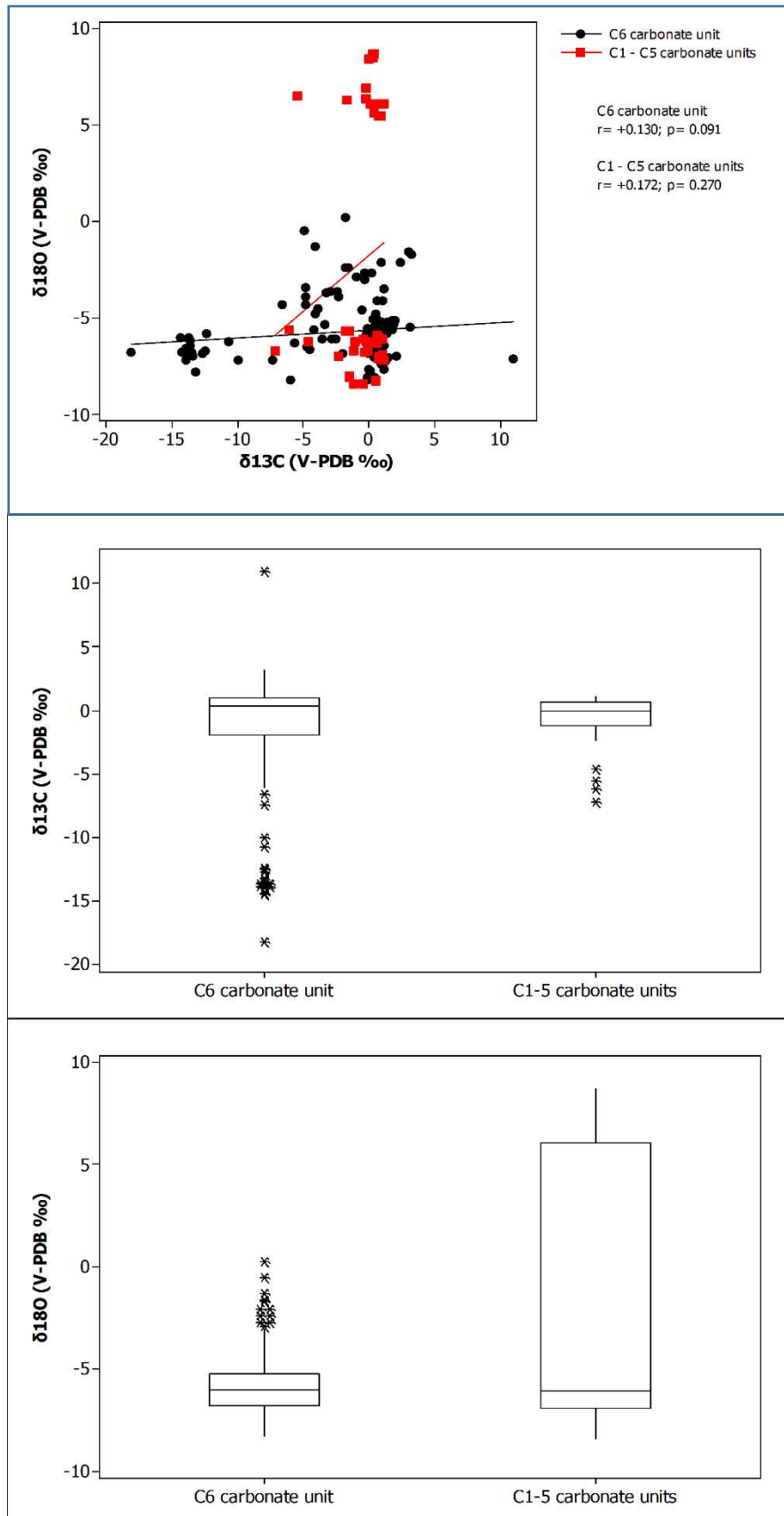
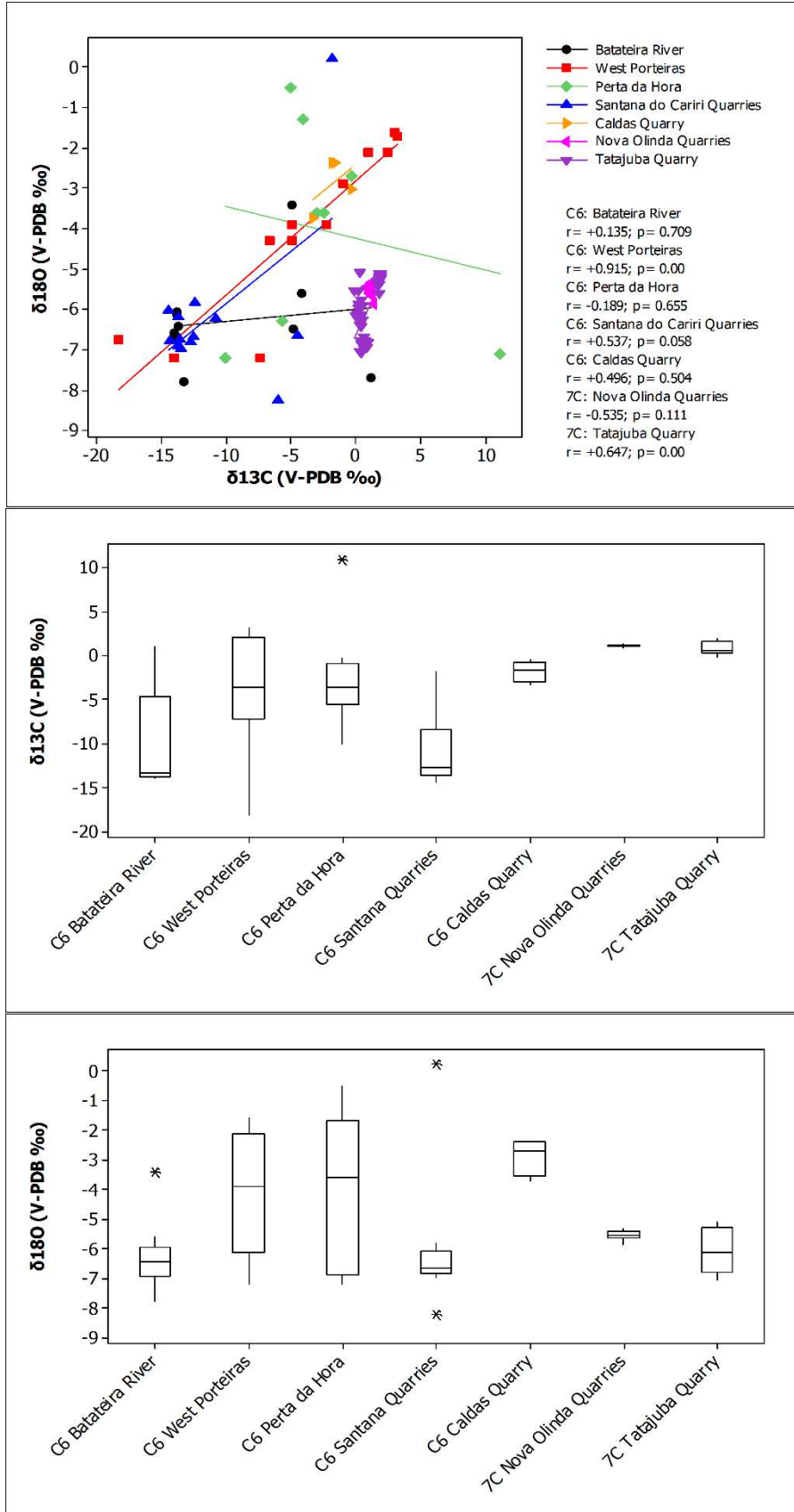


Figure 10 - Scatterplot and boxplots for oxygen and carbon isotopic ratios of the Crato Formation's carbonate unit C6 in different locations. For the Nova Olinda Quarries and Tatajuba Quarry locations, the data for the unit C6 are restricted to the "sete cortes" ethnostratum (7C)



Source: Author.

Figure 11 - Scatterplot and boxplots for oxygen and carbon isotopic ratios of the carbonate unit C6 of the Crato Formation, comparing data from the "seven cuts" ethnostratum to the other levels above it

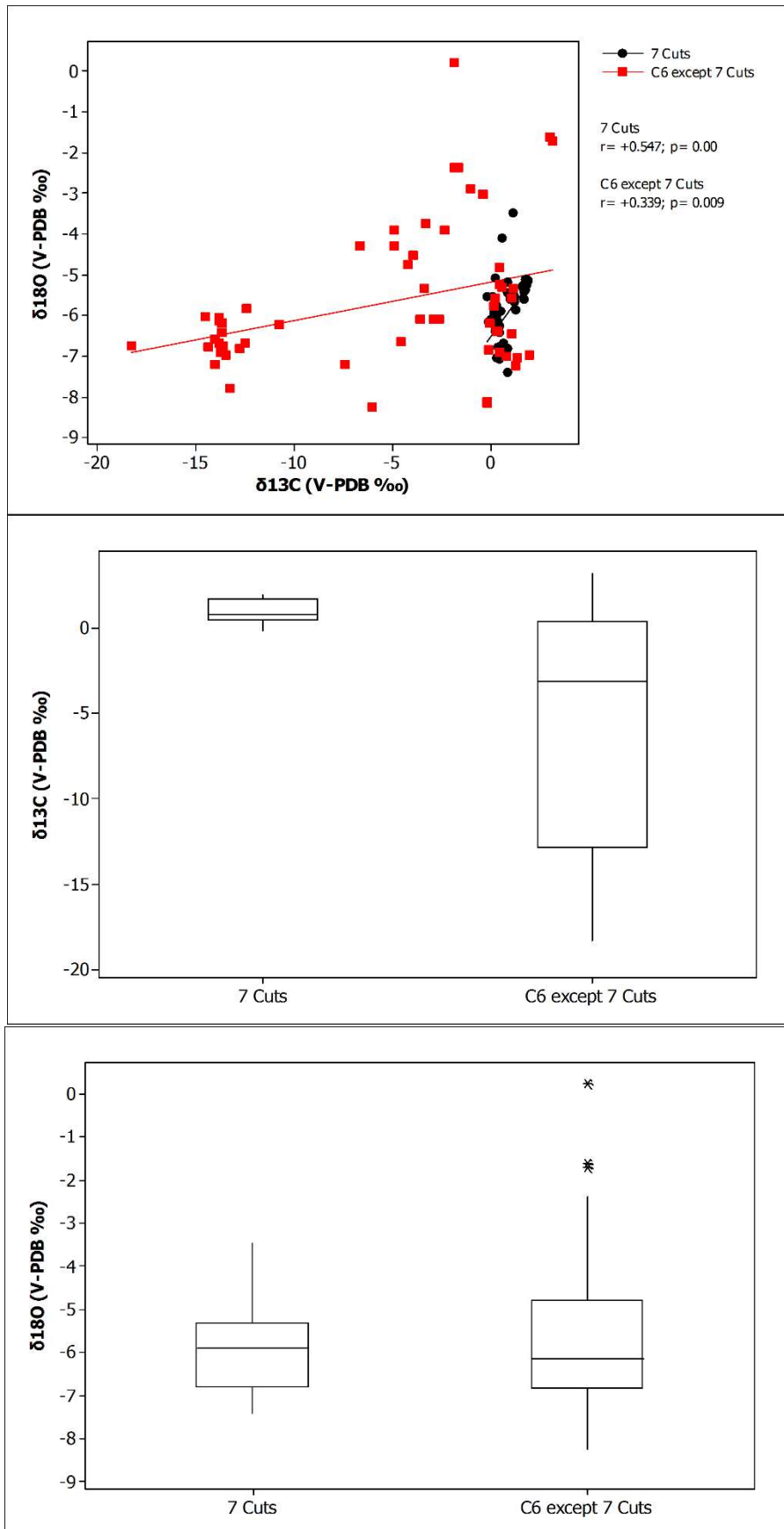
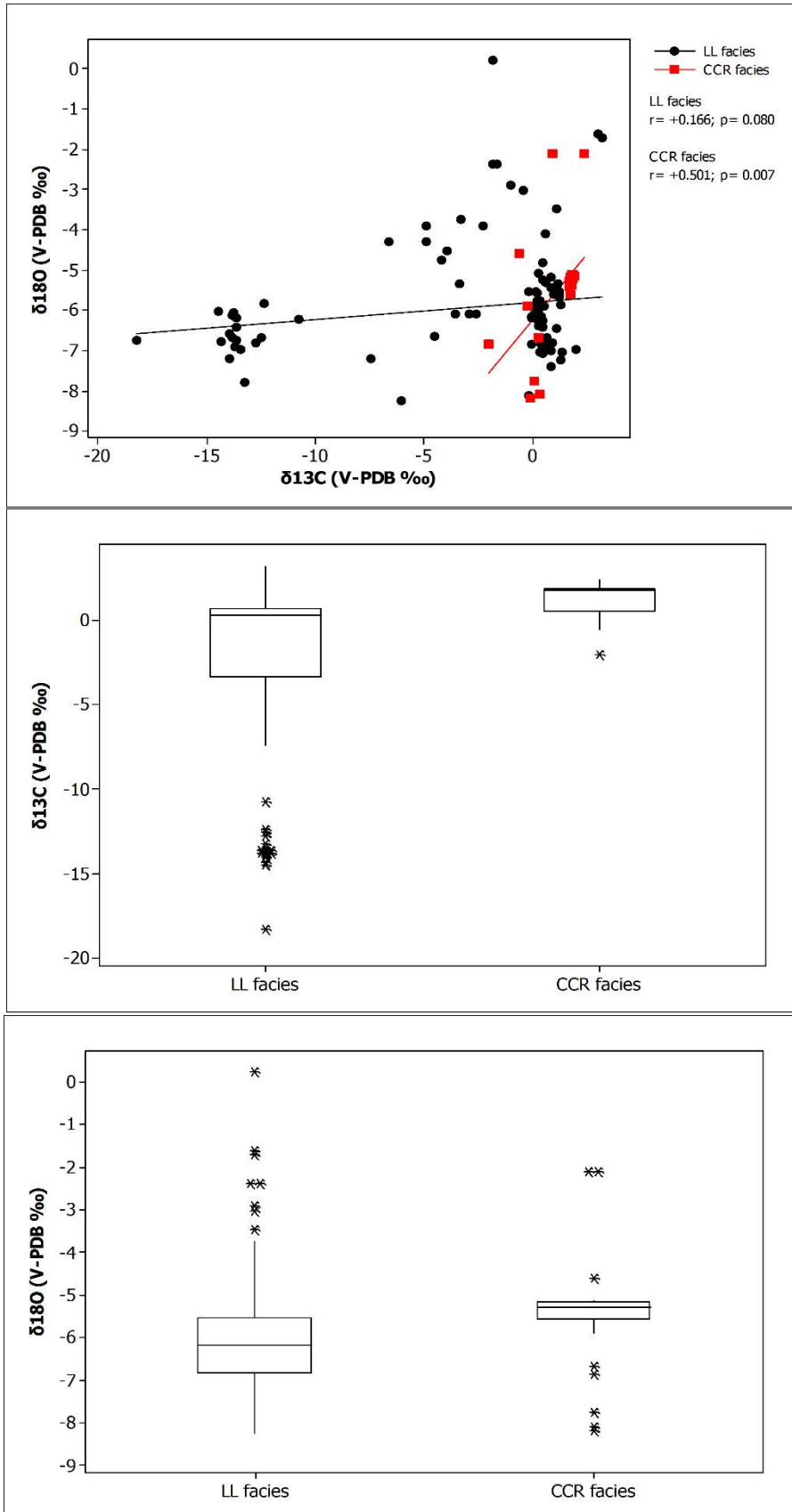


Figure 12 - Scatterplot and boxplots for oxygen and carbon isotopic ratios of the two main depositional facies of the carbonate unit C6 of the Crato Formation: clay-carbonate rhythmite facies (CCR) and laminated limestone facies (LL)



Source: Author.



### ***Implications for forensic investigation of the fossil layers***

The oxygen and carbon isotopic data from the Crato Formation showcased in this study highlight the importance of accurately grouping them based on geographical location and stratigraphic level, with a focus on limestone layers harboring the most prized fossils. Particularly coveted in illicit markets are fossils commanding high prices, notably vertebrates like pterosaurs, dinosaurs, anurans, and reptiles.

Historically, the fossils of the Crato Formation have been collected with minimal (when any) control over their geographical and stratigraphic origins (Kunzmann *et al.*, 2021), leading to limitations in scientific discussions regarding their evolution, habitat, age, stratigraphic correlation, and their relevance in forensic investigations. However, recent studies have made strides in addressing this issue by pinpointing their most probable occurrence locations, primarily through field research and ethnostratigraphic surveys (Varejão *et al.*, 2019; Corecco *et al.*, 2022). Corecco *et al.* (2022), for instance, compiled location data for specimens through interviews with quarry workers engaged in the commercial extraction of the Crato Fm.'s limestone for cladding materials, known as "Pedra Cariri", who are also instrumental in discovering new fossils. These efforts have revealed that the majority of valuable specimens are unearthed from the basal layer of carbonate unit C6 in quarries south of Nova Olinda city, particularly from the ethnostratum referred to as "sete cortes" ("seven cuts"). The term "sete cortes" is commonly used by quarry workers to describe the cutting quality characteristics of laminated limestone, typically appearing grayish-blue and relatively harder compared to the other layers in the Crato Fm.'s limestones.

The establishment of the "sete cortes" ethnostratum marks a significant advancement in pinpointing the most valuable fossils within the Crato Formation *lagerstätte*, a site frequently cited in literature encompassing the entire C6 carbonate unit (Martill *et al.*, 2007). This unit spans over 10 meters in thickness of limestone and extends for more than 50 kilometers along the eastern slope of the Araripe Plateau, in the Cariri Valley (Neumann, 1999; Neumann *et al.*, 2008). Therefore, the isotopic characterization of the "seven cuts" ethnostratum emerges as a crucial tool for forensic investigations, as statistical analysis reveals substantial isotopic variability when data from the literature are not meticulously grouped based on stricter geographical and stratigraphic criteria. To the untrained (or even trained) eye, fossiliferous limestones from the Crato Formation can easily be mistaken for those from other regions, such as the Green River Formation (USA), as well as for formations within Brazil, like the Codó Formation (Parnaíba Basin), and even for carbonate units C1 to C5 within the Crato Formation

itself. Moreover, it has been established that grouping by depositional facies within the Crato Formation, specifically in laminated limestone and clay-carbonate rhythmite facies, as recognized from previous studies, results in more scattered isotopic data compared to those confined to the “seven cuts” ethnostratum. Additionally, relying solely on depositional facies for grouping proves to be relatively unreliable unless supplemented by microscopic examination, undermining the credibility and practicality of the forensic investigations.

Based on the aforementioned assumptions and the examined data extracted from prior literature, particularly sourced from quarries in southern Nova Olinda (CE) and the Tatajuba Quarry (Santana do Cariri city, CE), the "sete cortes" ethnostratum, renowned for its abundance of highly prized fossils targeted by illicit trade, displays the following statistical patterns in its oxygen and carbon isotopic ratios ( $\delta^{18}\text{O}_{\text{V-PDB}}$  and  $\delta^{13}\text{C}_{\text{V-PDB}}$ , respectively): arithmetic means of -5.94‰ and +0.9‰; standard deviations of 0.76 and 0.61; medians of -5.89‰ and +0.73‰; and IQRs of 1.47 and 1.24.

## CONCLUSIONS

This study presented statistical parameters derived from the published literature concerning the oxygen and carbon stable isotope values extracted from the basal section of the carbonate unit C6 (*lagerstätte*) within the Crato Formation. This particular interval, known as the "sete cortes" ethnostratum, comprises a fossiliferous limestone and serves as a repository for vertebrate fossils highly sought after in illicit trade. Despite the heterogeneity observed in the carbon and oxygen isotopic data across the entire Crato Formation, the calculated statistical parameters pertaining to the fossiliferous limestone of C6 are deemed robust. This assessment also accounts for potential overlaps in isotopic values with those of the Codó Formation (Lower Cretaceous, Parnaíba Basin, Brazil) and the Green River Formation (Eocene, Utah and Wyoming, USA), both known for their fossiliferous lacustrine laminated limestone. Various data groupings within the Crato Formation, categorized by geographical and stratigraphic criteria, underscore the presence of a statistically distinct core of values, notably characterized by relatively narrow standard deviations and interquartile ranges in measures of central tendency and data variability.

Originally, the isotopic analyses carried out by the authors of the database utilized in this study were primarily directed towards non-paleontological and non-forensic objectives, often utilizing samples from the Crato Formation that lacked fossils. Consequently, the established patterns ideally warrant future validation through isotopic analyses on limestone

slabs harboring vertebrate fossil specimens, including those documented and housed in public institutions. This validation seeks to ascertain whether these patterns align with reliable signatures that can serve as a supplementary tool in the geographical identification of confiscated fossils, thereby bolstering forensic investigations.

## ACKNOWLEDGMENTS

The authors would like to thank Virgínio Neumann (UFPE, Brazil), Ulrich Heimhofer (Leibniz Universität Hannover, Germany), and Filipe Varejão (UFOP, Brazil) for generously providing the raw isotopic data of the Crato Formation limestones, which made this research possible. This work was partially funded by the project "Towards an integrated analysis of the Early Cretaceous Crato Fossil Lagerstätte (Ceará, Brazil)" (Capes Proc. 88881.198776/2018-01).

## REFERENCES

- ALMEIDA, F.F.M.; LEONARDOS JR., O.H.; VALENÇA, J. Granitic Rocks of Northeast South America. International Union of Geological Sciences, IUGS/UNESCO, 1967.
- ANDRADE, R. A. In the trail of smuggled fossils. 2021. Revista Pesquisa FAPESP. Issue 301, pp. 40 – 47. Available at: <https://revistapesquisa.fapesp.br/no-rastro-dos-fosseis-contrabandeados/>. Accessed on December 10, 2022.
- ASSINE, M. L. Stratigraphic analysis of the Araripe Basin, Northeast Brazil. *Revista Brasileira de Geociências*, vol. 22, no. 3, pp. 289-300, 1992.
- ASSINE, M. L. Araripe Basin. *Boletim de Geociências da Petrobras*, vol. 15, no. 2, pp. 371-389, 2007.
- ASSINE, M.L.; PERINOTTO, J.A.J.; CUSTÓDIO, M.A.; NEUMANN, V.H.; VAREJÃO, F.G.; MESCOLOTTI, P.C. Depositional sequences of the Alagoas Member of the Araripe Basin, Northeast Brazil. *Boletim de Geociências da Petrobras*, vol. 22, pp. 3-28, 2014.
- Bahniuk, A.M., Anjos, S., França, A.B., Matsuda, N., Eiler, J., McKenzie, J.A. and Vasconcelos, C. (2015) Development of microbial carbonates in the Lower Cretaceous Codó Formation (north-east Brazil): Implications for interpretation of microbialite facies associations and palaeoenvironmental conditions. *Sedimentology*, 62, 155–181.
- BRAZIL. Decree-Law No. 4,146, of March 4, 1942. Rio de Janeiro, DF: Presidency of the Republic. Available at: [http://www.planalto.gov.br/ccivil\\_03/decreto-lei/1937-1946/Del4146.htm](http://www.planalto.gov.br/ccivil_03/decreto-lei/1937-1946/Del4146.htm). Accessed on December 10, 2022.
- BRAZIL. Constitution of the Federative Republic of Brazil of 1988. Brasília, DF: Presidency of the Republic. Available at: [http://www.planalto.gov.br/ccivil\\_03/Constituicao/Constituicao.htm](http://www.planalto.gov.br/ccivil_03/Constituicao/Constituicao.htm). Accessed on December 9, 2022.

BRAZIL. Decree No. 98,830, of January 15, 1990. Brasília, DF: Presidency of the Republic. Available at: [https://www.planalto.gov.br/ccivil\\_03/decreto/1990-1994/d98830.htm](https://www.planalto.gov.br/ccivil_03/decreto/1990-1994/d98830.htm). Accessed on April 27, 2021.

BRAZIL. Law No. 8,176, of February 8, 1991. Brasília, DF: Presidency of the Republic. Available at: [http://www.planalto.gov.br/ccivil\\_03/LEIS/L8176.htm](http://www.planalto.gov.br/ccivil_03/LEIS/L8176.htm). Accessed on April 27, 2021.

CASTRO, D.L.; BRANCO, R.M.G.C. Characterization of the internal architecture of the basins of the Cariri Valley, Northeast Brazil, based on 3-D gravity modeling. *Brazilian Journal of Geophysics*, vol. 172, no. 3, pp. 131-144, 1999.

CATALINA, L. Mercado internacional: Perfil online leilão fóssil traficado do Cariri cearense. Ceará. 2020. O Povo online, Fortaleza, 11/11/2020. Available at: <https://www.opovo.com.br/noticias/cariri/2020/11/11/mercado-internacional--perfil-online-leilao-fossil-traficado-do-cariri-cearense.html>. Accessed on December 10, 2022.

CATALINA, L. Quem são e o que pensam os países que mais traficam fósseis do Cariri. 2022. O Povo online, Fortaleza, 02/03/2022. Available at: <https://mais.opovo.com.br/reportagens-especiais/mundo-dos-fosseis/2022/03/02/quem-sao-e-o-que-pensam-os-paises-que-mais-trafficam-fosseis-do-cariri.html#:~:text=Ao%20analisar%20tr%C3%AAs%20d%C3%A9cadas%20de,foram%20li%20deradas%20por%20pesquisadores%20estrangeiros>. Accessed on September 8, 2023.

CHAGAS, D.B. Facies analysis based on paleoenvironmental control using palynology of the Aptian-Albian interval of the Araripe Basin (Cariri and Feira Nova Sub-basins), NE Brazil. Dissertation, Universidade Federal do Ceará, 149p., 2017.

CORECCO, L., BEZERRA, F. I., SILVA FILHO, W. F., NASCIMENTO JÚNIOR, D. R., SILVA, J. H., FELIX, J. L. Petrological meaning of ethnostratigraphic units: Laminated limestone of the Crato Formation, Araripe Basin, NE Brazil. *Pesquisas em Geociências – Instituto de Geociências, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre/RS*, vol. 49, no. 1, 2022.

DELLA PORTA, G. (2015) Carbonate build-ups in lacustrine, hydrothermal, and fluvial settings: comparing depositional geometry, fabric types, and geochemical signature. In: *Microbial Carbonates in Space and Time: Implications for Global Exploration and Production* (Eds Bosence, D.W.J., Gibbons, K.A., Le Heron, D.P., Morgan, W.A., Pritchard, T. and Vining, B.A.), Geological Society of London, Special Publications, 418, 52 pp.

FAMBRINI, G.L.; SILVESTRE, D.C.; BARRETO JR., A.M.; SILVA FILHO, W.F. Stratigraphy of the Araripe Basin: state of the art, critical review, and new results. *Geologia USP Série Científica*, vol. 20, no. 4, pp. 169-212, 2020.

FAMBRINI, G.L.; SILVESTRE, D.C.; BARRETO Jr., A.M.; SILVA-FILHO, W.F. Stratigraphy of the Araripe Basin: state of the art, critical review, and new results. *Geologia USP Série Científica*, vol. 20, no. 4, pp. 169-212, 2020. Available at: <<https://www.revistas.usp.br/guspsc/article/view/180295/167230>>. Accessed on December 10, 2022.

FELIX, J. L. Perfil etnobiogeostratigráfico (informa) das minas de Nova Olinda, Formação Crato da Bacia do Araripe. 72 f. 2017. Dissertação (Mestrado em Geologia) – Universidade Federal do Ceará, Fortaleza, 2017.

- LINDOSO, M. R. A biota da Formação Codó (Aptiano, Bacia do Parnaíba), nordeste do Brasil: Aspectos paleoambientais e paleogeográficos. 161 f. 2016. Tese (Doutorado em Geologia) – Universidade Federal do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, 2016.
- GOLDBERG, K.; PREMAOR, E.; BARDOLA T.; SOUSA P.A. Aptian marine ingression in the Araripe Basin: implications for paleogeographic reconstruction and evaporite accumulation. *Marine and Petroleum Geology*, vol. 107, pp. 214–221, 2019.
- GURGEL, S.P.P.; BEZERRA, F.H.R.; CORRÊA, A.C.B.; MARQUES, F.O.; MAIA, R.P. Cenozoic uplift and erosion of structural landforms in NE Brazil. *Geomorphology*, vol. 186, pp. 68-84, 2013.
- KUNZMANN, L.; COIFFARD, C.; WESTERKAMP, A.P.A.O.; BATISTA, M.E.P.; UHL, D.; SOLORZANO-KRAEMER, M.M.; MENDES, M.; NASCIMENTO, D.R., JR.; IANNUZZI, R.; SILVA FILHO, W.F. Crato Flora: a 115-million-year-old window into the Cretaceous World of Brazil. In: IANNUZZI, R.; ROESSLER, R.; KUNZMANN, L. (Eds.). *Brazilian Paleofloras*. Springer, pp. 1-40, 2021.
- LEEDER, M.R.E.; GAWTHORPE, R.L. In: COWARD, M.; HANCOCK, J. (Eds.). *Sedimentary Models for Extensional Tilt-block/half-graben Basins, Continental Extensional Tectonics*. Geological Society of London Special Publication, vol. 28, pp. 139-152, 1987.
- Leggitt, V. L., Cushman Jr, R. A. (2001). Complex caddisfly-dominated bioherms from the Eocene Green River Formation. *Sedimentary Geology*, 145(3-4), 377-396.
- MAISEY, J. G. (Ed.). *Santana Fossils: An Illustrated Atlas*. 1991. Neptune City, NJ, 462 pp.
- MARQUES, F.O.; NOGUEIRA, F.C.C.; BEZERRA, F.H.R.; CASTRO, D.L. The Araripe Basin in NE Brazil: an intracontinental graben inverted to a high-standing horst. *Tectonophysics*, vol. 630, pp. 251–264, 2014.
- MINISTÉRIO DA JUSTIÇA – POLÍCIA FEDERAL. Information on fossil seizures under the jurisdiction of the Federal Police Superintendency in the State of Ceará, 2021.
- MORAIS NETO, J.M.; HEGARTY, K.; KARNER, G.D. Preliminary approach to paleotemperature and relief evolution of the Araripe Basin, Northeast Brazil, from fission track analysis in apatite. *Boletim de Geociências da Petrobras*, vol. 14, no. 1, pp. 113–119, 2005.
- NASCIMENTO, D.R., JR.; SILVA FILHO, W.F.; FREIRE, J.G., JR.; SANTOS, F.H. Syngenetic and diagenetic features of evaporite-lutite successions of the Ipubi formation, Araripe Basin, Santana do Cariri, NE Brazil. *Journal of South American Earth Sciences*, vol. 72, pp. 315–327, 2016.
- NASCIMENTO, D.R., JR.; SILVA FILHO, W.F.; ERTHAL, F. Crato Lake deposits. Rocks to preserve an extraordinary fossil lagerstätte. In: IANNUZZI, R.; ROESSLER, R.; KUNZMANN, L. (Eds.). *Brazilian Paleofloras*. Springer, pp. 1-54, 2022.
- NEUMANN, V.H.M.L. Stratigraphy, Sedimentology, Geochemistry, and Diagenesis of the Aptian-Albian Lacustrine Systems of the Araripe Basin (Northeast Brazil). Master's thesis, University of Barcelona, 293p., 1999.
- NEUMANN, V.H.M.L.; CABRERA, L. General hydrogeological characteristics, salinity changes, and endorheic nature of the Cretaceous lacustrine system of Araripe, NE Brazil. *Revista de Geologia UFC*, vol. 15, pp. 43–54, 2002.
- NEUMANN, V.H.M.L.; ARAGÃO, M.A.N.F.; VALENÇA, L.M.M.; LEAL, J.P. Lacustrine Environments. In: SILVA, A.J.C.L.P.; ARAGÃO, M.A.N.F.; MAGALHÃES, A.J.C. (Eds.). *Siliciclastic Sedimentary Environments of Brazil*, 1st edition. Beca-BALL Edições, São Paulo, pp. 132–168, 2008.

NORTH AMERICAN COMMISSION ON STRATIGRAPHIC NOMENCLATURE. North American Stratigraphic Code. In: ORIEL, S.S.; CHAIRMAN, H.G.; HAY, W.W.; KOTTLOWSKI, F.E.; PATTON, J.B. (Eds.). North American Stratigraphic Code (3rd edition), NACSN, 1983, 63p.

NORTH AMERICAN COMMISSION ON STRATIGRAPHIC NOMENCLATURE. North American Stratigraphic Code. In: ORIEL, S.S.; CHAIRMAN, H.G.; HAY, W.W.; KOTTLOWSKI, F.E.; PATTON, J.B. (Eds.). North American Stratigraphic Code (4th edition, revised), NACSN, 2005, 44p.

OSÉS GL, PETRI S, BECKER-KERBER B, ROMERO GR, RIZZUTTO MdA, RODRIGUES F, GALANTE D, da Silva TF, CURADO JF, RANGEL EC, RIBEIRO RP, PACHECO MLAF. 2016. Deciphering the preservation of fossil insects: a case study of the Crato Member, Early Cretaceous of Brazil. *PeerJ* 4: e2756 <https://doi.org/10.7717/peerj.2756>.

PETRI, S.; COIMBRA, A.M.; AMARAL, G.; OJEDA, H.A.O.; FÚLFARO, V.J.; PONÇANO, W.L. Brazilian Code of Stratigraphic Nomenclature, Stratigraphic Nomenclature Guide. *Revista Brasileira de Geociências*, vol. 16, no. 4, pp. 370-415, 1986.

PONTE, F. C.; APPI, C. J. Proposal for a revision of the lithostratigraphic column of the Araripe Basin. In: CONGRESSO BRASILEIRO DE GEOLOGIA, 36th, 1990, Natal. Proceedings. Natal: Sociedade Brasileira de Geologia, vol. 1, pp. 211-226, 1990.

PONTE, F. C.; PONTE FILHO, F. C. Geological structure and tectonic evolution of the Araripe Basin. Recife: DNPM, 1996, 68p.

PROSSER, S. Rift-related linked depositional systems and their seismic expression. *Geological Society Special Publication*, vol. 71, pp. 35-66, 1993.

RAND, H. M.; MANSO, V. A. V. Gravimetric and magnetometric survey of the Araripe Basin. In: XXXIII CONGRESSO BRASILEIRO DE GEOLOGIA, Rio de Janeiro (RJ), Proceedings. Rio de Janeiro: Sociedade Brasileira de Geologia, vol. 4, pp. 2011-2016, 1984.

REGALI, M.P.S.; VIANA, C. Neojurassic-Eocretaceous sediments of Brazil. *Petrobras Special Publication*, pp. 51-95, 1989.

RIBEIRO, A.C., RIBEIRO, G.C., VAREJÃO, F.G., BATTIROLA, L.D., PESSOA, E.M., MARCELLO, G.S., WARREN, L.C., RICCOMINI, C., POYATO-ARIZA, F.J. Towards an actualistic view of the Crato Konservat-Lagerstätte paleoenvironment: A new hypothesis as an Early Cretaceous (Aptian) equatorial and semi-arid wetland. *Earth-Science Reviews*. Volume 216, 2021.

ROSA, M.C.; MORALES, N.; ASSINE, M.L. Transtensional tectonics during the Gondwana breakup in northeastern Brazil: Early Cretaceous paleostress inversion in the Araripe Basin. *Tectonophysics*, vol. 846, pp. 1-21, 2023.

SALGADO-CAMPOS, V.M.J.; CARVALHO, I.S.; BERTOLINO, L.C.; DUARTE, T.A.; ARAÚJO, B.C.; BORGHI, L. Clay mineralogy and litho geochemistry of lutites from the Lower Cretaceous Crato Member, Araripe Basin, NE Brazil: implications for paleoenvironmental, paleoclimatic and provenance reconstructions. *Journal of South American Earth Sciences*, vol. 110, p. 103329, 2021.

SALVADOR, A. *International stratigraphic guide: a guide to stratigraphic classification, terminology, and procedure*. USA, Geological Society of America, 1994, 207 p.

SANTOS, F.H.; AZEVEDO, J.M.; NASCIMENTO, D.R., Jr.; SOUZA, A.C.B.; MENDES, I.; LIMAVERDE, S. Facies analysis and petrography of a Crato Member section in Nova Olinda

(CE): contributions to the depositional and diagenetic history of the Neaptian in the Araripe Basin. *Geologia USP Série Científica*, vol. 17, pp. 3–18, 2017.

Scoffin, T.P. (1987) *An introduction to carbonate sediments and rocks*. Chapman and Hall, New York, 100p.

SILVEIRA, A. C. Geochemical, sedimentological, and stratigraphic characterization of the carbonate layer of level C6 of the Crato Formation (Pre-Salt, Aptian) of the Araripe Basin, NE Brazil. 2019. 75 f. Ph.D. thesis, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2019.

TALBOLT, M. R. A review of the paleohydrological interpretation of carbon and oxygen isotopic ratios in primary lacustrine carbonates. *Chemical Geology*, v 80. 261-279. Amsterdam, 1990.

VAREJÃO, F.G.; SILVA, V.R.; ASSINE, M.L.; WARREN, L.V.; MATOS, S.A.; RODRIGUES, M.G.; FÜRSICH, F.T.; SIMÕES, M.G. Marine or freshwater? Accessing the paleoenvironmental parameters of the Caldas Bed, a key marker bed in the Crato formation (Araripe Basin, NE Brazil). *Brazilian Journal of Geology*, vol. 51, no. 1, pp. 1–12, 2021.

VAREJÃO, F.G.; WARREN, L.V.; SIMÕES, M.G.; BUATOIS, L.A.; MANGANO, M.G.; RUMBELSPERGER, A.M.B.; ASSINE, M.L. Mixed siliciclastic–carbonate sedimentation in an evolving epicontinental sea: Aptian record of marginal marine settings in the interior basins of north-eastern Brazil. *Sedimentology*, vol. 68, no. 5, pp. 2125-2164, 2021.

VIANA, M. S., NEUMANN, V. H. L. Membro Crato da Formação Santana, Chapada do Araripe, CE. 2002. Available at: <http://sigep.cprm.gov.br/sitio005/sitio005.htm> Accessed on: Dec 10, 2022.

WITTE, R.S.; WITTE, J.S. *Estatística*. Editora LTC, 7th edition, Rio de Janeiro, 2005, 486p.

## 5 CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES

O trabalho realizado até o presente momento com a elaboração do primeiro artigo científico utilizou dados de razões isotópicas de carbono e oxigênio de estudos prévios referenciados das Formações Crato (Bacia do Araripe/CE), Codó (Bacia do Parnaíba/MA) e Green River (EUA) e apresenta resultados importantes do ponto de vista da ciência geológica e especificamente forense:

- a) a metodologia utilizada na revisão de dados de razões isotópicas de trabalhos prévios de referência e constituição de banco de dados com vistas a identificação preliminar de horizontes estratigráficos específicos, com situação geográfica restrita, revelou-se adequada e exequível, conforme os mostram os parâmetros estatísticos identificados das razões isotópicas do etnoestrato “sete cortes” da unidade C6 da Formação Crato;
- b) uma considerável revisão bibliográfica foi realizada para o entendimento do contexto geológico/estratigráfico da área em estudo e, principalmente, sobre a teoria isotópica e análises estatísticas dos dados obtidos, o que resultou em um acúmulo de conhecimento básico para desenvolvimento da metodologia utilizada, visando futuros testes de validação e, possivelmente, seu emprego;
- c) Para o etnoestrato “sete cortes”, provável nível de origem da maioria dos vertebrados da Formação Crato, os mais estimados pelo tráfico, foram, obtidos os seguintes parâmetros estatísticos para  $\delta^{13}\text{C}$  e  $\delta^{18}\text{O}$ , respectivamente: médias aritméticas +0,9‰ e -5,9‰; desvios-padrões 0,6 e 0,8; medianas +0,7‰ e -5,9‰; e amplitudes interquartis 1,2 e 1,5.
- d) a realização da segunda etapa da pesquisa, na qual se realizará as análises dos dados das razões isotópicas de carbono e oxigênio das 36 amostras de calcário fossilífero e 6 de calcário não-fossilífero do etnoestrato “sete cortes” coletados, proporcionará a oportunidade da checagem e validação dos resultados obtidos na primeira etapa.
- e) A amostragem é crucial em análise estatística porque permite extrair conclusões e tendências de uma população com base em uma parte dela. As amostras de dados de razões isotópicas empregadas para a realização dessa etapa do estudo foram as que estavam disponíveis nos trabalhos de referência consultados, seja de forma direta ou indiretamente via solicitação aos seus autores. A estes dados, serão acrescentados novos que serão obtidos com a continuidade da pesquisa,



que constituirão um banco de dados organizado em planilha eletrônica em formato de arquivo que permita o uso dos dados em programas de estatística (i.e. Minitab, Jamovi).

- f) O estudo realizado não é uma novidade em termos mais básicos da análise isotópica de rochas, mas sua aplicação ao estudo forense, particularmente no que concerne à proveniência de fósseis apreendidos, é proposto como o início de um entendimento mais amplo sobre a viabilidade do uso de razões isotópicas de carbono e oxigênio como indicadores de origem geográfica de fósseis hospedados em rochas carbonáticas.

Independentemente dos desdobramentos futuros do confronto entre os resultados da primeira e da segunda (futura) etapa da pesquisa, foram acumulados conhecimentos e estabelecida uma metodologia que impulsionarão estudos e aplicações da técnica.

## REFERÊNCIAS

- ALMEIDA, F. F. M.; LEONARDOS JR., O. H.; VALENÇA, J. **Granitic rocks of Northeast South America**. [S. l.]: IUGS/UNESCO, 1967.
- ANDRADE, R. A. No rastro dos fósseis contrabandeados. **Revista Pesquisa FAPESP**, São Paulo, edição 301, p. 40-47, 2021. Disponível em: <https://revistapesquisa.fapesp.br/no-rastro-dos-fosseis-contrabandeados/>. Acesso em: 10 dez. 2022.
- ASSINE, M. L. Análise estratigráfica da Bacia do Araripe, nordeste do Brasil. **Revista Brasileira de Geociências**, [s. l.], v. 22, n. 3, p. 289-300, 1992.
- ASSINE, M. L. Bacia do Araripe. **Boletim de Geociências da Petrobras**, Rio de Janeiro. v. 15, n. 2, p. 371-389, 2007. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/279556073\\_Araripe\\_basin\\_Bacia\\_do\\_Araripe](https://www.researchgate.net/publication/279556073_Araripe_basin_Bacia_do_Araripe). Acesso em: 03 abr. 2024.
- ASSINE, M. L. *et al.* Sequências deposicionais do Andar Alagoas da Bacia do Araripe, Nordeste do Brasil. **Boletim de Geociências da Petrobras**, Rio de Janeiro, v. 22, n. 1, p. 3-28, 2014.
- BAHNIUK, A. M. *et al.* Development of microbial carbonates in the Lower Cretaceous Codó Formation (north-east Brazil): implications for interpretation of microbialite facies associations and palaeoenvironmental conditions. **Sedimentology**, [s. l.], v. 62, n. 1, p. 155-181, 2015.
- BARBOSA, J. N. **Isótopos estáveis para a discriminação da origem geográfica de cafés especiais da Serra da Mantiqueira de Minas Gerais**. 2012. Tese (Doutorado em Fisiologia Vegetal)–Universidade Federal de Lavras, Lavras, Minas Gerais, 2012.
- BOWEN, G. J. Isoscapes: spatial pattern in isotopic biogeoquímica. **Revisão Annual de Ciências da Terra e Planetária**, [s. l.], v. 38, n.1, p. 161-187, 2010.
- BOWEN, G. **Waterisotopes.org**. [Utah: The University of Utah], c2003-2022. Disponível em: <http://www.waterisotopes.org>. Acesso em: 3 dez. 2023.
- BRASIL. **Constituição da República Federativa do Brasil de 1988**. Brasília, DF: Presidência da República, 1988. Disponível em: [http://www.planalto.gov.br/ccivil\\_03/Constituicao/Constituicao.htm](http://www.planalto.gov.br/ccivil_03/Constituicao/Constituicao.htm). Acesso em: 9 dez. 2022.
- BRASIL. **Decreto-Lei nº 4.146, de 4 de março de 1942**. Rio de Janeiro, DF: Presidência da República, 1942. Disponível em: [http://www.planalto.gov.br/ccivil\\_03/decreto-lei/1937-1946/Del4146.htm](http://www.planalto.gov.br/ccivil_03/decreto-lei/1937-1946/Del4146.htm). Acesso em: 10 dez. 2022.
- BRASIL. **Decreto nº 98.830, de 15 de janeiro de 1990**. Brasília, DF: Presidência da República, 1990. Disponível em: [https://www.planalto.gov.br/ccivil\\_03/decreto/1990-1994/d98830.htm](https://www.planalto.gov.br/ccivil_03/decreto/1990-1994/d98830.htm). Acesso em 27 abr. 2021.

BRASIL. **Lei nº 8.176, de 8 de fevereiro de 1991**. Brasília, DF: Presidência da República, 1991. Disponível em: [http://www.planalto.gov.br/ccivil\\_03/LEIS/L8176.htm](http://www.planalto.gov.br/ccivil_03/LEIS/L8176.htm). Acesso em: 27 abr. 2021.

BRASIL. **Lei nº 9.985, de 18 de julho de 2000**. Brasília, DF: Presidência da República, 2000. Disponível em: [https://www.planalto.gov.br/ccivil\\_03/leis/19985.htm](https://www.planalto.gov.br/ccivil_03/leis/19985.htm). Acesso em: 02 abr. 2024.

BRASIL. Ministério da Justiça e Segurança Pública. Polícia Federal. **Informação de apreensões de fósseis sob jurisdição da Superintendência da Polícia Federal no Ceará**. [S. l.: s. n.], 2024.

BRASIL. Ministério da Justiça e Segurança Pública. Polícia Federal. Sistema de Criminalística. **[Informações sobre apreensões de fósseis sob jurisdição da Superintendência da Polícia Federal no Estado do Ceará]**. [S. l.], [2021]. Sistema de informações eletrônicas.

BRILHA, J. B. R. **Patrimônio geológico e geoconservação: a conservação da natureza na sua vertente geológica**. Braga: Palimage, 2005.

CAMPELO, R. C. **Análise de terrenos na porção setentrional da Província Borborema, NE do Brasil**: integração de dados geológicos e gravimétricos. 1999. Dissertação (Mestrado em Geodinâmica; Geofísica) - Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Natal, 1999. Disponível em: <https://repositorio.ufrn.br/handle/123456789/18769>. Acesso em: 03 abr. 2024.

CATALINA, L. Mercado internacional: perfil online leilão fóssil traficado do Cariri cearense 2020. **O Povo online**, Fortaleza, 11 nov. 2020. Disponível em: <https://www.opovo.com.br/noticias/cariri/2020/11/11/mercado-internacional--perfil-online-leilao-fossil-traficado-do-cariri-cearense.html>. Acesso em: 01 set. 2023.

CAXITO, F.; SILVA, A. Isótopos estáveis: fundamentos e técnicas aplicadas à caracterização e proveniência geográfica de produtos alimentícios. **Revista Geonomos**, Belo Horizonte, v. 23, n. 1, p. 10-17, 2015.

CHAGAS, D. B. **Análise faciológica frente ao controle paleoambiental baseado na palinologia do intervalo Aptiano/Albiano da Bacia do Araripe (Sub-bacias Cariri e Feira Nova), NE do Brasil**. Tese (Doutorado em Geologia) - Universidade Federal do Ceará, Fortaleza, 2017.

CHESSON, L. A. *et al.* Stable isotopes in forensics application. *In*: HOLLAND H. D.; TUREKIAN, K. K. (org.). **Treatise on Geochemistry**. 2nd. ed. Oxford: Elsevier, 2014. v. 2. p. 285-317.

CORDEIRO, M. N.; MACEDO, F. E.; BASTOS, F. H. Potencial geoturístico do Cariri cearense: o caso do Geopark Araripe. **Acta Geográfica**, Boa Vista, v. 9, n. 19, p. 146–163, 2015. Disponível em: <https://revista.ufrn.br/actageo/article/view/2579/1564>. Acesso em: 02 abr. 2024.

CORECCO, L. *et al.* Petrological meaning of ethnostratigraphic units: Laminated limestone of the Crato Formation, Araripe Basin, NE Brazil. **Pesquisas em Geociências**, Porto Alegre, v. 49, n. 1, p. 1-20, 2022.

COSTA, F. J. V.; SENA- SOUZA, J. P.; NARDOTO, G. B. Determinação da origem geográfica de vestígios utilizando isótopos estáveis: base científica e potencial de uso no Brasil. **Revista Brasileira de Ciências Policiais**, Brasília, DF, v. 10, n. 1, p. 15-54, 2019. Disponível em: <https://periodicosiom.gov.br/index.php/RBCP/article/view/585>. Acesso em: 3 abr. 2024.

CAPO, Rosemary; STEWART, Brian; CHADWICK, Oliver. Strontium isotopes as tracers of ecosystem processes: theory and methods. **Geoderma**, [s. l.], v. 82, n. 1-3, p. 197-225, 1997. Disponível em: [https://sci-hub.se/10.1016/s0016-7061\(97\)00102-x](https://sci-hub.se/10.1016/s0016-7061(97)00102-x). Acesso em: 20 abr. 2024.

COSTA, Lúcia. Site vende fósseis do Ceará nos EUA; paleontólogos questionam legalidade das peças. **Super Interessante**, [s. l.], 23 jan. 2023. Disponível em: <https://super.abril.com.br/ciencia/site-vende-fosseis-do-ceara-nos-eua-paleontologos-questionam-legalidade-das-pecas>. Acesso em: 17 abr. 2024.

DELLA PORTA, G. Carbonate build-ups in lacustrine, hydrothermal, and fluvial settings: comparing depositional geometry, fabric types, and geochemical signature. *In*: BOSENCE, D. W. J. *et al.* (ed.). **Microbial carbonates in space and time: implications for global exploration and production**. [S. l.]: Geological Society of London, 2015. v. 418. p. 17-68.

EHLERINGER, J. R. *et al.* Stable isotopes trace the truth: from adulterated foods to crime scenes. **Elements**, [s. l.], v. 11, n. 4, p. 259–264, 2015. Disponível em: <https://doi.org/10.2113/gselements.11.4.259>. Acesso em: 11 mar. 2024.

FLÜGEL, E. **Microfacies of carbonate rocks: analysis, interpretation and application**. Springer-Verlag, Berlim-Heidelberg, 2004. 996 p.

IBRAM - Mineração do Brasil, Fortaleza/CE, p. 1-2, 25 fev. 2013. **Exploração de calcário transforma o Cariri em polo mineral do Nordeste**. Disponível em: <https://ibram.org.br/noticia/exploracao-de-calcario-transforma-o-cariri-em-polo-mineral-do-nordeste/>. Acesso em: 20 abr. 2024.

FALCÃO, L. **Geopark Araripe: a história da vida na Terra recontada no Ceará**. [Ceará], 16 nov. 2021. Disponível em: <https://www.ceara.gov.br/2021/11/16/geopark-araripe-a-historia-da-vida-na-terra-recontada-no-ceara/>. Acesso em: 20 mar. 2024.

FAMBRINI, G. L. *et al.* Estratigrafia da Bacia do Araripe: estado da arte, revisão crítica e resultados novos. **Geologia USP, Série Científica**, São Paulo, v. 20, n. 4, p. 169-212, 2020.

FARQUHAR, G. D.; EHLERINGER, J. R.; HUBICK, K. T. Carbon isotope discrimination and photosynthesis. **Annual Review of Plant Molecular Biology**, [s. l.], v. 40, n.1, p. 503-537, 1989. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/303145900\\_Carbon\\_Isotope\\_Discrimination\\_And\\_Photosynthesis](https://www.researchgate.net/publication/303145900_Carbon_Isotope_Discrimination_And_Photosynthesis). Acesso: 01 abr. 2024.

FELIX, J. L. **Perfil etnobioestratigráfico (informal) das minas de Nova Olinda, Formação Crato da Bacia do Araripe**. 2017. Dissertação (Mestrado em Geologia) – Universidade Federal do Ceará, Fortaleza, 2017.

GOLDBERG, K. *et al.* Aptian marine ingression in the Araripe Basin: implications for paleogeographic reconstruction and evaporite accumulation. **Marine and Petroleum Geology**, [s. l.], v. 107, p. 214–221, 2019.

HEIMHOFER, U. *et al.* Deciphering the depositional environment of the laminated, Crato fóssil beds (EarlyCretaceous, Araripe Basin, North-eastern Brazil). **Sedimentology**, Oxford, v. 57, n. 2, p. 677-694, 2010.

HOEFS, J. **Stable isotope in geochemistry**. 5th. ed. [Germany]: Springer-Verlag Germany, 2004.

INFOAGRONOMO. [Website]. México: InfoAgronomo, c2024. Disponível em: [infoagronomo.net](http://infoagronomo.net). Acesso em: 10 dez. 2023.

ISSC. International Stratigraphic Guide. *In*: MUR, M. A.; SALVADOR, A. (ed.). **International Stratigraphic Guide**. 3rd. ed. [S. l.]: ISSC; IUGS, 2010.

IPECE. [Site institucional]. Fortaleza: IPECE, 2022. Disponível em: [www.ipece.ce.gov.br](http://www.ipece.ce.gov.br). Acesso em 19 mar. 2024.

KELTS, K.; TALBOT, M. Lacustrine carbonates as geochemical archives of environmental changes and biotic/abiotic interactions. *In*: TILZER, M. M.; SERRUYA, C. (ed.). **Large lakes: ecological structure and functions**. Berlin: Springer-Verlag, 1990. p. 288-315. Disponível em: [https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-642-84077-7\\_15](https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-642-84077-7_15). Acesso em: 03 abr. 2024

KUNZMANN, L. *et al.* Crato Flora: a 115-million-year-old window into the Cretaceous World of Brazil. *In*: IANNUZZI, R.; ROESSLER, R.; KUNZMANN, L. (ed.). **Brazilian Paleofloras**. [S. l.]: Springer, 2021. p. 1-40.

LEITE, C. Mercado internacional: perfil online leilão fóssil traficado do Cariri cearense. **O Povo online**, Fortaleza, 11 nov. 2020. Disponível em: <https://www.opovo.com.br/noticias/cariri/2020/11/11/mercado-internacional--perfil-online-leilao-fossil-traficado-do-cariri-cearense.html>. Acesso em: 10 dez. 2022.

LEITE, C. Quem são e o que pensam os países que mais traficam fósseis do Cariri. **O Povo online**, Fortaleza, 02 mar. 2022. Disponível em: <https://mais.opovo.com.br/reportagens-especiais/mundo-dos-fosseis/2022/03/02/quem-sao-e-o-que-pensam-os-paises-que-mais-traficam-fosseis-do-cariri.html#:~:text=Ao%20analisar%20tr%C3%AAAs%20d%C3%A9cadas%20de,foram%20li deradas%20por%20pesquisadores%20estrangeiros>. Acesso em: 8 set. 2023.

LEITE, Catalina. Ubirajara jubatus:: fóssil de dinossauro volta ao Ceará e ficará exposto em museu do Cariri. **O Povo**, Fortaleza/CE, 14 jun. 2023. Notícias Ceará, p. 1-2. Disponível em: <https://www.opovo.com.br/noticias/ceara/2023/06/14/ubirajara-jubatus-fossil-de-dinossauro-volta-ao-ceara-e-ficara-exposto-em-museu-no-cariri.html>. Acesso em: 18 abr. 2024.

LEGGITT, V. L.; CUSHMAN JR, R. A. Complex caddisfly-dominated bioherms from the Eocene Green River Formation. **Sedimentary Geology**, [s. l.], v. 145, n. 3-4, p. 377-396, 2001.

LIMA, F. F. *et al.* **Geopark Araripe**: histórias da Terra, do meio ambiente e da cultura. [Ceará: s. n.]: 2012. Disponível em: [https://www.ageobr.org/\\_files/ugd/14b974\\_e48f58644d514a9da9633d74a9edde8b.pdf](https://www.ageobr.org/_files/ugd/14b974_e48f58644d514a9da9633d74a9edde8b.pdf). Acesso em: 8 set. 2023.

LINDOSO, M. R. **A biota da Formação Codó (Aptiano, Bacia do Parnaíba), nordeste do Brasil**: aspectos paleoambientais e paleogeográficos. 2016. Tese (Doutorado em Geologia) – Universidade Federal do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, 2016.

MARTINELLI, L. A. *et al.* Princípios básicos sobre as variações naturais dos isótopos estáveis. **Revista Perícia Federal**, Brasília, DF, ano XVI, n. 45, jul. 2020. Disponível em: [https://apcf.org.br/wp-content/uploads/2020/07/Revista\\_APCF\\_edicao45-1.pdf](https://apcf.org.br/wp-content/uploads/2020/07/Revista_APCF_edicao45-1.pdf). Acesso em: 03 abr. 2024.

MEYERS, P. A. Organic geochemical proxies of paleoceanographic, paleolimnologic and paleoclimatic processes. **Organic Geochemistry**, [s. l.], v. 27, n. 5-6, p. 213-250, 1997.

MOREIRA, T. J. V.; SANTOS, M. R.; MOREIRA, A. L. (org.). **Estatística básica**: para cursos de graduação. Teresina: EdUESPI, 2021. v. 1.

NASCIMENTO JR, D. R.; SILVA FILHO, W. F.; ERTHAL, F. **Crato Lake deposits**. Rocks to preserve an extraordinary fossil lagerstätte. *In*: IANNUZZI, R.; ROESSLER, R.; KUNZMANN, L. (ed.). **Brazilian Paleofloras**. [S. l.]: Springer, 2022. p. 1-54.

NEUMANN, V. H. M. L.; CABRERA, L. General hydrogeological characteristics, salinity changes, and endorheic nature of the Cretaceous lacustrine system of Araripe, NE Brazil. **Revista de Geologia UFC**, Fortaleza, v. 15, p. 43–54, 2002.

NEUMANN, V. H. M. L. **Estratigrafía, sedimentología, geoquímica y diagénesis de los sistemas lacustinos aptiano-albianos de la Cuenca Araripe (Nordeste de Brasil)**. 1999. Tese (Doutorado em Análise de Bacias Sedimentares)- Universidade de Barcelona, Espanha, 1999.

NEUMANN, V. H. M. L. *et al.* Ambientes lacustres. *In*: SILVA, A. J. C. L. P.; ARAGÃO, M. A. N. F.; MAGALHÃES, A. J. C. (org.). **Ambientes de sedimentação siliciclástica do Brasil**. São Paulo: Beca-BALL Edições, 2008. p. 132–168.

NEUMANN, V.; ASSINE, M. Stratigraphic Proposal to the Post-Rift I Tectonic Sedimentary Sequence of Araripe Basin, Northeastern Brazil. *In*: INTERNATIONAL CONGRESS ON STRATIGRAPHY, 2., 2015, Austria.

NEUMANN, V. H. *et al.* The Aptian-Albian lacustrine system of the Araripe basin, Northeast Brazil: paleoambiental and paleoclimatic significance of the recognized paleoflora. *In*: LATINAMERICAN SEDIMENTOLOGICAL CONGRESS, 3., 2003, Belém. **Abstract Book of the III Latinamerican Sedimentological Congress**. [S. l.: s. n.], 2003. p. 131-132.

NACSN. North American Stratigraphic Code. *In*: ORIEL, S. S. *et al.* (ed.). **North American Stratigraphic Code**. 3rd. ed. [S. l.]: NACSN, 1983.

NACSN. North American Stratigraphic Code. *In*: ORIEL, S. S. *et al.* (ed.). **North American Stratigraphic Code**. 4th. ed., revised. [S. l.]: NACSN, 2005.

PETRI, S. *et al.* Código Brasileiro de Nomenclatura Estratigráfica. **Revista Brasileira de Geociências**, v. 16, p. 372-376, 1986. Disponível em: <https://repositorio.usp.br/directbitstream/b181b93c-c1f0-4b90-ae46-c34de227855d/0768684.pdf>. Acesso em: 21 mar. 2024.

PETRI, S. *et al.* Guia de Nomenclatura Estratigráfica. **Revista Brasileira de Geociências**, v. 16, p. 376-415, 1986. Disponível em: <https://repositorio.usp.br/directbitstream/3ddc36d1-3e35-43a7-9a81-c06aaae686aa/0768685.pdf>. Acesso em: 21 mar. 2024.

PONTE, F. C.; APPI, C. J. Proposta de revisão da coluna litoestratigráfica da Bacia do Araripe. *In*: CONGRESSO BRASILEIRO DE GEOLOGIA, 36, 1990, Natal. [Anais...]. Natal: Sociedade Brasileira de Geologia, 1990. v. 1, p. 211-226.

PONTE, F. C.; PONTE FILHO, F. C. **Estrutura geológica e evolução tectônica da Bacia do Araripe**. Recife: DNPM, 1996.

PROSSER, S. Rift-related linked depositional systems and their seismic expression. **Geological Society Special Publication**, [s. l.], v. 71, p. 35-66, 1993.

QUAGGIO, Carolina Stager; GASTMANS, Didier; MARTINS, Veridiana Teixeira de Souza. O que os isótopos de estrôncio nos ensinam sobre as águas subterrâneas. **Derbyana**, [S. l.], v. 42, 2021. DOI: 10.14295/derb.v42.747. Disponível em: <https://revistaig.emnuvens.com.br/derbyana/article/view/747>. Acesso em: 20 abr. 2024.

ROSA, M. C.; MORALES, N.; ASSINE, M. L. Transtensional tectonics during the Gondwana breakup in northeastern Brazil: Early Cretaceous paleostress inversion in the Araripe Basin. **Tectonophysics**, [s. l.], v. 846, p. 1-21, 2023.

RODRIGUES, G. B.; FAUTH, G. Isótopos estáveis de carbono e oxigênio em ostracodes do Cretáceo: metodologias, aplicações e desafios. **Terrae Didactica**, Campinas, SP, v. 9, n. 1, p. 34-49, 2015. Disponível em: <https://periodicos.sbu.unicamp.br/ojs/index.php/td/article/view/8637408>. Acesso em: 16 mar. 2024.

SALGADO-CAMPOS, V. M. J. *et al.* Clay mineralogy and lithogeochemistry of lutites from the Lower Cretaceous Crato Member, Araripe Basin, NE Brazil: implications for paleoenvironmental, paleoclimatic and provenance reconstructions. **Journal of South American Earth Sciences**, [s. l.], v. 110, 2021.

SALVADOR, A. (ed.). **International stratigraphic guide: a guide to stratigraphic classification, terminology, and procedure**. 2nd. ed. USA: Geological Society of America, 1994.

SANTOS, F. H. *et al.* Facies analysis and petrography of a Crato Member section in Nova Olinda (CE): contributions to the depositional and diagenetic history of the Neoaptian in the Araripe Basin. **Geologia USP, Série Científica**, São Paulo, v. 17, n. 1, p. 3-18, 2017.

SCOFFIN, T. P. **An introduction to carbonate sediments and rocks**. New York: Chapman and Hall, 1987.

SEILACHER, A. **Begriff und Bedeutung der Fossil-Lagerstätten. Neues Jahrbuch für Geologie und Paläontologie Monatshefte**. [S. l.: s. n.], 1970. p. 34-39. Disponível em: <https://ndlsearch.ndl.go.jp/books/R100000136-I1570854174837576576>. Acesso em 04 mai. 2024.

SILVEIRA, A. C. **Caracterização geoquímica, sedimentológica e estratigráfica da camada carbonática do nível C6 da Formação Crato (Pré-Sal, Aptian) da Bacia do Araripe, Nordeste do Brasil**. 2019. Tese (Doutorado em Geociências)-Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2019.

TALBOT, M. R. A review of the paleohydrological interpretation of carbon and oxygen isotopic ratios in primary lacustrine carbonates. **Chemical Geology**, Amsterdam, v. 80, n. 4, p. 261-279, 1990.

UNESCO. **UNESCO Global Geoparks: celebrating earth heritage, sustaining local communities**. Paris: UNESCO, 2016.

VAREJÃO, F. G. *et al.* Mixed siliciclastic-carbonate sedimentation in an evolving epicontinental sea: aptian record of marginal marine settings in the interior basins of north-eastern Brazil. **Sedimentology**, [s. l.], v. 68, n. 5, p. 2125-2164, 2021a. Disponível em: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1111/sed.12846>. Acesso em: 8 set. 2023.

VAREJÃO, F. G. *et al.* Marine or freshwater? Accessing the paleoenvironmental parameters of the Caldas Bed, a key marker bed in the Crato formation (Araripe Basin, NE Brazil). **Brazilian Journal of Geology**, São Paulo, v. 51, n. 1, p. 1-12, 2021b. Disponível em: <https://www.scielo.br/j/bjgeo/a/q7Zn9q3VPChDdF464rTCM9L>. Acesso em: 8 set. 2023.

VIANA, M. S. S; NEUMANN, V. H. L. Membro Crato da Formação Santana, Chapada do Araripe, CE. In: SCHOBENHAUS, C. *et al.* (ed.). **Sítios geológicos e paleontológicos do Brasil**. Brasília, DF: DNPM, 2002. p. 112-120.

WITTE, R. S.; WITTE, J. S. **Estatística**. 7. ed. Rio de Janeiro: LTC, 2005.



## APÊNDICE A – SUBMISSÃO DE ARTIGO

18/04/2024, 13:18

Gmail - Confirm co-authorship of submission to Forensic Science International



Marcos Pimentel &lt;marcospimentel3@gmail.com&gt;

### Confirm co-authorship of submission to Forensic Science International

1 mensagem

Forensic Science International &lt;em@editorialmanager.com&gt;

18 de abril de 2024 às 13:11

Responder a: Forensic Science International &lt;support@elsevier.com&gt;

Para: Marcos Antônio Pimentel de Sousa &lt;marcospimentel3@gmail.com&gt;

\*This is an automated message,\*

Journal: Forensic Science International

Title: Isotopic Signatures of Fossiliferous Limestones from the Crato Formation, Araripe Basin, Brazil: A Review with Forensic Implications

Corresponding Author: Dr. Daniel Rodrigues do Nascimento Junior

Co-Authors: Marcos Antônio Pimentel de Sousa; Anelize Manuela Bahniuk; Giovanna Della Porta

Manuscript Number: **FSI-D-24-00441**

Dear Marcos Antônio Pimentel de Sousa,

The corresponding author Dr. Daniel Rodrigues do Nascimento Junior has listed you as a contributing author of the following submission via Elsevier's online submission system for Forensic Science International.

Submission Title: Isotopic Signatures of Fossiliferous Limestones from the Crato Formation, Araripe Basin, Brazil: A Review with Forensic Implications

Elsevier asks all authors to verify their co-authorship by confirming agreement to publish this article if it is accepted for publication.

Please read the following statement and confirm your agreement by clicking on this link: [Yes, I am affiliated.](#)

I irrevocably authorize and grant my full consent to the corresponding author of the manuscript to: (1) enter into an exclusive publishing agreement with Elsevier on my behalf (or, if the article is to be published under a CC BY license, a non-exclusive publishing agreement), in the relevant form set out at [www.elsevier.com/copyright](http://www.elsevier.com/copyright); and (2) unless I am a US government employee, to transfer my copyright or grant an exclusive license of rights (or for CC BY articles a non-exclusive license of rights) to Elsevier as part of that publishing agreement, effective on acceptance of the article for publication. If the article is a work made for hire, I am authorized to confirm this on behalf of my employer. I agree that the copyright status selected by the corresponding author for the article if it is accepted for publication shall apply and that this agreement is subject to the governing law of the country in which the journal owner is located.

If you did not co-author this submission, please contact the corresponding author directly at [daniel.rodrigues@ufc.br](mailto:daniel.rodrigues@ufc.br).

Thank you,  
Forensic Science International

More information and support

FAQ: What is copyright co-author verification?

[https://service.elsevier.com/app/answers/detail/a\\_id/28460/supporthub/publishing/](https://service.elsevier.com/app/answers/detail/a_id/28460/supporthub/publishing/)

FAQ: How can I reset a forgotten password?

[https://service.elsevier.com/app/answers/detail/a\\_id/28452/supporthub/publishing/](https://service.elsevier.com/app/answers/detail/a_id/28452/supporthub/publishing/)

For further assistance, please visit our customer service site: <https://service.elsevier.com/app/home/supporthub/publishing/>

Here you can search for solutions on a range of topics, find answers to frequently asked questions, and learn more about Editorial Manager via interactive tutorials. You can also talk 24/7 to our customer support team by phone and 24/7 by live chat and email

*In compliance with data protection regulations, you may request that we remove your personal registration details at any time. (Remove my information/details). Please contact the publication office if you have any questions.*

**Forensic Science International**  
**Isotopic Signatures of Fossiliferous Limestones from the Crato Formation, Araripe Basin, Brazil: A Review with Forensic Implications**  
 --Manuscript Draft--

<b>Manuscript Number:</b>	
<b>Article Type:</b>	Original Research Article
<b>Keywords:</b>	Fossil lagerstätte, Crato Formation, Fossil trafficking, Stable isotopes
<b>Corresponding Author:</b>	Daniel Rodrigues do Nascimento Junior Universidade Federal do Ceará BRAZIL
<b>First Author:</b>	Marcos Antônio Pimentel de Sousa
<b>Order of Authors:</b>	Marcos Antônio Pimentel de Sousa Daniel Rodrigues do Nascimento Junior Anelize Manuela Bahniuk Giovanna Della Porta
<b>Abstract:</b>	<p>The Crato Formation in Northeast Brazil is a globally renowned deposit of a lacustrine limestone rich in well-preserved Cretaceous fossils of various organisms, including highly prized vertebrates like pterosaurs, dinosaurs, and anurans. However, fossil traffickers have targeted this paleontological patrimony for decades, as Brazilian law has prohibited its commercialization since the 1940s. The Brazilian Federal Police is the competent public agency responsible for combating fossil trafficking, and the accurate identification of the origin of fossils is crucial in police investigations. In this context, the present study aims at contributing statistical parameters of stable carbon (<math>\delta^{13}C</math>) and oxygen (<math>\delta^{18}O</math>) isotopes from its host limestone, aiming for a practical, precise, and minimally destructive method to identify rock and fossil specimens from the Crato Formation. To achieve this, isotopic data from historically published works were compiled, and new analyses were conducted, aiming at successive geographical and stratigraphic approximations onto the main vertebrate fossiliferous level. This is important because the Crato Formation is a formal 70-m-thick unit, informally divided into six carbonate units from the bottom to the top (C1 to C6). The lagerstätte layer is the top unit (C6), which is about 10 m thick. Within C6 beds, large vertebrate fossils occur mainly in a basal level approximately 2 meters thick, termed "sete cortes" ethnostratum. Parallely, isotopic data from laminated lacustrine limestones of similar stratigraphic units from Brazil (Codó Formation) and the United States (Green River Formation) were also included for comparison. The results showed that the stratigraphic level of the Crato Formation, which hosts the most prized vertebrate fossils, stands out from the others due to statistically consistent isotopic values and narrow variability, not only in comparison with limestones from other basins but also within the same unit. In this sense, the statistical patterns of <math>\delta^{18}O</math>-PDB and <math>\delta^{13}C</math>-PDB obtained for the ethnostratum "sete cortes" were, respectively: arithmetic means -5.9‰ and +0.9‰; standard deviations 0.8 and 0.6; medians -5.9‰ and +0.7‰; and interquartile ranges 1.5 and 1.2. These findings are very useful not only for forensic investigations but also to track specific stratigraphic positions of fossils that were collected without any control of their locations.</p>
<b>Suggested Reviewers:</b>	<p>Ricardo de Oliveira Mascarenhas Brazilian Federal Police mascarenhas_ricardo@yahoo.com</p> <p>Maria da Conceição Cavalcante Lucena Brazilian Federal Police mclucena66@gmail.com</p> <p>Alcides Nóbrega Sial Universidade Federal de Pernambuco alcides.sial@ufpe.br</p>

	V. Leroy Leggitt Loma Linda University lleggitt@llu.edu
	Ritsuko Sugita National Research Institute of Police Science Japan sugita@nrps.go.jp
	Shari Forbes University of Western Australia sforbes@cyllene.uwa.edu.au
Opposed Reviewers:	

Title Page (with authors and addresses)

**Isotopic Signatures of Fossiliferous Limestones from the Crato Formation,  
Araripe Basin, Brazil: A Review with Forensic Implications**

Marcos Antônio Pimentel de Sousa <sup>a</sup>, Daniel Rodrigues do Nascimento Jr. <sup>b, \*</sup>, Anelize Manuela Bahniuk <sup>c</sup>, Giovanna Della Porta <sup>d</sup>

<sup>a</sup> Graduate Program in Geology, Federal University of Ceará, Fortaleza (CE) 60440554, Brazil.  
E-mail: [marcospimentel3@gmail.com](mailto:marcospimentel3@gmail.com)

<sup>b</sup> Department of Geology, Federal University of Ceará, Fortaleza (CE) 60440554, Brazil. E-mail: [daniel.rodrigues@ufc.br](mailto:daniel.rodrigues@ufc.br)

<sup>c</sup> Department of Geology, Federal University of Paraná, Curitiba (PR) 81531980, Brazil. E-mail: [anelize.bahniuk@ufpr.br](mailto:anelize.bahniuk@ufpr.br)

<sup>d</sup> Department of Earth Sciences, University of Milan, via Mangiagalli 34, 20133 Milan, Italy. E-mail: [giovanna.dellaporta@unimi.it](mailto:giovanna.dellaporta@unimi.it)

\* Corresponding author.

1  
2  
3  
4  
5  
6  
7  
8  
9  
10  
11  
12  
13  
14  
15  
16  
17  
18  
19  
20  
21  
22  
23  
24  
25  
26  
27  
28  
29  
30  
31  
32  
33  
34  
35  
36  
37  
38  
39  
40  
41  
42  
43  
44  
45  
46  
47  
48  
49  
50  
51  
52  
53  
54  
55  
56  
57  
58  
59  
60  
61  
62  
63  
64  
65