Luisa Mariutti Cordero

Estudo dos processos sedimentológicos na Margem Continental
Sudeste do Brasil pelo uso de radionuclídeos naturais

Dissertação apresentada ao Instituto
Oceanográfico da Universidade de
São Paulo, como parte dos requisitos
para obtenção do título de Mestre em
Ciências, área de Oceanografia
Química e Geológica

Orientador: Prof. Dr. Rubens Cesar
Lopes Figueira

São Paulo, 2010

Universidade de São Paulo
Instituto Oceanográfico

Estudo dos processos sedimentológicos na Margem
Continental Sudeste do Brasil pelo uso de radionuclídeos
naturais

Luisa Mariutti Cordero

Dissertação apresentada ao Instituto Oceanográfico da Universidade
de São Paulo, como parte dos requisitos para obtenção do título de Mestre em
Ciências, Programa de Oceanografia Química e Geológica

Julgada em ____/____/____ por

Prof(a). Dr(a).

Conceito

Prof(a). Dr(a).

Conceito

Prof(a). Dr(a).

Conceito

"Ó mar salgado, quanto do teu sal
São lágrimas de Portugal!
Por te cruzarmos, quantas mães
choraram,
Quantos filhos em vão rezaram!
Quantas noivas ficaram por casar
Para que fosses nosso, ó mar!
Valeu a pena? Tudo vale a pena
Se a alma não é pequena.
Quem quer passar além do Bojador
Tem que passar além da dor.
Deus ao mar o perigo e o abismo
deu,
Mas nele é que espelhou o céu"

Mar Português, Fernando Pessoa

Agradecimentos

Aos meus pais Silvia e Antônio, pelo amor e carinho que me dedicaram até hoje e por acreditarem em mim e me apoiarem nas minhas escolhas, sempre;

Ao Henrique, por me incentivar e encorajar a enfrentar desafios. Por me ajudar prontamente em tudo o que precisei, e por existir na minha vida;

Ao Professor Rubens, pelos ensinamentos ao longo de todos estes anos de graduação e mestrado e ao Professor Michel, pelos ensinamentos, pelas contribuições e auxílio na elaboração deste trabalho;

À minha família, minha irmã Mariana, meus sobrinhos Bia e Luiz, meus primos e tios, meus avós Conceição e Luiz, Antônio e Santa, minha tia e madrinha, Biloca, a Elza e aos meus fofos Mig e Lilica;

Às minhas queridas amigas e colegas de sala, Ana Cláudia, Sayuri, Adriana, Nadine e Cinthia. Minhas tardes de estudo e trabalho foram, com certeza, mais agradáveis com vocês;

À Zezinha, Andréia, Hitomi e Jussara, pelos poucos momentos na pós e pelas muitas lembranças boas da graduação;

À minha amiga Paula Maria, que me escutou sempre que precisei e me ajudou a esfriar a cabeça nos cafés, teatros e cinemas...

À Lara, por me escutar muito, ajudar a enxergar o que não conseguia, enfrentar meus medos e correr atrás do que quero;

Ao Professor Moysés, pelas sugestões ao meu trabalho, por conceder o uso das amostras do laboratório e por sempre me emprestar a chave;

Ao pessoal da biblioteca, Cida, Wagner, Dona Rai e Claudia, sempre solícitos e dispostos a ajudar;

À Ana Paula e Silvana, da Secretaria de Pós-Graduação pelo esclarecimento de dúvidas e por auxiliarem em muitos dos procedimentos burocráticos do mestrado;

Ao Éder, por sempre me tirar das enrascadas informáticas;

À Andreza, pelo apoio, pelas contribuições e pela disposição em sempre ajudar e aconselhar;

Ao Elvis, pela ajuda no desenvolvimento do mestrado e principalmente pelos cafés para me manter acordada;

Ao Edílson, por me ajudar e principalmente, ensinar a fazer muitas das análises necessárias;

À Samara, pelo auxílio na contagem das amostras e por fornecer todos os dados de coleta;

Ao Paulo, por me ajudar principalmente nas análises granulométricas;

Ao seu Pedro, pelo trabalho de encadernação destes volumes;

À Didi e toda a sua equipe pelos chocolates quentes, vitaminas, capuccinos, mochaccinos e brigadeiros...

Ao Instituto Oceanográfico, que me proporcionou aprendizado e amadurecimento, minha segunda casa;

À CAPES, pela concessão da bolsa-auxílio.

Resumo

A Oceanografia, recentemente, vem fazendo uso dos mais diferentes radionuclídeos os quais funcionam como traçadores e auxiliam em uma maior compreensão dos processos de dinâmica oceânica, movimentação e deposição do fundo marinho. No Brasil, porém, há pouca informação a respeito dos teores de radionuclídeos naturais para a região costeira e oceânica e poucos são os estudos que utilizam esses radionuclídeos como ferramentas de compreensão de processos oceânicos. Neste contexto, este trabalho determinou atividades de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K por espectrometria gama e realizou análises granulométricas em amostras de sedimentos marinhos da Margem Continental Sudeste do Brasil. Os níveis variaram de 1,48 a 52,76 Bq kg⁻¹ para o ^{238}U , 10,63 a 49,45 Bq kg⁻¹ para o ^{232}Th e 65,45 a 873,28 Bq kg⁻¹ para o ^{40}K . Os resultados mostraram afinidade entre as frações finas do sedimento com ^{40}K e ^{232}Th . A razão $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ mostrou ser bom indicador de condições redox dos sedimentos. Verificou-se uma diferença nos níveis dos três radionuclídeos entre os setores ao norte e ao sul da Ilha de São Sebastião, com valores mais elevados ao sul. Estas diferenças foram relacionadas aos processos sedimentares dominantes em cada setor e aos agentes hidrodinâmicos responsáveis por tais processos.

Palavras-chave: espectrometria gama, radioatividade natural, geologia marinha, sedimentos marinhos.

Abstract

Recently, Oceanography has been using a variety of radionuclides as tracers to understand ocean dynamic processes, handling and disposal of sediments in seabed. In Brazil, there is little information about the contents of natural radionuclides on the coast and deep ocean and few studies using radionuclides as tools to comprehend oceanic processes. In this context, this work determined grain size and activities of ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K using gamma spectrometry in marine sediments from shelf and upper slope off Southeast Brazil. The levels ranged from 1,48 to 52,76 Bq kg⁻¹ for ^{238}U , from 10,63 to 49,45 Bq kg⁻¹ for ^{232}Th and, from 65,45 to 873,28 Bq kg⁻¹ for ^{40}K . ^{40}K and ^{232}Th showed good correlation with grain size (mud and clay content) and $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ ratios appeared to be good indicators of sediment redox conditions. There was a difference in levels of radionuclides between sectors northward and southward of São Sebastião Island, with higher values in south sector. These differences were related to differences in sedimentary processes in each sector and to the hydrodynamic agents responsible for these processes.

Key words: gamma spectrometry, natural radioactivity, marine geology, marine sediments

Sumário

Agradecimentos	iv
Resumo	vi
Abstract	vii
Lista de Tabelas	ix
Lista de Figuras	ix
Lista de Equações	xi
Lista de Anexos	xi
1. Introdução	1
1.1 A radioatividade natural	1
1.1.1 <i>Urânio</i>	3
1.1.2 <i>Tório</i>	6
1.1.3 Potássio	9
1.2 Processos Sedimentológicos e a Radioatividade: Aplicação em Estudos Oceanográficos no Mundo e no Brasil	11
2. Objetivos	16
3. Justificativa	17
4. Área de Estudo	18
4.1 Localização	18
4.2 Geologia e Geomorfologia	18
4.3 Oceanografia	20
5. Parte Experimental	24
5.1 Equipamentos	24
5.2 Coleta das Amostras	24
5.3 Caracterização Granulométrica	25
5.4 Determinação dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K	26
6. Resultados e Discussão	32
6.1 Radionuclídeos: Análise Exploratória	32
6.2 Radionuclídeos: variações granulométricas	38
6.3 Variação da Atividade dos Radionuclídeos Naturais na Área de Estudo	44
6.3.1 <i>Variações latitudinais</i>	46
6.3.2 <i>Variações espaciais</i>	49
6.3.3 <i>Processos sedimentares na Margem Continental Sudeste Brasileira</i>	61

7. Conclusão	66
8. Referências Bibliográficas	68

Lista de Tabelas

Tabela 1: Estimativas de concentração de urânio e tório em alguns tipos de rochas, em mg kg ⁻¹ (modificado de Faure, 1986):	9
Tabela 2: Quantidades médias de potássio, tório e urânio nas rochas da crosta Terrestre em gramas por toneladas ou em mg kg ⁻¹ (modificado de Mason, 1971):	10
Tabela 3: Valores certificados para ²³⁸ U, ²³² Th, ⁴⁰ K, em Bq kg ⁻¹ , e seus respectivos Intervalos de Confiança (I.C.) nos materiais de referência da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA).	27
Tabela 4: Fotopicos utilizados na determinação dos radionuclídeos estudados	28
Tabela 5: Valores médios de eficiência do detector em (%) obtidos para ²³⁸ U, ²³² Th e ⁴⁰ K.	29
Tabela 6: Valores de concentração da atividade dos radionuclídeos em Bq kg ⁻¹ em amostras de sedimento marinho da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil	32
Tabela 7: Valores dos parâmetros granulométricos em porcentagem para as amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil	38
Tabela 8: Comparação dos parâmetros estatísticos das atividades (Bq kg ⁻¹) e razões dos radionuclídeos ²³⁸ U, ²³² Th e ⁴⁰ K nas amostras coletadas nos setores ao norte e ao sul da Ilha de São Sebastião	45

Lista de Figuras

Figura 1: Série de decaimento do ²³⁸ U (Adaptado de IAEA, 2003).	5
Figura 2: Série de decaimento radioativo do ²³² Th (Adaptado de IAEA, 2003)... ..	7
Figura 3: Esquema de decaimento do isótopo radioativo ⁴⁰ K (IAEA, 2003)	10
Figura 4: Mapa da área de estudo compreendendo a Margem Continental Superior Sudeste do Brasil (Adaptado de British Oceanographic Data Centre, 2003)	18
Figura 5: Representação esquemática do giro subtropical do Atlântico Sul (Adaptado de Peterson & Stramma, 1991)	21
Figura 6: Pontos de coleta das amostras de sedimento marinho na Margem Continental Superior Sudeste do Brasil	25
Figura 7: <i>Boxplot</i> de concentração da atividade, em Bq kg ⁻¹ dos radionuclídeos ⁴⁰ K, ²³⁸ U e ²³² Th nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil	34
Figura 8: Histograma da concentração de atividade de ²³⁸ U das amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil	34

Figura 9: Histograma da concentração de atividade de ^{232}Th das amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	35
Figura 10: Histograma da concentração de atividade de ^{40}K das amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	35
Figura 11: Boxplot dos valores em porcentagem de areia, silte e argila para as amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil	39
Figura 12: Histograma dos teores de areia, em porcentagem, nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	40
Figura 13: Histograma dos teores de silte, em porcentagem, nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	40
Figura 14: Histograma dos teores de argila, em porcentagem, nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	41
Figura 15: Gráfico de correlação linear entre o teor de ^{238}U e a porcentagem de argila nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	42
Figura 16: Gráfico de correlação linear entre os teores de ^{232}Th e a porcentagem de argila nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	42
Figura 17: Gráfico de correlação linear entre os teores de ^{40}K e as porcentagens de lama nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	43
Figura 18: Gráfico de correlação linear entre os teores de ^{238}U e as latitudes de coleta das amostras sedimentares na Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	46
Figura 19: Gráfico de correlação linear entre os teores de ^{232}Th e as latitudes de coleta das amostras sedimentares na Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	47
Figura 20: Gráfico de correlação linear entre os teores de ^{40}K e as latitudes de coleta das amostras sedimentares na Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	48
Figura 21: Mapa de distribuição de ^{40}K em Bq kg^{-1} nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	49
Figura 22: Mapa de distribuição de ^{40}K normalizado pela lama nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil	50
Figura 23: Mapa de distribuição de ^{232}Th em Bq kg^{-1} nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil	53
Figura 24: Mapa de distribuição da razão $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$ nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	54
Figura 25: Distribuição de carbono orgânico (mg g^{-1} de peso seco) nos sedimentos de superfície da área de estudo (Mahiques <i>et al.</i> , 2004)	56
Figura 26: Mapa de distribuição de ^{238}U , em Bq kg^{-1} nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil	57
Figura 27: Mapa de distribuição da razão $^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$ nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.....	58

Figura 28: Mapa de distribuição das razões $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil	60
Figura 29: Síntese dos processos sedimentares identificados por este estudo na Margem Continental Sudeste do Brasil	65

Lista de Equações

Equação 1:	28
Equação 2:	30
Equação 3:	31

Lista de Anexos

Anexo 1: Valores de granulometria e atividade dos radionuclídeos	76
Anexo 2 : Gráficos de correlação linear	79

1.Introdução

1.1 A radioatividade natural

Certos núcleos atômicos de alguns isótopos possuem excedentes de energia que fazem com que estes apresentem instabilidade, desintegrando-se e emitindo fragmentos ou radiação para formar núcleos mais estáveis. Diz-se de um elemento que apresenta esta característica é radioativo e esta propriedade de desintegração chama-se radioatividade (IAEA,2003).

A radioatividade natural pode ser proveniente tanto de fontes cosmogênicas, bem como de elementos radioativos presentes na crosta e no manto da Terra. Existem na natureza cerca de 70 radionuclídeos e estes são encontrados principalmente entre os elementos pesados. Todos os elementos com um número atômico superior a 80 possuem isótopos radioativos, e todos os isótopos de elementos mais pesados do que o número 83 são radioativos. A radioatividade da Terra inclui três categorias principais: os radionuclídeos primordiais, com meias-vidas suficientemente longas que os permitiu sobreviver desde a sua criação; os radionuclídeos secundários, que são derivados do decaimento radioativo dos primordiais e os radionuclídeos cosmogênicos, que são continuamente produzidos por bombardeamento de núclídeos estáveis por raios cósmicos, principalmente na atmosfera (Eisenbud, 1997).

Acredita-se que os radionuclídeos primordiais sejam originários da formação da Terra. Já os radionuclídeos cosmogênicos são formados quando radiação, advinda do espaço atinge átomos de nitrogênio, oxigênio ou argônio presentes na atmosfera produzindo elementos radioativos que chegam à

superfície da Terra por processos de precipitação ou transporte de aerossóis (NRC, 1971).

A descoberta do primeiro radionuclídeo natural foi feita por Becquerel em 1896. Ele percebeu que o urânio emitia raios que atravessavam corpos opacos, velavam placas fotográficas e ionizavam gases, tornando-os condutores. Em seguida, M. Curie e M. Smith descobriram propriedades radioativas no tório e, a partir de então, muitos elementos radioativos foram descobertos (Pessoa, 1978).

Dentre o grupo dos radionuclídeos primordiais, destacam-se os mais de trinta radionuclídeos pertencentes às duas séries de decaimento radioativo liderados por ^{238}U e ^{232}Th e outros que não são pertencentes a séries de decaimento, como é o caso do ^{40}K , ^{87}Rb . Entre os radionuclídeos cosmogênicos, estão ^3H , ^7Be , ^{14}C e o ^{22}Na (UNSCEAR, 1982).

A radioatividade natural ocorre em todos os compartimentos do planeta desde a sua formação principalmente devido à existência dos radionuclídeos primordiais. Estes possuem, caracteristicamente, meias-vidas da ordem de centenas de milhões de anos.

As propriedades químicas dos elementos são determinadas em grande parte pelo número e arranjo dos elétrons atômicos. Estes números e arranjos são determinados pela carga nuclear, o que faz com que os isótopos de um mesmo elemento tenham propriedades químicas praticamente idênticas. (Harvey, 1969).

Parte dos radionuclídeos que ocorre nas rochas e nos solos é lixiviada pelas chuvas e transportada pelos rios até os oceanos. No ambiente oceânico,

tornam-se parte do ecossistema marinho, da água, dos sedimentos e da biota (Akram *et al.*, 2006).

Os radioisótopos introduzidos no ambiente marinho são submetidos aos mesmos processos físicos, químicos e biológicos dos quais participam seus isótopos estáveis de mesmo estado físico (NRC, 1971).

Desta maneira, uma vez no ambiente marinho, os radionuclídeos incorporados a diferentes matrizes participam dos processos sedimentares, de circulação oceânica e dos processos biológicos, comportando-se de maneira semelhante aos seus isótopos estáveis.

A grande importância do uso de radionuclídeos como traçadores é que estes, bem como os seus isótopos estáveis, podem ser identificados numa mistura normal dos isótopos deste elemento, da mesma maneira que são encontrados na natureza (Harvey, 1969).

Muitos elementos possuem isótopos radioativos naturais, porém só o potássio e os isótopos-filho das séries de decaimento do tório e urânio emitem radiação gama com energia e intensidade suficientes para serem medidas por espectrometria gama. Este fato se deve às relativas abundâncias destes radionuclídeos no meio ambiente. A média da abundância crustal destes elementos citados na literatura é de 2-2,5% para o K, 2-3 mg kg⁻¹ para o U e 8-12 mg kg⁻¹ para o Th (IAEA, 2003).

A seguir serão descritas as características dos elementos estudados:

1.1.1 Urânio

O urânio possui três isótopos naturais, sendo eles: ²³⁸U, ²³⁵U e ²³⁴U, cujas abundâncias isotópicas são de 99,274%, 0,7205% e 0,0056%. Os

isótopos ^{238}U e ^{235}U possuem propriedades radioativas e constituem séries de decaimento que terminam com os elementos estáveis ^{206}Pb e ^{207}Pb . As meias-vidas do ^{238}U e do ^{235}U são $4,46 \times 10^9$ e $7,13 \times 10^8$ anos, respectivamente (IAEA, 2003).

É o elemento mais pesado da natureza, sendo encontrado em todas as rochas e solos (Eisenbud, 1997). O urânio é relativamente solúvel como íon uranila, sob estado de valência VI, formando compostos solúveis em água, porém, sob o estado de valência IV é praticamente insolúvel e apresenta muitas similaridades com o tório (Faure, 1986).

A concentração de urânio nos sedimentos marinhos superficiais depende, portanto, do seu estado de oxidação e de taxas de sedimentação. Sob condições redutoras, por exemplo, os sedimentos podem ser muito enriquecidos (Church *et al.*, 1981).

É possível, contudo, que a concentração de urânio nos oceanos tenha relação com diversos fatores ao longo do tempo geológico, como a variação no volume dos oceanos, mas também em parte por contribuição de fontes hidrotermais próximas às regiões ativas das cordilheiras oceânicas (Bernat & Church, 1988).

A Figura 1 detalha a série de decaimento radioativo do ^{238}U :

Nuclídeo	Meia-vida	Maior energia radioativa (MeV) e intensidade*		
		α	β	γ
^{238}U	$4.468 \times 10^9 \text{ y}$	4.15(23%) 4.19(77%)	-	-
$\downarrow$				
^{234}Th	24.1 d	-	~0.103 (19%) 0.191(81%)	0.063 (3.5%) 0.093 (4%)
$\downarrow$				
^{234}Pa	1.18m	-	2.29 (98%)	0.765 (0.30%) 1.001 (0.60%)
99.86% $\downarrow$ 0.14% $\downarrow$				
^{234}Pa	6.7h	-	0.53 (66%) 1.13 (13%)	0.10 (50%) 0.70 (24%) 0.90 (70%)
$\downarrow$				
^{234}U	$2.48 \times 10^5 \text{ a}$	4.72 (28%) 4.77 (72%)	-	0.053 (0.2%)
$\downarrow$				
^{230}Th	$7.52 \times 10^4 \text{ a}$	4.62 (24%) 4.68 (76%)	-	0.068 (0.6%) 0.142 (0.07%)
$\downarrow$				
^{226}Ra	1602a	4.60 (5.5%) 4.78 (94.5%)	-	0.186 (4%)
$\downarrow$				
^{222}Rn	3.825d	5.49 (~100%)	-	0.510 (0.07%)
$\downarrow$				
^{218}Po	3.05m	6.11 (100%)	0.33 (100%)	-
99.98% $\downarrow$ 0.02% $\downarrow$				
^{214}Pb	26.8m	-	1.03 (6%)	0.295 (19%)
$\downarrow$				
^{218}At	2s	6.65 (6%) 6.70 (94%)	0.67 (94%)	-
$\downarrow$				
^{214}Bi	19.7m	5.61 (100%)	3.26 (100%)	0.609 (47%) 1.120 (17%) 1.764 (17%)
99.96% $\downarrow$ 0.04% $\downarrow$				
^{214}Po	164 μs	7.83 (100%)	-	0.799 (0.014%)
$\downarrow$				
^{210}Ti	1.32m	-	2.3 (100%)	0.296 (80%) 0.795 (100%) 1.31 (21%) 0.047 (4%)
$\downarrow$				
^{210}Pb	~22a	3.7 ($1.8 \times 10^{-8}\%$)	0.017 (85%) 0.064 (15%)	
$\downarrow$				
^{210}Bi	5.02d	4.93 (60%) 4.89 (34%) 4.59 (5%)	1.155 (100%)	-
-100% $\downarrow$ ~.00001% $\downarrow$				
^{210}Po	138.3d	5.30 (100%)	-	0.803 (0.0011%)
$\downarrow$				
^{206}Ti	4.19m	-	1.520 (100%)	-
$\downarrow$				
^{206}Pb	Estável	-	-	-

* Intensidade referente à porcentagem de desintegração para o nuclídeo, não está relacionando ao nuclídeo pai original da série.

Figura 1: Série de decaimento do ^{238}U (Adaptado de IAEA, 2003)

1.1.2 Tório

No ambiente marinho, os isótopos de tório mais comumente observados são: ^{232}Th , proveniente de materiais terrígenos ou detríticos; ^{228}Th e ^{234}Th , em razão da curta meia vida de ambos, são produzidos por autigênese na coluna d'água a partir do decaimento de ^{228}Ra e ^{238}U respectivamente; e o ^{230}Th , isótopo-filho do ^{234}U , cuja origem pode ser tanto terrígena como autigênica (Chung & Chang, 1996).

O ^{232}Th inicia uma série de decaimento radioativo que termina com o isótopo estável ^{208}Pb . Sua meia vida é de $1,39 \times 10^{10}$ anos. Durante o processo de decaimento radioativo tanto do ^{232}Th como do ^{238}U , ocorre a emissão de uma partícula alfa, formando o gás radônio – ^{228}Ra . Este fato pode gerar um desequilíbrio devido ao escape deste gás ou da perda de algum outro elemento da série ao longo do processo. Apesar de esses eventos serem raros, eles podem ocorrer, fazendo com que as atividades calculadas para o ^{232}Th e para o ^{238}U sejam reportadas como “equivalente de tório” (eTh) e “equivalente de urânio” (eU) (IAEA, 2003).

Este elemento é característico por sua alta insolubilidade sob condições naturais, em estado de valência IV, e este fato determina seu comportamento químico na água. Por isso, é muito difícil determinar concentrações de ^{232}Th na água do mar, por estas se encontrarem invariavelmente, abaixo dos limites de detecção.

Em geral, o material em suspensão nas águas oceânicas não é enriquecido em tório sendo que alguns tipos de partículas podem ser mais efetivas na retirada de íons da água em comparação a outras, estando o tório associado às frações detríticas (Bernat & Church, 1988).

A Figura 2 detalha a série de decaimento radioativo do ²³²Th:

Nuclídeo	Meia-vida	Maior energia radioativa (MeV) e intensidade*		
		α	β	γ
²³² Th	1.39x10 ¹⁰ a	3.95 (24%) 4.01 (76%)	—	—
↓				
²³⁸ Ra	5.75a	—	0.055 (100%)	—
↓				
²²⁸ Ac	6.13h	—	2.11 (100%)	0.34 (15%) 0.908 (25%) 0.96 (20%)
↓				
²²⁸ Th	1.913a	5.34 (28%) 5.42 (71%)	—	0.084 (1.6%) 0.214 (0.3%)
↓				
²²⁴ Ra	3.64d	5.45 (5.5%) 5.68 (94.5%)	—	0.241 (3.7%)
↓				
²²⁰ Rn	55.6s	6.30 (~100%)	—	0.55 (0.07%)
↓				
²¹⁶ Po	0,145s	6.78 (100%)	—	—
↓				
²⁶² Pb	10.64h	—	0.580	0.239 (47%) 0.300 (3.2%)
↓				
²¹² Bi	60.5m	6.05 (30%) 6.09 (70%)	2.25 (100%)	0.040 (2%) 0.727 (7%) 1.620 (1,8%)
↓				
64.0% ↓ ²¹² Po	304ns	8.78 (100%)	—	—
36.0% ↓ ²⁰⁶ Tl	3.1m	—	1.80 (100%)	0.511 (23%) 0.583 (86%) 0.860 (12%) 2.614 (100%)
↓				
²⁰⁸ Pb	estável	—	—	—

* Intensidade referente à porcentagem de desintegração para o nuclídeo, não está relacionando ao nuclídeo pai original da série.

Figura 2: Série de decaimento radioativo do ²³²Th (Adaptado de IAEA, 2003)

Os isótopos de tório encontram-se adsorvidos principalmente nos hidróxidos de ferro e magnésio, fósforo e carbonato de cálcio, evidenciando sua alta afinidade com as partículas orgânicas. Em geral, os isótopos de tório são carregados nas camadas superficiais pelo fitoplâncton e pelo zooplâncton e particularmente na presença de partículas de argila e hidróxidos nas proximidades do fundo ou das zonas costeiras (Bernat & Church, 1988).

Segundo Anjos *et al.* (2006), as razões eTh/eU podem ser usadas como um indicador de condições redox de um ambiente deposicional, sugerindo ainda uma relação destas razões com as flutuações do nível médio do mar. A Tabela 1 traz exemplos de fontes de tório e urânio em rochas, cujas concentrações destes elementos são variáveis. Observa-se que as concentrações tanto de urânio como de tório aumentam das rochas basálticas ou ultramáficas para as rochas de composição granítica. As progressivas diferenciações geoquímicas resultaram em uma concentração de urânio e de tório em rochas da crosta continental em comparação às rochas do manto superior.

As rochas graníticas, porém, são enriquecidas em tório com relação ao urânio provavelmente porque uma parte do urânio é removida em soluções aquosas como o íon uranila, cuja forma é $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ (CHUNG *et al.*, 1996) durante os estágios finais de cristalização dos magmas graníticos (Faure, 1986).

Tabela 1: Estimativas de concentração de urânio e tório em alguns tipos de rochas, em mg kg⁻¹ (modificado de Faure, 1986):

<i>Tipo de Rocha</i>	<i>Urânio</i>	<i>Tório</i>
Condritos	0,01	0,04
Acondritos	0,07	0,36
Meteoritos de Ferro	0,008	0,01
Rochas Ultramáficas	0,014	0,05
Gabro	0,84	3,8
Basalto	0,43	1,6
Rochas Graníticas	4,8	21,5
Xisto	3,2	11,7
Arenito	1,4	3,9
Rochas Carbonáticas	1,9	1,2
Gnaiss Granítico	3,5	12,9
Granulito	1,6	7,2

1.1.3 Potássio

O potássio é um metal alcalino pertencente à família 1A com três isótopos naturais, sendo eles: ^{39}K , ^{40}K e ^{41}K . O ^{40}K é um isótopo radioativo e possui meia vida de $1,3 \times 10^9$ anos, ocorrendo com uma abundância isotópica de 0,0119%. Uma vez que no meio ambiente este radionuclídeo ocorre em uma proporção fixa em relação ao K, suas emissões gama podem ser usadas na estimativa do total de potássio presente em um dado local. O ^{40}K decai para ^{40}Ar , estável, com emissão de raios gama de 1,46 MeV (10,7%). Ele também pode decair para o isótopo ^{40}Ca , estável, através da emissão de uma partícula

beta (89,3%), com energia de 1,314 MeV (IAEA,2003), como é apresentado na Figura 3:

Figura 3: Esquema de decaimento do isótopo radioativo ^{40}K (IAEA,2003)

O potássio é um dos oito elementos mais abundantes na crosta terrestre e o maior constituinte de muitos minerais formadores de rochas, como as micas, feldspatos, feldspatóides, argilominerais e alguns minerais evaporíticos. (Faure,1986). A Tabela 2 apresenta valores comparativos de potássio, urânio e tório nas rochas da crosta terrestre:

Tabela 2: Quantidades médias de potássio, tório e urânio nas rochas da crosta Terrestre em gramas por toneladas ou em mg kg⁻¹ (modificado de Mason, 1971):

<i>Elemento</i>	<i>Média da crosta</i>	<i>Granito</i>	<i>Diabásio</i>
K	25.900	45.100	5.300
Th	7,2	52	2,4
U	1,8	3,7	0,52

1.2 Processos Sedimentológicos e a Radioatividade: Aplicação em Estudos Oceanográficos no Mundo e no Brasil

Os radionuclídeos naturais e artificiais têm sido bastante estudados em diversas regiões oceânicas e costeiras do mundo. Muitos destes estudos são voltados para a execução de inventários de radioatividade natural e artificial (Godoy *et al.*, 1997), proveniente da contaminação radioativa originária de acidentes e testes nucleares (Abdi *et al.*, 2009) e do lançamento de bombas atômicas.

Há também pesquisa voltada na aplicação de estudos de processos oceanográficos. Estas, em geral, utilizam os radionuclídeos como ferramentas para cálculos de taxas de sedimentação, descarga de águas subterrâneas e estabelecimento de associações entre características geológicas de amostras sedimentares e teores de radionuclídeos (Cukrov *et al.*, 2009). Estas associações, quando confirmadas, podem ser usadas como ferramentas em estudos de padrões deposicionais.

Papaefthymiou *et al.* (2007) estudaram a distribuição de radionuclídeos naturais e do ^{137}Cs no Porto de Patras, na Grécia. Foram correlacionados os teores dos isótopos encontrados no porto com a granulometria e com a intensidade da atividade portuária na região. Houve uma nítida diferenciação nos teores de ^{40}K para as áreas de intenso tráfego de navios, com sedimentos predominantemente grossos e áreas de baixo fluxo, com sedimentos lamosos. Verificou-se, portanto, a afinidade das frações finas (preferencialmente silte e argila) com o ^{40}K e também com o ^{232}Th . Por outro lado, verificou-se também uma correlação boa entre as areias e os minerais argilosos com o ^{238}U e o ^{226}Ra . Por fim, concluiu-se que as propriedades granulométricas e as

atividades dos radionuclídeos estudados respondiam às diferenças de intensidade na atividade portuária local.

Ligero *et al.* (2001) utilizaram radionuclídeos como ferramenta na investigação de processos oceanográficos através da determinação, por espectrometria gama, de teores de ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{40}K e ^{137}Cs presentes em sedimentos marinhos na baía de Cádiz, Espanha. Entre as variáveis correlacionadas com os teores destes elementos estavam granulometria, teor de matéria orgânica e densidade aparente. A separação das variáveis em dois grupos, pelos tipos de baía (externa e interna) foi um ponto importante a destacar. Notou-se que os valores de radionuclídeos e o teor de carbono orgânico da baía interna foram superiores aos da baía externa. A única variável que se comportou de maneira contrária foi a densidade aparente. Os resultados, obtidos através de análises multivariadas, mostraram ser possível determinar as características granulométricas de sedimentos usando informações radiométricas. Esta ferramenta permitiu obter um mapa de distribuição granulométrica a partir da distribuição dos teores de radionuclídeos locais, e segundo o autor, com uma vantagem em termos de custo e tempo, se comparado aos métodos tradicionais.

Wijngaarden *et al.* (2002) estudaram as relações entre as frações areia, lama, silte e argila e a presença de ^{40}K , ^{232}Th e ^{238}U no sudoeste dos estuários Rhine-Meuse nos Países Baixos. O trabalho também correlacionou a idade das amostras, a sua procedência (Rhine versus Meuse) e o teor de radionuclídeos presentes. Os teores de ^{40}K foram relacionados com a procedência, enquanto os teores de ^{232}Th e ^{238}U foram relacionados com a idade, composição mineralógica, matéria orgânica e teor de carbonato. Pôde-se concluir nesse

trabalho que a sedimentologia radiométrica fornece uma ferramenta confiável de caracterização do sedimento.

Akram et al. (2006) determinaram as concentrações de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{40}K nos sedimentos marinhos superficiais no Mar da Arábia através de espectrometria gama. Nenhum radionuclídeo artificial foi detectado nas amostras coletadas. Como não existiam dados pretéritos de radionuclídeos tanto naturais como artificiais na costa do Paquistão, os resultados deste trabalho ficaram como base de informação para este local em caso de acidentes ou testes nucleares.

No Brasil, os trabalhos que utilizam radionuclídeos como ferramenta no estudo de processos oceanográficos via de regra são voltados para cálculos de taxas de sedimentação, descarga de águas subterrâneas (Burnett *et al.*, 2008), níveis de radioatividade natural em águas subterrâneas (Godoy *et al.*, 2006), geocronologia (Mahiques *et al.*, 2008), elaboração de inventários de radionuclídeos artificiais (Figueira *et al.*, 2000,2006) e levantamento de níveis e doses em praias com radioatividade natural elevada (Alencar&Freitas, 2005). Entre os trabalhos que utilizaram radionuclídeos como ferramenta no entendimento de origem e transporte de sedimentos, destacam-se os de Figueira *et al.* (2006) e Anjos *et al.* (2006).

Pereira *et al.* (1986) fizeram um levantamento dos teores de potássio, e os equivalentes de urânio e tório, sua respectiva produção de calor radiogênico e a condutividade termal em 80 amostras sedimentares coletadas em duas áreas de sedimentação distintas: A Plataforma Continental de São Paulo e o Complexo Estuarino-Lagunar de Cananéia-Iguape. Foram encontradas relações positivas entre os padrões granulométricos das amostras e os valores

de produção de calor, sendo que, quanto mais finos os sedimentos, maior a produção de calor. A mesma relação positiva foi observada para cada radioisótopo analisado.

Anjos et al (2006) estudaram a origem e o transporte de sedimentos das praias dos estados de Espírito Santo, Rio de Janeiro e São Paulo por meio de teores de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K e as respectivas razões eTh/eU e eTh/K . Os resultados obtidos confirmaram as características dos mapeamentos geológicos dos depósitos quaternários, mostrando que a espectrometria gama pode ser usada como uma ferramenta para o estudo da origem e transporte de sedimentos e as razões eTh/eU são bons indicadores de condições redox de ambientes deposicionais.

Figueira et al. (2006) estudaram a distribuição dos radionuclídeos artificiais ^{137}Cs , ^{238}Pu e $^{239+240}\text{Pu}$ na Plataforma Continental Sudeste do Brasil. Foram encontradas relações entre as profundidades de coleta dos sedimentos analisados e as concentrações dos radionuclídeos estudados. No caso do ^{137}Cs , os valores encontrados foram maiores nas amostras coletadas em profundidades menores de 100 m. Os isótopos de plutônio exibiram valores maiores com o aumento da profundidade. O ^{137}Cs apresentou uma boa relação com tamanho de partículas (silte e argila) sendo este fato atribuído à química deste elemento e a seus processos de fixação nas partículas sedimentares.

Foram observadas também variações geográficas na distribuição destes isótopos. Dois setores, ao norte e ao sul da Ilha de São Sebastião, foram identificados com grandes diferenças nos valores de atividades dos radionuclídeos, sendo que os maiores valores foram encontrados ao sul. Os resultados indicaram que os radionuclídeos são transportados pelos principais

agentes hidrodinâmicos atuantes na região. Os valores encontrados neste trabalho passaram a ser referência em virtude da escassez de dados existentes para o Atlântico Sul.

Santos et al (2008) abordaram a importância, a utilidade e as limitações do uso de radionuclídeos em pesquisas voltadas ao gerenciamento costeiro através do levantamento e análise de trabalhos que estudam essa temática no Brasil. O uso de radioisótopos como traçadores de processos sedimentares e a descarga de água subterrânea costeira foram os principais tópicos analisados. Também foram abordados trabalhos sobre contaminação radioativa e áreas com radioatividade natural elevada. Este trabalho reforça que as investigações na área de radioatividade natural ainda são muito escassas, sendo necessária uma ampliação no número de pesquisas que possam elucidar processos importantes para o gerenciamento ambiental em detrimento de trabalhos cujas abordagens sejam somente descritivas de qualidade ambiental.

2.Objetivos

O objetivo deste trabalho foi elaborar um diagnóstico da área de estudo, a Margem Continental Superior Sudeste do Brasil, usando como ferramenta teores de radionuclídeos naturais presentes nos sedimentos superficiais, e uma análise de sua variabilidade geográfica. As atividades dos isótopos estudados podem nos dar subsídios para compreender os processos sedimentológicos da região.

Assim sendo, os objetivos específicos deste trabalho foram:

- a) Determinar os níveis de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de sedimentos marinhos da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil;
- b) Estabelecer um banco de dados de níveis de radionuclídeos naturais (^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K) para a região, comparando-os com valores de outras regiões oceânicas do mundo;
- c) Estudar os processos sedimentológicos predominantes na Margem Continental Sudeste do Brasil usando como ferramentas os níveis de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K assim como as suas variações e associações a parâmetros tais como: teores granulométricos e região de coleta das amostras.

3. Justificativa

A falta de dados de atividades de radionuclídeos naturais em sedimentos marinhos na Margem Continental Sudeste Brasileira e sua devida aplicação a estudos de dinâmica sedimentar na região são uma demanda a ser suprida. Nesse contexto, a determinação dos níveis de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K bem como sua associação à sedimentação vem contribuir de maneira importante para o conhecimento dos processos que ocorrem na região.

O Laboratório de Espectrometria Gama (LEG) do Instituto Oceanográfico da Universidade de São Paulo vem, ao longo do tempo, realizando trabalhos de taxa de sedimentação em regiões do litoral de São Paulo e da Plataforma Continental, por meio dos radionuclídeos ^{210}Pb e ^{137}Cs , além de desenvolver metodologias para determinação de naturais em amostras de sedimento marinho, tais como: ^7Be , ^{230}Th , ^{234}Th , ^{241}Am entre outros.

A determinação destes radionuclídeos possibilita também a expansão no repertório de radionuclídeos analisados. Este estudo contribui, assim como já foi realizado em outras regiões, para a compreensão da dinâmica deposicional e dos processos oceânicos dominantes na região.

4. Área de Estudo

4.1 Localização

A área de estudo insere-se na Margem Continental Sudeste do Brasil, entre as regiões de Cabo Frio (RJ) ao Cabo de Santa Marta Grande (SC), estando delimitada pelas latitudes $22^{\circ}55'S$ e $30^{\circ}18'S$ e longitudes $040^{\circ}46'W$ e $048^{\circ}30' W$ (Figura 4).

Figura 4: Mapa da área de estudo compreendendo a Margem Continental Superior Sudeste do Brasil (Adaptado de British Oceanographic Data Centre, 2003)

4.2 Geologia e Geomorfologia

Na Margem Continental Sudeste Brasileira, a plataforma continental apresenta largura variável entre 73 e 231 km com uma inclinação entre 1:656 e

1:1333, sendo que a quebra da plataforma está localizada entre 120 e 180 metros de profundidade. Esta foi dividida em três compartimentos: plataforma continental interna, média e externa em função das mudanças de declividade observadas. As isóbatas aproximam-se em direção ao norte, o que significa uma maior inclinação, resultando em uma plataforma estreita nas proximidades do Cabo Frio (Zembruski, 1979).

Sua origem está vinculada aos processos mesozóicos / cenozóicos de desenvolvimento das margens do tipo Atlântico e por consequência, à origem do Oceano Atlântico, cuja evolução geotectônica condiciona toda a costa leste sul-americana (Tessler, 2001).

Entre as feições orográficas mais destacadas da borda atlântica do continente sul-americano está o complexo da Serra do Mar, que se estende do Rio de Janeiro ao norte de Santa Catarina (Almeida & Carneiro, 1988).

Em decorrência do soerguimento do complexo da Serra do Mar, a maior parte dos sistemas de drenagem corre em direção ao interior, alimentando as bacias hidrográficas do Rio Paraná e do Rio da Prata, e apenas pequenos rios correm diretamente em direção ao oceano, drenando granitos, gnaisses e migmatitos pré-cambrianos (Mahiques *et al*, 2004).

O complexo da Serra do Mar sofreu processo de recuo erosivo diferencial condicionado pelas estruturas e unidades litológicas pré-cambrianas, que contribuiu para o fornecimento de detritos grossos que se acumularam na Bacia de Santos.

No seu extremo sul, estão preservadas rochas arqueanas, que abrangem desde gnaisses, migmatitos e granulitos até rochas ultramáficas e metaultramáficas, desde o bloco neoproterozóico Luís Alves (SC-PR) até o

litoral sul de São Paulo. As faixas Paraíba do Sul e Ribeira são compostas por associações complexas de gnaises e xistos. Na região do planalto paranaense afloram abundantes granitos neoproterozóicos (Almeida & Carneiro, 1988).

Os sistemas de drenagem nas áreas emersas têm suas áreas limitadas pela distância das vertentes da Serra do Mar voltadas para o oceano. No setor ao norte da Ilha de São Sebastião, a Serra do Mar mergulha sobre o oceano, restringindo a extensão das planícies costeiras e das bacias de drenagem. No setor ao sul, o recuo gradativo da Serra do Mar condiciona planícies costeiras maiores com maiores bacias de drenagem (Mahiques, 1998).

A Ilha de São Sebastião marca uma modificação tanto no padrão geomorfológico, em decorrência de uma brusca inflexão da linha de costa, passando de sudoeste-nordeste para oeste-leste, como no de deposição sedimentar (Mahiques *et al.*, 1999).

A sedimentação na área de estudo é essencialmente terrígena, sendo composta de areias quartzosas e lamas. Ao sul da Ilha de São Sebastião, há um aumento gradual de lama com o aumento das profundidades da plataforma. No setor ao norte da Ilha de São Sebastião, ocorre uma sedimentação heterogênea com respeito às frações granulométricas, com depósitos de lama na plataforma interna (Mahiques *et al.*, 2004).

4.3 Oceanografia

Os movimentos oceânicos na maior parte da Margem Continental Sudeste do Brasil são forçados pelos ventos, pela Corrente do Brasil e pelas marés, em diferentes escalas de tempo. A Corrente do Brasil, presente na parte mais externa da Margem Continental Sudeste do Brasil, é a corrente de

contorno oeste associada ao giro subtropical do Atlântico Sul. Forma-se a partir do ramo setentrional da Corrente Sul Equatorial (CSE) onde esta se bifurca, nas proximidades de 10°S, formando também a Corrente Norte do Brasil (CNB). A CB flui para sudoeste, acompanhando a linha de quebra da plataforma continental até 33-38°S onde conflui com a Corrente das Malvinas (Castro Filho, 1996; Castro Filho et al., 2006). Nesta junção, conhecida como confluência Brasil-Malvinas (CBM), ambas as correntes são defletidas da margem continental e fluem para sudeste (Chiessi et al., 2007).

A Figura 5 mostra a Corrente do Brasil no giro subtropical do Atlântico Sul:

Figura 5: Representação esquemática do giro subtropical do Atlântico Sul (Adaptado de Peterson & Stramma, 1991)

Entre as latitudes de 22°S e 28°S a CB apresenta um padrão meandrante, associado a uma mudança de orientação na linha de costa e ao gradiente de topografia de fundo; do Cabo Frio, cuja plataforma é estreita e abrupta, à Bacia de Santos cuja plataforma é mais larga e suave. Estes meandros foram associados aos fenômenos de ressurgência intensos nas regiões próximas ao Cabo Frio (22°S) e à Ilha de São Sebastião (24°S).

Acredita-se que a ressurgência provocada pelo vento e pela quebra da plataforma seja responsável pelo afloramento da Água Central do Atlântico Sul, rica em nutrientes, para a zona eufótica na plataforma interna (Campos *et al.*, 2000;2005).

Os meandros da CB são os fatores responsáveis, portanto, pelas modificações nos processos de sedimentação entre Cabo Frio e a Ilha de São Sebastião, sendo que baixas taxas de sedimentação foram encontradas em regiões com fluxo dominante em direção à costa e por outro lado, taxas mais elevadas foram determinadas nas regiões com fluxo dominante em direção ao largo. Ou seja, o meandramento da CB controla os processos sedimentares da plataforma externa e do talude superior do embaiamento de São Paulo (Mahiques *et al.*, 2002).

As massas de água presentes na Plataforma Continental Sudeste do Brasil, conforme descrito por Miranda (1982) são um resultado da mistura entre:

- Água Tropical (AT), quente e salina ($T > 20^{\circ}\text{C}$ e $S > 36,4$) transportada para sudoeste na camada superficial (0-200m) da Corrente do Brasil (CB), sobre o Talude Continental, nas proximidades da quebra da Plataforma Continental;

-Água Central do Atlântico Sul (ACAS), relativamente fria ($T < 20^{\circ}\text{C}$ e $S < 36,4$) transportada também para o sul-sudoeste ao longo do talude continental na camada inferior da CB (200-500m), próximo à quebra da plataforma continental;

-Água Costeira (AC), resultante da mistura da descarga continental de água doce com águas da plataforma continental, sendo a menor salinidade ($S < 34$) das águas da PCSE devida, principalmente, ao efeito combinado dos muitos pequenos e médios rios existentes na região.

De um modo geral, a dinâmica da plataforma interna e média é determinada pela atuação destas três massas d'águas, que apresentam uma sazonalidade muito forte (Castro Filho *et al.*, 1987).

Entre novembro e março, a ACAS, fria e densa, penetra junto ao fundo marinho em direção à região costeira, induzindo o deslocamento da AC, menos densa, para as porções mais externas da plataforma e mantendo a AT relativamente distante da linha de costa. Neste período, que corresponde à estação chuvosa no sudeste do Brasil, há também um aumento no fluxo de terrígenos para a AC que os transporta em direção às regiões mais profundas da plataforma.

De março a novembro, o recuo da ACAS em direção à plataforma externa e ao talude superior, a AT passa a ter maior influência sobre a plataforma continental e a AC não avança mais sobre a plataforma externa (Mahiques *et al.*, 1999).

5. Parte Experimental

5.1 Equipamentos

Para a determinação dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K , nas amostras de sedimento marinho foram utilizados os seguintes equipamentos e softwares:

- Espectrômetro de raios gama, constituído de um detector de Germânio Hiperpuro (HPGe), modelo GEM 50P da EGG&ORTEC, com resolução de 1,9 keV para o pico de 1332,3 keV do ^{60}Co , acoplado a um sistema do tipo “buffer” marca SPECTRUM MASTER da EG&ORTEC modelo 919, ligado a um microcomputador do tipo IBM-PC 486 e eletrônica associada;
- Software MAESTRO II da EG&ORTEC para análise dos espectros gama.

5.2 Coleta das Amostras

A coleta das amostras foi realizada a bordo do Navio Oceanográfico “Prof. W. Besnard” nos projetos PADTC, REVIZEE e Paleoprodutividade entre os anos de 1997 e 2004. Foi utilizado um amostrador tipo *box corer*. Estas amostras compõem um banco de amostras no Instituto Oceanográfico da USP e foram previamente sub-amostradas em intervalos de 2 em 2 cm, pesadas, congeladas e liofilizadas.

Para este trabalho foram selecionadas as amostras pertencentes à primeira fração, ou seja, as sub-amostras do intervalo de 0 a 2 cm (topo). No total foram selecionadas 108 amostras, todas analisadas para radionuclídeos e 73 analisadas para granulometria.

As sub-amostras selecionadas tiveram uma massa mínima de 30g para realização dos procedimentos de granulometria e de contagem gama.

segundo a escala de Wentworth (1922) e as amostras foram classificadas segundo Shepard (1954) através do uso do programa *Labse.V02*.

5.4 Determinação dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K

Para a determinação dos radionuclídeos naturais ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K foram seguidas as seguintes etapas:

- Calibração do detector: Como rotina do laboratório de espectrometria gama, esta etapa é repetida diariamente de forma a verificar seu correto funcionamento, através da contagem de fontes calibradas de ^{60}Co (1332,3 keV) e ^{137}Cs (661, 6 keV) por 600 segundos e os respectivos ajustes dos fotopicos.
- Determinação da radiação de fundo do equipamento (*background*): Foi feita através da contagem, por 50000 segundos, de recipientes vazios de polietileno, semelhantes aos recipientes usados para acondicionar os materiais de referência e as amostras de sedimento marinho. Esta contagem foi feita quatro vezes em intervalos de dois em dois meses aproximadamente. Com os resultados foi calculada uma média, chegando-se a um valor de *background* usado nos cálculos de eficiência do detector e atividade das amostras.
- Preparo do material de referência: Aproximadamente 20g dos materiais de referência certificados da Agência Internacional de Energia Atômica foram acondicionados em recipientes de polietileno, próprios para contagem gama. Estes recipientes foram selados e identificados. Esperou-se um tempo de 20 dias antes de submetê-los à contagem para

que se estabelecesse o equilíbrio secular entre ^{238}U , ^{232}Th e os seus respectivos isótopos-filho.

Segundo Canet & Jacquemin (1990) cerca de 80% do equilíbrio permanece em amostras sólidas e esta relação é obtida totalmente após 20 dias de preparação. Desta forma, após a secagem, homogeneização e acondicionamento nos recipientes para detecção, essas são guardadas por cerca de 20 dias e, em seguida, colocadas no detector para a determinação dos radionuclídeos.

Os materiais de referência de sedimento marinho usados na determinação da eficiência de contagem do detector foram IAEA-315, IAEA-326 e IAEA-327, e seus respectivos valores de referência para ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K seguem na Tabela 3:

Tabela 3: Valores certificados para ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , em Bq kg^{-1} , e seus respectivos Intervalos de Confiança (I.C.) nos materiais de referência da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA).

Material de Referência	^{238}U	^{232}Th	^{40}K
IAEA-315	17,6 (16,1-18,5)	25,6 (24,5-27)	297 (287-304)
IAEA-326	32,6 (6,2)	39,4 (3,9)	580 (56)
IAEA-327	34,1 (5,3)	38,7 (3,4)	621 (54)

- Contagem de materiais de referência da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA): Estes foram submetidos a um tempo de contagem de 50000 segundos. Os fotopicos do ^{40}K e dos isótopos-filho de ^{238}U e ^{232}Th foram marcados para cálculo da eficiência do detector considerando estes em equilíbrio secular. Foi feita suavização dos picos

de energia (*smoothing*) por meio de um polinômio integrado ao software Maestro®.

As energias dos fotopicos utilizadas estão presentes na Tabela 4:

Tabela 4: Fotopicos utilizados na determinação dos radionuclídeos estudados

Radionuclídeo	Energia (keV)
^{228}Ac (^{232}Th)	911,2
^{214}Bi (^{238}U)	609,3
^{40}K	1460,8

A determinação do ^{232}Th e do ^{238}U foi feita através dos fotopicos do ^{228}Ac e do ^{214}Bi pois estes apresentam maior intensidade e menor interferência ao se comparar com os outros radioisótopos-filho de suas séries de decaimento radioativas. Além disso, são os mais adotados neste tipo de determinação, como se pode verificar nos trabalhos de Wijngaarden *et al.* (2002) e Alencar & Freitas (2005), Abdi *et al.* (2009).

- Cálculo da eficiência de contagem do detector: A eficiência do detector para cada radionuclídeo foi calculada através da equação 1:

$$\varepsilon = \left(\frac{C_R - BG}{t \times m_R \times A_R} \right) \times 100 \quad [\text{Equação 1}]$$

Sendo que:

$\mathcal{E}$ = eficiência de contagem do detector nas energias específicas de cada radionuclídeo estudado neste trabalho;

C_R = contagem do material de referência (cps);

BG = contagem da radiação de fundo (*background*);

t = tempo de contagem em segundos;

m_R = massa do material de referência (kg);

A_R = Atividade do radioisótopo no material de referência (valor fornecido pela IAEA em Bq kg⁻¹);

Com os valores obtidos para a eficiência de contagem do detector para cada radionuclídeo foi feita uma média. Estes valores médios encontram-se na Tabela 5:

Tabela 5: Valores médios de eficiência do detector em (%) obtidos para ²³⁸U, ²³²Th e ⁴⁰K.

Radionuclídeo	Eficiência do detector (%)
²³⁸ U	1,45± 0,13
²³² Th	0,93± 0,09
⁴⁰ K	0,22± 0,01

- Cálculo das atividades de ²³⁸U, ²³²Th e ⁴⁰K em Bq kg⁻¹: As amostras de sedimento marinho, previamente liofilizadas, foram maceradas e homogeneizadas. Adotou-se o mesmo procedimento realizado para o preparo dos materiais de referência.

Após a etapa de contagem por 50000 segundos e determinação dos radionuclídeos por meio do espectro gerado pelo software Maestro® foi feito o cálculo das atividades dos radionuclídeos, por meio da equação 2:

$$A_{AM} = \frac{C_{AM} - BG}{t \times m_{AM} \times \varepsilon} \quad [\text{Equação 2}]$$

Sendo que :

A_{AM} = atividade da amostra em Bq kg^{-1} ;

C_{AM} = valor de contagem da amostra (cps);

BG = valor de contagem da radiação de fundo (*background*);

t = tempo de contagem em segundos;

m_{AM} = massa da amostra em kg;

ε = eficiência de contagem do detector nas energias específicas de cada radionuclídeo estudado neste trabalho;

As atividades do ^{238}U e do ^{232}Th foram determinadas, portanto, pelos fotopicos dos seus respectivos isótopos-filhos ^{214}Bi e ^{228}Ac assim como foi feito para os materiais de referência. Estas atividades são freqüentemente reportadas como “*equivalente de urânio*” (eU) e “*equivalente de tório*” (eTh) e não como atividades absolutas, uma vez que existe a possibilidade de ocorrer desequilíbrio nas séries de decaimento radioativo. Este desequilíbrio pode ocorrer devido à remoção completa ou parcial de produtos da série de decaimento radioativo, como por exemplo, o radônio (^{222}Rn).

Este radionuclídeo é um gás que, se escapar para a atmosfera, pode ocasionar uma condição de desequilíbrio das séries de decaimento radioativo e, conseqüentemente, trazer erros às análises que consideram todos os

produtos destas séries, em perfeito equilíbrio com os isótopos-pais (IAEA, 2003).

Já a determinação do ^{40}K foi feita diretamente pelo seu pico em 1460,81 keV. Ele possui 11% do seu decaimento por captura eletrônica, em que decai para um estado excitado do ^{40}Ar , em seguida este emite raios gama.

- Concentração Mínima Detectável (C.M.D.): Corresponde à menor atividade que pode ser detectada dentro de um determinado nível de confiança. Foi calculada pela equação 3:

$$C.M.D. = \frac{4,66.S_B}{t.\mathcal{E}.M_{AM}} \quad \text{[Equação 3]}$$

Sendo que:

S_B : Desvio padrão da taxa de contagem para o branco;

t = tempo de contagem em segundos;

$\mathcal{E}$ = eficiência de contagem do detector nas energias específicas de cada radionuclídeo estudado neste trabalho;

m_{AM} = massa da amostra em kg;

Os valores encontrados para os radionuclídeos estudados foram de

1,1 Bqkg⁻¹ para o ^{238}U ; 4,2 Bqkg⁻¹ para o ^{232}Th e 12,6 Bqkg⁻¹ para o ^{40}K .

6. Resultados e Discussão

6.1 Radionuclídeos: Análise Exploratória

Primeiramente foi feita uma análise exploratória dos dados obtidos para os níveis de radionuclídeos naturais na Margem Continental Superior Sudeste do Brasil. Estes valores servirão como base de comparação com os encontrados em outras regiões oceânicas e formarão um inventário de radionuclídeos naturais para esta região.

Para tanto, nesta etapa foram contempladas 108 amostras sedimentares coletadas entre 1997 e 2004 no âmbito dos projetos citados.

Os resultados obtidos para as amostras encontram-se no anexo 1, e de modo geral, apresentaram uma grande variabilidade nos valores em Bq kg^{-1} para os três radionuclídeos. A Tabela 6 mostra parâmetros estatísticos dos valores das atividades dos radionuclídeos estudados:

Tabela 6: Valores de concentração da atividade dos radionuclídeos em Bq kg^{-1} em amostras de sedimento marinho da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

	^{238}U	^{232}Th	^{40}K
Mínimo	1,48	10,63	65,45
Máximo	52,76	49,45	873,28
Média	21,67	28,18	424,27
Mediana	19,71	27,24	421,71
Desvio Padrão	12,01	8,57	150,12

Os valores médios de atividade de ^{238}U e ^{232}Th apresentam tendências semelhantes, assim como os seus valores medianos, máximos e de desvio padrão. Já os valores mínimos apresentam diferenças, com as atividades do ^{232}Th superiores às atividades do ^{238}U . Este fato era esperado, uma vez ambos

pertencem à série dos actínídeos e possuem configurações eletrônicas semelhantes. Assim sendo, e somando-se ao fato dos dois elementos ocorrerem na natureza em estado tetravalente e a similaridade dos seus raios iônicos ($U^{4+}=1.05\text{\AA}$, $Th^{4+}=1.10\text{\AA}$), apresentam comportamento geoquímico parecido (Faure, 1986). As atividades ligeiramente superiores de ^{232}Th ocorrem devido à maior quantidade de tório na composição das rochas fornecedoras de sedimentos (Tabela 1) e à maior solubilidade do urânio sob condições oxidantes. Os valores de ^{40}K , por sua vez, foram superiores aos valores de ^{238}U e ^{232}Th em mais de dez vezes em razão da elevada abundância do K na natureza (Tabela 2). De acordo com Godiva et al.(2010), é esperado que ^{232}Th , ^{238}U e ^{40}K apresentem comportamentos ambientais diferentes, pois apresentam solubilidades e reatividades particulares.

Estas discrepâncias ficam evidentes no *boxplot* das atividades dos radionuclídeos, na Figura 7:

Figura 7: Boxplot de concentração da atividade, em Bq kg^{-1} dos radionuclídeos ^{40}K , ^{238}U e ^{232}Th nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

As Figuras 8, 9 e 10 detalham a distribuição de freqüência das concentrações de atividades dos radionuclídeos através de histogramas:

Figura 8: Histograma da concentração de atividade de ^{238}U das amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Figura 9: Histograma da concentração de atividade de ^{232}Th das amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Figura 10: Histograma da concentração de atividade de ^{40}K das amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Para o ^{238}U , os valores mais recorrentes ficaram entre 10 e 20 Bq kg^{-1} , sendo que o valor mínimo encontrado para este radionuclídeo foi de 1,48 Bq kg^{-1} e o valor máximo de 52,76 Bq kg^{-1} .

Para o ^{232}Th , a faixa mais freqüente ficou entre 20 e 25 Bq kg^{-1} , com valor mínimo encontrado de 10,63 e o máximo 49,45 Bq kg^{-1} .

E para o ^{40}K , os valores que mais apareceram ficaram entre 400 e 500 Bq kg^{-1} , dentro de um intervalo que variou de um mínimo de 65,45 Bq kg^{-1} a um valor máximo de 873,28 Bq kg^{-1} .

Nota-se que a distribuição do ^{40}K é próxima a uma curva normal e as distribuições de ^{238}U e ^{232}Th são assimétricas. O potássio, sendo um metal alcalino, ocorre somente sob o estado de oxidação (+I) e o urânio e tório ocorrem sob os estados de oxidação (+IV), (+V) e (+VI) (Lee, 1980). O potássio é quimicamente muito reativo, sendo capaz de formar uma grande variedade de complexos devido seu pequeno raio iônico, o que também o torna facilmente alocável a diferentes tipos de cristais (Godiva *et al.*, 2010). Estas características permitem com que o K esteja presente em muitos tipos de rochas e sedimentos, resultando em distribuições com tendência mais próximas a uma curva gaussiana quando comparada com as distribuições de urânio e tório.

O Quadro 1 estabelece uma comparação dos valores médios encontrados neste trabalho para a concentração de atividades de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K com valores de outras regiões do mundo e a média mundial, em amostras de sedimento marinho, areias de praia e sedimentos costeiros:

Quadro 1: Comparação das concentrações das atividades obtidas com outros valores do mundo em Bq kg⁻¹ (modificado de Papaefthymiou *et al.*, 2007)

<i>Região</i>	<i>Autor</i>	²³⁸ <i>U</i>	²³² <i>Th</i>	⁴⁰ <i>K</i>	<i>Tipo de sedimento</i>
Margem Continental Sudeste Brasileira	Este Estudo	1,5- 52,8 (21)	10,6 – 49,5 (28)	65,5-873,3 (424)	Margem Continental
Grécia (Ilhas Cíclades)	Florou et al. (1988)	67,0	31,0	666,0	Costeiro
Grécia (Golfo de Corinto)	Papatheodorou et al. (2005)	79,5	85,5	318,8	Costeiro
Egito	Seddeek et al (2005)	11,7-51,1	14,8-67,2	99,4-102,9	Costeiro (Porto)
Sudão (Mar Vermelho)	El Mamoney and Khater (2004)	29,6	6,0	158,4	Praia
Argélia (Baía de Ghazaouet)	Noureddine and Baggoura (1997)	23,1	28,6-30,8	446,0-518,0	Costeiro
Oceano Pacífico Noroeste	Moon et al. (2003)	9,8-43,2	13,6-58,6	-	Mar profundo
Grécia (Golfo de Patras)	Papaefthymiou et al.(2007)	21,8	24,5	497	Costeiro (Porto)
Média Mundial	UNSCEAR (2000)	16-110 (35)	11-64 (30)	140-850 (400)	

() médias dos valores obtidos neste estudo

Os valores encontrados para os radionuclídeos na Margem Continental Sudeste do Brasil foram inferiores aos valores encontrados nas Ilhas Cíclades e no Golfo de Corinto. É importante ressaltar que as elevadas atividades nestes dois ambientes ocorrem em razão da presença de rochas vulcânicas e depósitos submarinos de lama de bauxita, respectivamente (Papaefthymiou *et al.*, 2007). Por outro lado, os valores encontrados neste trabalho são

comparáveis à média mundial e aos valores encontrados nas outras regiões listadas para todos os radioisótopos estudados.

6.2 Radionuclídeos: variações granulométricas

Dentre as 108 amostras das quais foram analisados os teores de radionuclídeos naturais, 73 foram submetidas a análises granulométricas. Os resultados obtidos para a granulometria apresentaram uma grande variabilidade, evidenciando a diversidade da natureza das amostras estudadas. Estes resultados são apresentados na Tabela 7:

Tabela 7: Valores dos parâmetros granulométricos em porcentagem para as amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

	<i>Areia</i>	<i>Silte</i>	<i>Argila</i>
Mínimo	0,21	0,00	0,00
Máximo	100	89,81	61,15
Média	42,47	35,61	21,44
Mediana	40,91	36,76	19,68
Desvio Padrão	29,18	20,01	13,73

Os valores máximos e mínimos da tabela apontam para o fato de quão variada é a malha amostral usada neste trabalho quando se trata de características granulométricas, sendo que as amostras variam de 0,21% a 100% de areia e de 0% a 61,15% de argila. Os valores de desvio padrão elevados são um indicativo da variabilidade nos valores das frações granulométricas apontados. O *boxplot* a seguir mostra as variações nas classes granulométricas das 73 amostras:

Figura 11: Boxplot dos valores em porcentagem de areia, silte e argila para as amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

A Figura 11 contrasta as três classes granulométricas e aponta a amostra 6776 (26,79°S, 47,58°W) como um outlier (valor discrepante) para teores de argila - 61,15%. Os valores de atividade de ^{232}Th e ^{40}K também são altos para esta amostra (49,45 Bq.kg⁻¹ e 770,25 Bq.kg⁻¹).

Os histogramas a seguir detalham a distribuição de frequências das classes granulométricas nas amostras, nas Figuras 12, 13 e 14:

Figura 12: Histograma dos teores de areia, em porcentagem, nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Figura 13: Histograma dos teores de silte, em porcentagem, nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil.

Figura 14: Histograma dos teores de argila, em porcentagem, nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Para a porcentagem de areia, os valores mais recorrentes ficaram entre 0 e 10%, para a porcentagem de silte entre 20 e 30% e para a porcentagem de argila entre 10 e 15%.

Os histogramas acima mostram uma tendência gaussiana para os valores de porcentagem de silte e argila, e uma tendência assimétrica para os valores de areia. É possível notar que esta assimetria é causada por uma anomalia nos valores de amostras que apresentaram porcentagens no intervalo entre 0 e 10% de areia, apontando para um valor alto de amostras ricas em lama (entre 90 e 100%).

Para a investigação de possíveis associações entre os radionuclídeos estudados e as frações granulométricas das amostras sedimentares coletadas na Margem Continental Sudeste do Brasil foi feita uma avaliação do coeficiente de correlação nas Figuras 15, 16 e 17. O nível de significância estabelecido foi de 0,05. Os gráficos das demais correlações estão disponíveis no Anexo 2.

Figura 15: Gráfico de correlação linear entre o teor de ^{238}U e a porcentagem de argila nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Figura 16: Gráfico de correlação linear entre os teores de ^{232}Th e a porcentagem de argila nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Figura 17: Gráfico de correlação linear entre os teores de ^{40}K e as porcentagens de lama nas amostras sedimentares da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Na Figura 15 não foi observada correlação entre os valores de atividade de ^{238}U com a granulometria. O p apresentou um valor muito alto (0,2402), ficando fora do nível de significância estabelecido, e o valor de r^2 foi de 0,0202.

Nas Figuras 16 e 17, porém, observa-se uma correlação linear positiva entre os valores de porcentagem de argila e da atividade de ^{232}Th e dos valores de porcentagem de lama e da atividade de ^{40}K respectivamente. Ambas as correlações apresentaram nível de significância dentro dos parâmetros estabelecidos, com nível de significância $p = 0,00000$ para ^{232}Th x argila e $p = 0,00001$ para ^{40}K x lama. Os valores de r^2 para estas correlações foram de 0,3127 e 0,2364 respectivamente.

O radionuclídeo ^{238}U não se mostrou apropriado para ser usado como indicador de características granulométricas. Por outro lado, pode fornecer

informações importantes sobre taxas de sedimentação e condições redox do sedimento quando comparado ao ^{232}Th na razão $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$.

Altos valores de ^{232}Th e de ^{40}K podem, contudo, ocorrer em regiões ricas em argila ou lama, logo, as variações granulométricas podem contribuir para uma distribuição tendenciosa dos níveis destes radioisótopos na área de estudo.

6.3 Variação da Atividade dos Radionuclídeos Naturais na Área de Estudo

Os valores de atividades dos radionuclídeos naturais nas amostras analisadas, além de sofrerem influências pela granulometria e pela formação geológica da região, variam espacialmente, com a latitude, longitude e profundidade de coleta das amostras.

Neste sentido, o estudo dos principais processos deposicionais que ocorrem na área de estudo, assim como o comportamento geoquímico dos elementos e dos seus respectivos radioisótopos analisados neste trabalho, podem fornecer subsídios para entender tais variações.

Optou-se por uma interpretação em separado dos dados de modo a analisar cada influência sobre as atividades dos radionuclídeos, uma vez que área de estudo é dominada por um mosaico de processos que resultam em distribuições complexas das suas atividades.

Sendo assim, a Tabela 8 mostra alguns parâmetros estatísticos das atividades dos radionuclídeos e suas respectivas razões comparando dois grandes setores da área de estudo, ao norte e ao sul da Ilha de São Sebastião:

Tabela 8: Comparação dos parâmetros estatísticos das atividades (Bq kg^{-1}) e razões dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K nas amostras coletadas nos setores ao norte e ao sul da Ilha de São Sebastião

	^{238}U	^{232}Th	^{40}K	$^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$	$^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$	$^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$
<i>Setor Norte</i>						
Mínimo	1,48	10,63	65,45	0,00	0,03	0,07
Máximo	49,45	44,21	715,82	0,14	0,29	1,41
Média	19,86	27,63	374,10	0,06	0,08	0,71
Mediana	18,25	26,23	394,66	0,05	0,07	0,72
Desvio Padrão	10,65	9,66	134,60	0,03	0,04	0,29
<i>Setor Sul</i>						
Mínimo	4,45	15,54	192,73	0,01	0,03	0,13
Máximo	52,76	49,45	873,27	0,22	0,29	2,35
Média	21,59	27,98	420,40	0,06	0,07	0,78
Mediana	19,56	27,15	420,74	0,05	0,07	0,73
Desvio Padrão	12,23	8,85	155,57	0,04	0,04	0,44

Na tabela acima, todos os parâmetros estatísticos do setor sul, ainda que próximos, foram superiores aos valores do setor norte. Chama atenção a diferença entre o valor mínimo de atividade para o ^{40}K , com $65,45 \text{ Bq kg}^{-1}$ no setor ao norte da Ilha de São Sebastião e $192,73 \text{ Bq kg}^{-1}$ no setor ao sul. Para os demais parâmetros, ainda que não exista uma diferença estatisticamente significativa, observa-se uma tendência de valores mais elevados ao sul. Estas diferenças serão mais bem exploradas nos gráficos de variações latitudinais e nos mapas de distribuição das atividades e das razões dos radionuclídeos na área de estudo.

6.3.1 Variações latitudinais

As variações dos radionuclídeos naturais ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K com a latitude de coleta das amostras pode fornecer informações importantes acerca dos regimes deposicionais predominantes na área estudada e também das características de suas respectivas fontes sedimentares. Assim sendo, foi feita uma avaliação do coeficiente de correlação com o intuito de identificar tendências ou padrões nas Figuras 18, 19 e 20:

Figura 18: Gráfico de correlação linear entre os teores de ^{238}U e as latitudes de coleta das amostras sedimentares na Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Figura 19: Gráfico de correlação linear entre os teores de ²³²Th e as latitudes de coleta das amostras sedimentares na Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Nas Figuras 18 e 19 não foi observada uma boa correlação entre os níveis de ²³⁸U ($r^2 = 0,0287$) e de ²³²Th ($r^2 = 0,021$) com a latitude. O nível de significância para ambas as correlações não apresentou valores dentro do estabelecido, sendo $p = 0,0843$ para o ²³⁸U e $p = 0,6347$ para o ²³²Th. Para o ²³⁸U a linha de tendência mostrou um aumento das atividades em direção ao sul e para o ²³²Th, um aumento em direção ao norte. Porém, como a correlação não é significativa, não é possível estabelecer um padrão de comportamento para estes valores somente com estes dois gráficos.

Já a Figura 20 mostra a correlação dos valores do radioisótopo ⁴⁰K com a latitude. O nível de significância para esta correlação apresentou valor dentro do estabelecido, sendo $p = 0,0282$ e $r^2 = 0,0446$. Percebe-se um incremento das atividades em direção ao sul da área de estudo.

Figura 20: Gráfico de correlação linear entre os teores de ^{40}K e as latitudes de coleta das amostras sedimentares na Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

As tendências observadas com a variação latitudinal das amostras podem ocorrer em razão das características sedimentológicas. A região ao sul da Ilha de São Sebastião (24°30'S) é marcada por um aumento nos teores de lama em direção as porções mais profundas da plataforma. A região ao norte é caracterizada por granulometria heterogênea com significantes depósitos de lama na plataforma interna. Esta dicotomia entre os setores norte e sul é refletida em outros parâmetros, como a mineralogia, teores de carbonato e carbono orgânico (Mahiques et al. 2004).

6.3.2 Variações espaciais

Uma vez que a espacialização dos dados facilita sua interpretação, pois contextualiza os valores, foram elaborados mapas, a partir dos dados de atividade e razão dos radionuclídeos e localização (latitude e longitude) das amostras. Ao fundo, a granulometria, expressa em termos de diâmetro médio (ϕ), facilita a visualização da interferência deste parâmetro nas atividades. As Figuras 21 e 22 representam a distribuição das atividades de ^{40}K , em Bq kg^{-1} e normalizadas pela lama, na Margem Continental Superior Sudeste do Brasil:

Figura 21: Mapa de distribuição de ^{40}K em Bq kg^{-1} nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Figura 22: Mapa de distribuição de ^{40}K normalizado pela lama nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

A Figura 21 apresenta uma expressiva variação nos valores das atividades ao longo da área de estudo, aspecto já observado no gráfico de ^{40}K x latitude. O menor valor foi detectado para a amostra 6577 (25,26°S, 45,08°W) e o maior para a amostra 6855 (30,31°S, 47,51°W), extremo sul da região.

Entre as isóbatas de 200m e 500m esta variação, com aumento das atividades em direção ao sul, fica evidente. Ao norte de 24°S, contudo, observam-se valores elevados nas proximidades da costa, nas regiões do Cabo Frio e da Ilha de São Sebastião, com diminuição gradual em direção às porções mais profundas da plataforma. Já no setor sul, as atividades parecem seguir um padrão mais homogêneo, com valores altos tanto nas proximidades

da isóbata de 100m como na de 500m, e alguns poucos pontos com valores baixos, intercalados.

Na Figura 22, observam-se os valores de atividade do ^{40}K normalizados pela lama, fração granulométrica que apresentou a maior afinidade com este radioisótopo. A normalização foi realizada com vistas a eliminar o efeito granulométrico sobre a distribuição espacial dos valores de atividade de ^{40}K . Os valores normalizados apresentam um padrão parecido com o observado na Figura 21. O incremento das atividades entre as isóbatas de 200m e 500m na direção nordeste-sudeste se mantém, porém, com menor contraste. Já no setor norte, a normalização dos dados enalteceu a discrepância entre os altos valores próximos à costa e a diminuição destes em direção ao largo.

Esta variabilidade nos valores de atividades observada nos mapas das Figuras 21 e 22 pode ser consequência tanto dos processos sedimentares peculiares de cada região e, por conseguinte do comportamento geoquímico do potássio (e do seu isótopo ^{40}K) neste ambiente sedimentar formado, como o resultado do seu fornecimento diferenciado, ocasionado pela mudança na composição das rochas fornecedoras dos sedimentos. É possível também que ambos estes fatores ocorram de maneira sobreposta.

Foi possível observar que, mesmo com a normalização pela lama, continuam ocorrendo diferenças regionais nos valores de atividade de ^{40}K . Isso significa que o fator granulométrico não é o único a regular tais diferenças. Tal fato pode ser confirmado quando se comparam as atividades de ^{40}K com os valores de diâmetro médio. Percebe-se que as maiores atividades, em alguns casos, não ocorrem necessariamente nas regiões mais lamosas.

Segundo Anjos *et al.* (2006) minerais pesados tendem a incorporar altas concentrações de radionuclídeos naturais das séries de decaimento radioativo do urânio e tório na sua estrutura cristalina. Minerais leves, como quartzo e feldspatos são pobres em urânio e tório, mas o feldspato em especial contém concentrações relativamente altas de ^{40}K . Sendo assim, as altas concentrações de ^{40}K podem refletir tanto a granulometria do sedimento, em especial as frações silte e argila, como o aporte de terrígenos que contenham minerais ricos em potássio.

As altas atividades nas amostras próximas à costa, e que assim se mantiveram depois da normalização pela granulometria, são provavelmente consequência do elevado aporte de sedimentos terrígenos e de taxas de sedimentação mais elevadas nas proximidades de Cabo Frio e da Ilha de São Sebastião decorrentes dos meandros da Corrente do Brasil.

As Figuras 23 e 24 mostram a distribuição das atividades de ^{232}Th , em Bq kg^{-1} e normalizadas pelo ^{40}K , na área de estudo:

Figura 23: Mapa de distribuição de ^{232}Th em Bq kg^{-1} nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Figura 24: Mapa de distribuição da razão $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$ nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

A distribuição dos valores de atividade de ^{232}Th na área de estudo observada na Figura 23 é bastante heterogênea. O menor valor foi detectado na amostra 6765 ($23,16^\circ\text{S}$, $40,95^\circ\text{W}$) e o maior na amostra 6776 ($26,79^\circ\text{S}$, $47,58^\circ\text{W}$).

Entre as isóbatas de 200m e 500m observa-se um incremento em direção à sudoeste nos valores das atividades, assim como foi observado para o ^{40}K , mas neste caso a variação de valores é menor.

Entre o Cabo Frio e a Ilha de São Sebastião, observam-se valores altos nas proximidades da costa, e uma diminuição com aumento da profundidade.

Na Figura 24 observam-se os valores da razão $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$. O ^{40}K foi usado como normalizador neste caso, pois representa as argilas e conseqüentemente, o aporte de sedimentos terrígenos.

Verifica-se que para o ^{232}Th , a normalização dos dados suavizou as diferenças de valores observada na Figura 23. Os valores no setor norte apresentam uma tendência homogênea, porém, ao sul da Ilha de São Sebastião observa-se um aumento dos valores em direção às maiores profundidades.

Assim como o ^{40}K , o ^{232}Th possui afinidade com as frações finas do sedimento, sofrendo influências das variações granulométricas já conhecidas da região. Percebe-se, porém, ao observar as Figuras 23 e 24 e contrastar com os valores de diâmetro médio, que este fator não é o único a influenciar seus valores de atividades. Este radioisótopo está relacionado também aos sedimentos detríticos e às partículas orgânicas (Bernat & Church, 1988). Altas atividades de ^{232}Th podem ocorrer, portanto em regiões de elevada produtividade primária.

A Figura 25 mostra o padrão de distribuição de carbono orgânico encontrado por Mahiques *et al.* (2004) na Margem Continental Sudeste Brasileira. Os valores mais elevados estão relacionados às regiões de maior deposição de matéria orgânica pelágica. Observando o mapa, estas regiões correspondem às proximidades de Cabo Frio, Ilha de São Sebastião e no setor sul, entre 25°S e 27,5°S, a partir de 100m aproximadamente.

As regiões de elevados teores de carbono orgânico apresentam elevadas atividades de ^{232}Th , como observado na Figura 23. Esta constatação aponta para a possibilidade de que os valores altos deste radioisótopo sejam

influenciados pelos mecanismos responsáveis pelo acúmulo de matéria orgânica na área de estudo, dada a afinidade entre estes dois parâmetros.

Estes elevados valores de carbono orgânico do setor sul foram relacionados à penetração de águas frias oriundas da Pluma do Rio da Prata e da sua interação com os meandros da corrente do Brasil, gerando zonas de alta produtividade primária. No setor norte, na região de Cabo Frio, a deposição de matéria orgânica foi relacionado ao fenômeno de ressurgência costeira (Mahiques, 2004).

Figura 25: Distribuição de carbono orgânico (mg g⁻¹ de peso seco) nos sedimentos de superfície da área de estudo (Mahiques *et al.*, 2004)

As Figuras 26 e 27 ilustram a distribuição das atividades de ^{238}U , em Bq kg^{-1} e normalizadas pelo ^{40}K , na Margem Continental Superior Sudeste do Brasil:

Figura 26: Mapa de distribuição de ^{238}U , em Bq kg^{-1} nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Figura 27: Mapa de distribuição da razão $^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$ nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

A Figura 26 mostra a variação de valores encontrada para as atividades de ^{238}U na área de estudo. O valor mais baixo foi detectado na amostra 6627 (23,97°S, 43,88°W) e o valor mais elevado foi encontrado na amostra 6611 (28,41°S, 47,36°W).

Observam-se, de uma maneira geral, valores de atividade altos ao sul de 25°S aproximadamente. Não foi possível, porém, perceber uma variação batimétrica clara, como no caso do ^{40}K e do ^{232}Th . Como já esperado, as amostras não aparentam ser influenciadas pela granulometria do sedimento.

Ao norte da Ilha de São Sebastião observam-se valores em geral inferiores a 30 Bq kg^{-1} tanto nas proximidades da costa como com o aumento

das profundidades. Somente nas amostras coletadas próximas de Cabo Frio foram detectados valores mais elevados.

Já para os valores da razão $^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$ observa-se um padrão de distribuição um pouco diferente. O aumento dos valores no sentido nordeste-sudeste se mantém, e no setor sul é possível notar uma variação batimétrica, com aumento em direção às porções mais profundas. O urânio, assim como o seu isótopo ^{238}U apresenta um comportamento diferente dos outros dois isótopos já descritos, pois tem sua solubilidade dependente do estado de oxidação do meio.

Este elemento é insolúvel sob condições redutoras dos sedimentos, em estado tetravalente, e solúvel ao oxidar-se, passando a valência VI, como íon uranila. Desta maneira, havendo condições propícias para tanto, em regiões redutoras, pode ocorrer uma maior concentração deste elemento nos sedimentos, por outro lado, em meios muito oxidantes baixas concentrações são esperadas. A razão eU/eTh pode, portanto, ser usada como um indicador de condições redox de um ambiente deposicional (Anjos et al., 2006). Neste sentido, foram calculadas e plotadas no mapa da Figura 28:

Figura 28: Mapa de distribuição das razões $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ nas amostras sedimentares de superfície da Margem Continental Superior Sudeste do Brasil

Na Figura acima, observa-se uma grande variação nos valores da razão $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$. O valor mais baixo foi encontrado na amostra 6627 (23,97°S, 43,88°W) e o maior valor para a amostra 6611 (28,41°S, 47,36°W). Entre as isóbatas de 200m e 500m ocorre um incremento dos valores em direção à sudoeste. De modo geral estes parecem aumentar em direção às porções mais profundas, com exceção às amostras muito próximas à costa, ao norte de 24°S.

O tório e o urânio são encontrados normalmente na crosta terrestre em uma razão média ($^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$) de 3,5 (Godiva *et al.*, 2010). Como já foi observado nas Tabelas 1 e 2, o tório é mais abundante que o urânio na maioria das rochas. Sendo assim, partindo do princípio que não ocorram mudanças

nas proporções entre estes dois radionuclídeos, estes deveriam se apresentar em uma razão ($^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$) de aproximadamente 0,3 nos sedimentos marinhos.

As altas razões $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ observadas indicam, portanto, condições redutoras no sedimento. Estas são resultado das elevadas taxas de sedimentação e do acúmulo de matéria orgânica. Tais condições propiciam a predominância do urânio no estado tetravalente sobre o urânio em estado hexavalente, na forma insolúvel, apresentando atividades elevadas em relação ao tório.

Observando a Figura 28 e comparando-a com as Figuras 23 e 25 (atividades de ^{232}Th e teor de carbono orgânico respectivamente) é possível verificar certas similaridades. Os altos valores da razão $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ da região sul estão sendo, provavelmente, regulados pelos mesmos processos.

6.3.3 Processos sedimentares na Margem Continental Sudeste Brasileira

Os mapas de atividade dos três radionuclídeos estudados, ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K , assim como os mapas de suas respectivas razões, permitiram observar os seguintes padrões na Margem Continental Sudeste Brasileira:

- Elevadas atividades dos radionuclídeos ^{232}Th e ^{40}K nas proximidades do Cabo Frio, da Ilha de São Sebastião e de Santos e significativa diminuição destes valores com o distanciamento da costa; Para o ^{238}U , altas atividades foram observadas nas proximidades do Cabo Frio;
- Incremento no conjunto de valores de atividade de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K e das razões $^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$, $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$ e $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ em direção à sudoeste, principalmente entre as proximidades das isóbatas de 200m e 500m;

Este padrão de variação dos valores sugere haver uma diferenciação nos processos sedimentares que induza ao comportamento descrito dos radionuclídeos.

As altas atividades próximas à costa no setor norte da área de estudo são provavelmente decorrentes do elevado aporte de sedimentos terrígenos, ricos em micas e feldspatos, oriundos do intemperismo de rochas magmáticas graníticas. Este aporte de sedimentos para a plataforma, na região da Ilha de São Sebastião é maior no verão, quando a intensificação dos ventos de noroeste favorece o afloramento da ACAS na costa, empurrando a AC, rica em sedimentos em suspensão para regiões mais profundas (Mahiques, 1999).

Na plataforma média estes valores altos ocorrem em razão das taxas de sedimentação mais elevadas, resultantes dos meandros da Corrente do Brasil, que são resultado, segundo Campos (2000), de uma abrupta mudança de direção na linha de costa, gerando um movimento da CB no sentido horário para conservação de momento angular. Fenômenos de ressurgência e de subsidência entre o Cabo Frio e a Bacia de Santos ocorrem, segundo o autor, em consequência destes meandros. Ainda no setor norte, as baixas atividades ocorrem nas áreas mais distantes da costa, que conseqüentemente recebem menor aporte de sedimentos do continente.

No setor sul, as atividades elevadas entre as isóbatas de 200 e 500 metros, assim como as relações $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ indicam condições redutoras, que podem ser conseqüências de uma região rica em matéria orgânica, com sedimentos lamosos e taxa de sedimentação mais intensa. A sedimentação neste setor foi associada por Figueira (2006) e Mahiques (2004) à intrusão

sazonal da Pluma do Rio da Prata e sua interação com a Corrente do Brasil, gerando zonas de alta produtividade primária.

Diversos estudos foram realizados com o objetivo de entender a influência do Rio da Prata na Plataforma Continental Sudeste (Piola et al., 2000; 2004; 2005; Campos et al, 2008). Dados coletados em 1993 e 1994 concluíram que a ocorrência de águas frias e de baixa salinidade desde o estuário do Rio da Prata até a latitude de 23°S estavam relacionadas com uma descarga incomum do rio nos meses anteriores (Campos *et al.* 2008).

Verificou-se que as oscilações meridionais de migração da pluma são reguladas principalmente pela variação da intensidade e direção dos ventos incidentes na região e pela ocorrência de eventos de El Niño e La Niña. Durante os anos de El Niño, a vazão do rio aumenta significativamente pela intensificação das chuvas sobre a sua bacia. Este aumento, no entanto, não resulta em um alcance latitudinal significativo da pluma, devido à predominância dos ventos de nordeste. Neste período, as águas de baixa salinidade são transportadas em direção ao largo. Durante os períodos de La Niña, embora tenha sido observada uma diminuição na vazão do rio, a intensificação dos ventos de sudoeste permitiu um maior alcance da pluma em direção em norte.

Durante os meses de inverno austral, a pluma de baixa salinidade ($S < 33$) atinge a latitude de 28°S ao passo que no verão, fica restrita a 32°S. Esta variação sazonal na extensão da pluma ocorre provavelmente induzida mais pelas variações de intensidade e direção dos ventos do que pela variação de descarga do rio (Piola et al., 2000). Em agosto de 2003, a média dos ventos paralelos ao longo da costa foi de ~ 7 m/s, vindos de sudoeste, enquanto que

em fevereiro de 2004, prevaleceram ventos de nordeste que excederam 10m/s (Piola et al., 2004).

O Rio da Prata é o segundo maior rio do hemisfério sul em volume com uma bacia de drenagem abrangendo, aproximadamente 20% do continente sul americano. Engloba porções da Argentina, Brasil, Bolívia, Uruguai e Paraguai e libera uma média de $23000 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ de água e $57000000 \text{ m}^3 \text{ ano}^{-1}$ de silte ao Oceano Atlântico. Não há dúvida, portanto, de que este sistema é o maior contribuinte de sedimentos para as proximidades da costa (Campos et al., 2008).

Existem, portanto, indícios muito fortes apontando para a influência da Pluma do Rio da Prata e sua interação com a Corrente do Brasil nos elevados valores de atividades dos radionuclídeos naturais já observados nos mapas.

Conforme o exposto acima, a Figura 29 sintetiza os processos sedimentares identificados neste trabalho:

Figura 29: Síntese dos processos sedimentares identificados por este estudo na Margem Continental Sudeste do Brasil

7. Conclusão

Este trabalho estabeleceu o primeiro banco de dados de níveis dos radionuclídeos naturais ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em sedimentos marinhos com a abrangência da Margem Continental Sudeste Brasileira, permitindo assim a realização de estudos comparativos com valores encontrados em outras regiões oceânicas do mundo;

A determinação destes níveis forneceu informações importantes acerca do comportamento destes radionuclídeos no meio marinho:

As correlações obtidas do ^{232}Th com a fração argila e do ^{40}K com a fração lama mostraram uma perspectiva de realização, em futuros estudos, de determinação de características granulométricas em sedimentos usando informações radiométricas;

Para o ^{238}U por não foi observada correlação com nenhuma das frações granulométricas estudadas, e, portanto, a princípio este radionuclídeo não pode ser usado como ferramenta para obtenção de informações granulométricas. Suas atividades, porém, assim como elevadas razões $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ podem ser usadas como indicadores de condições redutoras e conseqüentemente de altas taxas de sedimentação e acúmulo de matéria orgânica;

Os altos valores para os três radionuclídeos naturais que ocorreram nas amostras coletadas nas proximidades da costa demonstram a importância da contribuição terrígena no fornecimento de radionuclídeos naturais para o meio marinho nesta região;

Tanto para o ^{238}U , como para ^{232}Th e ^{40}K verificou-se uma grande diferença entre os níveis encontrados nos setores ao norte e ao sul da Ilha de

São Sebastião, sendo que ao sul os valores encontrados foram superiores aos valores encontrados ao norte;

Estas diferenças encontradas foram relacionadas aos processos sedimentares predominantes na Margem Continental Sudeste do Brasil; Ao norte da Ilha de São Sebastião, fenômenos de ressurgência, subsidência e altas taxas de sedimentação associados aos meandramentos da Corrente do Brasil e ao sul, à intrusão sazonal da Pluma do Rio da Prata e sua interação com a C.B.

8. Referências Bibliográficas

- ABDI, M.R., HASSANZADEH, S., KAMALI, M., RAJI, H.R. 2009. ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K and ^{137}Cs activity concentrations along the southern of the Caspian Sea, Iran. *Marine Pollution Buletin*, v. 58, p. 658-662.
- AKRAM,M., QURESHI, R., AHMAD,N., SOLAIJA,T. 2006. Gamma-Emitting radionuclides in the shallow marine sediments of the Sindh Coast, Arabian Sea. *Radiation Protection Dosimetry*. v. 118, nº.4, p. 440-447.
- ALENCAR, A.S., FREITAS, A.C. 2005. Reference levels of natural radioactivity for the beach sands in a Brazilian southeastern coastal region. *Radiation Measurements*, v. 40, p. 76-83.
- ALMEIDA,F.F.M.de, CARNEIRO, C.D. 1998. Origem e Evolução da Serra do Mar. *Revista Brasileira de Geociências*, v. 28(2), p.135-150.
- ANJOS, R.M., VEIGA, R., MACARIO, K., CARVALHO, C., SANCHES, N., BASTOS, J., GOMES, P.R.S. 2006. Radiometric analysis of Quaternary deposits from the southeastern Brazilian coast. *Marine Geology*, v. 229, p.29-43.
- BERNAT, M., CHURCH, T.M. 1988. Uranium and Thorium decay series in the modern marine environment. **In:** FRITZ, P., FONTES, J.Ch. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry. The Marine Environment*, A. Elsiever, p.357-376.
- BRITISH OCEANOGRAPHIC DATA CENTRE. 2003. GEBCO digital atlas. Liverpool. CD-ROM.
- BURNETT, W.C., PETERSON, R., MOORE, W., OLIVEIRA, J. de.2008. Radon and radium isotopes as tracers of submarine groundwater discharge –

Results from de Ubatuba, Brazil SGD assessment intercomparison.
Estuarine, Coastal and Shelf Science v. 76, p. 501-511.

CAMPOS, E.J.D., PIOLA, A.R., MATANO, R.P., MILLER, J.L.2008. Plata: A synoptic characterization of the southwest Atlantic shelf under influence of the Plata River and Patos Lagoon outflows. Continental Shelf Research, v.28, p.1551-1555.

CAMPOS, E.J.D.; VELHOTE, D.; SILVEIRA, I.C.A.2000. Shelf Break Upwelling Driven by Brazil Current Cyclonic Meanders. Geophysical Research Letters, v.27, p.751-754.

CANET, A; JACQUEMIN, R.1990. Method for measuring of radium isotope: gamma-spectrometry. **In:** IAEA, The environmental behaviour of radium. Technical Reports Series, nº 310, Vienna, vol.1C-4.

CASTRO FILHO, B.M., MIRANDA, L.B., MIYAO, S.Y.,1987. Condições hidrográficas na plataforma continental ao largo de Ubatuba: variações sazonais e em média escala. Boletim do Instituto Oceanográfico, São Paulo 35, p.135-151.

CASTRO FILHO, B.M. 1996. Correntes e Massas de Água da Plataforma Continental Norte de São Paulo. Tese de Livre Docência. Instituto Oceanográfico da Universidade de São Paulo, Universidade de São Paulo, 249pp.

CASTRO FILHO, B.M.; LORENZZETTI, J.A.; SILVEIRA, I.C.A.; MIRANDA, L.B. 2006. Estrutura termohalina e circulação na região entre o Cabo de São Tomé (RJ) e o Chuí (RS). **In:** ROSSI-WONGTSCHOWSKI, C.L.D.B.; MADUREIRA, L.S. O Ambiente Oceanográfico da Plataforma

- Continental e do Talude na Região Sudeste-Sul do Brasil. EDUSP. p.11-120.
- CHIESSI, C.M., ULRICH, S., MULITZA, S., PÄTZOLD, J., WEFER, G. 2007. Signature of the Brazil-Malvinas Confluence (Argentine Basin) in the isotopic composition of planktonic foraminífera from surface sediments. *Marine Micropaleontology*, v. 64, p.52-66.
- CHUNG, Y.; CHANG, W.C., 1996. Uranium and thorium isotopes in marine sediments off northeastern Taiwan. *Marine Geology* v.133, p.89-102.
- CHURCH, T.M.;LORD, C.J.; SOMAYAJULU, B.K.L. 1981. Uranium, thorium and lead nuclides in a Delaware salt marsh sediment. *Estuarine Coastal Shelf*, v.13, p. 267-275.
- CUKROV, N., MLAKAR, M., CUCULIK, V., BARISIC, D. 2009. Origin and transport of ^{238}U , ^{226}Ra in riverine, estuarine and marine sediments of the Krka River, Croatia. *Journal of Environmental Radioactivity* v.100, p. 497-504.
- EISENBUD, M.; GESELL, T., 1997. Environmental Radioactivity from natural, industrial, and military sources. Academic Press. 656p.
- FAURE, G. 1986. Principles of Isotope Geology. John Wiley & Sons, Inc. Columbus. 589p.
- FIGUEIRA, R. 2000. Inventário de radionuclídeos artificiais em água do mar e sedimentos da costa sul do Brasil. Tese de Doutorado. Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo.
- FIGUEIRA, R., TESSLER, M., MAHIQUES, M., CUNHA, I. 2006. Distribution of ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239+40}\text{Pu}$ in sediments of the southeastern Brazilian

- shelf-SW Atlantic margin. Science of the Total Environment 357. p.146-159.
- GODIVA, D., EVANGELISTA, H., KAMPEL, M., LICINIO, M.V., MUNITA, C. 2010. Combined use of aerogammaspectrometry and geochemistry to access sediment sources in a shallow coral site at Armação dos Búzios, Brazil. Estuarine, Coastal and Shelf Science, v. 87, p.526-534.
- GODOY, J.M.,SCHUCH, L.A., NORDEMANN, D.J.R., REIS, V.R.G., RAMALHO, M., RECIO, J.C., BRITO, R.R.A., OLECH, M.A. 1997. ^{137}Cs , $^{226,228}\text{Ra}$, ^{210}Pb and ^{40}K Concentrations in Antartic Soil, Sediment and selected Moss and Lichen Samples. Journal of Environmental Radioactivity v.41, p.33-45.
- GODOY, J.M., GODOY, M.L. 2006. Natural radioactivity in Brazilian groundwater. Journal of Environmental Radioactivity v.85, p.71-83.
- GODOY, M.L.D.P. et al. 2006. ^{234}U and ^{230}Th determination by FIA-ICP-MS and application to uranium-series disequilibrium in marine samples. Journal of environmental radioactivity v.88. p. 109-117.
- HARVEY,B.G.,1969.Química Nuclear. Editora Edgard Blucher. 163p.
- IAEA- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2003. Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry. Technical Reports Series no 1363, IAEA, Vienna.173p.
- LEE, J.D. 1980. Química Inorgânica: um novo texto conciso. Editora Edgard Blücher. 507p.
- LIGERO,R.A.,RAMOS-LERATE,I.,BARRERA,M.,CASASRUIZ,M.2001. Relationships between sea-bed radionuclide activities and some

sedimentological variables. *Journal of Environmental Radioactivity*, v. 57, p.7-19.

MAHIQUES, M.M. 1998. Características da Matéria Orgânica Sedimentar da Plataforma Continental Interna e Média entre a Baía de Guanabara (RJ) e São Francisco do Sul (SC). Tese de Livre-Docência. Instituto Oceanográfico da Universidade de São Paulo, Universidade de São Paulo, 86 p.

MAHIQUES, M.M., MISHIMA, Y., RODRIGUES, M. 1999. Characteristics of the organic matter on the inner and middle continental shelf between Guanabara Bay and São Francisco do Sul, southeastern Brazilian Margin. *Continental Shelf Research*, v. 19. p. 775-798.

MAHIQUES, M.M., SILVEIRA, I.C.A., SOUZA, S.H.M., RODRIGUES, M. 2002. Post-LGM sedimentation on the outer shelf-upper slope of the northernmost part of the São Paulo Bight, southeast Brazil. *Marine Geology*, v.181. p. 387-400.

MAHIQUES, M. de M., TESSLER, M.G., CIOTTI, A.M., SILVEIRA, I.C.A., SOUSA, S.H.M., FIGUEIRA, R.C.L., TASSINARI, C.C.G., FURTADO, V.V., PASSOS, R.F. 2004. Hydrodynamically driven patterns of recent sedimentation in the shelf and upper slope off Southeast Brazil. *Continental Shelf Research* v.24.p.1685-1697.

MAHIQUES, M. de M., WAINER, I.K.C., BURONE, L., NAGAI, R., SOUZA, S.H. de M., FIGUEIRA, R.L.C., SILVEIRA, I.C.A., BÍCEGO, M.C., ALVES, D.P.V., HAMMER, O. 2008. A high-resolution Holocene Record on the Southern Brazilian Shelf: Paleoenvironmental implications. *Quaternary International*, v.206, p.52-61.

- MASON, B.H. 1971. Princípios de Geoquímica. Editora da Universidade de São Paulo/ Editora Polígono. 403p.
- MIRANDA, L.B. 1982. Análise de Massas de Água da Plataforma Continental e da Região Oceânica Adjacente: Cabo de São Tomé (RJ) e a Ilha de São Sebastião (SP), Brasil. Tese de Livre-Docência. Instituto Oceanográfico, USP. 125p.
- NRC - National Research Council (U.S.),1971. Radioactivity in the Marine Environment. National Academy of Sciences, 272p.
- PAPAEFTHYMIU, H., PAPATHEODOROU, G., MOUSTAKLI, A., CHRISTODOULOU, D., GERAGA, M. 2007. Natural Radionuclides and ^{137}Cs distributions and their relationship with sedimentological processes in Patras Harbour, Greece. Journal of Environmental Radioactivity, v. 94. p. 55-74.
- PEREIRA, E.B.; HAMZA,V.M.; FURTADO,V.V.;ADAMS,J.A.S.1986. U, Th, K content, heat production and thermal conductivity of São Paulo, Brazil Continental Shelf Sediments: A Reconnaissance Work. Chemical.Geology.,v. 58, p.217-226.
- PESSOA, E.F.; COUTINHO, F.A.B.; SALA,O.,1978. Introdução à Física Nuclear. Editora da Universidade de São Paulo, McGRAW-HILL do Brasil.286p.
- PETERSON, R.G., STRAMMA, L. 1991. Upper-level circulation in the South Atlantic Ocean. Prog. Oceanog., v.26, p.1-71.
- PIOLA, A.R., MATANO, R.P., PALMA, E.D., MÖLLER Jr., O.O., CAMPOS, E.J.D. 2005. The influence of the Plata River discharge on the western South atlantic Shelf. Geophysical Research Letters, v.32, p.1-4.

- PIOLA, A.R., CAMPOS, E.J.D., MARTINEZ, C.M., MÖLLER Jr., O.O., WESSON, J. 2004. Observando la Influencia del Rio de la Plata em la plataforma occidental del Atlántico Sur. Inter-American Institute For Global Change Research News Letter. v.34, p. 8-11.
- PIOLA, A.R., CAMPOS, E.J.D., MÖLLER Jr., O.O., CHARO, M., MARTINEZ, C. 2000. Subtropical Shelf Front off eastern South América. Journal of Geophysical Research, v.105, nº.C3, p.6565-6578.
- SANTOS, I.R., BURNETT, W.C., GODOY, J.M. 2008. Radionuclides as tracers of Coastal Processes in Brazil: Review, Synthesis and Perspectives. Brazilian Journal of Oceanography, v.56(2), p. 115-131.
- SHEPARD, F.P.1954. Nomenclature based on sand-silt clay ratios. Journal of Sedimentary Petrology, v.24(3), p. 151-158.
- SUGUIO, K. 1973. Introdução à sedimentologia. São Paulo, Edgard Blücher/EDUSP. 317p.
- TESSLER, M. G. 2001. Taxa de sedimentação holocênica na plataforma continental sul do Estado de São Paulo. Tese de Livre-Docência. Instituto Oceanográfico da Universidade de São Paulo, Universidade de São Paulo, 130 p.
- UNSCEAR – United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Exposures to natural radiation sources*, 1982.
- WENTWORTH, C.K. 1922. A scale of grade and class terms for clastic sediments. Journal of Geology, v.30, p.377-392.
- WIJNGAARDEN, M. van, VENEMA L.B., DE MEIJER, R.J., ZWOLSMAN, J.J.G., VAN OS B., GIESKE, J.M.J.2002. Radiometric sand-mud

characterisation in the Rhine-Meuse estuary Part A. Fingerprinting. Geomorphology, v. 43, p.87-101.

ZEMBRUSCKI, S.G. 1979. Geomorfologia da margem continental sul brasileira e das bacias oceânicas adjacentes. **In:** CHAVES, H.A.F. (ed.) Geomorfologia da margem continental brasileira e áreas oceânicas adjacentes (relatório final). Série Projeto REMAC, n. 7 Rio de Janeiro, PETROBRÁS, CENPES, DINTEP. p. 129 – 177.

Anexo 1: Valores de granulometria e atividade dos radionuclídeos

Estação	Granulometria				Atividades em Bqkg ⁻¹			Localização		
	Massa(g)	Areia(%)	Silte(%)	Argila(%)	⁴⁰ K	²³⁸ U	²³² Th	Lat	Long	Prof.
6554	15,19	7,51	65,29	27,00	381,99	11,62	27,32	-23,89	-42,76	496,0
6573	12,36	30,88	45,45	23,67	440,44	12,16	26,64	-24,92	-44,63	155,0
6577	10,96	87,73	8,36	3,92	65,45	s	19,10	-25,26	-45,08	142,0
6587	13,98	s	s	s	621,59	6,69	34,89	-25,29	-46,36	86,0
6595	11,78	64,43	21,69	12,10	219,36	47,18	30,32	-26,38	-46,64	175,0
6608	10,78	61,39	27,03	11,58	324,15	40,51	24,79	-28,00	-46,99	500,0
6610	9,74	26,72	47,91	25,37	583,46	36,60	25,67	-28,56	-47,09	385,0
6611	9,80	s	s	s	398,79	52,76	22,46	-28,41	-47,36	197,0
6622	10,76	s	s	s	506,79	11,78	44,74	-26,52	-46,25	474,0
6625	10,09	8,79	51,04	40,17	450,22	33,00	23,72	-24,48	-43,62	980,0
6626	12,40	46,30	38,06	15,64	284,77	11,00	25,52	-24,23	-43,75	205,0
6627	9,88	21,61	67,50	10,89	370,44	1,48	21,62	-23,97	-43,88	133,0
6631	11,14	52,79	23,70	19,99	401,18	9,02	25,14	-25,77	-45,48	164,0
6635	13,48	s	s	s	299,66	15,42	18,70	-27,17	-47,46	129,0
6641	13,43	30,72	26,32	41,38	357,42	6,34	22,45	-26,25	-46,88	130,0
6643	11,80	6,61	36,76	56,63	631,23	30,21	37,71	-25,42	-46,07	s
6644	10,21	9,42	41,41	49,17	564,71	7,53	33,93	-25,81	-45,28	480,0
6647	12,84	53,37	21,03	25,60	254,96	s	24,31	-25,68	-45,38	157,0
6653	14,39	s	s	s	265,20	16,21	21,40	-25,72	-46,05	145,0
6670	11,27	s	s	s	297,01	16,65	38,72	-24,69	-44,38	503,0
6680	11,68	57,19	33,64	9,17	284,22	4,45	15,54	-25,25	-44,88	258,0
6684	10,92	24,95	41,10	33,95	545,68	14,90	31,92	-25,75	-45,17	514,0
6685	13,09	41,14	42,04	16,82	415,18	4,61	30,88	-25,71	-45,20	280,0
6690	14,74	27,75	57,80	14,45	483,49	26,25	31,35	-27,02	-46,68	285,0
6691	11,48	17,98	43,81	38,21	481,41	10,07	33,54	-26,45	-47,02	140,0
6695	17,41	50,71	15,15	13,78	256,70	12,92	19,65	-26,29	-46,70	153,0
6697	11,88	9,62	55,03	35,35	544,93	29,19	27,72	-26,33	-46,25	430,0
6698	11,42	64,52	25,81	9,68	393,76	24,06	23,58	-26,18	-46,33	242,0
6700	10,02	s	s	s	630,48	5,05	37,57	-25,42	-46,37	100,0
6703	15,44	42,14	31,34	26,52	413,92	33,84	40,33	-25,67	-46,23	133,0
6705	16,21	30,77	46,35	22,88	528,14	22,25	33,40	-26,01	-45,65	430,0
6706	12,33	58,24	21,69	18,24	255,06	19,71	28,27	-25,82	-45,76	183,0
6736	13,36	s	s	s	522,42	12,08	20,64	-23,57	-43,76	460,0
6737	13,44	9,95	62,57	27,49	368,79	24,05	24,50	-24,22	-43,43	476,0
6738	14,73	27,55	52,77	19,68	410,78	19,41	27,15	-24,19	-43,44	330,0
6742	15,26	61,56	24,71	13,73	288,65	28,89	28,60	-23,99	-43,16	215,0
6743	14,84	12,19	58,54	29,27	420,74	23,46	31,14	-23,92	-42,79	508,0

Estação	Massa(g)	Granulometria			Atividades em Bqkg ⁻¹			Localização		
		Areia(%)	Silte(%)	Argila(%)	⁴⁰ K	²³⁸ U	²³² Th	Lat	Long	Prof.
6748	15,04	11,93	59,66	28,41	390,08	12,02	19,62	-23,78	-42,48	497,0
6749	15,51	37,04	41,97	20,99	301,19	4,16	14,60	-23,74	-42,50	325,0
6751	19,89	66,52	24,55	8,93	487,29	18,69	28,51	-23,10	-42,41	93,0
6752	15,25	23,39	61,29	15,32	374,46	18,75	19,21	-23,73	-42,11	502,0
6755	15,33	34,18	42,13	23,70	464,28	19,37	31,26	-23,08	-42,02	s
6756	15,37	40,51	33,99	25,50	344,61	16,62	22,54	-23,80	-41,68	650,0
6759	24,00	83,52	8,06	5,04	108,82	2,74	12,29	-23,33	-41,36	115,0
6760	16,41	53,69	32,23	12,39	247,12	22,14	22,68	-23,51	-41,16	393,0
6761	15,39	57,75	22,37	19,88	186,43	16,78	23,07	-23,49	-41,16	284,0
6762	16,58	76,46	11,77	11,77	127,01	8,14	12,11	-23,44	-41,23	145,0
6763	10,38	s	s	s	108,09	15,54	18,93	-23,13	-41,02	101,0
6764	13,35	11,86	56,09	32,05	338,21	22,04	42,47	-23,16	-40,94	440,0
6765	15,46	73,31	12,13	14,56	86,25	12,05	10,63	-23,16	-40,95	247,0
6767	14,18	2,22	52,85	44,93	369,64	31,09	37,57	-22,95	-40,77	483,0
6776	11,64	1,22	37,63	61,15	770,25	36,57	49,45	-26,79	-47,58	100,0
6777	15,03	9,61	59,40	30,99	494,35	42,23	32,45	-26,86	-46,31	500,0
6778	11,36	s	s	s	539,11	17,37	23,33	-26,85	-46,57	322,0
6779	10,63	s	s	s	320,08	33,40	28,76	-26,83	-46,76	200,0
6780	18,42	s	s	s	611,71	24,99	33,35	-27,12	-47,74	102,0
6782	10,97	s	s	s	486,19	40,82	42,51	-27,18	-46,78	480,0
6785	14,82	59,61	26,93	13,46	372,29	39,84	19,76	-27,48	-47,13	510,0
6791	11,52	s	s	s	466,97	40,19	18,36	-27,81	-47,18	358,0
6793	11,70	46,89	37,94	15,17	400,05	14,97	17,71	-27,78	-47,67	138,0
6794	10,37	18,52	40,74	40,74	643,78	22,50	34,03	-28,08	-48,10	100,0
6796	11,80	s	s	s	452,77	30,44	35,35	-28,15	-47,15	347,0
6797	11,94	s	s	s	247,22	5,75	18,07	-28,14	-47,38	190,0
6801	10,88	s	s	s	353,29	27,42	28,30	-28,57	-47,67	166,0
6802	11,55	s	s	s	603,49	25,71	38,34	-28,69	-48,31	104,0
6807	12,22	84,76	10,16	5,08	315,30	9,35	19,94	-28,89	-47,80	225,0
6808	15,03	76,77	11,62	11,62	192,73	35,50	22,05	-28,81	-48,00	141,0
6809	15,38	21,93	35,18	42,89	518,38	6,89	35,06	-28,69	-48,30	104,0
6810	11,39	s	s	s	709,65	6,27	39,25	-28,97	-48,49	106,0
6811	10,18	s	s	s	395,98	37,85	32,41	-29,25	-47,85	506,0
6813	14,69	s	s	s	501,41	17,67	24,75	-29,19	-47,96	299,0
6817	13,44	74,81	17,71	7,48	305,84	36,10	20,04	-29,48	-48,15	210,0
6855	13,51	s	s	s	873,28	36,73	24,22	-30,31	-47,51	500,0
6857	12,69	s	s	s	411,60	11,62	24,43	-30,15	-48,28	240,0
6945	15,26	44,59	36,94	18,47	592,96	40,77	33,23	-24,01	-46,35	10,4
6946	14,57	s	s	s	666,48	21,43	32,16	-24,03	-46,34	13,5

Estação	Massa(g)	Granulometria			Atividades em Bqkg ⁻¹			Localização		
		Areia(%)	Silte(%)	Argila(%)	⁴⁰ K	²³⁸ U	²³² Th	Lat	Long	Prof.
6947	14,77	3,03	72,73	24,24	497,45	38,66	36,94	-24,03	-46,36	9,3
6948	15,07	89,74	7,69	2,56	664,50	20,16	20,29	-24,00	-46,34	10,6
6949	15,08	59,32	25,42	15,25	421,98	30,80	39,87	-23,05	-42,01	91,8
6950	14,46	23,45	45,23	31,32	431,17	39,97	41,14	-23,07	-41,98	101,0
6951	15,23	79,32	10,34	10,34	421,44	30,86	38,64	-23,01	-41,97	60,0
6952	15,09	s	s	s	425,96	32,70	41,69	-23,01	-41,93	57,7
6953	14,96	32,25	40,65	27,10	490,52	29,01	44,20	-23,03	-41,54	72,5
6954	14,61	40,91	29,55	29,55	454,43	25,73	43,50	-23,05	-41,95	78,0
6956	14,57	22,63	45,13	32,24	456,31	14,21	44,21	-23,15	-41,90	118,0
7222	15,25	91,74	3,31	4,96	427,52	26,73	36,34	-23,22	-44,45	35,6
7225	19,30	94,46	3,02	2,52	227,75	17,54	16,73	-23,36	-44,33	43,5
7230	14,19	48,73	31,17	20,11	441,96	17,81	25,62	-23,55	-44,22	70,1
7231	14,95	74,40	17,06	8,53	362,29	5,33	24,32	-23,53	-44,60	50,1
7232	16,79	96,33	3,67	0,00	715,82	9,86	19,10	-23,50	-44,92	33,2
7233	13,86	94,85	2,57	2,57	264,06	27,12	26,23	-23,44	-45,00	15,2
7234	16,31	72,94	21,65	5,41	394,66	11,67	15,20	-23,63	-44,67	53,9
7235	24,19	100,00	0,00	0,00	470,61	21,77	29,90	-23,67	-45,33	13,7
7236	10,62	5,15	75,88	18,97	630,36	15,97	35,85	-23,72	-45,30	16,8
7237	12,05	9,40	55,87	34,73	482,30	20,28	33,90	-23,91	-45,21	37,2
7605	13,97	s	s	s	666,14	16,30	35,84	-27,10	-47,80	93
7606	12,40	s	s	s	600,68	s+A1:K112	29,84	-26,99	-48,08	60
7607	14,62	s	s	s	402,55	8,01	16,37	-27,37	-47,14	287
7608	14,54	s	s	s	239,70	29,66	25,74	-25,94	-46,14	179
7609	16,00	s	s	s	456,33	24,79	26,07	-26,02	-46,04	308
7610	12,07	0,32	57,76	41,91	596,54	29,08	36,69	-25,51	-46,63	89
7612	16,91	s	s	s	251,78	9,54	17,19	-24,62	-46,19	57
7613	13,16	5,78	53,92	40,30	515,89	23,21	25,88	-24,97	-45,80	88
7617	10,95	s	s	s	393,86	12,33	15,80	-24,06	-44,56	121
7620	8,68	s	s	s	475,68	47,77	37,20	-22,94	-41,98	44
7622	9,45	s	s	s	432,05	12,68	17,62	-24,31	-43,75	430
7623	12,89	s	s	s	482,25	49,45	35,18	-24,49	-44,24	458

Anexo 2 : Gráficos de correlação linear

Variações latitudinais, longitudinais e batimétricas dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K no total de amostras de sedimentos marinhos na Margem Continental Sudeste do Brasil

a) ^{238}U

b) ^{232}Th

c) ^{40}K

Gráficos de correlação linear entre os teores dos radionucléios ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K e as frações granulométricas em % (areia, silte, argila e lama), latitude e longitude nas amostras de sedimento marinho da Margem Continental Sudeste do Brasil:

a) ^{238}U

b) ^{232}Th

c) ^{40}K

Gráficos de correlação linear entre os teores dos radionucléios e as frações granulométricas em % (areia, silte, argila e lama) nas amostras de sedimento marinho da margem continental sudeste do Brasil, setor nordeste:

a) ^{238}U

b) ^{232}Th

c) ^{40}K

Gráficos de correlação linear entre os teores dos radionucléios e as frações granulométricas em % (areia, silte, argila e lama) nas amostras de sedimento marinho da margem continental sudeste do Brasil, setor sudoeste:

a) ^{238}U

b) ^{232}Th

c) ^{40}K