

ESTUDO COMPOSICIONAL E MORFOSCÓPICO DE AREIAS BRITADAS DE ARENITO SILICIFICADO BOTUCATU

Alexandre Coelho ¹; Denise Menezes ²; Teresinha Bonuccelli ³

Resumo – No âmbito de um projeto de pesquisa que estudou duas areias britadas de arenito silicificado da Formação Botucatu da região de São Carlos no estado de São Paulo, o objetivo deste artigo foi apresentar a metodologia utilizada para caracterização química e estrutural das areias por meio de análise da morfoscopia dos grãos e ensaios de Difractometria de Raios-X, Fluorescência de Raios-X para posterior verificação de usos. Os ensaios e análises realizados permitiram identificar as fases cristalinas do material - predominantemente quartzo - assim como a presença de elementos químicos não necessariamente comuns aos arenitos Botucatu, tais como o Potássio e o Alumínio. A análise morfoscópica possibilitou verificação de esfericidade, arredondamento e composição dos fragmentos resultantes da britagem. As frações mais finas apresentam grãos de quartzo ou fragmentos destes, cujas esfericidade e arredondamento vão diminuindo com a diminuição da granulometria; já as frações mais grossas apresentam agregados de grãos arredondados unidos por cimento de sílica e óxido de ferro.

Abstract – This research project studied two types of crushed sandstone from the Botucatu Formation in the São Carlos region in the state of São Paulo. The objective of this article was to present the methodology used to chemically and structurally characterize the sands by means of grain morphoscopy analysis and X-ray diffractometry and X-ray fluorescence tests for subsequent verification of uses. The tests and analyses performed allowed for the identification of the crystalline phases of the material - predominantly quartz - as well as the presence of chemical elements not necessarily common to Botucatu sandstones, such as potassium and aluminium. Morphoscopic analysis made it possible to check the sphericity, roundness and composition of the fragments resulting from crushing. The finer fractions have quartz grains or fragments of them, whose sphericity and roundness decreases as the grain size decreases, while the coarser fractions have aggregates with rounded grains bound together by silica and iron oxide cement.

Palavras-Chave –Difractometria de raios-X; Fluorescência de raios-X; Análise morfoscópica; Análise composicional.

¹ Graduando em Engenharia Civil, Universidade Federal de São Carlos, alexandre.petrini@estudande.ufscar.br

² Geól., Profa. Dra, Universidade Federal de São Carlos, (16) 3306-6442, denisebm@ufscar.br

³ Eng., Profa. Dra, Universidade Federal de São Carlos, (16) 3351-9665, bonuceli@ufscar.br

1. INTRODUÇÃO

A utilização na construção civil de arenitos silicificados da Formação Botucatu remonta a muitas décadas e partiu de lajes de calçada e blocos estruturais para usos em mosaicos portugueses e outros tipos de revestimentos. São litotipos com variações de coloração relacionada à cimentação, que é predominante de sílica (arenitos amarelos), com contribuições de óxido de ferro e manganês (arenitos vermelhos e acinzentados), relacionada aos derrames básicos da Formação Serra Geral na Bacia do Paraná. Essas rochas já possuem estudos geotécnicos feitos para diversas finalidades de aplicação (Portillo, 1988; Porto, 2016; Moraes *et al.*, 2018; Coelho & Menezes, 2022).

Os arenitos da formação Botucatu na região são predominantemente quartzo-arenitos, subordinadamente subarcóseos, predominando o quartzo (aprox. 97%), subordinadamente feldspato e traços de minerais pesados. Apresentam frações de areia média a grossa com grãos predominantemente arredondados a bem arredondados, e muito fina a fina com grãos subangulares a arredondados. (Wu & Caetano-Chang, 1992).

Na região de São Carlos - SP há diversas extrações tradicionais destes materiais em pedreiras que operam regularmente e atualmente há uma demanda por aproveitamento de todos os rejeitos, compostos por litotipos com colorações mescladas, porções pouco silicificadas, areias, aparas e areias resultantes da britagem. Uma das pedreiras da região abriu uma planta de beneficiamento de rochas para aproveitamento desses materiais, composta de uma unidade de britagem e peneiramento, que brita, entre outros, litotipos em areias com diâmetros inferiores a 2 mm para comercialização. Devido à sua origem artificial, estas areias ainda não haviam sido caracterizadas até a data de início deste trabalho.

A Difractometria de Raios-X (DRX) é um método bem estabelecido para a identificação das fases cristalinas que compõem um material, como rocha ou minerais. Nele ocorre a interação de um feixe de radiação de Raios-X que incide em um ângulo sobre os elétrons dos átomos do material, relacionado ao espalhamento coerente que causa a difração dos fótons, permitindo a medição destes no feixe difratado (Cavalcanti *et al.*, 2016). Este método foi utilizado para identificar as fases cristalinas e as condições mineralógicas das rochas por Petrolli & Mizusaki (2014) em arenitos da formação Botucatu, por Cavalcanti *et al.* (2016) em Granito Azul Sucuru e por Toscani & Campos (2017) em amostras de basaltos de formações brasileiras para estudo da viabilidade da rochagem.

Uma metodologia para a análise morfoscópica de amostras de sedimentos foi descrita por Henriques & Valadão (2017), na qual se utiliza estereomicroscópio, fotomicrografias e análise das imagens com o software "ImageJ" para identificar características dos grãos que compõem o sedimento como o arredondamento, índice de alongamento e circularidade.

Esse estudo propõe analisar as características físicas e químicas das amostras de rejeitos finos de extração e de moagem dos arenitos Botucatu silicificados por meio de difratometria e fluorescência de raios-x, e análise morfoscópica para contribuir para uma melhor caracterização mineralógica das rochas estudadas e posterior identificação de usos.

2. MATERIAIS E MÉTODOS

2.1. Coleta das amostras

As amostras de areia britada estudadas foram retiradas na planta de beneficiamento e peneiramento da pedreira Picinin, no município de São Carlos, SP e são compostas por fragmentos produzidos pela britagem de arenito vermelho e arenito amarelo silicificados da Formação Botucatu, que receberam códigos amostrais como indica a Tabela 1.

Tabela 1. Tipos de arenitos ensaiados.

Litotipo	Característica da amostra coletada	Código amostral
Arenito vermelho silicificado Botucatu	areia britada peneirada (<2,00mm)	AV
Arenito amarelo silicificado Botucatu	areia britada peneirada (<2,00mm)	AC

Fonte: Autoria própria

2.2. Análise Morfoscópica

2.2.1. Procedimento laboratorial

As amostras foram separadas por meio de peneirador de agitação em fases granulométricas correspondentes aos diâmetros estudados pelo peneiramento fino de um ensaio de análise granulométrica (2,00 mm; 1,2 mm; 0,6 mm; 0,42 mm; 0,25 mm; 0,15 mm; 0,0075 mm). Estas fases foram pesadas e armazenadas para a realização do ensaio de análise morfoscópica. A separação por faixas granulométricas permite evidenciar peculiaridades morfoscópicas dependentes do tamanho dos grãos, posto que é um material britado e os fragmentos englobam grãos e cimentação.

Desta forma, as amostras foram denominadas Ax-111, onde “111” é o número da peneira da qual a amostra em questão foi retida, e “Ax” remete à amostra da qual foi retirada (AV ou AC), com exceção das amostras de material fino que passa pela peneira #200, que foram denominadas AC/AV PASSA 200.

2.2.2. Tomada e tratamento de imagens com estereomicroscópio

Todas as amostras foram quarteadas: um quadrante foi destinado à tomada de imagens, outro foi guardado em cápsulas para réplica, e o restante foi destinado a ensaios de caracterização realizados juntos ao Laboratório de Caracterização Estrutural (LCE).

Para a realização da tomada de imagens através do uso de estereomicroscópio, e para garantir que cada amostra tenha uma quantidade de grãos estudados estatisticamente relevante, foi estipulado que, para cada fração granulométrica devem ser capturadas, no mínimo, 100 grãos em total.

O estereomicroscópio utilizado conta com lentes de magnificação de 2 e 4 vezes, iluminação ajustável superior e iluminação ajustável inferior. A tomada das imagens foi realizada utilizando um adaptador que permite acoplar um aparelho celular ao ocular do equipamento; o aparelho fotográfico utilizado é a câmera grande-angular de um iPhone 11, com abertura de f/1.8 e zoom digital de até 5x. Para cada amostra analisada foram tomadas fotos com iluminação inferior máxima e iluminação superior mínima, aumentando o contraste entre as partículas e o fundo (Figura 1), auxiliando na análise digital das imagens, e fotos com iluminação superior máxima, permitindo analisar o aspecto visual das partículas. Também foram tomadas fotos de aspectos visuais identificados nas partículas.

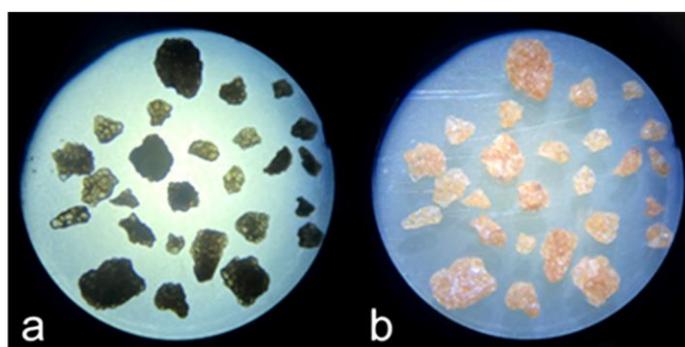


Figura 1. Fotos: a - grãos com alto contraste; b - iluminação superior da mesma amostra.

As imagens destinadas à análise digital foram alteradas usando o software gratuito Paint.net, sendo reduzidas à uma escala de cinzas e passando por um aumento de contraste.

2.2.3. Análise digital

Para a análise digital das imagens foi utilizado o software gratuito ImageJ, utilizado pela metodologia de Henriques & Valadão (2017), que permite computar os valores de arredondamento e circularidade de grãos identificados em imagens nos formatos PNG e JPEG. Após a imagem tratada ser aberta pelo programa, foi estabelecido um color threshold selecionando o método de Huang e alterando o limite de clareza até que todas as partículas de interesse contidas na imagem fossem claramente e individualmente cobertas pela máscara.

Com isso foi possível utilizar o programa para computar os valores desejados no formato de uma tabela ordenada pelas áreas das silhuetas das partículas, que foram então inseridas em planilhas referentes a todas as imagens de cada amostra.

2.2.4. Tratamento dos resultados

Com os dados obtidos, criamos tabelas e diagramas de dispersão das partículas estudadas (Tabela 2 e Figura 2) em função de seu arredondamento (eixo X) e esfericidade (eixo Y). Para facilitar a visualização dos diagramas, foi utilizado como fundo um diagrama elaborado por Kamel *et al.* (2018) que correlaciona a morfologia visual de uma partícula com seus valores morfológicos de esfericidade e arredondamento.

Tabela 2. Contagem das partículas de AC#16.

Esfericidade	0,8-1	0	0	0	0	0
	0,6-0,8	0	0	1	31	20
0,4-0,6	0	0	7	18	16	
0,2-0,4	0	0	2	6	1	
0-0,2	0	0	0	0	0	
	0-0,2	0,2-0,4	0,4-0,6	0,6-0,8	0,8-1	
	Arredondamento					

Fonte: Autoria própria.

Esfericidade vs Arredondamento - AC #16

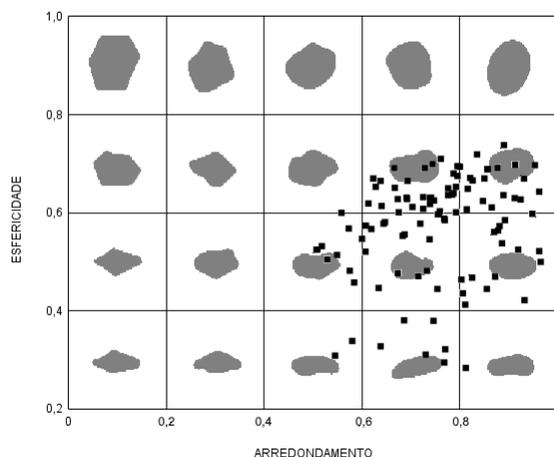


Figura 2. Diagrama de dispersão das partículas de AC#16.

2.3. Caracterização estrutural

2.3.1. Difratomia de Raios-X

Duas amostras de cada areia, referentes à fase mais grossa (aquela que é retida na peneira #16, abertura 1,2 mm), e à fase mais fina (passante na peneira #200, abertura 0,075 mm), foram destinadas à caracterização por Difratomia de Raios-X (DRX). Este ensaio foi realizado no LCE

da UFSCar no equipamento Bruker modelo D8 Advance ECO, seguindo os parâmetros de análise (padrão recomendado pelo laboratório):

- Ângulo de varredura: 0° a 290°
- Passo: $0,02^{\circ}$
- Duração: 20 minutos.

A análise dos difratogramas resultantes foi realizada no software EVA pelo 1º autor, que foi capacitado na realização desse procedimento pelo LCE.

2.3.2. Fluorescência de Raios-X

As mesmas amostras foram submetidas, em seguida, ao ensaio de fluorescência de raios-x (FRX), também no LCE. A análise de FRX permite identificar quais elementos (com massas entre sódio e urânio) estão presentes nas amostras, e em quais porcentagens. Estes resultados auxiliam na análise dos difratogramas de DRX, permitindo realizar uma busca de fases mais estrita e, portanto, mais precisa, em função de ser usado um filtro de elementos da tabela periódica para descartar ou evidenciar candidatos de fases cristalinas. O espectrômetro de fluorescência utilizado pelo LCE neste ensaio é um Shimadzu EDX-720.

3. RESULTADOS

3.1. Análise microscópica dos grãos

A observação microscópica dos grãos revelou que as frações mais grossas das amostras AC/V #16 a #60 (Ex. nas Figuras 3 e 4) são compostas de agregados de grãos arredondados cimentados. Nas frações menores são visíveis grãos individuais inteiros arredondados e quebrados com aspecto mais anguloso. Em vista deste fato, os valores de arredondamento e esfericidade medidos nas frações mais grossas pela análise morfológica digital são referentes a fragmentos de rocha britados, cujo aspecto é ditado pela dinâmica do processo de britagem, ao invés de grãos cujos coeficientes morfológicos são oriundos das condições prevalentes nas areias que passaram por litificação para se tornarem os arenitos Botucatu.

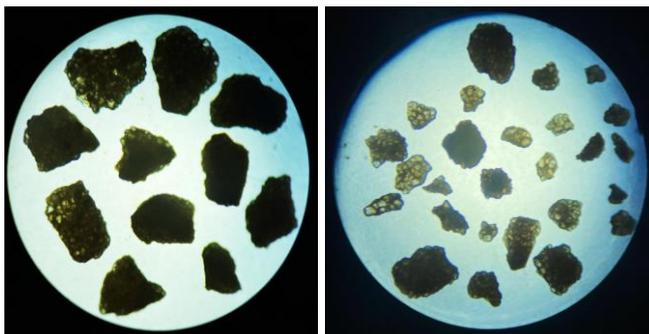


Figura 3. Imagens tomadas das amostras AC #16 (esquerda) e AV #16 (direita).

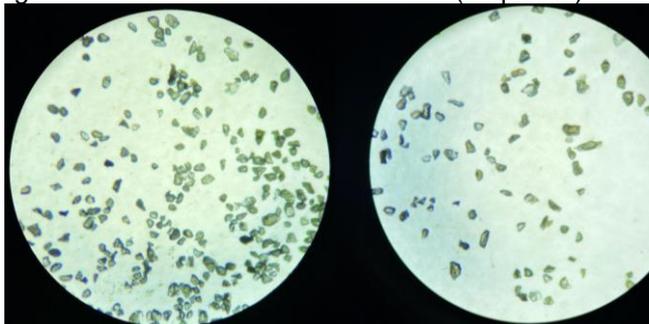


Figura 4. Imagens tomadas das amostras AC #200 (esquerda) e AV #200 (direita).

Em algumas das observações microscópicas foram relatados minerais distintos dos cristais de quartzo que compõem os grãos de rocha. Foi observada uma camada de material escuro com lustre metálico em algumas das amostras, possivelmente óxido de manganês (MnO_2) comumente encontrado precipitado nesses arenitos; em outras, foi observado um material amorfo branco, distinto da cimentação presente nas amostras.

3.2. Análise morfoscópica das partículas

A análise morfoscópica das partículas realizada por meio do software ImageJ retornou valores de arredondamento e esfericidade para cada partícula identificada nas imagens no formato de planilhas únicas a cada imagem.

Estas planilhas foram unificadas em planilhas referentes a cada fase amostral, onde cada partícula foi classificada em faixas de esfericidade de 0,2, indo de 0,2 até 1,0; e também de 0,2 para arredondamento, mas indo de 0 até 1,0.

Todas as fases granulométricas da areia britada de arenito vermelho apresentaram um índice de arredondamento predominantemente superior a 0,4 e um índice de esfericidade geralmente inferior a 0,8; como evidenciado nas Figuras 5 e 6. Do mesmo modo que o outro grupo amostral, todas as fases granulométricas da areia britada de arenito amarelo apresentaram um índice de arredondamento predominantemente superior a 0,4 e um índice de esfericidade geralmente inferior a 0,8; como evidenciado nos diagramas 8 a 13.

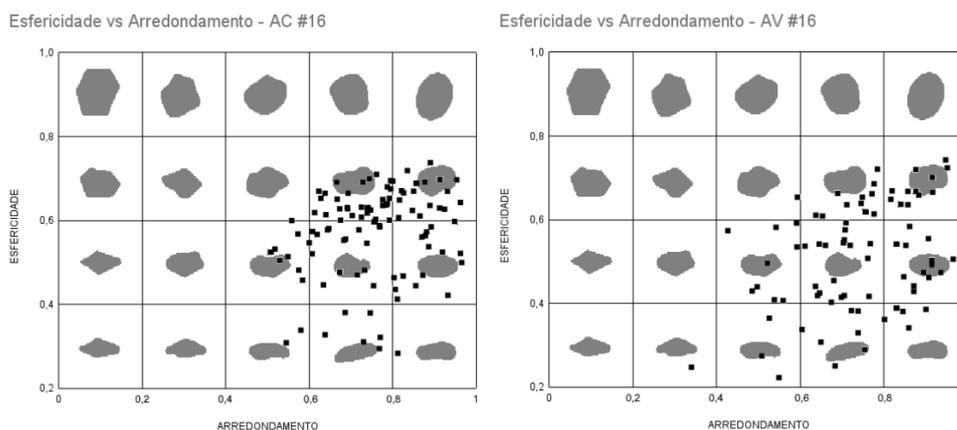


Figura 5. Dispersão esfericidade vs. arredondamento das amostras AC #16 (esquerda) e AV #16 (direita).

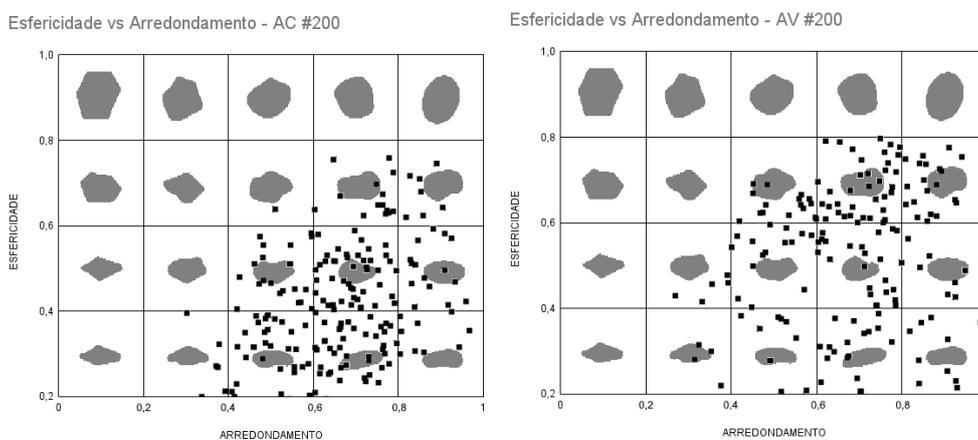


Figura 6. Dispersão esfericidade vs. arredondamento das amostras AC #200 (esquerda) e AV #200 (direita).

As partículas pertencentes às fases mais finas de ambos os grupos amostrais apresentaram tanto esfericidade quanto arredondamento inferiores àquelas de suas contrapartes mais grossas. Isto pode ter ocorrido em função da cimentação do arenito ser composta de sílica amorfa, que

rompeu ocasionalmente em lascas alongadas com bordas bem acidentadas, mesmo sendo o arenito Botucatu conhecido por seu elevado grau de esfericidade e arredondamento.

3.3. Difratometria de Raios-X

Dos ensaios de difratometria de raios-X, resultaram os difratogramas para a areia vermelha que passa pela peneira 200 (AV-PASSA 200), apresentados na Figura 7; para a areia amarela que passa pela peneira 200 (AC-PASSA 200), na Figura 8, para a areia vermelha retida na peneira 16 (AV-16), na Figura 9 e para a areia amarela retida na peneira 16 (AC-16), na Figura 10.

Com os picos identificados no difratograma referente à fração fina da areia britada de arenito Botucatu vermelho (AV- PASSA 200), foram identificadas 3 fases cristalinas candidatas: Quartzo (SiO_2), correspondendo aos picos mais bem definidos do difratograma; Cristobalita, um polimorfo de SiO_2 , correspondendo a picos amplos na faixa de 21,8 2θ e 35,9 2θ ; e feldspato com componente potássico, correspondendo a pequenos picos detectados no difratograma. (Figura 7).

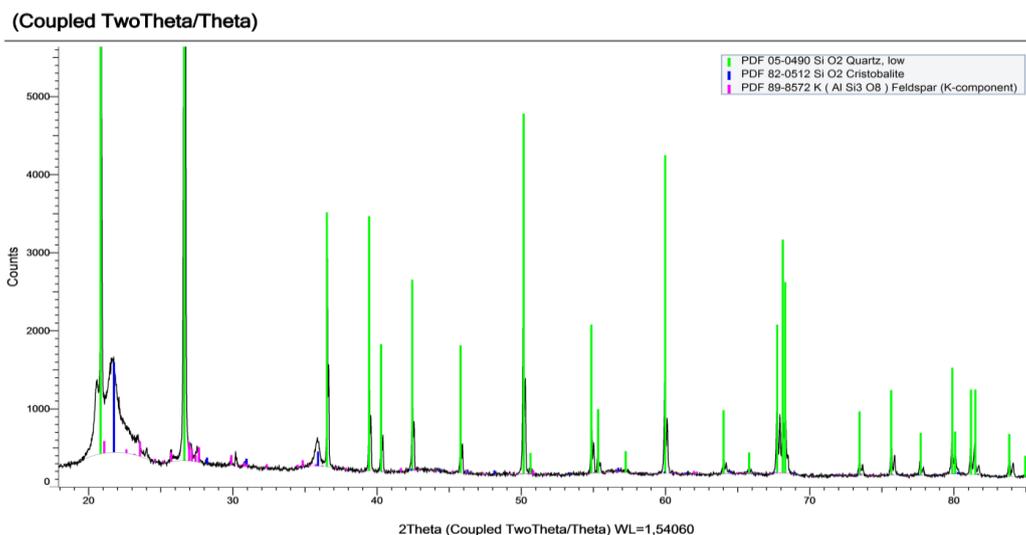


Figura 7. Difrátograma de raios-X da amostra AV-PASSA 200.

Na fração de material fino correspondente ao arenito amarelo (Figura 8), foram encontradas as mesmas fases cristalinas candidatas que àquelas encontradas na amostra AV-PASSA 200, com exceção das detecções de feldspato.

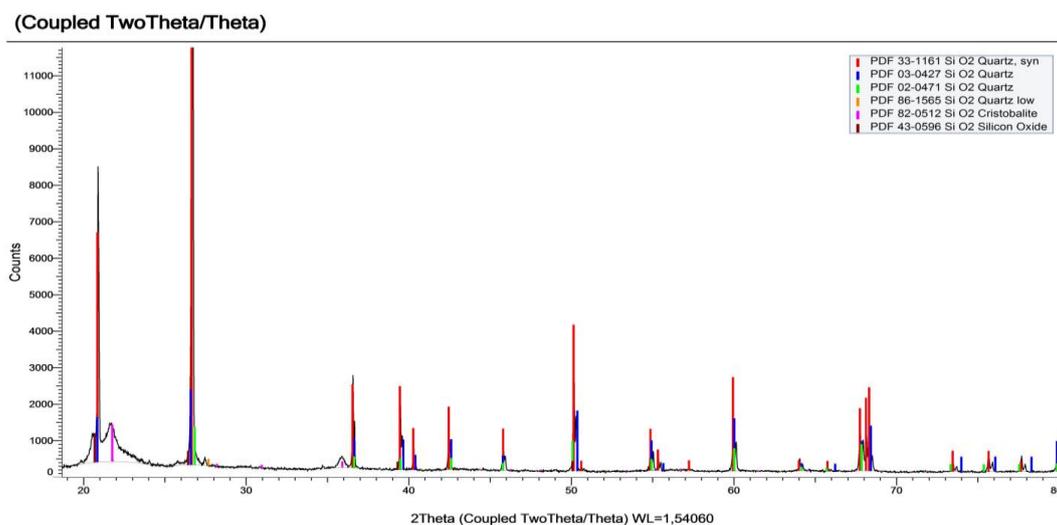


Figura 8. Difrátograma de raios-X da amostra AC-PASSA 200.

No difratograma da amostra AV-16, foi identificada a presença de quartzo (SiO_2) nos picos mais definidos e de seu polimorfo, a cristobalita, em picos mais difusos. (Figura 9).

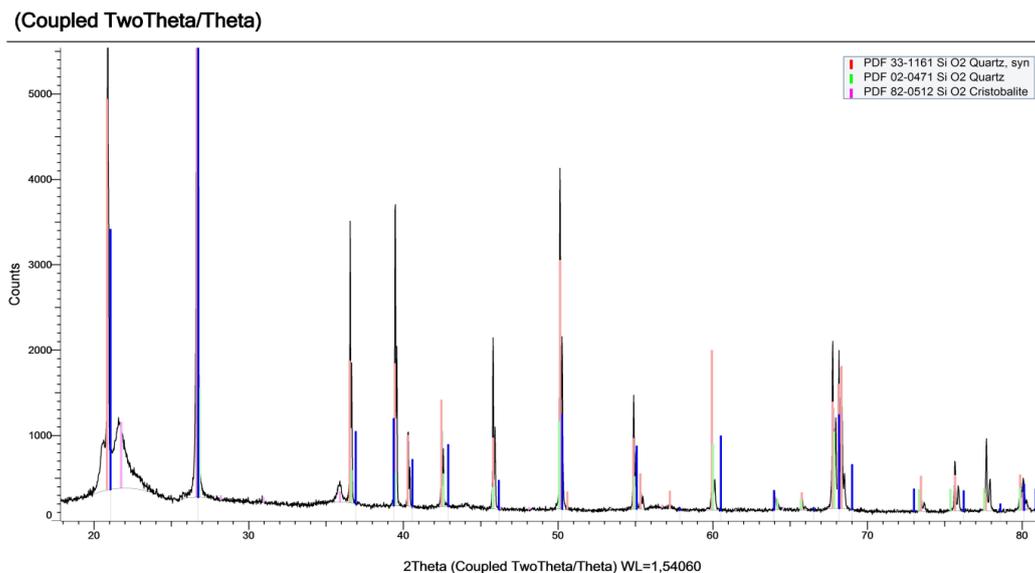


Figura 9. Difratoograma de raios-X da amostra AV-16.

No difratograma da amostra AC-16, foi identificada a presença de quartzo (SiO_2) nos picos mais definidos e de seu polimorfo, a cristobalita, em picos mais difusos. (Figura 10).

A detecção de picos correspondentes a feldspatos com componente potássico na amostra AV-PASSA 200 pode condizer com os teores de potássio encontrados na fluorescência de Raios-X; no entanto, não foram encontrados picos significativos condizentes com o mesmo em outras amostras. Isto pode ser explicado pelo fato que a nitidez de um pico é proporcional ao teor do material correspondente, que no caso das amostras estudadas é baixo para qualquer material diferente do quartzo e seus polimorfos.

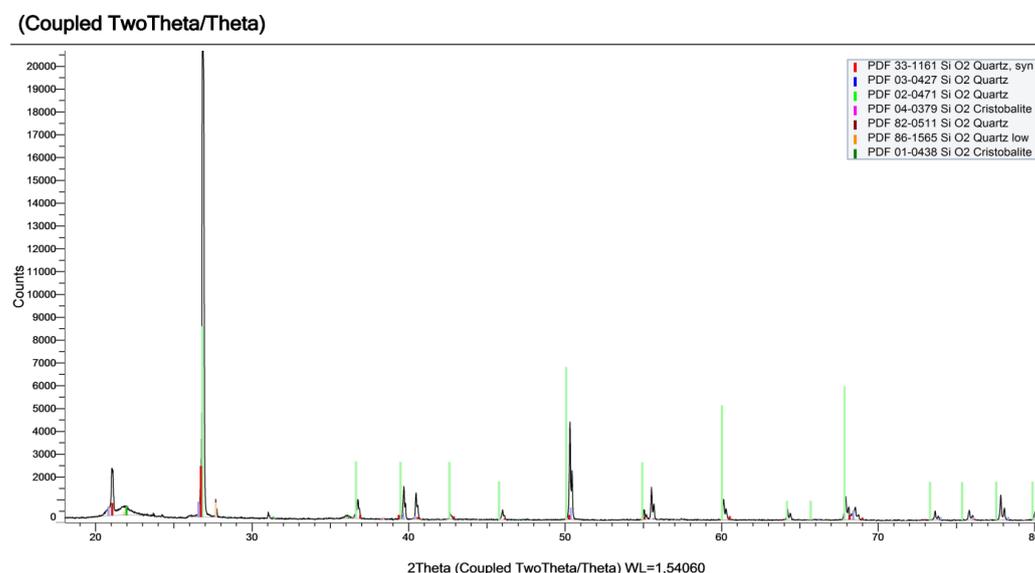


Figura 10. Difratoogramas de raios-X da amostra AC-16.

3.4. Fluorescência de Raios-X

Os elementos detectados pela fluorescência de raios-x em quantidades significativas (porcentagem de massa igual ou superior a 1%) estão explicitados na Tabela 3.

Tabela 3. Resultados de FRX das amostras de AC e AV.

	AC 16	AC 200	AV 16	AV 200
ELEMENTO	%	%	%	%
Si	89,174%	87,486%	92,638%	91,127%
Al	4,835%	4,739%	3,323%	2,913%
K	3,153%	3,488%	2,171%	2,536%
Fe	1,824%	3,178%	1,349%	2,606%

Fonte: Autoria própria.

Todas as amostras apresentaram alto teor de silício (Si), condizente com a predominância de quartzo (SiO_2), além de quantidades significativas de alumínio (Al), potássio (K) e ferro (Fe). O ferro variou de 1,349% (fração grossa do arenito vermelho) a 3,178% (fração fina do arenito amarelo), provavelmente na forma de óxidos responsáveis pela coloração e cimentação. O alumínio, inesperado, variou de 2,913% (fração fina do arenito vermelho) a 4,835% (fração grossa do arenito amarelo), possivelmente associado à cimentação por fluxo hidrotermal ou contaminação durante o beneficiamento, sendo mais presente nas frações grossas. O potássio oscilou entre 2,171% e 3,488%, com teores ligeiramente maiores nas frações finas do arenito amarelo.

O ensaio de FRX auxiliou a caracterização de fases cristalinas por difratometria de raios-x pois permitiu reduzir a lista de materiais candidatos à coincidência de picos em virtude da verificação da presença ou ausência de certos elementos.

4. CONCLUSÕES

As areias estudadas apresentaram um alto teor de quartzo, evidenciado pelos ensaios de DRX, FRX e observações durante o ensaio de tomada de imagens com estereomicroscópio. No ensaio de FRX foram medidos teores de massa de silício próximos de 88% e 92% para amostra AC e AV, respectivamente, e todos os difratogramas apresentaram picos bem definidos para o quartzo.

As amostras apresentaram teores de potássio e alumínio elevados que, apesar da possibilidade destes serem oriundos de contaminação, poderiam ser indícios das circunstâncias nas quais ocorreu a silicificação dos arenitos Botucatu. Por isso, seria recomendável para um estudo futuro realizar ensaios de DRX e FRX em amostras de arenito Botucatu sãs ou beneficiadas em um ambiente preparado de modo a garantir que não ocorra contaminação significativa.

O ensaio de análise microscópica dos grãos permitiu evidenciar visualmente e de forma preliminar os aspectos de arredondamento e esfericidade das partículas, também como sua composição estrutural, tal como o fato das frações mais grossas serem compostas por agregados de grãos cimentados por sílica e óxido de ferro.

A análise morfológica digital revelou que as partículas apresentaram valores de circularidade e esfericidade que foram sendo reduzidos junto com o diâmetro das frações. No entanto, nas amostras prevaleceram as faixas de arredondamento compreendidas entre 0,4 e 0,8, especialmente nas frações mais finas; no quesito de esfericidade, foi evidenciada uma maior variação, prevalecendo as faixas de 0,8 a 0,4 nas frações mais grossas, reduzindo gradualmente nas frações finas até a prevalência das faixas compreendidas de 0,4 para baixo. Esta redução dos valores de arredondamento e esfericidade em função da redução do diâmetro das partículas pode ser atribuída à cimentação dos arenitos, que ao ser rompida no processo de britagem gera lascas bem angulosas e alongadas.

A análise de aplicações viáveis destes materiais na indústria de construção civil à luz dos resultados deste estudo será objeto de artigo subsequente.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem à Coordenadoria de Iniciação Científica da Pró-reitoria de Pesquisa, Universidade Federal de São Carlos (UFSCar) e ao Márcio Picinin e ao LCE / UFSCar.

REFERÊNCIAS

CAVALCANTI, L. F.; OLIVEIRA, F. M. C.; MELO, E. B.; FERNANDES, A. C. Identificação dos minerais do Granito Azul Sucuru através da técnica da Difração De Raios X. *HOLOS*, v. 7, p. 32-39, 2016. <https://doi.org/10.15628/holos.2016.4450>

COELHO, A. M. D. P.; MENEZES D. B. Efeito da intempérie em arenitos silicificados: estudos sobre variação de características do arenito poroso vermelho após longos períodos de intempérie, por meio da alteração química. In: 17º Congresso Brasileiro de Geologia de Engenharia e Ambiental, 2022. Belo Horizonte, MG. *Anais [...]*. São Paulo: ABGE, 2022 artigo 47, 10p. Disponível em: <https://schenautomacao.com.br/cbge2022/anais/trabalhos.php>, Acesso em jul. 2023.

HENRIQUES, R. J; VALADÃO, C. V. Morfoscopia da fração areia de formações alúvio coluviais: O que revela a assinatura de grãos de quartzo. In: I Congresso Nacional de Geografia Física, 2017. Instituto de Geociências – UNICAMP, Campinas, SP. *Anais [...]*. Campinas: UFG, 2017.

KAMEL, A; SALEM, Z; CHEMINI, R; KHODJA, M; ALLIA, K. (2018). Characterization of natural sand proppant used in hydraulic fracturing fluids. *Particulate Science And Technology*, v. 6, p. 716-724. <https://doi.org/10.1080/02726351.2018.1438542>.

MORAES, D. C; PORTO A. C; MENEZES D. B; BONUCCELLI, T. J. Ensaios tecnológicos em arenitos silicificados: estudo de aproveitamento de rejeito da mineração. In: 16º Congresso Brasileiro de Geologia de Engenharia e Ambiental, 2018. São Paulo, SP. *Anais [...]*. São Paulo: ABGE, 2018 artigo 139, 10p. Disponível em: <http://www.schenautomacao.com.br/cbge/anais/trabalhos.php> , Acesso em jul. 2023.

PETROLI, L; MIZUSAKI, A. M. P. Formação Botucatu (Jurássico, Bacia do Paraná) – análogo como reservatório de hidrocarbonetos para as bacias da margem continental brasileira. In: XXVI Salão de iniciação científica da UFRGS, 2014. Porto Alegre, RS. *Anais [...]*. Porto Alegre: SIC, 2014.

PORTILLO, E. Z. F. *Considerações sobre a caracterização tecnológica, a exploração e os usos do arenito Botucatu silicificado na região de São Carlos – SP*. Dissertação de Mestrado (Geotecnia). EESC, USP. São Carlos, SP, 1988.

PORTO, A. C. *Sistematização de Ensaios tecnológicos para a montagem de uma litoteca de rochas ornamentais e agregados*. Relatório de Iniciação Científica, (PIBIT, CNPq), DECiv, CCET, UFSCar. São Carlos, SP, 2016.

TOSCANI, R. G. S; CAMPOS, J. E. G. Uso de pó de basalto e rocha fosfatada como remineralizadores em solos intensamente intemperizados. São Paulo, *Geociências*, v. 36, n. 2, p. 259 – 274, 2017.

WU, Fu-Tai; CAETANO-CHANG, M. R. Estudo mineralógico dos arenitos das formações Pirambóia e Botucatu no Centro-Leste do Estado de São Paulo. *Rev. IG*, São Paulo, v.13, n.1, 58-68, 1992.