PAULO ALVES DE LIMA FERREIRA

Métodos de estudo de variáveis e processos de dinâmica sedimentar marinha
com radionuclídeos naturais e artificiais

Tese apresentada ao Instituto
Oceanográfico da Universidade de São
Paulo, como parte dos requisitos para
obtenção do título de Doutor em Ciências,
Programa de Oceanografia, área de
Oceanografia Química.

Orientador: Prof. Dr. Rubens Cesar Lopes
Figueira

São Paulo

2018

Universidade de São Paulo

Instituto Oceanográfico

Métodos de estudo de variáveis e processos de dinâmica sedimentar marinha
com radionuclídeos naturais e artificiais

-Versão corrigida-

Paulo Alves de Lima Ferreira

Tese apresentada ao Instituto Oceanográfico da Universidade de São Paulo
como parte dos requisitos para obtenção do título de Doutor em Ciências,
Programa de Oceanografia, área de Oceanografia Química

Julgada em 31/08/2018 por

Prof. Dr. Michel Michaelovitch de Mahiques

Conceito

Prof. Dr. Tufic Madi Filho

Conceito

Prof. Dr. Cesar de Castro Martins

Conceito

SUMÁRIO

RESUMO	x
ABSTRACT	xi
ABREVIATÖES	xii
PREFÁCIO	xv
1. INTRODUÇÃO	16
1.1 Radioatividade	17
1.2 Séries de decaimento de radionuclídeos naturais.....	20
1.3 Produção de radionuclídeos artificiais.....	23
1.4 Espectrometria gama	26
1.5 Radionuclídeos em estudos de dinâmica sedimentar marinha	27
1.5.1 ¹³⁷ Cs	29
1.5.2 ²¹⁰ Pb	30
1.5.3 ²²⁶ Ra	31
1.5.4 Isótopos de Th (²³⁰ Th, ²³² Th)	32
1.5.5 Isótopos de U (²³⁴ U, ²³⁸ U)	34
2. OBJETIVOS	36
3. MATERIAIS E MÉTODOS	38
3.1 Processamento das amostras.....	38
3.2 Determinação de porosidade, densidade aparente e profundidade-massa	38
3.3 Determinação das atividades dos radionuclídeos	39
4. VARIAÇÕES ESPACIAIS E TEMPORAIS RECENTES NA TAXA DE SEDIMENTAÇÃO EM UM SISTEMA COSTEIRO	47
4.1 Apresentação	47
4.2 Área de estudo.....	48
4.3 Conjunto amostral	51
4.4 Modelagem com ¹³⁷ Cs	52
4.5 Modelagem com ²¹⁰ Pb	55

4.5.1 Modelos CIC e CFCS	56
4.5.2 Modelo CRS	57
4.5.3 Modelo ADE.....	59
4.6 Tratamento estatístico.....	60
4.7 Resultados e discussão	61
4.8 Considerações finais.....	73
5. APLICAÇÃO CRONOESTRATIGRÁFICA DE UM MARCADOR RADIOATIVO NO ANTROPOCENO	75
5.1 Apresentação.....	75
5.2 Área de estudo.....	77
5.3 Conjunto amostral	80
5.4 Avaliação do ^{137}Cs proveniente do <i>fallout</i> pretérito	81
5.5 Resultados e discussão	82
5.6 Considerações finais.....	90
6. TAXAS DE SEDIMENTAÇÃO E MODELOS DE IDADE EM TESTEMUNHOS MARINHOS QUATERNÁRIOS	92
6.1 Apresentação.....	92
6.2 Áreas de estudo	94
6.2.1 Margem Continental Sudeste do Brasil.....	95
6.2.2 Margem Continental do Mar do Sul da China	97
6.3 Conjunto amostral	98
6.4 Modelo de sedimentação com ^{230}Th em excesso	99
6.5 Métodos de datação relativa	103
6.5.1 Registro de isótopos estáveis de oxigênio	103
6.5.2 Bioestratigrafia e magnetoestratigrafia	105
6.6 Resultados e discussão	108
6.7 Considerações finais.....	119
7. CONCLUSÕES	122
8. REFERÊNCIAS.....	125

ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 1. Série de decaimento do ^{232}Th	21
Figura 2. Série de decaimento do ^{235}U	21
Figura 3. Série de decaimento do ^{238}U	22
Figura 4. Cronologia da quantidade de testes nucleares realizados por país até 2014 [dados de Oklahoma Geological Survey (2014)]	25
Figura 5. Hidrogeoquímica do ^{210}Pb	31
Figura 6. Hidrogeoquímica do ^{230}Th	34
Figura 7. Sistema Estuarino de Santos-São Vicente (SP, Brasil)	49
Figura 8. Localização dos testemunhos no Sistema Estuarino de Santos-São Vicente	52
Figura 9. Perfis verticais de atividade de ^{137}Cs (em mBq cm^{-3}) para os testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente (pontos = perfil amostral, linhas = perfil teórico do MDC)	65
Figura 10. Perfis verticais de atividade de ^{210}Pb (em Bq kg^{-1}) para os testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente (pontos = perfil amostral, linhas = perfil teórico do CIC)	66
Figura 11. Distribuição espacial da taxa de sedimentação (em cm a^{-1}) no Sistema Estuarino de Santos-São Vicente	69
Figura 12. Variação temporal da taxa de sedimentação (ν) (em cm a^{-1}) nos testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente	70
Figura 13. Variação temporal da taxa de acumulação de massa (φ) (em $\text{g cm}^{-2} \text{a}^{-1}$) nos testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente	71
Figura 14. Sistemas costeiros de interesse ao longo da costa sul-americana do Atlântico Sul com a localização dos testemunhos analisados. (a) Estuário do Caeté (PA, Brasil), (b) Foz do Rio Capibaribe (PE, Brasil), (c) Estuário de Caravelas (BA, Brasil), (d) Sistema Estuarino de Santos-São Vicente (SP, Brasil), (e) Complexo Estuarino de Cananeia-Iguape (SP, Brasil), (f) Baía de Paranaguá (PR, Brasil), (g) Estuário do Rio da Prata (Uruguai)	78
Figura 15. Perfis verticais de ^{137}Cs (em mBq cm^{-3}) para os testemunhos da costa do Atlântico Sul (Estuário do Caeté, foz do Rio Capibaribe, Estuário de Caravelas)	83

Figura 16. Perfis verticais de ^{137}Cs (em mBq cm^{-3}) para os testemunhos da costa do Atlântico Sul (Sistema Estuarino de Santos-São Vicente, Complexo Estuarino de Cananeia-Iguape).....	84
Figura 17. Perfis verticais de ^{137}Cs (em mBq cm^{-3}) para os testemunhos da costa do Atlântico Sul (Baía de Paranaguá, estuário do Rio da Prata)	85
Figura 18. Gráfico de regressão latitudinal do ^{137}Cs proveniente do <i>fallout</i> radioativo global (A_0)	88
Figura 19. Margem Continental Sudeste do Brasil (MCSB)	95
Figura 20. Margem Continental do Mar do Sul da China (MMSC)	97
Figura 21. Comparação entre o registro de isótopos estáveis de oxigênio em foraminíferos ($\delta^{18}\text{O}$, em ‰) e a curva LR04 dentro da escala de MIS. (a) KF16, (b) KF18	104
Figura 22. Modelos de idade com base em dados bio/magnetoestratigráficos para o Pleistoceno Médio. (a) U1431, (b) U1432	108
Figura 23. Perfis verticais de atividade de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ (em Bq kg^{-2}) (a) e perfis linearizados (b) para os testemunhos da MCSB e MMSC	112
Figura 24. Comparação dos modelos de idade de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ com os métodos de datação relativa, e respectivos intervalos de valores dos desvios relativos entre as idades calculadas (Δ_{idades}). (a) KF16, (b) KF18, (c) U1431, (d) U1432	113
Figura 25. Comparação entre o perfil de ^{234}U (em Bq kg^{-1}) e o registro de isótopos estáveis de oxigênio em foraminíferos ($\delta^{18}\text{O}$, em ‰) no testemunho KF18, com marcação dos MIS	118
Figura 26. Periodograma do tipo Lomb-Scargle para a série temporal de ^{234}U do testemunho KF18, com indicação dos valores de período dos picos dominantes.....	119

ÍNDICE DE TABELAS

Tabela 1. Energias de emissão de radiação γ (em keV) usadas para a determinação das atividades dos radionuclídeos [dados de International Atomic Energy Agency (1989)].....	40
Tabela 2. Eficiência de contagem (ϵ) (em %) para as energias de emissão gama utilizadas em cada um dos detectores empregados nas análises das amostras de sedimento	43
Tabela 3. Atividades mínimas detectáveis (AMD) (em Bq kg ⁻¹) para os nuclídeos analisados nas amostras de sedimento	44
Tabela 4. Análise das atividades dos radionuclídeos (em Bq kg ⁻¹) nos materiais de referência certificados. Controle estatístico de qualidade do método analítico.....	46
Tabela 5. Intervalo de variação das atividades de ¹³⁷ Cs, ²¹⁰ Pb e ²²⁶ Ra (em Bq kg ⁻¹) nos testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente	62
Tabela 6. Valores de taxa de sedimentação média (ν) (em cm a ⁻¹) calculados pelos modelos MDC, CIC e ADE e de acumulação de massa média (φ) (em g cm ⁻² a ⁻¹) pelo modelo CFCS para os testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente.....	67
Tabela 7. Valores p para os testes de Anderson-Darling, Levene e para a ANOVA multifatorial ($\alpha = 5\%$) das taxas de sedimentação dos modelos MDC, CIC e ADE para os testemunhos do Sistema Santos-São Vicente	68
Tabela 8. Descrição dos testemunhos coletados ao longo da região costeira do Atlântico Sul	81
Tabela 9. Atividades iniciais de ¹³⁷ Cs referentes ao máximo do <i>fallout</i> radioativo global (A_0 , equivalente a 1963) (em mBq cm ⁻³) nos testemunhos da costa do Atlântico Sul. Valor p da estimativa de A_0 pelo MDC ($\alpha = 5\%$).....	87
Tabela 10. Descrição dos testemunhos coletados nas Margens Continentais Sudeste do Brasil (MCSB) e do Mar do Sul da China (MMSC).....	99
Tabela 11. Eventos bioestratigráficos registrados para os testemunhos U1431 e U1432.....	106
Tabela 12. Intervalo de variação das atividades de ²³⁰ Th, ²³² Th e ²³⁴ U (em Bq kg ⁻¹) nos testemunhos da MCSB e da MMSC.....	109
Tabela 13. Comparação de valores de atividades (em Bq kg ⁻¹) de radionuclídeos naturais em sedimentos dos Oceanos Atlântico e Pacífico....	110

Tabela 14. Taxas de sedimentação (em cm ka^{-1}) nos testemunhos da MCSB e MMSC	115
Tabela 15. Comparação entre as premissas dos diferentes modelos de cálculo de taxas de sedimentação e datação recentes	122

AGRADECIMENTOS

Ao prof. Rubens C. L. Figueira, por todo o aprendizado e apoio desde o início de minha graduação e por ter me ensinado o que eu apliquei no desenvolvimento deste trabalho.

À minha família, por todas as minhas realizações e conquistas.

Ao Renato X. Duarte, por me aguentar a reclamar de tudo com paciência.

À FAPESP, pela concessão de financiamento de meu trabalho na forma de uma bolsa de doutorado (processo 2014/08016-6, Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo).

Aos alunos e colaboradores do Laboratório de Química Inorgânica do IOUSP, pelo convívio no dia-a-dia e pelas contribuições para o desenvolvimento deste trabalho e das diversas pesquisas que realizamos.

Aos professores Karen B. Costa, Michel M. Mahiques, César C. Martins e Renata H. Nagai, e ao IODP e Petrobrás, pelas amostras utilizadas neste trabalho.

Aos professores membros das bancas do exame de qualificação e de defesa desta tese, pelas contribuições oferecidas a este trabalho.

RESUMO

A onipresença dos radionuclídeos naturais e artificiais nas diversas matrizes ambientais é passível de ser aproveitada como ferramenta em estudos de dinâmica sedimentar marinha, pois estes nuclídeos registram processos em escalas espaciais e temporais de acordo com seus níveis e distribuição espacial e vertical em sedimentos. Dentro deste contexto, este trabalho demonstrou o uso de radionuclídeos naturais (^{210}Pb , ^{226}Ra , $^{230,232}\text{Th}$, $^{234,238}\text{U}$) e artificiais (^{137}Cs) em estudos de dinâmica sedimentar marinha com a espectrometria gama como única técnica analítica, através da apresentação de um conjunto de métodos de aplicação de radionuclídeos, modelos matemáticos e de interpretação de seus resultados. A primeira aplicação descrita foi uma avaliação quantitativa da sedimentação no Sistema Santos-São Vicente, que permitiu um estudo das variações espaciais e ao longo do tempo na sedimentação deste sistema costeiro. Outra aplicação foi o uso da ocorrência e distribuição espacial de ^{137}Cs como uma ferramenta estratigráfica em sistemas costeiros do Oceano Atlântico Sul, com um modelo matemático cujos resultados indicaram um padrão latitudinal nos níveis de atividade deste nuclídeo consistente com observações de sua deposição atmosférica reportadas pela literatura internacional. Finalmente, um modelo de sedimentação e idade baseado nas relações entre isótopos de Th e U (validado com resultados de isótopos estáveis de oxigênio e bio/magnetoestratigrafia) foi empregado para estimar taxas de sedimentação e idades em testemunhos quaternários de duas margens continentais passivas (oeste do Oceano Atlântico Sul e Mar do Sul da China). Com os resultados deste modelo, observou-se períodos de aumento nos níveis de ^{230}Th que podem sugerir a influência de fatores como variações na taxa de deposição de ^{230}Th e ciclos orbitais de Milankovitch.

Palavras-chave: ^{210}Pb , ^{137}Cs , ^{230}Th , sedimento, espectrometria gama, Atlântico Sul.

ABSTRACT

The occurrence of natural and artificial radionuclides in the environment can be used as a tool for studies of marine sedimentary dynamics, as these nuclides record environmental processes at both spatial and temporal scales. Within this context, this work aimed at demonstrating the use of natural (^{210}Pb , ^{226}Ra , $^{230,232}\text{Th}$, $^{234,238}\text{U}$) and artificial (^{137}Cs) radionuclides in studies of sedimentary dynamics with gamma spectrometry as sole analytical technique. This was done through the application of several mathematical models and methods of radionuclides' data interpretation. The first application was a quantitative assessment of sedimentation in the Santos-São Vicente coastal system, studying its spatial variations during the last century. Another application was the use of the occurrence and spatial distribution of ^{137}Cs as a stratigraphical tool for age studies in coastal systems of the South Atlantic Ocean. With the results of a mathematical model it was possible to infer values of radionuclide deposition that showed a latitudinal pattern in the levels of this element, consistent with international reports of fallout atmospheric deposition. Finally, a model of sedimentation and age determination based on the relationships between Th and U isotopes was used to estimate sedimentation rates in Quaternary cores from two passive continental margins (South Atlantic western margin and South China Sea margin). The model was validated by statistical comparison with data of stable oxygen isotopes and bio/magnetostratigraphy. The results of this model showed periods with an increase on the ^{230}Th excess activity that could be related to variations on Th deposition rate and the influence of Milankovitch orbital cycles on Th and U deposition.

Keywords: ^{210}Pb , ^{137}Cs , ^{230}Th , sediment, gamma spectrometry, South Atlantic.

ABREVIações

Radioatividade.

α, β, γ	Partículas alfa, beta e gama, respectivamente.
λ	Constante de decaimento radioativo.
CE	Captura eletrônica.
CI	Conversão interna.
FE	Fissão espontânea.
IAEA	Agência Internacional de Energia Atômica.
NORM	Material radioativo de ocorrência natural.
$T_{1/2}$	Meia-vida radioativa.
TENORM	Material radioativo de ocorrência natural tecnologicamente concentrado.
UNSCEAR	Comitê Científico das Nações Unidas sobre os Efeitos da Radiação Atômica.

Elementos químicos.

Ac	Actínio.
Am	Amerício.
As	Arsênio.
Ba	Bário.
Bi	Bismuto.
C	Carbono.
Ca	Cálcio.
Ce	Cério.
Co	Cobalto.
Cs	Césio.
Ge	Germânio.
He	Hélio.
K	Potássio.
La	Lantânio.
Li	Lítio.
N	Nitrogênio.
O	Oxigênio.
Pa	Protactínio.
Pb	Chumbo.
Po	Polônio.

Pu	Plutônio
Ra	Rádio.
Rn	Radônio.
Si	Silício.
Sn	Estanho.
Sr	Estrôncio.
Th	Tório.
U	Urânio.
Zn	Zinco.

Unidades e espectrometria gama.

ADC	Conversor analógico-digital.
AMD	Atividade mínima detectável.
AP	Antes do presente.
BG	Radiação de fundo.
Bq	Becquerel.
cps	Contagem por segundo.
DPR	Desvio padrão relativo.
ε	Eficiência de contagem.
ER	Erro relativo.
FWHM	Largura à meia altura.
HPGe	Germânio hiperpuro.
ka	Mil anos.
keV	Quilo-eletrovolt.
LD	Limite de detecção.
MCA	Analizador multicanal.

Parâmetros.

ζ	Parâmetro profundidade-massa.
ν	Taxa de sedimentação.
ρ	Densidade.
Φ	Porosidade.
φ	Taxa de acumulação de massa.
A, a	Atividade por unidade de volume e por unidade de massa, respectivamente.
A_0	Atividade inicial de ^{137}Cs proveniente do <i>fallout</i> global de 1963.
I	Inventário.
W	Teor de água.

Modelos de sedimentação.

Th _{aut} , U _{aut}	Fração autigênica de Th e U, respectivamente.
Th _{det} , U _{det}	Fração detrítica de Th e U, respectivamente.
Pb _s	Fração suportada (detrítica) de Pb.
Pb _{xs} , Th _{xs}	Fração em excesso (não suportada) de Pb e Th, respectivamente.
ADE	Modelo <i>Advection-Diffusion Equation</i> .
CFCS	Modelo <i>Constant Flux, Constant Sedimentation</i> .
CIC	Modelo <i>Constant Initial Concentration</i> .
CRS	Modelo <i>Constant Rate of Supply</i> .
MDC	Modelo <i>Model of Diffusion-Convection</i> .

Outros.

χ^2	Quiquadrado.
AFD	Desmagnetizador de campo alternado.
ANOVA	Análise de variância.
AWG	Grupo de Trabalho do Antropoceno.
B/M	Reversão Brunhes-Matuyama.
ChRM	Magnetização remanente característica.
GSSA	Idade Estratigráfica Global Padrão.
GSSP	Secção e Ponto Estratigráfico Global.
GTPS	Escala de Tempo de Polaridade Geomagnética.
H ₃ PO ₄	Ácido fosfórico.
IODP	<i>Integrated Ocean Drilling Project</i> .
IRMS	Espectrômetro de massa de razão isotópica.
LR04	Curva de referência para o registro de $\delta^{18}\text{O}$.
MCSB	Margem Continental Sudeste do Brasil.
MIS	Estágio Isotópico Marinho.
MMSC	Margem do Mar do Sul da China.
NRM	Magnetização remanente natural.
PA	Primeiro aparecimento.
PCA	Análise de componentes principais.
SQS	Subcomissão da Estratigrafia do Quaternário.
SRM	Magnetômetro de rochas supercondutor.
UA	Último aparecimento.

PREFÁCIO

A radioatividade é um dos fenômenos naturais descobertos dentro do histórico de conquistas científicas da Humanidade. Seu estudo proporcionou uma grande revolução a partir da primeira metade do século XX, com resultados e consequências benéficas ao desenvolvimento da civilização, como a radioterapia, os radiofármacos e a energia eletrônica, e outras lesivas e polêmicas, como os armamentos nucleares e os desastres radioativos.

Dentro das Ciências Nucleares, há uma demanda crescente por estudos da presença de radionuclídeos no meio ambiente, derivada dos avanços recentes nas técnicas de medições de radioatividade ambiental. Além disso, a liberação de radionuclídeos artificiais (muitas vezes acidental, mas certamente nociva), pode ser aproveitada por estudos em áreas como a Oceanografia. É exatamente dentro deste contexto que este trabalho está inserido.

A aplicação oceanográfica (neste estudo, especificamente na área de sedimentação marinha) do uso de radionuclídeos foi o foco deste trabalho, não apenas ao apresentar métodos de obtenção, modelagem e tratamento de dados de radioelementos em sedimentos, como também meios e exemplos de interpretação destes dados que visam sua utilização em estudos de dinâmica sedimentar marinha.

Finalmente, tendo em vista a grande quantidade de elementos e isótopos analisada e a diversidade de ambientes marinhos (costeiros e oceânicos) estudados para demonstrar estas aplicações, esta tese consiste de capítulos separados, cada um tratando de um uso dos radionuclídeos em uma área de estudo específica em formato similar a estudos de caso.

---

1. INTRODUÇÃO

Um determinado isótopo de um elemento químico qualquer é dito radioativo se possuir algum tipo de instabilidade energética que leva à sua desintegração nuclear com consequente emissão de excedente energético para se tornar mais estável. Por estarem sob a ação dos mesmos processos naturais e terem o mesmo comportamento químico que suas formas estáveis, os radionuclídeos também podem ser encontrados nas diversas matrizes da Terra, como parte integrante de, por exemplo, rochas, solos, oceanos e sedimentos marinhos.

O descobrimento da existência da radioatividade, cuja medição identifica os radionuclídeos em uma mistura complexa qualquer de isótopos de diversos elementos, possibilitou o uso desses átomos emissores de radiação como traçadores de processos oceanográficos, sejam eles de natureza química, física, biológica ou geológica. Dessa forma, a análise de radionuclídeos tornou-se um instrumento com crescente utilização em estudos oceanográficos, pois os oceanos, ocupando a maior parte da superfície terrestre, são, conseqüentemente, os maiores sumidouros desses elementos.

A pesquisa de técnicas analíticas voltadas para a determinação de radionuclídeos em matrizes ambientais desenvolveu-se devido principalmente aos avanços científicos da segunda metade do século XX, impulsionados pela Segunda Guerra Mundial e pela Guerra Fria. Estes avanços na área de Ciências Nucleares ocorreram na busca pela construção das primeiras armas atômicas e das usinas nucleares de produção de energia elétrica.

Entretanto, o progresso destas tecnologias trouxe inúmeras preocupações relacionadas a acidentes nucleares, uso e proliferações de armas atômicas, efeitos biológicos das radiações e disposição final de rejeitos e efluentes radioativos. Estes eventos liberaram grandes quantidades de radionuclídeos artificiais para o meio ambiente e delinearam os princípios da Radioatividade Ambiental, ciência provinda da necessidade de estudos desta

natureza, e também a partir da descoberta das aplicações de radionuclídeos em outras ciências ambientais.

Este presente estudo está inserido neste contexto do desenvolvimento da aplicabilidade de radionuclídeos em Ciências da Terra, apresentando diversas técnicas e modelos de usos de radionuclídeos naturais e artificiais e suas aplicações em estudos de dinâmica sedimentar marinha.

1.1 Radioatividade

A radioatividade foi descoberta oficialmente em 1896 por Henri Becquerel. Através de seu trabalho com materiais fosforescentes, ele percebeu que sais de U emitem uma radiação, além da luz fosforescente, que atravessa superfícies compactas como o papel e provocam um escurecimento de placas fotográficas. Inicialmente, pensou-se que esta radiação descoberta era uma nova forma de raios X, mas estudos aprofundados, que envolveram outros pesquisadores como o casal Curie, Ernest Rutherford e Paul Villard, verificaram a complexidade da radioatividade ao identificar vários tipos de radiações emitidas por diversos radio-elementos em seus diferentes modos de decaimentos.

Ernest Rutherford foi o primeiro a determinar a natureza da radioatividade enquanto processo aleatório no que diz respeito à impossibilidade de prever quando um determinado átomo irá decair; mas que, para um grande número de átomos, a taxa de decaimento pode ser prevista com base nas constantes de decaimento radioativo, inatas de cada nuclídeo. A Lei Universal de Decaimento Radioativo foi formulada justamente para formalizar matematicamente este processo e conceituar a radioatividade como emissão de partículas ou energia por um átomo instável (ou seja, com excedente energético) com o objetivo de reduzir este excesso de energia, processo este de decaimento exponencial conforme [1] (FRIEDLANDER e KENNEDY, 1949).

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad [1]$$

Em que:

$N(t)$ = número de átomos em função do tempo;

N_0 = número inicial de átomos;

λ = constante de decaimento radioativo.

Dentre as variáveis mais importantes envolvidas nos cálculos de radioatividade estão a constante de decaimento radioativo (λ , característica temporal que dita a intensidade do decaimento radioativo de um determinado átomo), a meia-vida (equivale ao tempo que leva para metade da quantidade inicial de átomos decair) [2] e a atividade (medida da intensidade de radiação emitida por um conjunto de átomos) [3] (LOVELAND, MORRISSEY e SEABORG, 2006; SHULTIS e FAW, 2007).

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad [2]$$

$$A = \lambda N \quad [3]$$

Em que:

$T_{1/2}$ = meia-vida do átomo;

A = atividade de uma amostra de átomos;

N = número de átomos emissores de radiação presentes na amostra medida.

Tendo em vista o grande número de modos de emissões radioativas, foi criada uma classificação básica destas emissões de acordo com sua penetrabilidade na matéria. Essas radiações, ou raios, foram nomeadas alfa (α , equivalente a um núcleo de ^4He), beta (β , equivalente a um elétron/ β^- ou um pósitron/ β^+) e gama (γ , um fóton, partícula elementar sem massa), em ordem crescente de poder de penetração pela matéria (LOVELAND, MORRISSEY e SEABORG, 2006). Com o tempo, outros modos de decaimento foram observados, como a captura eletrônica (CE), a fissão espontânea (FE), a conversão interna (CI) e a emissão de nêutrons.

Além da classificação dos tipos de emissão radioativa, há também uma classificação dos radionuclídeos (ou seja, nuclídeos que emitem radiação), de acordo com sua origem. Nela, os radionuclídeos são divididos em dois grandes

grupos: naturais, ou seja, de ocorrência natural no Universo; e artificiais ou antropogênicos, isto é, aqueles produzidos pela atividade humana (RANKAMA, 1954).

Os radionuclídeos naturais podem ser divididos em três classes: (i) radionuclídeos primordiais, originados no interior das estrelas e ainda presentes no Universo devido à suas meias-vidas longas (ex. ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U); (ii) radionuclídeos secundários, produtos de decaimentos de radionuclídeos primordiais, com meias-vidas menores que eles (ex. ^{210}Pb , ^{222}Rn , ^{226}Ra) e; (iii) radionuclídeos cosmogênicos, criados a partir do bombardeamento de elementos na atmosfera por raios cósmicos (ex. ^7Be , ^{14}C).

Mesmo com toda esta evolução do conhecimento acerca da radioatividade a partir do final do século XIX, os seus perigos não foram imediatamente percebidos. Por exemplo, apenas em 1927 o pesquisador Hermann Muller publicou um estudo relatando os efeitos biológicos da radiação, um dos primeiros trabalhos do gênero. Entre os efeitos negativos da exposição biológica à radiação, estão queimaduras, efeitos no sistema nervoso, câncer, teratogênese, doenças do coração, catarata e infertilidade (SCHULL, 1995).

Essa nova área da ciência passou a ser aplicada nos mais diversos campos, como produção de energia nuclear, fabricação de radiofármacos para tratamento de doenças (como cânceres) e até mesmo a construção das ogivas nucleares (L'ANNUNZIATA, 2007). Esse conhecimento foi impulsionado principalmente pelas grandes guerras e pela corrida armamentista da Guerra Fria. Neste período, iniciou-se a criação dos primeiros radionuclídeos artificiais.

Advém do uso da radioatividade em atividades humanas e da produção de energia eletrônica a contaminação do meio ambiente por radionuclídeos, principalmente o meio marinho (sumidouro final dos mais diversos contaminantes), por quatro principais vias: explosões nucleares, descargas de efluentes de baixa radioatividade de usinas nucleares e de reprocessamento, disposição oceânica de tambores com rejeitos radioativos de usinas termoeletrônicas e acidentes nucleares (como os ocorridos em Three-Mile Island, Chernobyl e Fukushima) (LIVINGSTON e POVINEC, 2000).

1.2 Séries de decaimento de radionuclídeos naturais

Todos os isótopos de todos os elementos químicos naturais encontrados hoje na Terra foram criados nos processos de evolução estelar e acreção planetária ocorrido no Universo e no Sistema Solar (CLAYTON, 1983). Destes isótopos, aqueles que possuíam excedentes energéticos começaram a decair, todos com o objetivo de alcançar uma proporção estável entre os números de prótons e nêutrons em seus núcleos. Isso ocorre através dos modos de decaimento, envolvendo a liberação deste excedente energético por meio de emissão de, por exemplo, partículas α , β^+ , β^- e γ (LOVELAND, MORRISSEY e SEABORG, 2006).

Tendo em vista que este excedente energético é liberado em maior quantidade por meio de uma emissão de partícula α (com maior massa), os elementos naturais mais pesados (como Ac, Pa, Th e U) tendem a sofrer transmutação por este modo de decaimento. Em paralelo, os elementos radioativos naturais mais leves (ex. Bi, Pb, Ra e Rn) emitem com maior frequência partículas β (BASDEVANT, RICH e SPIRO, 2005).

A maior parte dos radionuclídeos naturais formam as chamadas séries de decaimento radioativo, que são sequências ordenadas de desintegrações pela qual radionuclídeos naturais passam, emitindo radiações α , β e γ , até que se estabilizem na forma de um átomo de Pb estável (GOLDSBY e CHANG, 2012). No topo das séries de decaimento, estão os isótopos mais pesados, com maiores meias-vidas, que são os representantes primordiais das três séries: série do ^{232}Th (Figura 1), série do ^{235}U (Figura 2) e série do ^{238}U (Figura 3).

Figura 1. Série de decaimento do ^{232}Th .

Figura 2. Série de decaimento do ^{235}U .

Figura 3. Série de decaimento do ^{238}U .

Uma propriedade importante das séries de decaimento radioativo com extensa aplicação científica é o fato de os nuclídeos-filhos serem radioativos. Em um sistema fechado não perturbado ao longo de um grande intervalo de tempo (por exemplo, uma formação rochosa com vários milhões de anos), um estado, chamado de equilíbrio secular, é estabelecido com base nas atividades [3] de todos os radionuclídeos (pais e filhos) dentro da série radioativa. Ele ocorre em uma série de decaimentos quando a meia-vida do nuclídeo-pai é muito maior que a do(s) filho(s), de tal forma que a taxa de produção do(s) filho(s) é igual a de decaimento do pai e, assim sendo, a atividade do nuclídeo-pai pode ser considerada como igual a do(s) filho(s) [4] (INTERNATIONAL UNION OF PURE AND APPLIED CHEMISTRY, 1997).

$$\begin{aligned}
 A &= \lambda_{\text{pai}} N_{\text{pai}} = \\
 &= \lambda_{\text{filho}(n)} N_{\text{filho}(n)}
 \end{aligned}
 \tag{4}$$

É justamente o estabelecimento deste equilíbrio secular dentro das séries (no exemplo, dentro da formação rochosa) e a posterior quebra deste equilíbrio (no caso do exemplo, com processos de erosão, intemperismo e mineração) que pode ser utilizada como ferramenta em estudos ambientais. As

quebras de equilíbrio secular podem envolver a presença de um excesso de um nuclídeo-filho ou uma deficiência, causados por diversos processos hidrogeoquímicos (por exemplo, o escape de ^{222}Rn - um gás - após a erosão de solos, criando uma quebra na série do ^{238}U) (DICKIN, 2005).

1.3 Produção de radionuclídeos artificiais

Em contraposição aos radionuclídeos naturais, os radionuclídeos artificiais são produzidos como produtos ou subprodutos de explosões de armamentos nucleares e da produção de energia elétrica em reatores eletr nucleares (ex. ^{137}Cs), aceleradores de partículas (ex. ^{18}F) e geradores de radionuclídeos específicos (ex. $^{99\text{m}}\text{Tc}$, isômero de ^{99}Tc que é utilizado em diversos exames médicos, como imageamento ósseo e cerebral) (NYFFELER et al., 2003).

Atualmente, muita atenção é dedicada à busca por diferentes formas de conservar o meio ambiente sem criar obstáculos ao desenvolvimento econômico e social de uma nação. Entretanto, isso só é possível quando sua demanda energética é suprida, e é deste cenário que surge o interesse na produção de energia nuclear. Enquanto alternativa aos combustíveis fósseis, a energia nuclear possui baixa emissão de CO_2 e alta eficiência energética por massa de combustível consumido. Porém, há a sempre presente dificuldade no manejo dos rejeitos nucleares, ocorrência de acidentes e vazamentos, vida útil limitada das usinas, altas externalidades sociais e ambientais e a possibilidade de produção de armas nucleares com o reprocessamento dos rejeitos, com implicações como terrorismo e disputas geopolíticas entre nações (DRESSELHAUS e THOMAS, 2001; SOVACOL, 2008).

Em relação aos acidentes em usinas nucleares, são internacionalmente relevantes [com valores na Escala Internacional de Eventos Nucleares (INES) (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2009) acima de 4, que indicam acidentes com amplas consequências ambientais e sociais]: o acidente de Kyshtym (1957, Rússia, INES = 6), o incêndio de Windscale (1957, EUA, INES = 5), o acidente de Three Mile Island (1979, EUA, INES = 5), o desastre de Chernobyl (1986, Ucrânia, INES = 7) e o acidente de Fukushima (2011, Japão, INES = 7). Existem também acidentes não envolvendo usinas, como o

acidente de Goiânia (1987, Brasil, INES = 5), resultado do desmonte de uma fonte radioterápica de $^{137}\text{CsCl}$ roubada.

Junto com a produção de energia nuclear, as explosões nucleares são uma das principais fontes de radioelementos para o meio ambiente. A distribuição dos subprodutos da detonação desses artefatos deriva do poder ou rendimento nuclear, do local da explosão e das condições meteorológicas pós-explosão, sendo um fenômeno que ocorre em questão de microssegundos a temperaturas na escala de 10^6 K (MATTHEWS, 1992).

Após um evento nuclear qualquer na atmosfera (terminologia esta que abrange tanto explosões de bombas atômicas quanto acidentes em usinas termonucleares), o *fallout* (do inglês *fall out*, depositar) do material radioativo remanescente deste evento dá-se através de movimentos das massas de ar na troposfera e estratosfera. Isso causa a distribuição desses contaminantes por todo um hemisfério (no caso de episódios que afetam apenas as massas de ar na troposfera, como acidentes em usinas nucleares e bombas com baixo rendimento nuclear, denominado *fallout* local ou regional) ou por todo o globo (como explosões de artefatos nucleares de maior rendimento, que afetam as massas de ar na troposfera e na estratosfera, este denominado *fallout* global), e posteriormente sua deposição na forma de cinzas e poeira radioativa (KATHREN, 1984).

Após a deposição dos materiais contaminantes nos oceanos, os radioelementos reagem com as substâncias presentes na coluna de água e são transportados por processos físicos, como correntes e marés. Dentre todos os radionuclídeos artificiais que apresentam contaminação ambientalmente relevante, destacam-se dois produtos de fissão do ^{235}U , ^{90}Sr e ^{137}Cs , por suas características nucleares perigosas para o meio ambiente (FIGUEIRA e CUNHA, 1998), como meia-vida longa e comportamento químico similar a elementos essenciais aos organismos (Ca e K, respectivamente).

De todos os mais de quinhentos (NATIONAL RESOURCES DEFENSE COUNCIL, 2002) testes atmosféricos nucleares realizados desde 1945 e 1998 (principalmente pelos EUA, ex-URSS, Reino Unido, França e China), a grande maioria ocorreu em localidades no Hemisfério Norte, mas também houve testes em regiões no Hemisfério Sul (como no Atol de Bikini no Pacífico).

Assim, o *fallout* dos testes nucleares pretéritos afetou consistentemente todo o globo terrestre. Entre 1961 e 1962, após o término de uma moratória decretada entre os EUA e a ex-URSS, ambos os países realizaram uma grande quantidade de testes com dispositivos nucleares de alto rendimento, superando os testes realizados previamente em termos de liberação radioativa. Assim, com base neste fato histórico e na cronologia de testes nucleares (Figura 4), este período é identificado como o pico de liberação de radionuclídeos artificiais.

Figura 4. Cronologia da quantidade de testes nucleares realizados por país até 2014 [dados de Oklahoma Geological Survey (2014)].

O ano subsequente de 1963 é considerado, mundialmente, como o ano do máximo do *fallout* radioativo dos testes nucleares pretéritos. Isso porque a deposição das partículas radioativas estratosféricas (predominantes no caso de testes nucleares de alta potência) tende a ocorrer após um ano da liberação do material radioativo (KATHREN, 1984). Dessa forma, a medição de radionuclídeos artificiais em rochas, solos e sedimentos marinhos antigos pode funcionar como um marcador histórico global deste momento.

1.4 Espectrometria gama

A espectrometria gama é, atualmente, a técnica analítica mais utilizada para mensuração de processos e decaimentos radioativos. São diversas as vantagens provenientes da facilidade de medida da radiação γ como o efeito negligenciável do ar sobre a medida e a não necessidade de pré-tratamento e pré-concentração das amostras, além do desenvolvimento tecnológico que proporcionou o uso dos detectores de cintilação e, depois, dos mais atuais detectores com metais semicondutores.

Os metais semicondutores são elementos pertencentes à família 4A da Tabela Periódica (ex. Ge, Si), caracterizados por serem sólidos que, em teoria, são isolantes perfeitos à temperatura de 0 K. O comportamento elétrico destes elementos pode ser explicado através da teoria de bandas (MAFRA, 1973) que explica que, quando suas camadas de valência interagem com radiação γ , os átomos desta classe de elementos possuem uma propriedade de gerar tensão elétrica proporcional à energia da radiação incidente sobre ele.

Esta voltagem produzida pelo material do detector é ampliada por um circuito RC e os pulsos detectados são posteriormente transformada em um espectro de contagem de energia pelo analisador multicanal (MCA). A escolha do número de canais depende não apenas da resolução do sistema, mas também do intervalo de energia a ser estudado.

Este conhecimento evoluiu a partir da década de 50 com a necessidade de melhores tecnologias para detecção de raios cósmicos e do desenvolvimento de técnicas para a fabricação de cristais de Ge-Li e, posteriormente, de Ge de alta pureza (HPGe) para a construção de detectores do tipo semicondutores (PETERSON, 1988). Este último provou ser um excelente detector de radiação γ , com altas eficiências de medida.

Apesar de estes detectores estarem limitados a medir apenas emissões gama, as outras técnicas analíticas para medição de radiação α (ex. espectrometria alfa) e β (como a cintilação líquida) tem uma série de vantagens em relação às dos detectores de HPGe, como menores limites de detecção, menor custo analítico e menores tempos de contagem, apesar de demandarem a destruição da amostra e a concentração dos núclídeos radioativos. Já a espectrometria gama demanda um intensivo trabalho matemático e estatístico

e tem como principal vantagem analítica a não necessidade de dissolução da amostra. Deve-se sempre ter em mente estas vantagens e desvantagens no momento da escolha da técnica analítica a ser utilizada.

1.5 Radionuclídeos em estudos de dinâmica sedimentar marinha

Dentre os diversos processos dos quais funcionam como traçadores, grande quantidade de trabalhos que fazem uso de radionuclídeos está no campo dos estudos de sedimentação, pois alterações no aporte sedimentar podem ser identificadas e interpretadas com base nos níveis radiométricos em sedimentos (RUBIO et al., 2003; SANTOS, BURNETT e GODOY, 2008).

Assim, os sedimentos marinhos funcionam como um registro contínuo de mudanças passadas no planeta Terra com diversas escalas temporais, seja intra-anual, anual, secular ou mesmo geológica. A noção do princípio do atualismo, que enuncia que “o presente é a chave do passado”, é essencial em estudos que visam obter informações pretéritas sobre fenômenos diversos a partir de depósitos sedimentares presentes atualmente (SUGUIO, 2003).

Os padrões de dinâmica sedimentar são regidos por uma miríade de processos que envolvem fatores naturais e antrópicos. Dentre os fatores naturais que afetam a dinâmica sedimentar de um ambiente marinho pode-se citar: distribuição granulométrica e mineralógica dos sedimentos, padrões de ventos, correntes, fluxos fluviais e de maré, geometria da bacia de sedimentação, ciclos pluviométricos, balanço entre fontes e sumidouros de sedimentos e intensidade de processos como erosão e sedimentação (TEIXEIRA et al., 2009).

Já as intervenções antropogênicas alteram o balanço de sedimentos em uma dada região ao modificar processos que ocorrem naturalmente através de retificações de canais de drenagem e da construção de obras costeiras rígidas, como, por exemplo, barragens e espigões (TEIXEIRA et al., 2009). Essas interferências do homem na natureza podem ser avaliadas com base nos registros dos sedimentos.

Dentre os diferentes usos dos radionuclídeos na Oceanografia enquanto traçadores de processos sedimentares há bastante interesse e procura pela determinação de taxas de sedimentação e datação. A avaliação

de taxas de sedimentação tem sido uma ferramenta de grande relevância e utilidade em estudos que visam o estabelecimento de taxas de processos geológicos e geomorfológicos e idades de amostras de matrizes variadas, como rochas, solos e sedimentos marinhos.

O trabalho de Gonçalves et al. (2013) identificou tendências históricas na acumulação e enriquecimento de metais potencialmente tóxicos na região do Canal de Bertioga (SP) a partir da datação de testemunhos sedimentares realizada com modelagem do comportamento de ^{210}Pb não suportado.

Na Baía de Guaratuba, Sanders et al. (2006) fizeram uso de análises de taxas de sedimentação recentes com base nos elementos radioativos ^{210}Pb e ^{137}Cs para indicar uma possível modificação nos teores de Hg causada pelo aumento das atividades agrícolas na região.

Seguindo a mesma linha de pesquisa relacionada a levantamentos históricos de padrões de contaminantes em sistemas marinhos, diversos estudos avaliaram, a partir de datações estabelecidas com modelos deposicionais de ^{210}Pb e ^{137}Cs , a evolução de metais e hidrocarbonetos nas regiões de Paranaguá (PR), Curitiba (PR), Cananéia (SP) e Caravelas (BA) (MAHIQUES et al., 2009; COMBI et al., 2013; MACHADO et al., 2014; SOUSA et al., 2014). A partir de tais estudos, pode-se extrair informações registradas nos sedimentos referentes ao histórico de contaminação do século passado e épocas com processos de eutrofização, desmatamento, urbanização e industrialização.

Os radionuclídeos também podem ser utilizados como traçadores de variáveis sedimentológicas. ^{40}K tende a apresentar correlação forte e estatisticamente significativa com o teor de sedimentos argilosos e os principais isótopos naturais de U (^{235}U e ^{238}U) e ^{232}Th apresentam forte associação com o teor de carbono orgânico (LIGERO et al., 2001). Outro exemplo é o estudo de processos erosivos superficiais em solos estudados com ^{137}Cs como traçador, cujo comportamento vertical de distribuição pode fornecer informações sobre perdas sedimentares derivadas de processos erosivos (ANDRELLO et al., 2003).

Outra possibilidade de aplicação de radionuclídeos em estudos desta natureza é como traçadores de fontes e transporte de sedimentos. No caso de radionuclídeos artificiais (principalmente os mensuráveis por espectrometria

gama, como é o caso de ^{137}Cs), a ausência de fontes atuais destes elementos (a não ser no caso de acidentes nucleares ou explosões de ogivas atômicas, que são eventos episódicos e regionais) proporciona a verificação da origem e destino de determinado sedimento com base na sua assinatura radioquímica (NAGAI et al., 2014).

1.5.1 ^{137}Cs

^{137}Cs , um dos diversos isótopos de Cs, é um dos radionuclídeos artificiais formados pela fissão de ^{235}U . Suas características, como alto rendimento de fissão (que é o número de átomos formados em cada 100 fissões de ^{235}U), meia-vida de 30,17 anos e decaimento para ^{137}Ba por emissão de partícula β com emissão de raios γ , fazem com que este radionuclídeo seja particularmente relevante em estudos ambientais e ecológicos (FIGUEIRA, 2000).

No Hemisfério Sul, o *fallout* de testes nucleares durante o término da Segunda Grande Guerra e a Guerra Fria entre as décadas de 40 e 60 é a fonte dominante desse radionuclídeo (BURTON, 1975), sendo a principal via de contaminação dos oceanos por radionuclídeos advindos de testes nucleares (UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION, 1982).

Tendo em vista que o ^{137}Cs tem uma forte afinidade com o material em suspensão, este elemento possui uma tendência a ter como reservatório final os sedimentos (LIGERO, BARRERA e CASAS-RUIZ, 2005a). Ele também tem uma tendência de acumulação em tecidos musculares de organismos, principalmente bentônicos, devido às suas características químicas similares as do K. Assim, seu estudo é importante por ele ser um contaminante nocivo (FIGUEIRA e CUNHA, 1998) e pela possibilidade de funcionar como um traçador de processos sedimentares (SANDERS et al., 2010).

Tendo em vista que há um pico de ^{137}Cs do *fallout* global no ano de 1963, o máximo equivalente ao pico do *fallout* global pode ser usado como referência para o cálculo de uma taxa de sedimentação integrada da coluna. Entretanto, o comportamento do ^{137}Cs em sedimentos é complexo devido a numerosos fatores como a sua difusão vertical através da água intersticial e a

percolação de partículas já depositadas na coluna sedimentar (LIGERO, BARRERA e CASAS-RUIZ, 2005b; AJAYI e RAJI, 2010).

Assim sendo, o pico de ^{137}Cs de 1963 só pode ser usado para avaliar taxas de sedimentação com precisão por meio do emprego de um modelo matemático que considere os principais fatores que causem as modificações temporais na distribuição vertical deste elemento (FERREIRA et al., 2015). Muitos estudos fizeram uso do ^{137}Cs em conjunto com modelos de sedimentação de ^{210}Pb para avaliar taxas de sedimentação recentes em sistemas lacustres, costeiros e marinhos (SAITO et al., 2003; SANDERS et al., 2006; KUMAR et al., 2007; XU et al., 2008; GONÇALVES et al., 2013).

1.5.2 ^{210}Pb

^{210}Pb é um isótopo radioativo de Pb. Ele é um radionuclídeo natural e tem como características meia-vida de 22,3 anos, que pode ser considerada curta se comparada com outros nuclídeos naturais como ^{238}U e ^{232}Th , e decaimento para ^{210}Bi por emissão β . Este isótopo é um dos elementos da série de decaimento do ^{238}U . ^{226}Ra , elemento da série do ^{238}U , decai para ^{222}Rn , um gás que escapa das rochas, solos e sedimentos para a atmosfera e retorna aos solos, aos sedimentos e à água ao decair para ^{210}Pb e sofrer precipitação tanto por via seca (deposição de poeira atmosférica) quanto úmida (lavagem atmosférica pluvial) (NOLLER, 2000) (Figura 5).

Figura 5. Hidrogeoquímica do ^{210}Pb .

Assim, o ^{210}Pb em uma coluna de sedimento pode ser dividido em dois: o proveniente da atmosfera, que é chamado de não suportado (*unsupported*) ou em excesso ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) e está estritamente conectado aos processos sedimentares; e o produzido na própria matriz sedimentar pelo decaimento de ^{226}Ra sem o escape de ^{222}Rn , que é o dito suportado (*supported*) pela matriz sedimentar ($^{210}\text{Pb}_{\text{s}}$). Esta notação para ^{210}Pb suportado ($^{210}\text{Pb}_{\text{s}}$) e não suportado ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) foi adotada ao longo de todo o trabalho.

$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ pode ser mensurado pela diferença entre ^{210}Pb total ($^{210}\text{Pb}_{\text{t}}$) na amostra e $^{210}\text{Pb}_{\text{s}}$, que, ao assumir que a série do ^{238}U está em equilíbrio secular, pode ser mensurado por algum dos núclídeos-pai, como ^{214}Bi , ^{210}Po ou próprio ^{226}Ra (NOLLER, 2000; LUBIS, 2006).

1.5.3 ^{226}Ra

Ra é o elemento alcalino-terroso mais pesado existente, e também é o único radioativo desta família. Ele apresenta propriedades ambientais similares as do Ba, mas é pouco estudado devido à sua alta radioatividade. Todos os seus isótopos são radioativos, sendo os mais abundantes ^{226}Ra (meia-vida de

1600 anos) e ^{228}Ra (meia-vida de 5,75 anos), ocorrentes nas séries do ^{238}U e ^{232}Th , respectivamente (LOVELAND, MORRISSEY e SEABORG, 2006).

Ambos estes isótopos de Ra decaem para formas de Rn, um gás nobre também radioativo que é responsável pela maior parte da dose efetiva coletiva. A presença de Ra em materiais de construção é a causa de sua acumulação no interior de casas e a irradiação externa e interna do homem (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2001). Pelo fato de ele ser um metal alcalino-terroso, ele é ambientalmente muito reativo e bastante solúvel (EISENBUD e GESELL, 1997), mas é bastante tóxico para organismos vivos, acumula em tecidos ósseos, inclusive competindo com Ca no desenvolvimento ósseo e irradiando a medula óssea e o sistema nervoso central.

Ra ocorre naturalmente no meio ambiente como produto de decaimento das séries de radionuclídeos naturais. Geralmente, suas concentrações em matrizes como solos e sedimento são baixas, mas processos geológicos podem criar áreas com altas concentrações de radionuclídeos naturais (conhecidos como NORM, acrônimo para *naturally occurring radioactive materials*) (UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION, 2000), inclusive com potencial de exploração comercial de U e Th.

Como sais de Ra são bastante solúveis em água, as águas subterrâneas próximas destes solos possuem altas concentrações de Ra e Rn, sendo estes elementos excelentes traçadores de descargas de águas subterrâneas (GODOY e GODOY, 2006; POVINEC, BURNETT e OLIVEIRA, 2008). Suas medidas também são utilizadas para determinação não destrutiva de radionuclídeos primordiais (^{232}Th , ^{238}U) devido à sua química estável e à rapidez de estabelecimento de equilíbrio secular nas séries de decaimento (após apenas 1 mês) (EISENBUD e GESELL, 1997).

1.5.4 Isótopos de Th (^{230}Th , ^{232}Th)

No ambiente marinho, ^{232}Th e ^{230}Th estão entre os isótopos naturais mais comuns de Th. Este elemento é altamente insolúvel sob condições naturais (estado de oxidação Th^{4+}) (CHUNG e CHANG, 1996). Assim, é extremamente difícil estabelecer concentrações de isótopos de Th na água do

mar, já que estão frequentemente abaixo dos limites de detecção das principais técnicas analíticas radioquímicas, e este elemento encontra-se preferencialmente no compartimento sedimentar.

Th é encontrado em diversas rochas, solos e sedimentos, em concentrações semelhantes às de Pb, em torno de 6 mg kg^{-1} (AGENCY FOR TOXIC SUBSTANCES AND DISEASES REGISTRY, 1999). Este elemento ocorre naturalmente em vários minerais, sendo o mais conhecido a monazita, um fosfato que contém metais e terras raras, e é uma importante fonte industrial de Ce, La e Th. Por exemplo, no Brasil, há uma série de placeres marinhos em Guarapari (ES), Alcobaça (BA) e São Gonçalo (MG), conhecidos pelos altos teores de areias monazitas, inclusive com potencial de exploração econômica de terras raras (LOUREIRO, 1994).

^{232}Th inicia uma série de decaimento radioativo, que termina em um isótopo estável de Pb (^{208}Pb). Ele é caracterizado por uma meia-vida de 13,9 bilhões de anos, decaimento por emissão α para ^{228}Ra , e sua origem nos sedimentos é principalmente detrítica (REYSS, YOKOYAMA e DUPLESSY, 1978). Segundo Anjos et al. (2005), a razão $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ pode ser usada como indicadora das condições redox de um ambiente deposicional.

Já ^{230}Th , nuclídeo da série do ^{238}U , é caracterizado por uma meia-vida de 75,2 mil anos e decaimento com emissão de partículas α e γ para ^{226}Ra . Sua aplicação oceanográfica está baseada no fato de que ^{234}U (solúvel sob condições naturais) decai para ^{230}Th (insolúvel sob condições naturais), o que faz com que os sedimentos possuam um excesso de ^{230}Th não suportado ($^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$) pelo ^{234}U já presente no sedimento ($^{230}\text{Th}_{\text{s}}$) (PICCIOTTO e WILGAIN, 1954) (Figura 6). Isso, aliado à meia-vida de 75,38 mil anos, possibilita o estudo sedimentar de colunas de até 500 mil anos (em torno de 7 meias-vidas de ^{230}Th).

Figura 6. Hidrogeoquímica do ^{230}Th .

1.5.5 Isótopos de U (^{234}U , ^{238}U)

U possui três isótopos naturais, sendo ^{238}U e ^{235}U os dominantes (99,274 e 0,006% do U total, respectivamente). ^{238}U é radioativo (meia-vida de 4,46 bilhões de anos e decaimento por emissão de partículas α para ^{234}Th , respectivamente) (LOVELAND, MORRISSEY e SEABORG, 2006) e constitui sua própria série de decaimento, finalizada pela formação de um isótopo estável de Pb (^{206}Pb). Já ^{234}U é um radionuclídeo natural secundário, parte da série de decaimento do ^{238}U , compõe cerca de 0,0055% do U total natural (LOVELAND, MORRISSEY e SEABORG, 2006) e é caracterizado por uma meia-vida de cerca de 245 mil anos e decaimento alfa para ^{230}Th .

U é o elemento natural de maior massa atômica, e é naturalmente solúvel no ambiente marinho (estado de oxidação U^{4+}) (FAURE, 1986). A

concentração normal de U em solos varia entre 0,3 e 11,7 mg kg⁻¹ (EISENBUD e GESELL, 1997), abundância comparativamente similar a elementos como As, Sn e Zn. Já a água do mar, outro compartimento oceânico, tem concentrações de U em torno de 3 µg l⁻¹, predominantemente na forma de carbonatos complexos de U⁴⁺ (FERRONSKY e POLYAKOV, 2012).

Devido à complexidade da especiação de compostos de U em sedimentos, envolvendo compostos solúveis (com U⁶⁺) e insolúveis (com U⁴⁺), a concentração de U nos sedimentos depende de seu estado de oxidação e das taxas de sedimentação. Por exemplo, sob condições redutoras, os sedimentos podem se apresentar muito enriquecidos em U (CHURCH, LORD III e SOMAYAJULU, 1981). Assim, os isótopos de U podem ser usados como traçadores de presença de matéria orgânica e da condição redox dos sedimentos (LIGERO et al., 2001). Também podem complementar o estudo do ⁴⁰K quanto à granulometria e o teor de carbonato em sedimentos.

---

2. OBJETIVOS

A proposta deste trabalho foi demonstrar o uso das características ambientais de radionuclídeos naturais (^{210}Pb , ^{226}Ra , $^{230,232}\text{Th}$, $^{234,238}\text{U}$) e artificiais (^{137}Cs) e a aplicação de sua forte associação com variáveis sedimentológicas em estudos de dinâmica sedimentar marinha, com a espectrometria gama como técnica analítica.

Como guia de desenvolvimento da tese, a hipótese científica avaliada foi: “Radionuclídeos naturais e artificiais tem forte relação com variáveis sedimentológicas e processos de dinâmica sedimentar marinha e suas medidas podem ser utilizadas como *proxies* para processos e variáveis dessa natureza em várias escalas de tempo”.

Em outras palavras, o objetivo deste estudo foi abordar um conjunto de métodos de aplicação de radionuclídeos em estudos de dinâmica sedimentar marinha e exemplos concretos de utilização de seus resultados, métodos estes que buscaram validar a hipótese científica.

O ponto principal na avaliação da hipótese proposta foi a exploração de como as particularidades ambientais dos radionuclídeos (envolvendo características geoquímicas destes radionuclídeos) levam a relações com processos e propriedades sedimentológicas marinhas.

Para tanto, uma série de objetivos específicos foi criada como uma linha de etapas sequenciais que, em conjunto, geraram esta formalização de métodos de análise e emprego de dados oceanográficos de radionuclídeos, com uso de amostras de testemunhos coletados em diversos ambientes de estudo para exemplificar as várias aplicações dos radionuclídeos de interesse e de suas peculiaridades de uso.

1. Determinação das atividades dos radionuclídeos de interesse nas amostras por espectrometria gama.
2. Métodos de tratamento dos dados.

3. Interpretação oceanográfica dos resultados gerados dentro de um contexto de estudo de dinâmica sedimentar marinha envolvendo:

- i. Variações espaciais e temporais na taxa de sedimentação e de acumulação de massa em sistemas costeiros.
- ii. Marcadores estratigráficos associados ao *fallout* nuclear pretérito.
- iii. Taxa de sedimentação e desenvolvimento de modelo de idade em testemunhos marinhos quaternários.

---

3. MATERIAIS E MÉTODOS

3.1 Processamento das amostras

As amostras de sedimento utilizadas foram obtidas através do seccionamento de colunas sedimentares (ou testemunhos). Cada um dos testemunhos trabalhados neste estudo foi dividido em subamostras referentes a intervalos médios dependendo do testemunho e da resolução necessária.

Todas as amostras de sedimento passaram por um processamento após a coleta e anterior às análises sedimentológicas e radiométricas. Este envolveu congelamento, liofilização e pesagem em balança analítica antes e após a liofilização. A partir deste procedimento de pesagem do material, obteve-se o teor de água (W) de cada amostra pela diferença de massa antes e após a liofilização. Esta variável pode ser utilizada, posteriormente, para a determinação do grau de porosidade do sedimento.

A descrição do formato de coleta (equipamento usado, campanha de coleta, ano de amostragem, localização geográfica do local de amostragem) e seccionamento do testemunho para cada um dos conjuntos amostrais foi detalhado no item respectivo à área de estudo de cada coleta.

3.2 Determinação de porosidade, densidade aparente e profundidade-massa

Com base no valor de teor de água das amostras de sedimento, a porosidade, a densidade aparente (que é a densidade do sedimento considerando os espaços vazios, que são medidos pela porosidade) e a profundidade-massa (que é a profundidade de uma amostra de sedimento normalizada pela porosidade) foram calculadas com base na formulação matemática e parametrização da densidade média do sedimento seco proposta por Clifton et al. (1995), Hai et al. (2006) e Jweda e Baskaran (2011). Esta derivação resultou em [[5], [[6] e [[7]]:

$$\phi = \frac{W\rho_s}{W\rho_s + (1 - W)\rho_w} \quad [5]$$

$$\rho_{ap} = \rho_s(1 - \phi) \quad [6]$$

$$\zeta = z\rho_{ap} \quad [7]$$

Em que:

ϕ = porosidade da amostra de sedimento;

W = teor de água da amostra de sedimento;

ρ_s = densidade bruta de sedimento [= 2,45 g cm⁻³, que é a densidade média de sedimentos secos conforme a avaliação de Robbins e Edgington (1975)];

ρ_w = densidade da água (= 1,00 g cm⁻³);

ρ_{ap} = densidade aparente da amostra de sedimento (em g cm⁻³);

ζ = profundidade-massa da amostra de sedimento (em g cm⁻²);

z = profundidade da amostra de sedimento (em cm).

A necessidade da determinação destas variáveis advém do fato de que a correção dos efeitos de compactação, proporcionada especificamente pela variável profundidade-massa, é importante em estudos que envolvem taxas de sedimentação (como modelos de ²¹⁰Pb_{xs}) e estudos de comportamento vertical de radionuclídeos ao longo do tempo (como para ¹³⁷Cs) (FERREIRA, 2014).

3.3 Determinação das atividades dos radionuclídeos

As atividades dos radioelementos de interesse foram determinadas por espectrometria gama de alta resolução, com o uso de dois espectrômetros constituídos, cada um, de um detector de Ge hiperpuro (HPGe) (EG&G ORTEC, modelos GMX25190P e GMX50P). Estes equipamentos possuem resolução medidas (FWHM) de 1,79 e 2,00 keV, respectivamente, para o pico de 1332,35 keV de ⁶⁰Co, eletrônica acoplada (alta tensão, circuito amplificador) e software MAESTRO versão 6.08.

A metodologia de análise de radioatividade baseou-se na desenvolvida por Figueira (2000) e Ferreira (2014). Ela consistiu do emprego de sedimento

marinho previamente liofilizado, macerado em moinho de porcelana até homogeneização do tamanho dos grãos e acondicionado em recipientes de polietileno com geometria própria para contagem em um espectrômetro gama.

O modelo experimental de contagem usado para a análise nos espectrômetros gama partiu da medição das amostras de sedimento em recipientes de polietileno cilíndricos (área de base de 21,7 cm², altura de 1,1 cm e volume de 23,9 cm³) durante 70.000 s. Já foi demonstrado em experimentos anteriores que este modelo é ideal para medição simultânea de radionuclídeos naturais e ¹³⁷Cs (NEVES et al., 2014; FERREIRA et al., 2015), tendo em vista que a determinação de ¹³⁷Cs é a mais limitante no método por suas baixas atividades e altos limites de detecção.

Um recipiente vazio de polietileno idêntico ao utilizado para contagem foi utilizado para a determinação da radiação de fundo (*background*) do detector (que corresponde ao branco analítico para a espectrometria gama), e uma fonte pontual de ²⁴¹Am para determinar o fator de autoabsorção das amostras. [8] foi usada para determinar as atividades dos nuclídeos e [9] para o fator de autoabsorção das amostras. As linhas de emissão usadas estão compiladas na Tabela 1.

Tabela 1. Energias de emissão de radiação γ (em keV) usadas para a determinação das atividades dos radionuclídeos [dados de International Atomic Energy Agency (1989)].

Radionuclídeo de interesse	Série de decaimento	Energia (keV)	Nuclídeo correspondente à energia usada
²¹⁰ Pb	²³⁸ U	46,52	²¹⁰ Pb
²⁴¹ Am ^a	-	59,54	²⁴¹ Am
²³⁴ U	²³⁸ U	63,29	²³⁴ Th
²²⁶ Ra, ²³⁰ Th	²³⁸ U	609,31	²¹⁴ Bi
¹³⁷ Cs	-	661,67	¹³⁷ Cs
²³² Th	²³² Th	911,07	²²⁸ Ac

^a Elemento utilizado apenas para a medida do fator de autoabsorção das amostras.

$$a = \frac{(S.F) - BG}{tm\varepsilon} \quad [8]$$

$$F = \frac{\ln\left(\frac{{}^{241}\text{Am}_a}{{}^{241}\text{Am}_{BG}}\right)}{\frac{{}^{241}\text{Am}_a}{{}^{241}\text{Am}_{BG}} - 1} \quad [9]$$

Em que:

a = atividade por unidade de massa de sedimento seco (em Bq kg⁻¹);

S = área do pico de emissão gama (em contagens);

F = fator de autoabsorção (considerado na equação apenas no caso de núclídeos cujas energias de emissão sejam inferiores a 100 keV);

BG = área referente à radiação de fundo do detector (em contagens);

t = tempo de contagem (em s);

m = massa da amostra de sedimento (em kg);

ε = eficiência de contagem do detector para o fotopico do núclídeo calculado;

${}^{241}\text{Am}_a$ = contagens de raios γ de energia de 59,54 keV da amostra de sedimento sob irradiação de uma fonte de ${}^{241}\text{Am}$;

${}^{241}\text{Am}_{BG}$ = contagens de raios γ de energia de 59,54 keV de um recipiente vazio de contagem sob irradiação de uma fonte de ${}^{241}\text{Am}$.

A correção de autoabsorção necessária na espectrometria gama advém do fenômeno de autoabsorção pela própria amostra dos raios γ de baixas energias (inferiores a 100 keV) emitidos, que resulta em atividades medidas inferiores a real se este efeito não for considerado no cálculo das atividades. Esta correção foi feita pela comparação das áreas dos picos de 59,54 keV (correspondente ao radionuclídeo ${}^{241}\text{Am}$) de: (i) um recipiente de radiação de fundo (ou seja, vazio) acoplado a uma fonte de ${}^{241}\text{Am}$, com (ii) uma amostra acoplada à mesma fonte de ${}^{241}\text{Am}$.

No caso dos núclídeos ${}^{234}\text{U}$, ${}^{226}\text{Ra}$ e ${}^{232}\text{Th}$, as energias usadas na análise por espectrometria gama correspondem aos elementos ${}^{234}\text{Th}$, ${}^{214}\text{Bi}$ e ${}^{228}\text{Ac}$, respectivamente. No caso de ${}^{226}\text{Ra}$ e ${}^{232}\text{Th}$, essa medida dentro das séries de decaimento foi possível com base no princípio do estabelecimento do equilíbrio secular entre os núclídeos de uma mesma série. Após selagem das

amostras por aproximadamente 1 mês (mais de 10 meias-vidas de ^{220}Rn e ^{222}Rn , radionuclídeos gasosos que provocam a quebra do equilíbrio das séries naturais de decaimento), o equilíbrio entre os nuclídeos sólidos e gasosos da série é re-estabelecido nas amostras, possibilitando este tipo de medida (LOVELAND, MORRISSEY e SEABORG, 2006).

Já no caso da determinação da atividade de ^{234}Th , a emissão em 63,29 keV (na realidade um duplete não resolvível de energias 62,97 e 63,35 keV) seguiu as recomendações matemáticas de Adsley et al. (1998) em relação a este pico em questão e, com um método experimental envolvendo apenas análise por espectrometria gama e com correção de autoabsorção, obteve sucesso na determinação deste radionuclídeo em sedimentos estuarinos para monitoramento ambiental de ^{238}U .

Para as abordagens acima descritas, os valores de atividade dos radionuclídeos são frequentemente reportados como equivalente de U (eU) (quando da série de ^{238}U) e equivalente de Th (eTh) (quando da série do ^{232}Th), para tornar ciente a existência de desequilíbrio nas séries de decaimento radioativo. Este caso é sempre presente em análises por espectrometria gama desta natureza, já que nem todos os elementos das séries de decaimento são emissores de raios γ . Com o intuito de facilitar o entendimento e evitar confusões em relação ao diferentes eU calculados (por ^{234}Th , antes do desequilíbrio gasoso e ^{214}Bi , após o desequilíbrio gasoso), optou-se por utilizar a nomenclatura do radionuclídeo alvo da determinação ao longo deste trabalho.

Em relação ao controle analítico da análise espectrométrica, ele envolveu três pontos: a determinação da eficiência de contagem dos espectrômetros, a avaliação da atividade mínima detectável (AMD) e o controle estatístico das análises.

A eficiência de contagem, calculada por [10], é um dado inato de cada detector e de cada energia de emissão gama (ou seja, de cada nuclídeo mensurado), e representa a porcentagem total de raios γ passíveis de serem detectados com base, entre outros fatores, na geometria de contagem das amostras e na linha de emissão gama mensurada. Para sua determinação, foram utilizados os seguintes materiais de referência da IAEA (Agência Internacional de Energia Atômica): IAEA-300 (sedimento), IAEA-315 (sedimento) e IAEA-375 (solo).

$$\varepsilon = \frac{S_r}{m_r a_r} \quad [10]$$

Em que:

ε = eficiência de contagem do detector para o fotopico do nuclídeo calculado;

S_r = contagem do material de referência (em cps, ou contagens por segundo);

m_r = massa do material de referência utilizado na determinação da eficiência de contagem (em kg);

a_r = atividade certificada para o material de referência (em Bq kg⁻¹).

Neste estudo, os materiais de referência foram analisados com um tempo de contagem padrão de 120.000 s, e a fórmula da eficiência apresentada em [10] não considera a probabilidade de emissão de radiação γ a cada decaimento (chamado comumente de parâmetro p_γ). As eficiências calculadas são apenas a razão entre atividade medida e certificada em materiais de referências, e não foram determinadas pelo método de curvas de calibração de eficiências intrínsecas com fontes pontuais ou padrões.

O cálculo das eficiências de contagem para os detectores mostrou que as do detector 50P (que tem eficiência de contagem relativa a 50% da eficiência de um detector γ de NaI) tendem a ser maiores que as do 25190P (com eficiência de contagem relativa a 25% da de um detector γ de NaI), detectores estes envolvidos nas medidas dos radionuclídeos de interesse (GILMORE, 2008).

Tabela 2. Eficiência de contagem (ε) (em %) para as energias de emissão gama utilizadas em cada um dos detectores empregados nas análises das amostras de sedimento.

Nuclídeo	Energia de emissão gama (keV)	Eficiência de contagem (ε) (%) ^a	
		25190P	50P
²¹⁰ Pb	46,52	1,98 ± 0,15	4,07 ± 0,36
²³⁴ U	63,29	2,09 ± 0,11	5,17 ± 0,60
²²⁶ Ra	609,31	0,64 ± 0,11	1,76 ± 0,20
¹³⁷ Cs	661,67	2,55 ± 0,23	3,39 ± 0,35
²³² Th	911,07	0,60 ± 0,05	1,48 ± 0,29

^a Valores no formato média ± erro de determinação.

Na espectrometria gama, o limite de detecção analítico é representado por um valor medido em cps (contagens por segundo), que é a unidade de medida por espectrômetros desta natureza. A atividade mínima detectável (AMD) é a medida, em termos de atividade por unidade de massa, que este limite de detecção apresenta incluindo os valores de tempo, eficiência e a massa de contagem utilizada no trabalho analítico.

Em outras palavras, a AMD para qualquer nuclídeo equivale à menor atividade detectada por um espectrômetro gama que pode ser determinada com 95% de confiança estatística (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 1989), e ela foi determinada através de [11]. Os valores de AMD estão apresentados na Tabela 3.

$$AMD = \frac{LD}{m} = \frac{4,66 \cdot \sigma_{BG}}{m\varepsilon} \quad [11]$$

Em que:

AMD = atividade mínima detectável (em Bq kg⁻¹);

LD = limite de detecção (em Bq);

σ_{BG} = desvio padrão da taxa de contagem da radiação de fundo (BG) (em cps);

ε = eficiência de contagem;

m = massa de amostra utilizada (em kg).

Tabela 3. Atividades mínimas detectáveis (AMD) (em Bq kg⁻¹) para os nuclídeos analisados nas amostras de sedimento.

Nuclídeo	Energia de emissão gama (keV)	AMD (Bq kg ⁻¹)	
		25190P	50P
²¹⁰ Pb	46,52	1,44	0,56
²³⁴ U	63,29	1,53	0,37
²²⁶ Ra	609,31	1,61	1,35
¹³⁷ Cs	661,67	0,28	0,18
²³² Th	911,07	2,57	0,80

Para completar o controle de qualidade da análise espectrométrica, há também o controle estatístico da qualidade do método, feito através da determinação das atividades dos nuclídeos de interesse em três materiais de

referência da IAEA (diferentes dos usados para o cálculo da eficiência de contagem): IAEA-326 (solo), IAEA-327 (solo) e IAEA-385 (sedimento).

Após a análise das atividades radioativas em três amostras (tréplicas) desses materiais, os valores obtidos foram comparados aos reportados para cada um. Dessa forma, com base nos valores obtidos e nos desvios padrões das seis determinações, pode-se calcular a precisão do método (pelo desvio padrão relativo - DPR - das leituras) [12] e a sua exatidão (através do erro relativo - ER - entre a média das leituras e o valor certificado) [13].

$$DPR = 100 \frac{\sigma}{\bar{x}} \quad [12]$$

$$ER = 100 \left| \frac{x_{obs} - x_{cert}}{x_{cert}} \right| \quad [13]$$

Em que:

DPR = desvio padrão relativo (em %);

σ = desvio padrão das observações;

$\bar{x}$ = média das observações;

ER = erro relativo (em %);

x_{obs} = valor observado;

x_{cert} = valor certificado.

Há necessidade de uso de materiais diferenciados para as etapas de eficiência de contagem e controle estatístico para minimizar a transferência de viés entre estas duas etapas do controle analítico, pois a determinação da eficiência influencia diretamente no controle estatístico do método. Se fossem utilizados os mesmos materiais de referências nas duas etapas descritas, qualquer erro presente na determinação da eficiência ocasionaria a transferência de erro sistemático de difícil identificação para o controle estatístico. O uso de um conjunto diferenciado de materiais de referência facilita a identificação desta situação.

Tabela 4. Análise das atividades dos radionuclídeos (em Bq kg⁻¹) nos materiais de referência certificados. Controle estatístico de qualidade do método analítico.

Nuclídeo	Material de referência	Atividade corrigida ^a certificada média (Bq kg ⁻¹)	Atividade medida (Bq kg ⁻¹) ^b	Precisão (DPR) (%)	Exatidão (ER) (%)
²¹⁰ Pb	IAEA-326	38,40	39,79 ± 1,22	3,07	3,62
	IAEA-327	42,36	43,14 ± 1,33	3,08	1,84
	IAEA-385	25,07	25,16 ± 1,23	4,89	0,36
²³⁴ U	IAEA-326	29,40	31,12 ± 0,38	1,22	5,84
	IAEA-327	32,80	30,22 ± 0,37	1,24	7,84
	IAEA-385	29,40	28,62 ± 0,47	1,63	2,64
²²⁶ Ra	IAEA-326	32,45	30,55 ± 1,50	4,91	5,86
	IAEA-327	33,95	32,92 ± 1,54	4,68	3,03
	IAEA-385	22,59	20,96 ± 1,52	7,25	7,22
¹³⁷ Cs	IAEA-326	c	c	c	c
	IAEA-327	19,56	19,34 ± 1,11	5,74	1,12
	IAEA-385	26,09	26,66 ± 1,03	3,86	2,18
²³² Th	IAEA-326	39,40	35,35 ± 0,93	2,63	10,27
	IAEA-327	38,70	37,26 ± 0,96	2,56	3,71
	IAEA-385	33,80	37,19 ± 3,48	9,35	10,02

^a Corrigida devido ao decaimento dos radionuclídeos nos materiais de referência desde a data de certificação até o momento da análise, conforme a Equação 1.

^b Valores de atividade no formato média ± desvio padrão da determinação (n = 6).

^c Não é material de referência certificado para este nuclídeo.

A Tabela 4 apresenta o controle estatístico da qualidade do método. Pelos dados contidos nela, pode-se afirmar que o método empregado neste trabalho apresentou alta precisão (DPR_{máx} = 9,35%) e alta exatidão (ER_{máx} = 10,27%) (UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY, 2001) para todos os nuclídeos de interesse.

---

4. VARIAÇÕES ESPACIAIS E TEMPORAIS RECENTES NA TAXA DE SEDIMENTAÇÃO EM UM SISTEMA COSTEIRO

4.1 Apresentação

O uso mais frequente de radionuclídeos em estudos de dinâmica sedimentar marinha é a determinação de taxas de sedimentação e a datação de seções de colunas sedimentares. Devido ao fato de que a concentração de elementos radioativos diminui com o tempo a uma taxa constante (que é a constante de decaimento), a noção do conceito de meia-vida e também da geoquímica de um determinado radioelemento possibilita um conhecimento aprofundado da variação do aporte de sedimentos em um determinado sistema marinho.

Neste capítulo, apresentou-se uma série de modelos matemáticos que exploram o potencial de aplicação de dois radionuclídeos, ^{137}Cs (meia-vida de cerca de 30 anos) e ^{210}Pb (meia-vida de cerca de 22 anos), na avaliação de taxas de sedimentação recentes em um sistema costeiro do Brasil, o Sistema Santos-São Vicente. Foi demonstrada a realização dos cálculos envolvidos na determinação da variável de interesse, o tratamento dos dados através de modelos matemáticos e, a partir disso, a análise da variação tanto espacial quanto temporal na taxa de sedimentação do sistema em questão.

Um ponto bastante importante que merece uma explanação mais particular é a diferenciação conceitual entre taxa de sedimentação e taxa de acumulação de massa, que deriva da consideração ou não da densidade do sedimento depositado na quantificação da sedimentação. Neste estudo, considerou-se que:

i. Taxa de sedimentação (ν). Altura de coluna de sedimento depositada ao longo de um determinado intervalo de tempo. Unidade de medida: $[\text{L}] [\text{T}]^{-1}$ (padrão utilizado: cm ano^{-1}).

ii. Taxa de acumulação de massa (φ). Quantidade de sedimento depositada em uma área de fundo aquático ao longo de um determinado intervalo de tempo. Unidade de medida: $[M] [L]^{-2} [T]^{-1}$ (padrão utilizado: $g\ cm^{-2}\ ano^{-1}$).

Em relação à escala de tempo, considerou-se 'recente', neste estudo, o período relacionado às influências ambientais desde o período da Segunda Revolução Industrial (em torno de 1870) até o presente. Assim sendo, as taxas de sedimentação determinadas por estes elementos são ditas recentes devido à meia-vida de ambos os elementos. O uso de ^{137}Cs , por ser um isótopo artificial, está limitado tratar de sedimentos depositados a partir do final da década de 40, quando foi iniciada o uso e testes de armamentos nucleares. Já ^{210}Pb é limitado temporalmente, em termos práticos, a trabalhar com sedimentos com cerca de 150 anos (aproximadamente 7 meias-vidas deste nuclídeo), já que, após 7 meias-vidas, 99,22% do $^{210}Pb_{xs}$ já decaiu e tornou-se ^{210}Bi .

4.2 Área de estudo

O Sistema Estuarino de Santos-São Vicente, localizado entre as latitudes de $23^{\circ}51'S$ / $23^{\circ}58'S$ e longitudes $46^{\circ}08'W$ / $46^{\circ}19'W$, com área total de aproximadamente $515\ km^2$ (Figura 7). A Região Metropolitana da Baixada Santista, divisão geográfica na qual está localizado o dito sistema estuarino, engloba, entre outros, os municípios de Santos (município-sede), Cubatão, Guarujá, Praia Grande e São Vicente.

Figura 7. Sistema Estuarino de Santos-São Vicente (SP, Brasil).

A região apresenta uma forte variação térmica mensal, sendo a temperatura média anual entre 20,7 e 22 °C e, quanto à pluviosidade, a precipitação varia entre 2000 e 3000 mm anuais (FUKUMOTO, 2007). Possui um regime de micromarés, com marés mistas que são predominantemente semidiurnas com desigualdade diurna, de amplitudes em torno de 0,73 m (MIRANDA e CASTRO, 1998).

A hidrodinâmica local é resultante de um processo de mistura das águas interiores provenientes da drenagem continental e das águas oceânicas e é controlada essencialmente pelas marés. Este sistema costeiro, sob o ponto de vista da sua circulação estuarina, é complexo e cada região possui particularidades: a região do Canal do Porto apresenta uma circulação do tipo cunha salina com transição para um estuário do tipo misto (dominado pela variação periódica do nível do mar), o Alto Estuário Santista exibe dominância de um fluxo unidirecional forçado pelas águas da drenagem continental, e o Canal de Bertioiga pode ser classificado como parcialmente misturado na foz norte e bem misturado no restante, e mostra-se dominado pelo fluxo das correntes de maré (FÚLFARO e PONÇANO, 1976; BERNARDES, 2001).

Este sistema faz parte da planície costeira de Santos, que é drenada por uma série de rios, canais de maré e lagunas que delimitam as ilhas de São

Vicente e Santo Amaro. Sua gênese está diretamente vinculada aos mecanismos de variação do nível marinho ocorridos ao longo do Quaternário Superior (SUGUIO e MARTIN, 1978), sendo que a abertura do Canal de Bertiooga, com sua configuração morfológica vista atualmente, ocorreu no final do Pleistoceno (FELIX, 2012).

No Alto Estuário Santista, há intensa influência antrópica devido às atividades do Porto de Santos e do Parque Industrial de Cubatão, com atividades industriais de alto potencial poluidor, provocando aceleração dos processos de erosão e a modificação das propriedades químicas da água.

Nas últimas décadas, a região da Baixada Santista passou por um intenso processo de industrialização, envolvendo a implantação de indústrias de base no município de Cubatão, o Parque Tecnológico de Santos, o desenvolvimento de uma extensa malha rodoferroviária e a construção do Porto de Santos (COUTO, 2003). Este desenvolvimento da região trouxe uma série de reflexos negativos para o meio ambiente, como a liberação de resíduos industriais e domésticos com altos teores de metais pesados.

Segundo Schaeffer-Novelli (1986), os rios que deságuam no canal são pouco extensos, mas com alta competência. Eles aparentam ter sua carga sedimentar depositada pela ação das correntes de maré que, ao se propagar em sentidos opostos pelas duas desembocaduras do canal, tendem a se anular.

Os sedimentos são depositados, preferencialmente, na área de confluência de correntes de maré de sentido de deslocamento opostos (conhecida como tombo das águas) junto ao Largo do Candinho, que corresponde a uma das raras áreas do estuário santista em que se depositam predominantemente sedimentos argilosos com alta porcentagem de matéria orgânica (FÚLFARO e PONÇANO, 1976).

Em relação aos impactos antrópicos nesta região de estudo, deve-se ter em mente que a presença de indústrias de fertilizantes fosfatados (o Terminal da Ultrafertil - TUF, a Vale Fertilizantes) provoca efeitos sobre as séries naturais de decaimento radioativo. O fosfogesso é um dos resíduos gerados na produção de H_3PO_4 neste tipo de indústria, e o seu processo de produção concentra radionuclídeos das séries do U e Th (RUSSO, 2013). A disposição deste resíduo, em pilhas a céu aberto, e o desequilíbrio entre o

consumo e produção de fosfogesso (este pode ser usado como condicionante de solos para a indústria agrícola) (ARAÚJO e FERNANDES, 2013) pode acarretar a contaminação do sistema estuarino próximo e provocar um desequilíbrio na deposição de ^{210}Pb suportado.

O estudo da sedimentação do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente é bastante relevante do ponto de vista oceanográfico, e o Canal de Bertioga é considerado uma área não contaminada dentro do contexto da Baixada Santista. O trabalho de Gonçalves et al. (2013), por exemplo, é um estudo da evolução histórica recente dos níveis de metais e As na região, usando ^{137}Cs e modelos de ^{210}Pb como ferramentas de geocronologia.

Tendo em vista a importância social e ambiental dessa área, um sistema estuarino com forte presença antrópica, estudos de níveis de sedimentação na região tem grande importância, como forma de monitoramento dos impactos ambientais. O Porto de Santos, por exemplo, tem atividades dependentes da dragagem contínua do Canal do Porto, que afeta constantemente os processos de sedimentação do sistema estuarino.

4.3 Conjunto amostral

Os testemunhos utilizados nesta etapa do trabalho foram coletados por meio de um sistema *vibracorer* (Rossfelder, modelo VT1). Foram analisados cinco testemunhos do Canal de Bertioga (D1, D2, D3, D4, D5), coletados em 2010 e três testemunhos da região do Alto Estuário Santista (D6, D7, D8), coletados em 2012, totalizando assim oito colunas sedimentares (Figura 8). Estes testemunhos foram seccionados a cada 2 cm, e as subamostras foram preparadas e analisadas de acordo com a metodologia previamente descrita no capítulo 3. Neste capítulo, os radionuclídeos de interesse são ^{137}Cs , ^{210}Pb e ^{226}Ra .

Figura 8. Localização dos testemunhos no Sistema Estuarino de Santos-São Vicente.

4.4 Modelagem com ^{137}Cs

O uso de ^{137}Cs , conforme discutido no capítulo 1.5.1, considera seu uso como um marcador estratigráfico do ano de 1963 e deve analisar os efeitos de sua migração vertical ao longo do tempo no cálculo de taxas de sedimentação. A modelagem de seu comportamento em um dado testemunho supõe um conjunto de premissas:

- i. Todo ^{137}Cs no sedimento tem como fonte o *fallout* global de testes nucleares pretéritos e tem como máximo o ano de 1963;
- ii. A taxa de sedimentação local é constante;
- iii. Há migração vertical pós-deposicional de ^{137}Cs .

O modelo de difusão-convecção (MDC) de ^{137}Cs é um modelo matemático baseado nos princípios de difusão e convecção de ^{137}Cs nos sedimentos. Ele considera que a evolução temporal da atividade de ^{137}Cs em uma coluna sedimentar é resultado de seus fluxos advectivo, difusivo e do decaimento natural do nuclídeo [14] (LIGERO, BARRERA e CASAS-RUIZ, 2005b; AJAYI e RAJI, 2010). O desenvolvimento matemático detalhado deste

modelo está formalizado em Ferreira (2014) e Ferreira et al. (2015), e é utilizado como base neste estudo.

$$\frac{\partial A}{\partial t} = -v \frac{\partial A}{\partial z} + D \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} - \lambda A \quad [14]$$

Em que:

A = atividade de ^{137}Cs (em Bq cm^{-3});

t = tempo (em a);

v = taxa de sedimentação (em cm a^{-1});

z = profundidade (em cm);

D = coeficiente de difusão de ^{137}Cs através da água intersticial (em $\text{cm}^2 \text{a}^{-1}$).

Segundo as recomendações explicadas em Ferreira et al. (2015), o método das diferenças finitas é usado para a resolução de [14]. Na notação de sua solução, é utilizada a diferença finita ou discreta da atividade de ^{137}Cs [15].

$$\delta A = A_p^q = A(z_p, t_q) \quad [15]$$

Na notação acima, os valores p correspondem à profundidade da subamostra dentro da coluna sedimentar e os valores q ao ano de deposição ($q = 0$ corresponde a 1963, ano do máximo do *fallout* global). Desenvolvendo [14] com a notação discreta, obtém-se [16].

$$A_p^{q+1} = A_p^q (1 - \lambda \delta t) + D \frac{\delta^2 t}{\delta z^2} (A_{p+1}^q - 2A_p^q + A_{p-1}^q) - v \frac{\delta t}{\delta z} (A_p^q - A_{p-1}^q) \quad [16]$$

Por [16], pode-se calcular o valor de atividade de ^{137}Cs em uma profundidade z_p em um instante t_{q+1} em função dos valores de atividade no instante anterior (t_q) nas profundidades z_{p+1} , z_p e z_{p-1} . Como a resolução de equações (realizada usando o método de Euler explícito) tende a requerer valores de passo pequenos em relação à escala de tempo analisada, é aconselhado pelo autor como valor de passo $q = 0,5$, que é suficientemente pequeno se comparado à escala de tempo analisada ($t_q = 50$).

A primeira condição de contorno da [16] diz respeito à incorporação de ^{137}Cs no sedimento através da coluna de água. Pode-se aceitar que, se a presença deste nuclídeo na região é devida ao pico de atividade de 1963, este ano corresponde a $t = 0$ e, considerando o ano de coleta da coluna sedimentar como x , ele corresponderá no modelo a $t = x - 1963$. Em outras palavras, este modelo assume que, para fins práticos, a deposição de ^{137}Cs só ocorre a partir de 1963.

Para um perfil sedimentar em que existem altos valores de atividade da superfície até certa profundidade, há um mecanismo de incorporação lenta de ^{137}Cs , no qual a evolução da atividade na interface água-sedimento $[A(t)]$ é consequência da variação da fonte S de atividade para o sedimento (A_S) (no caso de ^{137}Cs , a coluna de água). Esta atividade $A(t)$ decai com o tempo, tanto devido ao decaimento radioativo ($T_{1/2}$) quanto pela perda de atividade devido ao tempo de residência na zona-fonte S ($T_{1/2}^S$), que é a coluna de água acima do sedimento.

Assim, a evolução temporal da atividade torna-se um decaimento exponencial com característica temporal $T_{1/2}^T$ [17].

$$T_{1/2}^T = \frac{T_{1/2} T_{1/2}^S}{T_{1/2} + T_{1/2}^S} \quad [17]$$

A substituição de [17] na relação de decaimento exponencial de radionuclídeos resulta em:

$$A(t) = A_0 e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}^T} t} \quad [18]$$

Em que:

$A(t)$ = variação da atividade de ^{137}Cs em função do tempo na interface água-sedimento (em Bq cm^{-3});

A_0 = atividade inicial de ^{137}Cs proveniente do *fallout* global de 1963 para a região do testemunho (em Bq cm^{-3});

$T_{1/2}^T$ = tempo de meia-vida total de ^{137}Cs (leva em conta a meia-vida do ^{137}Cs e seu tempo de residência na coluna de água antes de sua deposição) (em anos).

Após ser determinado $\frac{\partial A}{\partial t}$, que é o perfil vertical teórico de ^{137}Cs para a coluna sedimentar estudada, este é comparado estatisticamente com o perfil amostrado de ^{137}Cs , determinado pela análise espectrométrica a partir das amostras coletadas.

Deve-se considerar que o método de determinação de atividades em amostras de sedimento usado neste trabalho estabelece atividades por unidade de massa (a , em Bq kg^{-1}). Para fazer uso do modelo de migração vertical de ^{137}Cs , as atividades devem ser por unidade de volume (A , em mBq cm^{-3}). O valor de a pode ser convertido em A através da [19].

$$A = \rho_s a (1 - \phi) \quad [19]$$

A = atividade de ^{137}Cs por unidade de volume de sedimento (em mBq cm^{-3});

a = atividade por unidade de massa de sedimento seco (em Bq kg^{-1}).

4.5 Modelagem com ^{210}Pb

Conforme explicado previamente no item 1.5.2, o ^{210}Pb total em uma coluna de sedimento pode ser dividido em não suportado ou alóctone, que está estritamente conectado aos processos sedimentares; e o produzido na própria matriz sedimentar pelo decaimento de ^{226}Ra sem o escape de ^{222}Rn , que é o suportado ou autigênico. Existem diversos modelos que relacionam a atividade e também o inventário de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ com taxas de sedimentação, aplicados em diversos trabalhos em Oceanografia e Geoquímica Marinha no Brasil e no mundo (RUBIO et al., 2003; HAI et al., 2006; JWEDA e BASKARAN, 2011; NERY e BONOTTO, 2011; GONÇALVES et al., 2013; MAHIQUES et al., 2013; FERREIRA et al., 2015).

4.5.1 Modelos CIC e CFCS

Os modelos CIC (*Constant Initial Concentration*) e CFCS (*Constant Rate, Constant Sedimentation*) possuem uma matemática de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ mais simples e de aplicação mais rápida para determinação de taxas de sedimentação. Eles foram formalizados por Krishnaswamy et al. (1971), Robbins e Edgington (1975) e Appleby e Oldfield (1992) estão ambos baseados nas seguintes premissas:

- i. O fluxo de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ na interface sedimento-água é constante;
- ii. A atividade inicial de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ é constante;
- iii. A taxa de sedimentação local é constante;
- iv. Não há migração vertical pós-deposicional de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$;
- v. A atividade de $^{210}\text{Pb}_{\text{s}}$ é independente da profundidade.

Em suma, estes modelos consideram que há uma atividade inicial de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ no testemunho e uma entrada contínua e constante de sedimentos para o sistema aquático estudado. Como esta última condição não é muito frequente para sistemas costeiros (como estuários) na escala de tempo da meia-vida do ^{210}Pb , estes modelos são usados para avaliar taxas de sedimentação integradas no tempo.

Com base nestas condições, a variação vertical na atividade de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ segue um padrão descrito em [20] e [21] para os modelos CIC e CFCS, respectivamente. [22] descreve o cálculo da idade das amostras a partir dos modelos apresentados.

$$a(z) = a_0 e^{-\frac{\lambda}{v}z} + a' \Rightarrow v = -\frac{\lambda}{\frac{\partial}{\partial z} \ln[a(z)]} \quad [20]$$

$$a(\zeta) = a_0 e^{-\frac{\lambda}{\varphi}\zeta} + a' \Rightarrow \varphi = -\frac{\lambda}{\frac{\partial}{\partial \zeta} \ln[a(\zeta)]} \quad [21]$$

$$t = \frac{z}{v} = \frac{\zeta}{\varphi} \quad [22]$$

Em que:

$a(z)$ = perfil vertical da atividade de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ em função de z (em Bq kg^{-1});

$a(\zeta)$ = perfil vertical da atividade de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ em função de ζ (em Bq kg^{-1});

a_0 = atividade inicial de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ em $z, \zeta = 0$ (em Bq kg^{-1});

a' = atividade de $^{210}\text{Pb}_{\text{s}}$ (neste estudo, equivalente a ^{226}Ra) (em Bq kg^{-1});

λ = constante de decaimento radioativo do ^{210}Pb (em a^{-1});

ν = taxa de sedimentação média (em cm a^{-1});

φ = taxa de acumulação de massa média (em $\text{g cm}^{-2} \text{a}^{-1}$);

z = profundidade (em cm);

ζ = profundidade-massa da amostra de sedimento (em g cm^{-2});

t = idade da amostra de sedimento em z (para o modelo CIC) ou ζ (para o modelo CFCS) (em ano).

4.5.2 Modelo CRS

O modelo CRS (*Constant Rate of Supply*) surgiu a partir de observações de perfis vertical de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ em lagos e outros sistemas aquáticos os quais não seguem o modelo proposto por [20]. Isso acontece principalmente porque há uma variação na atividade inicial de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ao longo do tempo, o que evidencia diluição/concentração de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ por uma aceleração/redução na taxa de sedimentação local.

Assim, Appleby e Oldfield (1978) desenvolveram uma formulação matemática para tornar os cálculos de taxa de sedimentação mais consistentes com o que é observado em sistemas como estuários e lagunas, que é uma diluição nos níveis de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ devido a mudanças rápidas na acumulação de sedimentos. O modelo CRS tem, assim, as seguintes premissas:

- i. O fluxo de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ na interface sedimento-água é constante;
- ii. A atividade inicial de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ não é constante;
- iii. A taxa de sedimentação local não é, necessariamente, constante;
- iv. Não há migração vertical pós-deposicional de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$;
- v. A atividade de $^{210}\text{Pb}_{\text{s}}$ é independente da profundidade.

Em termos práticos, o modelo CRS considera que $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ é suprido para os sedimentos a uma taxa constante e que a taxa de sedimentação local é dependente do tempo. Isso denota a diferenciação teórica quando comparado aos outros modelos, pois este não determina taxas de sedimentação médias ou integradas no tempo. Ele tem como objetivo principal a determinação de idades de amostras, mas também pode ser usado para avaliar taxas de sedimentação em função do tempo. O equacionamento do modelo CRS está descrito em [23], [24] e [25].

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \left[\frac{I(A)_{\text{tot}}}{I(A)_{\text{tot}} - I(A)_z} \right] \quad [23]$$

$$v(z) = \frac{1}{\rho} \frac{1}{\lambda} \left[\frac{I(A)_{\text{tot}} - I(A)_z}{A(z)} \right] \quad [24]$$

$$\varphi(z) = \frac{1}{\lambda} \left[\frac{I(A)_{\text{tot}} - I(A)_z}{A(z)} \right] \quad [25]$$

Em que:

t = idade da amostra na profundidade z (em ano);

λ = constante de decaimento radioativo do ^{210}Pb (em a^{-1});

ρ = densidade aparente da amostra (em g cm^{-3});

v = taxa de sedimentação na profundidade z (em cm a^{-1});

φ = taxa de acumulação de massa na profundidade z (em $\text{g cm}^{-2} \text{a}^{-1}$);

$I(A)_t$ = inventário total de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ do testemunho (em mBq cm^{-2});

$I(A)_z$ = inventário de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ do topo até a profundidade z do testemunho (em Bq cm^{-2});

$A(z)$ = atividade de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ na profundidade z (em Bq kg^{-1}).

Para a aplicação deste modelo, considera-se o inventário de um radionuclídeo qualquer o equivalente ao somatório de suas atividades até uma profundidade de interesse [26].

$$I(A)_z = \sum_z^0 A(i) \quad [26]$$

E, similarmente ao modelo MDC, o modelo CRS utiliza valores de atividade por unidade espacial (A , em mBq cm⁻²). Deve-se considerar que o método de determinação de atividades em amostras de sedimento usado neste trabalho estabelece atividades por unidade de massa (a , em Bq kg⁻¹), sendo necessária a conversão de unidades [19].

4.5.3 Modelo ADE

O modelo ADE (*Advection-Diffusion Equation*), formalizado por Krishnaswamy e Lal (1978) e Shukla (1996) faz uso de equações de advecção e difusão de solutos (neste caso, ²¹⁰Pb) através de meios porosos (neste caso, sedimentos). Ele é, matematicamente, uma variação do modelo CIC, diferenciando-se dele na premissa (iv) ao assumir que há migração vertical de ²¹⁰Pb_{xs}, resultante da advecção e da difusão do radionuclídeo.

- i. O fluxo de ²¹⁰Pb_{xs} na interface sedimento-água é constante;
- ii. A atividade inicial de ²¹⁰Pb_{xs} não é constante;
- iii. A taxa de sedimentação local é constante;
- iv. Há migração vertical pós-deposicional de ²¹⁰Pb_{xs};
- v. A atividade de ²¹⁰Pb_s é independente da profundidade.

Através do desenvolvimento analítico proposto pelos autores, o modelo ADE calcula taxas de sedimentação médias parametrizando o comportamento de ²¹⁰Pb_{xs} na presença de difusão, de modo similar ao realizado pelo MDC. O seu equacionamento pode ser resumido em [22] e [27].

$$\begin{aligned} \ln[A(z)] &= \ln A_0 - z \left(\sqrt{\frac{\alpha}{D}} - \frac{v}{2D} \right) \Rightarrow \\ \Rightarrow v &= 2D \frac{\partial}{\partial z} \ln[A(z)] + \sqrt{4\alpha D} \end{aligned} \quad [27]$$

Em que:

α = coeficiente de advecção de ^{210}Pb (em ano^{-1});

D = coeficiente de difusão de ^{210}Pb (em $\text{cm}^2 \text{ano}^{-1}$).

Este modelo também utiliza em seu cálculo atividades por unidade de volume, que podem ser obtidas a partir atividades por unidade de massa determinadas através de [19].

4.6 Tratamento estatístico

Para todos os cálculos matemáticos envolvidos neste capítulo, foi usado o software Microsoft Excel versão 2013 da Microsoft com os suplementos “Análise de dados” para a realização dos estudos estatísticos dos dados (ex. correlação de Pearson) e “Solver” para a resolução dos modelos matemáticos de taxa de sedimentação.

Tendo em vista que as equações dos modelos MDC [14] e ADE [27] não possuem solução analítica direta, elas foram resolvidas pelo método de diferenças finitas com o auxílio do pacote Solver. Este pacote permite, a partir da inserção dos dados dos perfis amostrados de variáveis, determinar perfis teóricos previstos pelos respectivos modelos, assim calculando os parâmetros dos modelos, como D , α e ν .

O χ^2 (quiquadrado) [28] é um teste estatístico que mede a diferença no nível de associação entre duas variáveis quantitativas. Quanto menor o valor de χ^2 , maior a associação entre as duas variáveis quantitativas. Neste caso, as duas variáveis quantitativas são os perfis teóricos (modelos) e amostrados (medidos espectrometricamente nas amostras).

$$\chi^2 = \left(\frac{1}{n-4} \right) \frac{\sum [(o - e)^2]}{\sigma_o^2} \quad [28]$$

Em que:

n = número de amostras;

o = valor observado;

e = valor esperado;

σ_o^2 = quadrado do desvio padrão dos valores observados.

É justamente através da minimização do valor de χ^2 para cada curva de atividade que o pacote Solver gera o valor de taxa de sedimentação (ν) para a coluna sedimentar amostrada no modelo de interesse. Esta operação foi previamente descrita e detalhada por Ferreira (2014), e foi empregada neste estudo para determinar os perfis teóricos de ^{137}Cs e $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ envolvidos nos modelos MDC e ADE, operação que determina os parâmetros das equações de ambos.

4.7 Resultados e discussão

A Tabela 5 apresenta os valores do intervalo de variação para as atividades, excluindo os valores menores que a AMD. No caso da estatística descritiva dos resultados deste trabalho, optou-se por não apresentar valores de média, mediana e desvio padrão, pois estes são valores calculados com base em um conjunto de amostras. E, neste trabalho, tem-se um conjunto de subamostras (camadas sedimentares) seccionadas de uma amostra (testemunho).

Tabela 5. Intervalo de variação das atividades de ^{137}Cs , ^{210}Pb e ^{226}Ra (em Bq kg^{-1}) nos testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente.

Nuclídeo	Testemunho	Amplitude das atividades (Bq kg^{-1})
^{137}Cs	D1	0,48 - 3,43
	D2	0,57 - 2,61
	D3	1,11 - 3,65
	D4	0,46 - 3,36
	D5	1,21 - 2,48
	D6	1,10 - 4,91
	D7	1,42 - 3,99
	D8	1,47 - 5,46
^{210}Pb	D1	29,43 - 66,67
	D2	17,89 - 65,16
	D3	28,16 - 60,05
	D4	29,56 - 61,63
	D5	13,71 - 64,11
	D6	30,50 - 65,60
	D7	27,10 - 61,99
	D8	26,77 - 70,54
^{226}Ra	D1	15,48 - 51,42
	D2	4,70 - 36,42
	D3	18,46 - 48,90
	D4	16,64 - 47,52
	D5	24,10 - 48,93
	D6	14,06 - 38,92
	D7	19,34 - 37,68
	D8	36,60 - 58,41

Os valores de ^{210}Pb obtidos neste estudo foram próximos aos reportados para a região por Fukumoto (2007). Em relação ao ^{226}Ra , que é equivalente à fração suportada do ^{210}Pb total, seus valores estão estritamente relacionados ao conteúdo de radionuclídeos da série do ^{238}U nas rochas, sedimentos e solos da região. Sua grande variabilidade pode ser explicada pela variabilidade granulométrica dos sedimentos da Baixada Santista (TESSLER et al., 2006) e pela presença das indústrias relacionadas aos fertilizantes fosfatados (Vale Fertilizantes, Ultrafertil) e das suas pilhas de fosfogesso. Este material é artificialmente enriquecido em radioelementos naturais, e pode causar uma variação artificial nos valores de ^{226}Ra .

A indústria de fertilizantes fosfatados trabalha com materiais considerados TENORM (*technologically enhanced naturally occurring radioactive materials*), pois as etapas de processamento de rocha fosfatada

para produção de fertilizantes resultam na concentração dos radionuclídeos naturais das séries de decaimento radioativo, como ^{210}Pb , ^{226}Ra , ^{238}U e ^{232}Th , em seus produtos e resíduos, como o fosfogesso (LEONARDO, 2010). O fosfogesso é armazenado em pilhas a céu aberto e eventualmente causa impactos ao meio ambiente circunjacente, influenciando diretamente nos teores deposicionais destes nuclídeos. Saueia e Mazzilli (2006) estimaram níveis de ^{210}Pb e ^{226}Ra em torno de 347 e 219 Bq kg⁻¹, respectivamente, no fosfogesso da indústria Ultrafertil.

Apesar de este fato demonstrar que a premissa número (v) dos modelos envolvendo $^{210}\text{Pb}_s$ não ser cumprida para a região (já que há uma variação de $^{210}\text{Pb}_s$), isso não implica, em termos práticos, necessariamente que: (i) essa variação seja dependente da profundidade, já que não há controle sobre os níveis “artificiais” de ^{226}Ra , nem que (ii) os modelos CIC, CFCS, CRS e ADE não possam ser aplicados. Além disso, é também esperado que o intervalo de variação deste nuclídeo nos testemunhos varie principalmente em razão de variações de natureza granulométrica e mineralógica, já que a presença de radionuclídeos naturais está intimamente relacionada a estas variáveis sedimentológicas (CHO, JEONG e HAHN, 1996; HE e WALLING, 1996).

Comparando os valores de ^{137}Cs destes testemunhos com valores de literatura, observou-se que são semelhantes a outras regiões costeiras e marinhas do Brasil, onde todo ^{137}Cs é proveniente apenas do *fallout* global de testes nucleares pretéritos (FIGUEIRA et al., 2006; FERREIRA et al., 2013; NEVES et al., 2014). Regiões afetadas, por exemplo, pelo acidente de Chernobyl em 1986, como os Mares da Irlanda, Báltico, da China e Ártico, apresentam atividades várias ordens de grandeza mais elevadas (BASKARAN et al., 1996; JONES et al., 1999; MATISHOV et al., 2002; SU e HUH, 2002; ZABORSKA, WINOGRADOW e PEMPKOWIAK, 2014).

A Figura 9 e a Figura 10 apresentam os perfis verticais (amostrais e teóricos) de ^{137}Cs e ^{210}Pb , respectivamente, com as estatísticas do teste χ^2 e correlação de Pearson ($\alpha = 5\%$) associadas. Em relação aos ajustes estatísticos dos perfis teóricos, pode-se observar que as curvas teóricas calculadas não apenas são visualmente similares às amostrais, como também

todas apresentaram correlação estatisticamente significativa ($\alpha = 5\%$) com os perfis amostrais para todos os testemunhos.

Em primeira instância, estas observações demonstraram que, no caso do ^{137}Cs , o MDC reproduz satisfatoriamente os perfis verticais de ^{137}Cs amostrais. Assim, com base nesta similaridade, pode-se afirmar que ele resume os principais fenômenos responsáveis pelo comportamento químico deste nuclídeo na coluna sedimentar: sua difusão intersticial e a sua convecção vertical nos sedimentos através da água intersticial.

Já no caso do ^{210}Pb , percebeu-se que todos os testemunhos apresentaram um comportamento de decaimento vertical deste nuclídeo. Esta afirmação foi corroborada pela estatística associada ao ajuste, que mostrou que todos os ajustes exponenciais são estatisticamente significativos em um nível de confiança de 95%. Este comportamento vertical é comum em uma série de sistemas costeiros e mostra que, para estas situações, a taxa de sedimentação variou pouco (em termos de escala do fenômeno) dentro da escala de tempo analisada (que é um intervalo de $7 T_{1/2}$ de ^{210}Pb , em torno de 150 anos).

Figura 9. Perfis verticais de atividade de ^{137}Cs (em mBq cm^{-3}) para os testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente (pontos = perfil amostral, linhas = perfil teórico do MDC).

Figura 10. Perfis verticais de atividade de ^{210}Pb (em Bq kg^{-1}) para os testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente (pontos = perfil amostral, linhas = perfil teórico do CIC).

Com base nos ajustes acima, as equações dos modelos MDC, CIC, CFCS e ADE foram aplicadas com o intuito de avaliar especificamente as taxas de sedimentação e de acumulação de massa médias. A Tabela 6 apresenta a compilação destes resultados para todos os testemunhos analisados.

Tabela 6. Valores de taxa de sedimentação média (ν) (em cm a^{-1}) calculados pelos modelos MDC, CIC e ADE e de acumulação de massa média (φ) (em $\text{g cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$) pelo modelo CFCS para os testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente.

Testemunho	Taxa de sedimentação (ν) (cm a^{-1}) ^a			Taxa de acumulação de massa (φ) ($\text{g cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$) ^a
	MDC	CIC	ADE	CFCS
D1	0,80 ± 0,07	0,84 ± 0,15	0,94 ± 0,16	0,91 ± 0,16
D2	0,81 ± 0,03	0,92 ± 0,17	0,71 ± 0,13	1,35 ± 0,25
D3	0,89 ± 0,06	0,80 ± 0,04	0,71 ± 0,04	1,02 ± 0,05
D4	1,73 ± 0,09	1,24 ± 0,19	1,72 ± 0,27	2,12 ± 0,33
D5	1,02 ± 0,06	0,80 ± 0,04	0,75 ± 0,04	1,29 ± 0,07
D6	1,01 ± 0,10	1,30 ± 0,05	1,12 ± 0,05	1,32 ± 0,06
D7	0,90 ± 0,09	1,11 ± 0,05	1,02 ± 0,04	1,01 ± 0,04
D8	0,82 ± 0,06	0,83 ± 0,03	0,94 ± 0,04	0,39 ± 0,02

^a Valores no formato valor ± erro de determinação.

Pelos valores da Tabela 6, pode-se observar que, em termos gerais, os modelos de sedimentação resultam em valores similares de taxa de sedimentação. Além disso, os valores determinados foram semelhantes aos da literatura para a região do Canal de Bertiooga [$1,02 \pm 0,12 \text{ cm a}^{-1}$, de Gonçalves et al. (2013)] e do Estuário de Santos [$1,47 \pm 0,17 \text{ cm a}^{-1}$, de Fukumoto (2007)].

Em alguns testemunhos (D2, D6 e D7), verificou-se que os resultados do modelo MDC e ADE tenderam a ser menores que os do CIC, provavelmente pela natureza de ambos os modelos ao considerarem a migração vertical do nuclídeo de interesse no sedimento. Raramente esta variável de difusão e convecção vertical é contabilizada no cálculo de sedimentação em sistemas costeiros porque sua escala de variação (10^{-5} em termos espaciais) é pequena perante a escala dimensional da sedimentação nestes sistemas (1 em termos espaciais). Isto pode ser um indicativo da relevância, nestes testemunhos, de contabilizar a porosidade das subamostras em estudos de fluxos de partículas e contaminantes.

Para avaliar se houve diferença entre os resultados gerados pelos modelos MDC, CIC e ADE, foi utilizada uma análise de variância (ANOVA) multifatorial. Para isso, foram definidos como fatores (variáveis qualitativas) o testemunho e o modelo, e como resposta (variável quantitativa) a taxa de sedimentação (ν). Também foi realizada a avaliação das premissas de

normalidade e homocedasticidade dos dados das amostras pelos testes de Anderson-Darling e Levene, respectivamente, pré-requisitos para a aplicação da ANOVA.

Tabela 7. Valores p para os testes de Anderson-Darling, Levene e para a ANOVA multifatorial ($\alpha = 5\%$) das taxas de sedimentação dos modelos MDC, CIC e ADE para os testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente.

Teste	Fator	Estatística	Valor p
Anderson-Darling ^a	-	0,50	0,19
Levene ^b	-	0,05	0,82
ANOVA multifatorial ^c	Modelos	0,04	0,84
	Testemunhos	8,78	< 0,05
	Modelos vs. testemunhos	0,96	0,52

^a Valor p maior que α aceita a hipótese nula de que a distribuição dos dados das amostras é aproximadamente normal.

^b Valor p maior que α aceita a hipótese nula de que há homogeneidade das variâncias dos dados das amostras.

^c Valor p maior que α aceita a hipótese nula de que não há diferenças entre as amostras para o fator em questão.

Esta análise mostrou que não há diferença estatisticamente significativa ($\alpha = 5\%$) entre os resultados dos modelos para o conjunto de testemunhos e que os resultados de cada modelo independem do testemunho em questão (Tabela 7). Isso implica que, a partir de oito perfis sedimentares diferentes e de modelos matemáticos diferentes, envolvendo dois elementos com comportamentos ambientais distintos, há uma taxa de sedimentação média para cada um dos testemunhos independente do modelo utilizado.

A partir dos resultados da Tabela 6, pode-se fazer uma análise da variação espacial da taxa de sedimentação para o Sistema Santos-São Vicente. Para tanto, os resultados do modelo CIC foram escolhidos como representativos do conjunto amostral quando considerada válida a premissa de não variação na escala da taxa de sedimentação, tendo em vista sua matemática mais simples, porém robusta, na ampla utilização deste modelo para cálculos sedimentares quantitativos com base nos perfis verticais de ²¹⁰Pb (Figura 11) e na estatística apresentada na Tabela 7.

Figura 11. Distribuição espacial da taxa de sedimentação (em cm a^{-1}) no Sistema Estuarino de Santos-São Vicente.

A distribuição espacial das taxas de sedimentação (Figura 11) obtida concordou com outros estudos pretéritos realizados na região, que mostram que o Sistema Estuarino de Santos-São Vicente é um ambiente de sedimentação com taxas de deposição equilibradas e homogêneas, mas podendo apresentar taxas maiores localmente (FÚLFARO e PONÇANO, 1976). Foram observadas taxas de sedimentação mais elevadas em três localidades:

- i. Largo do Candinho (testemunho D4). Região caracterizada pela hidrodinâmica favorável à deposição e por ser uma das poucas áreas de deposição de sedimentos argilosos (MIRANDA e CASTRO, 1998).
- ii. Proximidades da Ilha do Barnabé (testemunho D6). Foi reportada a deposição preferencial de sedimentos finos (HORTELLANI et al., 2005), indicativo de um local com baixa hidrodinâmica e, consequentemente, maiores taxas de sedimentação.
- iii. Largo de Santa Rita (testemunho D7). Área geograficamente bastante abrigada, com alta taxa de sedimentação (FUKUMOTO, 2007).

Especificamente em relação aos testemunhos D4 e D6, que apresentaram altas taxas de sedimentação localmente, pode-se também verificar que ambos os locais também apresentam taxas de acumulação de

massa bastante elevadas ($2,12$ e $1,32 \text{ g cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$, respectivamente) (Tabela 6) para um sistema que foi previamente classificado como de baixa energia. Isso possivelmente acontece pela deposição de sedimentos finos, sedimentos estes caracterizados por possuírem alta massa volumétrica (razão massa-volume), que se reflete nos valores de taxa de acumulação de massa determinados pelo modelo CFCS. Foi exatamente este cenário granulométrico que foi verificado por Sartoretto (2014), com valores acima de 90% de partículas finas ao longo destes testemunhos.

Com base na variação vertical de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, também se pode realizar uma avaliação da variação das taxas de sedimentação e de acumulação de massa ao longo do tempo (Figura 12 e Figura 13, respectivamente) com as equações do modelo CRS ([24] e [25], respectivamente).

Figura 12. Variação temporal da taxa de sedimentação (ν) (em cm a^{-1}) nos testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente.

Figura 13. Variação temporal da taxa de acumulação de massa (ϕ) (em $\text{g cm}^{-2} \text{a}^{-1}$) nos testemunhos do Sistema Estuarino de Santos-São Vicente.

É claramente visível que os valores de taxa de sedimentação variaram ao longo do intervalo de tempo calculado por este modelo (desde 1900). A partir da década de 1970, pode ser observada uma tendência de aumento e grande variação na sedimentação, que pode ser um reflexo das mudanças da região da Baixada Santista nessa época.

Estas mudanças estão associadas às ampliações sofridas na região a partir de 1970, com a instalação de grandes empresas (ex. Ultrafertil), à ampliação das operações e modernização (com terminais de contêineres) do porto de Santos e de dragagem dos canais, e à intensificação da ocupação industrial e o *boom* imobiliário de toda a área da Baixada Santista com inauguração da Rodovia dos Imigrantes (CUNHA, 2006), como também foi verificado pelos níveis de contaminantes metálicos nos sedimentos estuarinos (GONÇALVES et al., 2013). Todas estas atividades envolvem desmatamentos,

aterramentos de manguezais e despejo de resíduos sólidos e esgotos, que tem consequências diretas na sedimentação local (LUIZ-SILVA et al., 2012).

Especificamente para a região norte do Canal de Bertioga, pode-se verificar nestes registros históricos de sedimentação gerados pelo modelo CRS que, durante as décadas de 40 e 50, houve um aumento na sedimentação, aumento este mais acentuado nos testemunhos D1, D2 e D3. Não existe um histórico da sedimentação no Canal de Bertioga para essa época, mas talvez esse fenômeno de alguma forma associado ao crescimento social e industrial iniciado nesta época, com o surgimento de indústrias (como as de carvão e de enlatamento de sardinhas) nas proximidades e com o grande aumento populacional registrado no município (ROMANI, 2011).

Já no caso dos testemunhos do alto estuário, que são os mais interiores do sistema costeiro (D6-D8), percebe-se que a intensidade da deposição sedimentar variou pouco, talvez por serem representativos de uma região com hidrodinâmica menos intensa. Apesar disso, apresenta alguns momentos com sedimentação mais intensa (Figura 13). A presença destas variações tanto nos níveis de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ e na taxa de sedimentação em um curto intervalo de tempo poderia ser um indicativo de efeitos de operações de dragagem no sistema estuarino.

Foi reportado que casos de variabilidade nas taxas de sedimentação e de acumulação de massa ou de mudanças bruscas nos níveis de radionuclídeos podem estar associados a operações de dragagem. Por exemplo, sedimentos dragados podem ser identificados por sua assinatura de ^{137}Cs , diferenciadas do restante dos sedimentos adjacentes (GOFF, WHITEHEAD e DITCHBURN, 1998) e pelos níveis reduzidos de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, pois geralmente sedimentos oriundos de dragagem são caracterizados pela sua exposição recente à coluna de água, liberando parte de seu conteúdo de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ depositado e aparentando serem mais antigos que os sedimentos ao redor (já que sedimentos mais recentes tem níveis maiores de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) (BENNINGER e KRISHNASWAMI, 1981).

Agora, em relação ao tipo de modelagem dos dados de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, o modelo CRS é diferenciado dos outros (CIC, CFCS, ADE, MDC) por permitir uma avaliação das mudanças ao longo de um intervalo de tempo destas variáveis, que é um dado mais refinado. Antes de comparar os resultados do

CRS com os outros, deve-se lembrar de que os outros modelos (CIC, CFCS, ADE, MDC) são baseados na premissa de que a escala do processo não variou ao longo do intervalo de tempo analisado. Realmente, a escala do fenômeno observado não se alterou quando analisada apenas sob o ponto de vista da estatística da curva de ^{210}Pb como um todo (Figura 10). Entretanto, as pequenas mudanças nos valores de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ entre profundidades adjacentes implicam em variações na taxa de sedimentação especificamente para o intervalo de profundidade analisado, que é a essência do cálculo de taxa de sedimentação pelo modelo CRS.

A grande diferenciação entre os perfis de ν e φ pode ser explicada por modificações de porosidade, densidade e granulometria dos sedimentos. A porosidade influencia diretamente no cálculo do modelo CRS, pois alterações no teor de água acarretam mudanças na porosidade do sedimento e, conseqüentemente, na sua densidade aparente e na quantidade (em termos de massa) de sedimento acumulado (FERREIRA et al., 2015). Já densidade aparente e a granulometria são variáveis que influenciam na deposição de massa no que diz respeito à massa volumétrica dos diferentes tipos granulométricos, maiores nos sedimentos mais finos e menores nos mais grossos, e nos níveis de radioatividade, maiores em sedimentos mais densos (SCHUILING et al., 1985; HE e WALLING, 1996).

4.8 Considerações finais

Este capítulo apresentou um dos usos dos radionuclídeos em estudos de dinâmica sedimentar, que é o cálculo de taxas de sedimentação. Foram apresentados cinco modelos matemáticos abrangendo a aplicação de dois radionuclídeos, ^{137}Cs e ^{210}Pb , na avaliação de taxas de sedimentação e de acumulação de massa no Sistema Santos-São Vicente, escolhido pela sua hidrodinâmica e sedimentação presente na literatura.

A partir apenas dos resultados dos modelos matemáticos dos radionuclídeos, baseados apenas nos níveis de atividade de ^{137}Cs , ^{210}Pb e ^{226}Ra e no teor de água dos sedimentos, formalizados em termos de premissas, cálculos, tratamento e apresentação de dados, foi realizada uma avaliação das variações espaciais atuais e das mudanças ao longo do tempo

na sedimentação do sistema costeiro em questão. Verificou-se que a taxa de sedimentação média para a região variou pouco entre os modelos aplicados e os valores concordaram com a literatura.

O Sistema Estuarino de Santos-São Vicente apresentou-se, em termos espaciais, como um ambiente de sedimentação homogênea, com algumas regiões específicas com sedimentação mais intensa, como o Largo do Candinho e o Largo de Santa Rita. Ao longo do tempo, houve momentos de variação na taxa de sedimentação da região, observados aumentos principalmente a partir da década de 70, correspondentes à ampliação do polo industrial de Cubatão e da ocupação imobiliária de região, que, através de desmatamentos e aterramentos de manguezais, podem ser as causas deste fenômeno.

Ao avaliar quantitativamente a evolução espacial e ao longo do tempo da sedimentação, os perfis verticais gerados pelos modelos matemáticos com base nos níveis de radionuclídeos também podem servir de ferramentas para a identificação de impactos antrópicos, como os efeitos de indústrias de fertilizantes fosfatados sobre o equilíbrio da série de decaimento do ^{238}U e de procedimentos portuários de dragagem de fundos aquáticos.

---

5. APLICAÇÃO CRONOESTRATIGRÁFICA DE UM MARCADOR RADIOATIVO NO ANTROPOCENO

5.1 Apresentação

A Estratigrafia é uma área da Geologia que estuda unidades geológicas criadas com base na descoberta de eventos geológicos bem definidos como, por exemplo, a distribuição ao longo do tempo de assembleias de organismos. Dentro dos diversos assuntos de interesse da Estratigrafia, estão a determinação de idade de rochas e sedimentos com assinaturas e marcadores diversos (Geocronologia) e a classificação destes materiais em grupos temporais distintos (Cronoestratigrafia).

No estudo das diversas ciências ambientais, há ampla aceitação dentro da comunidade científica de que as alterações antrópicas sobre o meio ambiente são significativas e possivelmente comparáveis às “forças da Natureza” (STEFFEN, CRUTZEN e MCNEILL, 2007). Assim sendo, ampliou-se o interesse e o debate das perturbações humanas sobre o meio ambiente, a escala de tais modificações e os seus registros geológicos.

Recentemente, Crutzen e Stoermer (2000) propuseram um novo termo estratigráfico, o Antropoceno, a partir das mudanças que a civilização humana está realizando no meio ambiente, mas sem definir claramente um evento ou registro que marque o início desta unidade. Neste trabalho citado, os autores tratam o início do Antropoceno como a Segunda Revolução Industrial, ocorrida durante a segunda metade do século XIX.

Waters et al. (2014) listam uma série de ferramentas estratigráficas que poderiam ser utilizadas para definir o Antropoceno, como a deposição de rejeitos metálicos provenientes da mineração (depósitos artificiais), evidências químicas preservadas na criosfera, efeitos dos processos de mudança climática e picos de acidentes e testes nucleares, sendo este último o marcador de interesse deste capítulo.

Ainda não se chegou a uma conclusão em relação à definição formal do Antropoceno para a comunidade científica global. Em 2016, o Grupo de Trabalho do Antropoceno (AWG - *Anthropocene Working Group*), parte da Subcomissão da Estratigrafia do Quaternário (SQS - *Subcommission on Quaternary Stratigraphy*), após uma longa discussão formal das propostas de pesquisadores em relação à definição do estado do Antropoceno enquanto Época ou Idade e também a Secção e Ponto Estratigráfico Global (GSSP - *Global Stratigraphic Section and Point*) ou a Idade Estratigráfica Global Padrão (GSSA - *Global Standard Stratigraphic Age*), votou a favor da definição do Antropoceno como época geológica posterior ao Holoceno (CARRINGTON, 2016).

São várias as sugestões de definição do início do Antropoceno e de seu marcador estratigráfico, como o início da agricultura enquanto origem das mudanças na vegetação (DOUGHTY, WOLF e FIELD, 2010) e no solo (CERTINI e SCALENGHE, 2011), as Revoluções Industriais e o uso de combustíveis fósseis (CRUTZEN, 2002; FISCHER-KOWALSKI, KRAUSMANN e PALLUA, 2014) e as mudanças bióticas causadas pela evolução das megacidades (WOLFE, HOBBS e BIRKS, 2013).

O trabalho recente de Zalasiewicz et al. (2014) propôs como GSSA para o início do Antropoceno o ano de 1945, equivalente ao teste nuclear de Alamogordo (Novo México, EUA) e com um claro efeito quimioestratigráfico, que é a presença de radionuclídeos artificiais provenientes do *fallout* dos testes nucleares durante a Guerra Fria.

A detecção destes radionuclídeos em sedimentos antigos é um indicativo do momento em que este material foi depositado, podendo, assim, funcionar como um marcador cronoestratigráfico. Conforme discutido anteriormente no item 1.3, o ano de 1963 é considerado, mundialmente, como o ano referente ao máximo deste *fallout* radioativo dos testes nucleares pretéritos, devido ao tempo de residência das partículas radioativas na atmosfera de cerca de um ano. Assim, a medição de radionuclídeos artificiais em rochas, solos e sedimentos marinhos antigos pode funcionar como um marcador histórico global deste ano particular.

Este presente capítulo tratou da detecção do máximo do *fallout* pretérito em sedimentos marinhos de sistemas costeiros diversos da costa

oeste do Atlântico Sul, realizando a associação deste máximo ao ano de 1963 e verificando a distribuição radioativa deste fenômeno ao longo desta área de estudo. Para tanto, o radionuclídeo artificial escolhido foi ^{137}Cs . Suas características, como meia-vida, presença global em sedimentos e acumulação em sedimentos detectável por espectrometria gama, foram exploradas como forma de avaliar a possibilidade de seu uso enquanto marcador da ocorrência deste fenômeno em sedimentos.

Configurando-se como uma consequência do uso e testes de armamentos nucleares principalmente durante a Guerra Fria, a presença de ^{137}Cs funciona como um marcador equivalente ao ano de 1963, possuindo aplicabilidade em estudos de dinâmica sedimentar no que diz respeito ao estabelecimento de idade de amostras sedimentares. O máximo global de sua atividade, detectável devido à distribuição de radionuclídeos por todo o globo, pode funcionar como um marcador para o início do Antropoceno.

5.2 Área de estudo

A região de estudo compreendeu uma série de sistemas costeiros ao longo da costa oeste do Oceano Atlântico Sul. Foram escolhidos sete sistemas: o Estuário do Caeté (PA, Brasil), a foz do Rio Capibaribe (PE, Brasil), o Estuário de Caravelas (BA, Brasil), o Sistema Estuarino de Santos-São Vicente (SP, Brasil), o Complexo Estuarino de Cananeia-Iguape (SP, Brasil), a Baía de Paranaguá (PR, Brasil) e o estuário do Rio da Prata (Uruguai) (Figura 14).

Figura 14. Sistemas costeiros de interesse ao longo da costa sul-americana do Atlântico Sul com a localização dos testemunhos analisados. (a) Estuário do Caeté (PA, Brasil), (b) Foz do Rio Capibaribe (PE, Brasil), (c) Estuário de Caravelas (BA, Brasil), (d) Sistema Estuarino de Santos-São Vicente (SP, Brasil), (e) Complexo Estuarino de Cananeia-Iguape (SP, Brasil), (f) Baía de Paranaguá (PR, Brasil), (g) Estuário do Rio da Prata (Uruguai).

Estes sistemas costeiros possuem algumas características que os tornam relevantes do ponto de vista de estudos sedimentares e de influência antrópica. São sistemas geologicamente recentes com geomorfologias complexas condicionadas por forçantes fluviais e marinhas. Tem um histórico conhecido de profundas alterações e impactos antrópicos, como os do canal artificial do Valo Grande (no Complexo de Cananeia-Iguape) (MAHIQUES et al., 2013), das atividades industriais, portuárias (no Sistema Santos-São Vicente, Paranaguá, Prata) (BILOS, COLOMBO e PRESA, 1998; HORTELLANI et al., 2005; HORTELLANI et al., 2008; CHOUERI et al., 2009) e agrícolas (Caeté, Caravelas) (ALMEIDA et al., 2008; GORAYEB, LOMBARDO e PEREIRA, 2010), da forte ocupação humana (Capibaribe, Sistema Santos-São Vicente, Paranaguá e Prata) (COLOMBO et al., 2006).

Por outro lado, também apresentam áreas consideradas prístinas em relação à contaminação por metais pesados, como o Canal de Bertiooga (Sistema Santos-São Vicente) (GONÇALVES et al., 2013) e a Ilha do Cardoso (Complexo de Cananeia-Iguape) (OLIVEIRA et al., 2007), que faz parte da Zona Núcleo da Reserva da Biosfera da Mata Atlântica segundo a Organização das Nações Unidas para a Educação, a Ciência e a Cultura (UNESCO).

Sobre a radiometria da região costeira do Atlântico Sul, ela é caracterizada por baixos níveis de radionuclídeos artificiais devido apenas ao *fallout* atmosférico (SAITO et al., 2001; FIGUEIRA et al., 2006; NAGAI et al., 2014), sendo que os níveis de ^{137}Cs foram estimados entre 0,4 e 1,8 Bq kg⁻¹ em diversas localidades ao longo da costa do Brasil (CUNHA, FIGUEIRA e SAITO, 1999). Também é uma região com uma potencial fonte local de elementos artificiais, que é a Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto na costa do Estado do Rio de Janeiro, que atualmente abriga os reatores nucleares Angra I e Angra II.

Além disso, estes sistemas costeiros possuem uma hidrodinâmica propícia à deposição de sedimentos finos nas suas áreas mais abrigadas, favoráveis à acumulação de radionuclídeos e, portanto, ideais para a análise de ^{137}Cs . Este é um ponto muito importante do ponto de vista analítico, tendo em vista os baixos níveis reportados de ^{137}Cs para a região. Desta forma, estes locais mostram-se próprios para o correto estabelecimento do ^{137}Cs proveniente do *fallout* pretérito, que é necessário para a determinação da

origem deste radioelemento e da ocorrência espacial do fenômeno do *fallout* na região, em conjunto com uma boa cobertura e homogeneidade espacial da distribuição dos locais de estudo.

A área de estudo, como um todo, pode ser dividida em três zonas climáticas, divisão esta adaptada da proposta por Handl et al. (2008) para a caracterização do *fallout* radioativo em solos do Brasil: zona equatorial (Estuário do Caeté), de clima quente e semiúmido com 2-5 meses de período seco; zona tropical (Rio Capibaribe, Estuário de Caravelas), com predomínio de clima quente e úmido e 3-5 meses de período seco; e zona subtropical (Estuário de Santos-São Vicente, Complexo de Cananeia-Iguape, Baía de Paranaguá, Rio da Prata), com temperaturas medianas, clima úmido e menor frequência de ventos.

Esta divisão parte do princípio de que o padrão de deposição de ^{137}Cs pode ser explicado por padrões latitudinais meteorológicos de massas de ar, nebulosidade, precipitação e umidade, conforme estudados pelos autores do estudo supracitado.

5.3 Conjunto amostral

Os testemunhos utilizados nesta etapa do trabalho foram coletados em diversos anos. Todos os testemunhos foram analisados em subamostras de 2 cm de intervalos, e estas foram submetidas aos mesmos procedimentos analíticos descritos no capítulo 3, sendo o radionuclídeo de interesse ^{137}Cs . A Figura 14 apresenta a localização geográfica das colunas sedimentares analisadas, e a Tabela 8 contém as informações descritivas de todos os testemunhos envolvidos.

Tabela 8. Descrição dos testemunhos coletados ao longo da região costeira do Atlântico Sul.

Sistema costeiro	Testemunho	Latitude (°S)	Longitude (°W)	Ano de amostragem
Estuário do Caeté	A1	00° 50' 29,03"	46° 38' 19,36"	2014
	A2	00° 50' 57,14"	46° 38' 03,86"	2000
	A3	00° 53' 53,14"	46° 38' 42,09"	2000
	A4	00° 58' 06,21"	46° 42' 55,18"	2000
Foz do Rio Capibaribe	B1	08° 04' 44,40"	34° 52' 43,68"	2011
Estuário de Caravelas	C1	17° 43' 54,84"	39° 16' 06,38"	2013
	C2	17° 44' 16,02"	39° 15' 51,00"	2013
	C3	17° 45' 26,76"	39° 12' 36,00"	2004
Sistema Estuarino de Santos-São Vicente	D1	23° 52' 25,68"	46° 09' 43,44"	2010
	D2	23° 54' 04,74"	46° 11' 39,36"	2010
	D3	23° 54' 32,22"	46° 12' 55,20"	2010
	D4	23° 55' 33,18"	46° 14' 34,68"	2010
	D5	23° 55' 07,62"	46° 16' 13,98"	2010
	D6	23° 55' 44,26"	46° 18' 56,84"	2012
Complexo Estuarino de Cananeia-Iguape	E1	24° 42' 26,33"	47° 32' 48,32"	2008
	E2	24° 43' 16,43"	47° 33' 34,96"	2010
	E3	24° 43' 25,08"	47° 33' 51,48"	2008
	E4	24° 45' 20,91"	47° 37' 19,25"	2008
	E5	24° 48' 49,86"	47° 41' 37,24"	2008
Baía de Paranaguá	F1	25° 27' 44,79"	48° 40' 08,62"	2014
	F2	25° 29' 08,48"	48° 31' 17,16"	2009
	F3	25° 30' 04,26"	48° 28' 08,05"	2014
Estuário do Rio da Prata	G1	35° 02' 60,00"	56° 08' 60,00"	2013

5.4 Avaliação do ^{137}Cs proveniente do *fallout* pretérito

Para avaliar a presença de ^{137}Cs em sedimentos antigos, foi realizada a análise de seus níveis ao longo dos testemunhos de acordo com o método estabelecido no item 3.5 e, então, foi utilizado o modelo de difusão-convecção (MDC) (item 4.4) para determinar seus parâmetros deposicionais. Neste caso, o parâmetro de interesse neste capítulo com relação à distribuição vertical de ^{137}Cs é A_0 , que é a atividade inicial de ^{137}Cs proveniente do *fallout* global [18].

As premissas e as condições de contorno do MDC assumem que todo o conteúdo do *fallout* foi depositado no ano de 1963. Isso corresponde a uma aproximação realista, tendo em vista que a maior parte dos testes realmente ocorreu na década de 60 (Figura 4). Dessa forma, o MDC não apenas é capaz

de determinar quanto tempo se passou desde que a amostra da secção da coluna sedimentar foi depositada em 1963, mas também consegue estimar a quantidade de ^{137}Cs (em termos de atividade por volume de sedimento) de entrada a partir dos testes nucleares.

A informação proporcionada pelo parâmetro A_0 nos vários testemunhos da costa do Atlântico Sul foi necessária para verificar a distribuição espacial da deposição de radionuclídeos artificiais, para avaliar se ^{137}Cs pode funcionar como um marcador estratigráfico correspondente ao fenómeno do *fallout* (neste caso, considerando o ano de 1963) para toda a região de estudo, e quais características ele possui enquanto marcador estratigráfico.

O interesse de geólogos e outros pesquisadores por marcadores quimioestratigráficos é crescente, já que as perturbações humanas sobre os ciclos geoquímicos globais deixam claros horizontes de substâncias químicas nos sedimentos recentes, e muitas vezes estas substâncias podem provocar reações que afetam outros compartimentos além dos sedimentos, como a biota e a atmosfera (ZALASIEWICZ et al., 2011).

5.5 Resultados e discussão

As Figura 15, Figura 16 e Figura 17 apresentam os perfis verticais de ^{137}Cs e as curvas ajustadas referentes à aplicação do MDC, cuja estimativa gerou o parâmetro A_0 para todos os testemunhos da área de estudo com seu respectivo nível descritivo (valor p) da modelagem estatística (Tabela 9), conforme o método de tratamento apresentado no item 4.6.

Figura 15. Perfis verticais de ^{137}Cs (em mBq cm^{-3}) para os testemunhos da costa do Atlântico Sul (Estuário do Caeté, foz do Rio Capibaribe, Estuário de Caravelas).

Figura 16. Perfis verticais de ^{137}Cs (em mBq cm^{-3}) para os testemunhos da costa do Atlântico Sul (Sistema Estuarino de Santos-São Vicente, Complexo Estuarino de Cananeia-Iguape).

Figura 17. Perfis verticais de ^{137}Cs (em mBq cm^{-3}) para os testemunhos da costa do Atlântico Sul (Baía de Paranaguá, estuário do Rio da Prata).

A observação dos vários perfis verticais de ^{137}Cs permite visualizar a presença de um horizonte caracterizado por um elevado nível deste nuclídeo nos sedimentos ($^{137}\text{Cs}_{\text{máx}}$). A profundidade deste horizonte varia bastante entre os vários sistemas costeiros estudados, mas está presente em todos os perfis. Tendo em vista que o *fallout* atmosférico passado é a única fonte de ^{137}Cs para o Atlântico Sul, pode-se associar este máximo observado ao *fallout* estudado.

Um horizonte de marcador estratigráfico é uma unidade estratigráfica que está presente em diversas localidades do mundo com mesma idade e composição distinta. Tais horizontes são frequentemente utilizados para facilitar a correlação entre estratos geológicos, e o horizonte de $^{137}\text{Cs}_{\text{máx}}$ observado nos testemunhos deste estudo pode ser tomado como um exemplo de marcador desta natureza (AOYAMA, HIROSE e IGARASHI, 2006).

As variações das profundidades e da intensidade dos horizontes de $^{137}\text{Cs}_{\text{máx}}$ (em alguns testemunhos, chegando a poder ser caracterizado realmente como um claro pico de atividade, como em D6 e E3) estão associados às propriedades particulares de cada sistema. Bunzl et al. (2000) e Liger et al. (2010) verificaram que o comportamento de ^{137}Cs ao longo do tempo em um sistema costeiro depende do tempo de residência deste nuclídeo antes da deposição nos sedimentos e está intimamente relacionado com as taxas de sedimentação locais.

Por ser um metal alcalino, Cs possui mobilidade significativa através da água intersticial dos sedimentos (COMANS et al., 1989) e é transportado principalmente na forma dissolvida (PUTYRSKYA, KLEMT e RÖLLIN, 2009). O coeficiente de difusão (D) [14] do MDC é de extrema importância para estudar os padrões verticais de ^{137}Cs , pois permite uma parametrização de sua mobilidade. Esta mobilidade varia dependendo de fatores ambientais locais, como hidrodinâmica, porosidade e distribuição granulométrica dos sedimentos (JOHNSON-PYRTLE et al., 2000; KLAMINDER et al., 2012; FERREIRA et al., 2015).

Entretanto, Ligeró, Barrera e Casas-Ruiz (2005b) mostraram que sua presença final, pós-deposicional, nos sedimentos é independente das características químicas do sedimento (como teor de matéria orgânica e de carbonato) e de sua granulometria, justamente pelas suas características de metal alcalino. Isso indica que, em relação à preservação do horizonte de $^{137}\text{Cs}_{\text{máx}}$, o MDC é capaz de inferir corretamente a atividade inicial de ^{137}Cs depositada preteritamente a partir dos perfis atuais verticais amostrados.

A Tabela 9 apresenta os valores de A_0 estimados para todos os testemunhos, mas se verifica que o testemunho A3 obteve um ajuste do MDC (e, portanto, uma estimativa de A_0) marginalmente significativo, e que F1 obteve um ajuste não significativo ($\alpha = 5\%$). Os valores obtidos neste estudo ($3,18 - 45,15 \text{ mBq cm}^{-3}$) estão na mesma escala de grandeza dos reportados para os sedimentos da Baía do Almirantado (Antártida, 62°S) ($19,98 \pm 9,26 \text{ mBq cm}^{-3}$) (FERREIRA et al., 2013), outra localidade no Hemisfério Sul com mesma fonte de ^{137}Cs , e para solos da Eslovênia (Europa, 45°N) ($42,66 \pm 0,81 \text{ mBq cm}^{-3}$) (LIKAR et al., 2001), cuja atividade de ^{137}Cs é proveniente aos testes nucleares pretéritos da década de 60.

Tabela 9. Atividades iniciais de ^{137}Cs referentes ao máximo do *fallout* radioativo global (A_0 , equivalente a 1963) (em mBq cm^{-3}) nos testemunhos da costa do Atlântico Sul. Valor p da estimativa de A_0 pelo MDC ($\alpha = 5\%$).

Sistema costeiro	Testemunho	A_0 (mBq cm^{-3})	Valor p ^a
Estuário do Caeté	A1	3,21	< 0,05
	A2	3,35	< 0,05
	A3	22,71	0,04
	A4	3,18	< 0,05
Foz do Rio Capibaribe	B1	9,50	< 0,05
Estuário de Caravelas	C1	23,95	< 0,05
	C2	14,89	< 0,05
	C3	25,88	< 0,05
Sistema Estuarino de Santos-São Vicente	D1	13,73	< 0,05
	D2	20,40	< 0,05
	D3	20,99	< 0,05
	D4	22,03	< 0,05
	D5	11,42	< 0,05
	D6	12,77	< 0,05
Complexo Estuarino de Cananeia-Iguape	E1	29,79	< 0,05
	E2	15,15	< 0,05
	E3	20,73	< 0,05
	E4	16,99	< 0,05
	E5	14,24	< 0,05
Baía de Paranaguá	F1	11,79	0,13
	F2	10,36	< 0,05
	F3	22,13	< 0,05
Estuário do Rio Prata	G1	32,48	< 0,05

^a Valor p maior que α aceita a hipótese nula de que o ajuste do MDC não é estatisticamente semelhante à curva amostral.

Particularmente no estudo de Likar et al. (2001), a partir da aplicação de um modelo de migração vertical de ^{137}Cs similar ao MDC em um testemunho de solo, os autores separaram matematicamente a influência do *fallout* global pretérito do desastre de Chernobyl na atividade deste nuclídeo. A partir da conversão dos parâmetros determinados por eles, foi verificado que o valor de A_0 para este testemunho tem a mesma escala de grandeza dos encontrados em sedimentos no Hemisfério Sul, indicando uma fonte comum destes radionuclídeos no globo.

O relatório do Comitê Científico sobre os Efeitos da Radiação Atômica da ONU (UNSCEAR) (UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION, 1982) descreveu espacialmente a

deposição do *fallout* radioativo atmosférico como apresentando um máximo latitudinal em médias latitudes (30-40°) em ambos os hemisférios, com valores menores no Equador e nos polos. Para estudar os efeitos desta distribuição atmosférica nos sedimentos antigos da costa do Atlântico Sul, foi realizado um estudo de correlação de Pearson e uma regressão linear dos valores de A_0 com relação às latitudes dos pontos de coleta (Figura 18).

Figura 18. Gráfico de regressão latitudinal do ^{137}Cs proveniente do *fallout* radioativo global (A_0).

Na Figura 18, pode-se observar que a regressão latitudinal dos valores de atividade inicial de ^{137}Cs é estatisticamente significativa ($\alpha = 5\%$). Os maiores níveis deste radioelemento foram detectados no estuário do Rio da Prata em torno de 35°S, região a qual o relatório do UNSCEAR observou o máximo da deposição do *fallout* no Hemisfério Sul. Este resultado, portanto, concorda com as observações do UNSCEAR e, apesar do baixo número

amostral para esta regressão, é um indício de que a atividade depositada de ^{137}Cs é referente apenas ao *fallout* pretérito dos testes nucleares.

Esta conclusão sobre a relação latitudinal dos níveis de ^{137}Cs em sedimentos é baseada não apenas no fato de não haver mais fonte atual deste elemento, mas também porque sua distribuição vertical em uma grande área é satisfatoriamente explicada pela sua entrada nos sedimentos a partir do *fallout* em conjunto com seu espalhamento vertical por difusão e convecção.

O registro do *fallout* nos sedimentos observado através dos teores de ^{137}Cs é bastante distinto e presente globalmente. A presença do máximo de 1963 é evidente em testemunhos sedimentares como um sinal muitas vezes abrupto (como observados nos testemunhos D6 e E3), e isso faz com que este elemento seja um bom marcador dos testes nucleares por ser um radionuclídeo artificial produzido em grandes quantidades.

A ideia de utilizar o inventário radioativo para marcar o início do Antropoceno foi avaliada em detalhes por Waters et al. (2015). Os autores deste estudo avaliaram os benefícios deste cenário e concordaram que o *fallout* aparenta ser o mais razoável de todos os marcadores, baseados na presença global de radioelementos, o profundo conhecimento deste fenômeno e a concentração destes elementos em médias latitudes.

Assim, verifica-se que o registro radioativo presente nos testemunhos do Atlântico Sul funciona muito bem como um marcador estratigráfico para os testes nucleares realizados no passado, conforme idealizado por Zalasiewicz et al. (2014) para o estabelecimento de um limite do início do Antropoceno.

Apesar de esta análise ter demonstrado o uso de ^{137}Cs como um marcador histórico para o ano de 1963, também se deve considerar o tempo durante o qual este elemento servirá como marcador. A partir da meia-vida do nuclídeo, pode-se estimar que, em um cenário prospectivo positivo de desenvolvimento de técnicas analíticas para a detecção de baixíssimas atividades de ^{137}Cs , sua atividade em sedimentos continuará a ser detectada até o final do século XXI.

Em outras palavras, sua função cronológica tem tempo de vida útil, até o momento que todo o ^{137}Cs decaia para ^{137}Ba . Este estudo demonstrou a aplicação de ^{137}Cs como um marcador estratigráfico, com fácil detecção por

espectrometria gama e baixos níveis de detecção para este método, bastante útil em estudos de reconstruções ambientais de atividades antropogênicas.

Mesmo assim, outros radionuclídeos artificiais produzidos pela fissão do ^{235}U , em bombas de Pu e pelo decaimento dos produtos de fissão (ex. isótopos de Pu e ^{241}Am) podem ser utilizados como marcadores deste mesmo horizonte estratigráfico proposto para o Antropoceno. ^{239}Pu , o isótopo de Pu primariamente utilizado como material físsil em bombas de Pu, possui meia-vida de cerca de 24.000 anos, e ^{241}Am , um produto do decaimento de ^{241}Pu , meia-vida de cerca de 432 anos. Assim sendo, estes elementos apresentam algumas vantagens quando comparados com o ^{137}Cs , como meias-vidas mais longas, menor mobilidade vertical e alta reatividade (WATERS et al., 2015), mas não podem ser determinados pela análise não destrutiva da espectrometria gama.

5.6 Considerações finais

A ocorrência e distribuição espacial de ^{137}Cs foram estudados em uma série de testemunhos coletados ao longo de sistemas costeiros do Atlântico Sul com o intuito de sugerir o uso deste radionuclídeo como um marcador estratigráfico do Antropoceno, uma nova terminologia geológica baseada nas inúmeras mudanças que a civilização humana está criando nos ecossistemas ao redor do mundo. Horizontes de profundidade associados com os máximos de atividade de ^{137}Cs foram encontrados em todos os testemunhos analisados. Com uma avaliação das possíveis fontes atuais e passadas deste radioelemento, estes horizontes puderam ser associados ao *fallout* atmosférico pretérito.

O uso do MDC permitiu estimar a atividade de ^{137}Cs (a partir das atividades de ^{137}Cs nos testemunhos e do teor de água nos sedimentos) devido ao *fallout* atmosférico pretérito independentemente das características ambientais particulares de cada sistema costeiro. Sua aplicação resultou numa avaliação da distribuição espacial deste elemento ao longo da costa do Atlântico Sul. Identificou-se um padrão latitudinal nos níveis de radioatividade com um máximo em 35°S e valores menores em direção ao Equador. Isso é

consistente com as observações reportadas pela literatura internacional em relação a este padrão deposicional.

Assim, este estudo concluiu que o registro radioativo nos sedimentos da costa sul-americana do Atlântico Sul pode funcionar como uma ferramenta estratigráfica e ajudar a estabelecer limites de idade para o Antropoceno. As premissas do MDC e suas condições iniciais e de contorno sugerem o ano de 1963 para tanto, devido à presença de um marcador estratigráfico, o horizonte de máximo de ^{137}Cs .

---

6. TAXAS DE SEDIMENTAÇÃO E MODELOS DE IDADE EM TESTEMUNHOS MARINHOS QUATERNÁRIOS

6.1 Apresentação

Dentro da escala de tempo geológico, o Quaternário é o período mais recente, iniciado há 2,58 milhões de anos, sendo sua base a reversão paleomagnética Gauss-Matuyama (RIO et al., 1998), e cobre o período de glaciações do Pleistoceno e o período interglacial atual, o Holoceno. Ele tem como características mais marcantes a ciclicidade da cobertura global dos mantos e calotas de gelo e as mudanças climáticas controladas pelos ciclos de Milankovitch (WALKER, 2005).

Em outras palavras, o período representado pelo Quaternário abrange repetidos períodos glaciais intercalados com momentos diferenciados por maiores temperaturas, ou períodos interglaciais. Estas alterações são regidas por um conjunto de efeitos de variações em parâmetros orbitais da Terra descritas na teoria dos ciclos de Milankovitch (ou teoria astronômica de mudanças climáticas) (MILANKOVITCH, 1941).

Em poucas palavras, ela teoriza que variações na excentricidade orbital (diferença da órbita terrestre de uma órbita perfeitamente circular, com período de cerca de 100 mil anos), na obliquidade (ângulo entre a orientação do eixo de rotação terrestre e o plano de translação da Terra, com período de cerca de 40 mil anos) e na precessão dos equinócios (alteração da inclinação do eixo de rotação terrestre, com período de cerca de 25 mil anos) (TEIXEIRA et al., 2009) são forçantes orbitais com forte expressão sobre padrões climáticos terrestres.

Estas variações são controladas pelas forças gravitacionais do Sol, da Lua e, em menor magnitude, pelos outros planetas do Sistema Solar, e pelo fato de a Terra não ser uma esfera perfeita. As mudanças dos parâmetros orbitais da Terra influenciam diretamente na quantidade de radiação recebida pelas diferentes latitudes do globo terrestre, e foram críticas na taxa de

cobertura de gelo e neve em altas latitudes durante o Pleistoceno (IMBRIE e IMBRIE, 1980).

Uma característica das colunas sedimentares depositadas nos oceanos durante este período é a excelente preservação do registro de sedimentação (WALKER, 2005). *Proxies* paleoclimáticos de temperatura dos oceanos e volume de gelo (como, por exemplo, razões isotópicas de oxigênio e datações dendrocronológicas) são evidências de ciclos de episódios glaciais e interglaciais no registro sedimentar do Quaternário, e a escala de tempo das flutuações nestes *proxies* podem ser consideradas rápidas em comparação ao tempo geológico (LEEDER, HARRIS e KIRKBY, 1998).

Como o registro geológico do Quaternário foi bem preservado nos testemunhos marinhos, o conhecimento científico deste período contido neles é de grande importância em estudos climáticos e de alteração nos níveis dos oceanos. Assim, técnicas de avaliação de taxas de deposição de sedimentos e desenvolvimento de modelos de idade para testemunhos sedimentares nesta escala de tempo são essenciais para o desenvolvimento de estudos desta natureza.

Os maiores avanços no estudo de sedimentos quaternários, no que diz respeito aos modelos de datação de testemunhos sedimentares, vieram com o desenvolvimento do conhecimento e das técnicas de medidas de elementos radioativos após a Segunda Grande Guerra, principalmente ao longo das décadas de 50 e 60 (WALKER, 2005; CATUNEANU, 2006).

Técnicas de datação absolutas, envolvendo radionuclídeos como ^{14}C , K-Ar e elementos das séries de decaimento de radionuclídeos naturais, e relativas, com o uso de assinaturas isotópicas e a bioestratigrafia, são essenciais para estudos de Cronoestratigrafia, Paleontologia e Arqueologia. A diferenciação entre datação absoluta e relativa está no critério de determinação da idade do objeto de estudo ou evento: os métodos relativos apenas determinam a ordem de eventos pretéritos e, com base nessa sucessão de eventos, avaliam a idade relativa a um evento de idade conhecida (WALKER, 2005).

Já a datação absoluta (ou cronometria) determina a idade ou um intervalo de idades específico para o material estudado. Em modelos de idade baseados em radionuclídeos, deve-se sempre atentar para o limite temporal de

cada método, que é determinado pela meia-vida do elemento utilizado e pelo limite de detecção do método de análise. Por exemplo, a meia-vida do ^{14}C é de cerca de 5 mil anos, o que significa que, se a medida deste elemento foi realizada por espectrometria de massa, a técnica de datação por este elemento será confiável para amostras de até 50 a 75 mil anos de idade, pois além disso o decaimento radioativo fará com que os níveis de ^{14}C não sejam mais detectáveis por esta técnica (TAYLOR, 2012).

Os estudos de Reyss, Yokoyama e Duplessy (1978) e Kadko (1980) fizeram uso do radionuclídeo ^{230}Th e estabeleceram com sucesso taxas de sedimentação milenares para os Oceanos Atlântico Equatorial e Atlântico Sul, respectivamente, através da medida deste elemento por espectrometria gama.

Kienast et al. (2007) estudaram, com técnicas de normalização estatísticas sobre os perfis verticais de ^{230}Th , taxas de sedimentação e o fluxo de partículas em testemunhos do Oceano Pacífico Equatorial, e verificaram, por esta análise, a possibilidade de uso desta técnica para avaliar mudanças na intensidade dos processos sedimentares entre períodos glaciais e interglaciais.

Ainda no caso do uso de radionuclídeos das séries naturais de decaimento, é importante avaliar, quando relevante ao estudo, efeitos de diagênese, bioturbação, transporte horizontal de sedimentos anterior à deposição e entrada de materiais alóctones no sinal do modelo de idade utilizado (SMART e FRANCES, 1991). Estes processos podem ser possíveis fontes de erro, pois podem apontar para um desequilíbrio isotópico e demandar, nestes casos, calibrações com fatores de correção e normalizações (HEIJNIS, 1995).

Este capítulo está inserido dentro do contexto descrito acima, e tratou da determinação de taxas de sedimentação e o desenvolvimento e validação de um modelo de idade com base no comportamento geoquímico de um radionuclídeo natural da série de decaimento do ^{238}U , o ^{230}Th . Este estudo foi realizado com um conjunto de testemunhos coletados no Oceano Atlântico Sul e no Mar da China.

6.2 Áreas de estudo

Os testemunhos utilizados para o desenvolvimento e aplicação de um modelo de taxa de sedimentação e idade com ^{230}Th foram coletados em dois compartimentos oceânicos: a Margem Continental Sudeste do Brasil, no Oceano Atlântico Sul, e a Margem Continental do Mar do Sul da China.

6.2.1 Margem Continental Sudeste do Brasil

A Margem Continental Sudeste do Brasil (MCSB) (Figura 19), região do Oceano Atlântico ao largo sudeste do Brasil, tem uma área de aproximadamente 320.000 km², sua plataforma tem uma largura que varia entre 73 e 231 km e a sua quebra está entre 120 e 180 m de profundidade (FIGUEIRA et al., 2006). Essa região é limitada, geograficamente, pela Ilha de Cabo Frio ao norte, no estado do Rio de Janeiro, e pelo Cabo de Santa Marta Grande ao sul, em Santa Catarina.

O padrão sedimentar quaternário da área de estudo, observado em estudos estratigráficos, é caracterizado pela ocorrência de eventos de oscilação do nível marinho, com eventos transgressivos e regressivos (os chamados Eventos Cananéia e Santos) que controlaram a formação dos sistemas costeiros do litoral paulista e modelaram a sedimentação e a fisiografia da plataforma e do talude continental paulista (SUGUIO e MARTIN, 1978; SOUZA, 1995).

A sedimentação atual na região é fortemente controlada pelo regime hidrodinâmico de massas de água (MAHIQUES et al., 2004). De acordo com estes autores, isso ocorre devido à ausência de fontes fluviais locais, e a circulação oceânica, em particular o fluxo da Corrente do Brasil, domina a distribuição de sedimentos na área norte da região de estudo. Este cenário é corroborado pelo estudo de Nagai et al. (2014), que estudaram a composição mineralógica e o conteúdo de radionuclídeos naturais e artificiais da região e verificaram o controle hidrodinâmico exercido pela Corrente do Brasil e pela Corrente Costeira do Brasil.

Apesar de não haver drenagens continentais expressivas na região costeira ao largo da Margem Continental Sudeste do Brasil, um conjunto de desembocaduras de sistemas costeiros participa significativamente como fontes locais de contribuição de material terrígeno (TESSLER, 2001), assim como a Corrente Costeira do Brasil, que traz sedimentos terrígenos alóctones provenientes do Estuário do Rio da Prata (NAGAI et al., 2014).

Em relação aos níveis de radioatividade, esta área é caracterizada por baixos níveis de radionuclídeos artificiais, cuja proveniência é devida ao *fallout* atmosférico (SAITO et al., 2001), assunto este que foi tratado no capítulo 5 deste trabalho.

Esta região do Atlântico Sul já foi trabalhada em estudos de reconstrução paleoceanográfica, com o desenvolvimento de modelos de idade para o Quaternário a partir de métodos de datação relativa. Os trabalhos de Nishizaki (2013), Toledo et al. (2016) e Santos et al. (2017) trabalharam com reconstruções ambientais de eventos pleistocênicos cuja base cronológica foram modelos de idade baseados no registro marinho de isótopos de oxigênio e em princípios bioestratigráficos.

6.2.2 Margem Continental do Mar do Sul da China

A segunda região de estudo foi a Margem Continental do Mar do Sul da China (MMSC) (Figura 20). O Mar da China, parte do Oceano Pacífico localizada ao sudeste do continente asiático, possui uma área de cerca de 3,5 milhões de km², com profundidades até cerca de 6000 m e grande riqueza de feições tectônicas que remontam à evolução geológica da região (INTERNATIONAL HYDROGRAPHIC ORGANIZATION, 1953; HWANG, 1999).

Figura 20. Margem Continental do Mar do Sul da China (MMSC).

A formação do Mar do Sul da China foi iniciada há cerca de 33 milhões de anos (CIENTISTAS DA EXPEDIÇÃO 349, 2014) após uma série de eventos tectônicos, envolvendo o desenvolvimento de um sistema de riftes, o

espalhamento do fundo oceânico local e a subsidência do Mar da China (TAYLOR e HAYES, 1980). Desde a finalização do processo de formação do Mar do Sul da China atual, a sua bacia oceânica tornou-se um importante sumidouro de sedimentos terrígenos provenientes das descargas fluviais dos grandes rios locais (WANG et al., 1999), como o Rio das Pérolas (LIU et al., 2017), o Rio Mekong e o Rio Vermelho (CLIFT, BLUSZTAJN e NGUYEN, 2006). Assim, esta região possui taxas de sedimentação elevadas e constantes (LIN et al., 2006) e consequente boa preservação de estruturas de carbonato, o que possibilita o uso de seus registros sedimentares em estudos climáticos e paleoceanográficos, como o IODP (*Integrated Ocean Drilling Project*).

Estudos paleoceanográficos, nesta região, demonstraram que mudanças climáticas glaciais e interglaciais são principalmente controladas por variações pelo Sistema de Monções Leste (mecanismo de interação oceano-atmosfera da região) e flutuações relativas do nível do mar no Mar do Sul da China (ZHAO et al., 2006; ZHANG, JI, et al., 2009). Além disso, a natureza semifechada desta bacia é determinante para a grande sensibilidade observada de seus parâmetros ambientais em resposta a forçantes externas (WANG, LI e TIAN, 2014) e, portanto, sinais climáticos entre ciclos glaciais e interglaciais são claros nos registros sedimentares desta bacia marginal.

Apesar da existência de muitos estudos paleoceanográficos e paleoclimáticos no Mar do Sul da China, a maioria restringe-se a avaliar condições das águas superficiais em sedimentos recuperados na plataforma e talude continental, o que deixa uma lacuna no conhecimento de processos no mar profundo.

6.3 Conjunto amostral

Os testemunhos utilizados nesta etapa do trabalho foram coletados pela Petrobrás (MCSB) e pelo IODP (MMSC). As colunas foram analisadas em subamostras de 5 cm (MCSB) e 2 cm (MMSC) de intervalo e submetidas aos procedimentos analíticos descritos no capítulo 3, sendo os radionuclídeos de interesse ^{230}Th , ^{232}Th e ^{234}U . A Figura 19 e a Figura 20 apresentam a localização geográfica dos locais de coleta das colunas sedimentares

analisadas, e a Tabela 10 contém as informações descritivas de todos os testemunhos envolvidos.

Tabela 10. Descrição dos testemunhos coletados nas Margens Continentais Sudeste do Brasil (MCSB) e do Mar do Sul da China (MMSC).

Região	Testemunho	Latitude	Longitude	Profundidade de coleta (m)	Ano de amostragem
MCSB	KF16	25° 01' S	43° 33' W	1938	2006
	KF18	25° 12' S	42° 37' W	2220	2006
MMSC	U1431	15° 23' N	117° 00' E	4240	2014
	U1432	18° 21' N	116° 23' E	3829	2014

Deve-se considerar que, para todas as amostras dos testemunhos descritos na tabela acima, apenas a fração fina dos sedimentos (grãos com diâmetro inferior a 63 µm) foi cedida para as análises radiométricas, já que estes testemunhos foram previamente utilizados em outros estudos e a logística dos respectivos projetos resultou em esta fração ser a disponibilizada. Dessa forma, todas as atividades que serão discutidas neste capítulo são atividades por unidade de massa na fração fina.

6.4 Modelo de sedimentação com ^{230}Th em excesso

A cronologia com ^{230}Th é uma medida de datação direta que busca avaliar taxas de sedimentação milenares e obter, com esta medida, um modelo de idade de sedimentos depositados dentro de uma escala de tempo de até 700 mil anos antes do presente (AP). Este elemento é próprio para tanto devido à sua meia-vida longa de 75 mil anos e por ser naturalmente abundante em sedimentos. O princípio deste método parte da diferença de comportamento ambiental de ^{230}Th e de seu nuclídeo-pai, ^{234}U (REYSS, YOKOYAMA e DUPLESSY, 1978), conforme explicado no item 1.5.4, e é baseado nos trabalhos de Bacon (1984) e François et al. (2004).

Ainda de acordo com estes autores, a água do mar contém U proveniente do intemperismo de rochas e entra nos oceanos principalmente através dos rios e descargas de águas subterrâneas. O comportamento deste elemento é conservativo nos oceanos devido ao seu elevado tempo de residência (cerca de 500 ka) (DUNK, MILLS e JENKINS, 2002).

Na água do mar, U está presente principalmente na fração dissolvida, na forma de complexos de $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_x$ (carbonato de uranila) (estado U^{6+}). Eventualmente, ^{234}U decai para ^{230}Th e, por Th ser um elemento insolúvel, é rapidamente transferido à fração particulada da água do mar e posteriormente transferido ao sedimento por adsorção nas partículas em deposição.

Assim sendo, em relação ao conteúdo total de ^{230}Th presente em sedimento recém-depositado ($^{230}\text{Th}_{\text{tot}}$), há um excesso de ^{230}Th ($^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$, ou ^{230}Th em excesso) proveniente da coluna de água que não é suportado pela sua produção através do decaimento de ^{234}U proveniente de: (i) da matriz sedimentar, a qual não sofre interações com água do mar ($^{230}\text{Th}_{\text{det}}$, de origem detrítica), e (ii) da redução de $^{234}\text{U}^{6+}$ (solúvel) para $^{234}\text{U}^{4+}$ (insolúvel) na interface sedimento-água e do decaimento do ^{234}U presente na água intersticial (KLINKHAMMER e PALMER, 1991) ($^{230}\text{Th}_{\text{aut}}$, de origem autigênica) [29].

$$\begin{aligned} ^{230}\text{Th}_{\text{tot}} &= ^{230}\text{Th}_{\text{xs}} + ^{230}\text{Th}_{\text{det}} + ^{230}\text{Th}_{\text{aut}} \Rightarrow \\ \Rightarrow ^{230}\text{Th}_{\text{xs}} &= ^{230}\text{Th}_{\text{tot}} - ^{230}\text{Th}_{\text{det}} - ^{230}\text{Th}_{\text{aut}} \end{aligned} \quad [29]$$

Para estimar $^{230}\text{Th}_{\text{det}}$ e $^{230}\text{Th}_{\text{aut}}$, assume-se que eles estão em equilíbrio secular com $^{238}\text{U}_{\text{det}}$ e $^{238}\text{U}_{\text{aut}}$, respectivamente. Diferentemente de ^{230}Th , que é um dos produtos de decaimento da série do ^{238}U , o radionuclídeo-pai ^{238}U pode ser dividido em apenas dois compartimentos: (i) sua fração detrítica ($^{238}\text{U}_{\text{det}}$), que pode ser estimada através da atividade de um radionuclídeo encontrado apenas na fração litogênica do sedimento (como ^{232}Th) [30], e (ii) sua fração autigênica ($^{238}\text{U}_{\text{aut}}$), que é derivada da água do mar e pode ser estimada pela atividade de ^{238}U (em equilíbrio com ^{234}U na água do mar), um outro isótopo de U que sofre os mesmos processos autigênicos que ^{234}U [31].

$$^{230}\text{Th}_{\text{det}} = ^{238}\text{U}_{\text{det}} = \left(\frac{^{238}\text{U}}{^{232}\text{Th}} \right)_{\text{det}} ^{232}\text{Th} \quad [30]$$

$$\begin{aligned} ^{230}\text{Th}_{\text{aut}} &= ^{238}\text{U}_{\text{aut}} = ^{238}\text{U}_{\text{tot}} - ^{238}\text{U}_{\text{det}} = \\ &= \left[\left(\frac{^{234}\text{U}}{^{238}\text{U}} \right)_{\text{sw}} ^{238}\text{U} - ^{238}\text{U}_{\text{det}} \right] (1 - e^{-\lambda t_{\text{DR}}}) = \end{aligned} \quad [31]$$

$$= [^{234}\text{U} - ^{238}\text{U}_{det}](1 - e^{-\lambda t_{DR}})$$

Em que:

$\left(\frac{^{238}\text{U}}{^{232}\text{Th}}\right)_{det}$ = razão $^{238}\text{U}_{det}/^{232}\text{Th}_{det}$ [= 0,6 para o Oceano Atlântico e = 0,7 para

Oceano Pacífico (HENDERSON e ANDERSON, 2003)];

^{232}Th = atividade de ^{232}Th ;

^{234}U = atividade de ^{234}U ;

$\left(\frac{^{234}\text{U}}{^{238}\text{U}}\right)_{sw}$ = razão $^{234}\text{U}_{aut}/^{238}\text{U}_{aut}$ na água do mar, considerada constante devido

ao comportamento conservativo de U [= 1,145, valor com pouca variação nos últimos 360 ka (HENDERSON, 2002)];

λ = constante de decaimento radioativo do ^{230}Th (em ka^{-1});

t_{DR} = idade desde a precipitação de U_{aut} na camada sedimentar, proveniente dos dados de datação relativa (explicados no item 6.5).

Substituindo [30] e [31] em [29], obtém-se uma fórmula para estimar a atividade de $^{230}\text{Th}_{xs}$ a partir das atividades dos radionuclídeos medidos [32].

$$\begin{aligned} ^{230}\text{Th}_{xs} = & ^{230}\text{Th}_{tot} - \left(\frac{^{238}\text{U}}{^{232}\text{Th}}\right)_{det} ^{232}\text{Th} \\ & - \left[\left(\frac{^{234}\text{U}}{^{238}\text{U}}\right)_{sw} ^{238}\text{U} - \left(\frac{^{238}\text{U}}{^{232}\text{Th}}\right)_{det} ^{232}\text{Th} \right] (1 - e^{-\lambda t_{DR}}) \end{aligned} \quad [32]$$

Este ^{230}Th em excesso é justamente a fração adsorvida nas partículas após o decaimento de ^{234}U na coluna de água. Sua deposição é estritamente dependente da sedimentação e varia ao longo do tempo em função de seu decaimento natural, de acordo com sua meia-vida.

Com uma forma de cálculo similar à do modelo CIC para $^{210}\text{Pb}_{xs}$, [33] representa matematicamente a deposição de $^{230}\text{Th}_{xs}$ e calcula o valor médio de taxa de sedimentação. Considerando este valor de sedimentação válido para uma dada secção n dentro do testemunho, o modelo de idade pode ser calculado por [34].

$$a(z) = (a_0)_n e^{-\frac{\lambda}{\nu_n} z} \Rightarrow \nu = -\frac{\lambda}{\frac{\partial}{\partial z} \ln[a(z)]} \quad [33]$$

$$t_n = t_{n-1} \frac{\delta z}{\nu_n} \quad [34]$$

Em que:

$a(z)$ = perfil vertical da atividade de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$, estimada com [32] (em Bq kg^{-1});

a_0 = atividade inicial de ^{230}Th em $z = 0$ (em Bq kg^{-1});

ν = taxa de sedimentação média (em cm ka^{-1});

n = secção do testemunho de tamanho $\delta z = z_2 - z_1$, com valores específicos de a_0 e ν e delimitada pelas profundidades z_1 e z_2 ;

z = profundidade (em cm);

t = idade da amostra de sedimento em z (em ka).

Portanto, períodos com taxas de sedimentação distintas (seja qual foi a causa desta mudança) em um mesmo testemunho podem ser tratados, dentro do perfil vertical de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$, como secções contínuas dentro do mesmo perfil, com coeficientes a_0 e ν distintos, e isso justifica a diferença do formato de [33] quando comparada com a equação equivalente para o modelo CIC de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ [20]. Esta formulação é especialmente interessante por aumentar a resolução sobre a taxa de sedimentação do testemunho sem precisar avaliar premissas como a taxa de suprimento de isótopos de Th e U para os sedimentos (caso do modelo CRS). Em suma, o emprego das equações acima relacionadas está limitado à avaliação das seguintes premissas sobre a atividade de ^{230}Th registrada nos sedimentos:

- i. A atividade inicial de ^{230}Th permanece constante dentro do intervalo n calculado;
- ii. Há uma fonte de suprimento de ^{230}Th tanto para o suportado pelo sedimento (detritico) quanto para o ^{230}Th em excesso e o ^{234}U proveniente da coluna de água.
- iii. A taxa de sedimentação é constante dentro do intervalo n calculado.

Finalmente, os resultados do modelo de idade obtidos com ^{230}Th em excesso calculado devem ser comparados com outros modelos de idade gerados a partir de outros *proxies*, como registros de isótopos de oxigênio. Esta comparação funciona como uma forma de validar e calibrar o modelo de idade gerado, com outros métodos já amplamente validados por diversos estudos de casos e utilizados há décadas pela comunidade científica global.

6.5 Métodos de datação relativa

Métodos de datação relativa foram utilizados para estimar os valores de $^{230}\text{Th}_{\text{aut}}$ e para validar o modelo de idade com ^{230}Th em excesso.

6.5.1 Registro de isótopos estáveis de oxigênio

A escala de Estágios Isotópicos Marinhos (*Marine Isotope Scale* - MIS) foi desenvolvida pela pesquisa de Cesare Emiliani na década de 1950 para expressar datações dentro do Quaternário (2,6 milhões de anos AP), estas baseadas em dados isotópicos de alta resolução derivados de restos de foraminíferos e polens em sedimentos marinhos de testemunhos (WRIGHT, 2000).

O princípio desta forma de datação relativa é o fato de que a razão entre os isótopos ^{16}O e ^{18}O na calcita, principal componente das carapaças e outras estruturas de organismos marinhos, varia de acordo com a temperatura da água na qual a calcita foi formada (EPSTEIN e MAYEDA, 1953). Assim, estes estágios isotópicos são, em outras palavras, uma sequência de períodos quentes (interglaciais) e frios (glaciais) deduzidos a partir dos dados da relação entre estes isótopos de oxigênio ($\delta^{18}\text{O}$) enquanto *proxy* de temperatura da água do mar.

Espécimes de testas de foraminíferos bentônicos (*Cibicidoides wuellerstorfi*) foram separados das amostras de sedimentos dos testemunhos KF16 e KF18, e as medidas de isótopos estáveis de oxigênio deste material foram realizadas no Laboratório de Análise de Isótopos Estáveis da Universidade Autônoma de Barcelona por espectrometria de massa de razão isotópica (*isotope ratio mass spectrometry* - IRMS) (Finnigan, modelo MAT252)

com dispositivo para carbonato e calibração com o padrão internacional VPDB (*Vienna PeeDee Belemnite*).

O modelo de idade gerado por este método é baseado na correlação entre o registro de $\delta^{18}\text{O}$ e a curva de referência LR04 (LISIECKI e RAYMO, 2005), que é a curva padrão para obtenção de idades por este método. O ajuste do registro de $\delta^{18}\text{O}$ foi realizado por meio de um programa de análise de séries temporais (AnalySeries, versão 2.0.4.2). Todo este método seguiu o descrito em Nishizaki (2013) e Pivel et al. (2013) e foi aplicado nos testemunhos KF16 e KF18 (Figura 21) pelo Laboratório de Paleoceanografia do Atlântico Sul (LaPAS) do Instituto Oceanográfico da USP (IO-USP), conforme o publicado em Ferreira et al. (2015).

Figura 21. Comparação entre o registro de isótopos estáveis de oxigênio em foraminíferos ($\delta^{18}\text{O}$, em ‰) e a curva LR04 dentro da escala de MIS. (a) KF16, (b) KF18.

Os Estágios Isotópicos Marinhos podem ser identificados claramente no registro de $\delta^{18}\text{O}$ de ambos os testemunhos, consistindo de uma alternância

entre estágios glaciais e interglaciais (Figura 21). A escala de tempo da secção aqui estudada com os radionuclídeos naturais do testemunho KF16 abrange os cinco estágios isotópicos mais recentes (MIS 1 a MIS 5) (últimos 100 mil anos); a do KF18, os 13 mais recentes (MIS 1 a MIS 13) (últimos 500 mil anos). Os maiores valores de $\delta^{18}\text{O}$ correspondem a períodos glaciais (MIS 2-3-4, 6, 8, 10 e 12) e os menores a períodos interglaciais (MIS 1, 5, 7, 9, 11 e 13).

6.5.2 Bioestratigrafia e magnetoestratigrafia

Assim como a datação pelo registro de isótopos estáveis de oxigênio, a bioestratigrafia e a magnetoestratigrafia são formas de datação relativa, e são baseadas no princípio da equivalência de idade, que é a correlação entre horizontes estratigráficos de idade comparável (WALKER, 2005) fundamentada no Princípio de Superposição do pesquisador Nicolas Steno de 1669 (um determinado estrato é encontrado sempre na mesma ordem de superposição). A base da determinação de idade para uma camada ou unidade bioestratigráfica (a biozona) é a sua assembleia fóssil (ZERFASS e ANDRADE, 2008).

Seguindo o Princípio de Sucessão Faunística (validado pelos diversos estudos de William Smith no início do século XIX), neste tipo de datação busca-se demonstrar que, em uma determinada secção de um testemunho, seu conjunto de fósseis de espécies caracterizadas pela sua abundância ao redor do globo terrestre (para melhor equivalência entre testemunhos de diferentes ambientes) e de tempo de existência curto (quanto mais curto, maior a precisão da determinação da idade) representa o mesmo período de tempo que em uma secção de outro testemunho (ZERFASS e ANDRADE, 2008).

Assim, uma biozona é individualizada como o intervalo entre o primeiro aparecimento (PA) de uma ou mais espécies e seu último aparecimento (UA). Correlações estratigráficas desta natureza podem ser realizadas tanto com uma única espécie quanto com uma assembleia de espécies fósseis, sendo que o segundo caso tende a oferecer maior confiabilidade.

Neste estudo, a bioestratigrafia dos testemunhos da MMSC foi baseada em espécies de foraminíferos planctônicos, nanofósseis calcários e radiolários característicos do Quaternário Tardio. Estes dados foram retirados dos relatórios das expedições de coleta de ambos os testemunhos (U1431 e

U1432) (LI et al., 2015a; LI et al., 2015b) (Tabela 11). Os eventos de primeiro e último aparecimento das espécies identificadas foram datados de acordo com Martini (1971), Wang e Abelman (1999) e Wade et al. (2011), referências para as espécies de interesse e para a área de estudo.

Tabela 11. Eventos bioestratigráficos registrados para os testemunhos U1431 e U1432.

Test.	Tipo	Preservação	Evento	Prof. (cm)	Idade (ka)
U1431	Nanofósseis calcários	Moderada a boa	UA <i>Gephyrocapsa</i> spp.	3208	610
			PA <i>Gephyrocapsa</i> spp.	5090	1040
	Radiolários	Boa	PA <i>Buccinosphaera invaginata</i>	316	210
			PA <i>Collosphaera tuberosa</i>	1215	420
U1432	Foraminíferos planctônicos	Pobre a boa	UA <i>Globigerinoides ruber</i>	1410	120
			PA <i>Globigerinoides ruber</i>	4601	400
			UA <i>Globorotalia tosaensis</i>	7059	610
	Nanofósseis calcários	Moderada a boa	PA <i>Emiliana huxleyi</i>	3641	290
			UA <i>Pseudoemiliana lacunosa</i>	6211	440
			UA <i>Gephyrocapsa</i> spp.	8615	610

Já uma datação magnetoestratigráfica avalia as variações nas propriedades magnéticas em uma sequência de sedimentos depositados, e envolve a análise, em particular, da polaridade de uma amostra. Isso porque o conteúdo de minerais ferromagnéticos do sedimento reflete diretamente a direção do campo magnético terrestre, e as reversões na polaridade do campo magnético da Terra são fenômenos globais com idades muito bem estabelecidas, o que permite ampla correlação entre diferentes sequências sedimentares (OPDYKE e CHANNELL, 1996).

Ao analisar a magnetização remanente característica (ChRM) das amostras de uma sequência sedimentar (no caso dos sedimentos, os minerais ferromagnéticos presentes na coluna de água adquirem a direção do campo magnético da Terra durante sua autigênese/deposição) a partir da

magnetização remanente natural (NRM) medida (que é o estado magnético natural dos sedimentos), a sequência magnetoestratigráfica do testemunho estudado é então correlacionada com a Escala de Tempo de Polaridade Geomagnética (GTPS), sequência de horizontes com eventos de reversão de polaridade datados (WALKER, 2005). Esta escala é dividida em unidades (os chrons) caracterizadas pela sua polaridade magnética (normal ou reversa).

Neste estudo, a magnetoestratigrafia dos testemunhos da MMSC foi realizada durante a expedição de coleta dos testemunhos, e os dados aqui utilizados foram fornecidos pelos relatórios de coleta das expedições (LI et al., 2015a; LI et al., 2015b).

Os testemunhos foram coletados com testemunhador do tipo APC (*advanced piston corer*) com barrilete de material não magnético. As colunas sedimentares coletadas foram desmagnetizadas com um desmagnetizador de campo alternado (AFD) (ASC Scientific) com estágios de 5, 10, 15 e 20 mT e então medidas com um magnetômetro de rochas supercondutor (SRM) (2G Enterprises). Os resultados foram analisados através da construção e interpretação de diagramas vetoriais de tipo Zijderveld e a direção da ChRM foi determinada utilizando análise de componentes principais (PCA), segundo as diretrizes propostas por (KIRSCHVINK, 1980).

As análises acima descritas identificaram a reversão de Brunhes/Matuyama (B/M) (evento mais recente de reversão magnética terrestre dentro da GTPS, há cerca de 780.000 anos AP, que marca do início do Pleistoceno Médio) em $z = 4600$ cm no testemunho U1431 e em $z = 10500$ cm no testemunho U1432. Assim, com base nos dados bioestratigráficos e magnetoestratigráficos acima apresentados, pode-se construir um modelo de idades para os testemunhos U1431 e U1432 (Figura 22), com um ajuste polinomial dos valores do conjunto de resultados.

Figura 22. Modelos de idade com base em dados bio/magnetoestratigráficos para o Pleistoceno Médio. (a) U1431, (b) U1432.

6.6 Resultados e discussão

A Tabela 12 apresenta os valores do intervalo de variação para as atividades. Por esta tabela, observou-se que todos os valores de atividade se apresentaram acima das AMDs determinadas para o método (Tabela 3), exceto para a atividade de ^{230}Th dos testemunhos KF16 e U1431. Em relação aos isótopos de Th, verificou-se que os valores de atividade de ^{230}Th são 2-3 vezes mais elevados que os de ^{232}Th , esperado devido à sua meia-vida muito menor (atividade é proporcional à constante de decaimento radioativo).

Tabela 12. Intervalo de variação das atividades de ^{230}Th , ^{232}Th e ^{234}U (em Bq kg^{-1}) nos testemunhos da MCSB e da MMSC.

Nuclídeo	Testemunho	Amplitude das atividades (Bq kg^{-1})
^{230}Th	KF16	< AMD - 71,71
	KF18	24,49 - 177,86
	U1431	< AMD - 175,28
	U1432	3,90 - 126,19
^{232}Th	KF16	26,78 - 79,47
	KF18	25,78 - 75,22
	U1431	3,81 - 55,39
	U1432	51,09 - 81,79
^{234}U	KF16	6,08 - 56,38
	KF18	12,92 - 65,38
	U1431	13,28 - 60,76
	U1432	32,98 - 67,78

Especificamente sobre a MCSB, as atividades de ^{232}Th encontradas neste estudo são maiores que as determinadas por Cordero (2010) em sedimentos atuais ($10,63 - 49,45 \text{ Bq kg}^{-1}$), e esta diferença pode ser explicada pelo fato de as análises radiométricas aqui realizadas terem sido feitas apenas na fração fina, o que eleva as atividades por unidade de massa medidas em comparação com o sedimento bruto (que contém areias). Pelo mesmo motivo, os valores de ^{230}Th e ^{234}U também são superiores aos reportados no testemunho estudado por Godoy et al. (2006) na Bacia de Campos (a 2450 m de profundidade) (Tabela 13), numa área ao norte de Cabo Frio.

A forte presença de lamas pelágicas na região de coleta dos testemunhos (com teores de 40-50% de argila) (FRENZ et al., 2003) favorece a deposição e acúmulo de radionuclídeos nos sedimentos conforme discutido no item 1.5. Além disso, a região de Cabo Frio é conhecida como uma área de ressurgência na margem oeste do Atlântico Sul, com altos níveis de produtividade primária e deposição de matéria orgânica (MAHIQUES et al., 2004), e Th é um elemento com forte associação com sedimentos de origem detrítica e à matéria orgânica (BERNAT e CHURCH, 1988).

Os testemunhos coletados na MMSC também possuem altos níveis de radionuclídeos, e isso pode estar associado a dois fatores (além do mais imediato, que é atividade medida estar restrita a fração fina). Primeiramente, a presença de grandes descargas fluviais na região, cuja carga sedimentar

detrítica influencia a área dos testemunhos, já que Li et al. (2015a) reportaram mistura de fontes terrígenas e marinhas pelo estudo da razão C/N para o testemunho U1431. Tang et al. (2011) encontraram níveis muito elevados de ^{232}Th em testemunhos coletados no delta do rio Pérola (Tabela 13), o que também corrobora esta hipótese.

Outro ponto é o domínio de sedimentos lamosos na área de estudo, de oceano profundo, com altos níveis de argilas e minerais como feldspatos (LI et al., 2015a,b), características muito favoráveis ao acúmulo de isótopos de U e Th. Altos níveis de ^{230}Th , ^{232}Th e ^{234}U também foram detectados na mesma área de oceano profundo do Mar do Sul da China por (WANG, 2003) (Tabela 13).

Tabela 13. Comparação de valores de atividades (em Bq kg^{-1}) de radionuclídeos naturais em sedimentos dos Oceanos Atlântico e Pacífico.

Oceano	Local	Trabalho	Atividades (Bq kg^{-1})		
			^{230}Th	^{232}Th	^{234}U
Atlântico	Margem sudeste do Brasil	Este ¹	10,01 - 177,86	25,78 - 79,47	6,08 - 56,38
		[1]	38,7 - 105,0	²	17,8 - 41,7
	Planalto das Bermudas	[2]	61,01 - 113,36	29,81 - 50,93	14,80 - 35,49
Pacífico	Mar do Sul da China	Este ¹	3,90 - 175,28	3,81 - 81,79	13,28 - 67,78
		[3]	37,57 - 115,52	19,50 - 53,84	21,67 - 34,84
	Delta do rio Pérola	[4]	²	126,69 - 234,26	²
	Mar Leste da China	[5]	14,50 - 34,01	²	15,36 - 29,71
	Margem oeste da Austrália	[6] ¹	31,17 - 126,53	²	²
	Pacífico equatorial oeste	[7]	43,84 - 77,68	3,00 - 6,67	²

¹ Atividade medida apenas na fração fina.

² Valor não determinado/especificado pelo trabalho referenciado.

[1] (GODOY et al., 2006).

[2] (SUMAN e BACON, 1989).

[3] (WANG, 2003).

[4] (TANG et al., 2011)

[5] (YAMADA e AONO, 2006).

[6] (VEEH, MCCORKLE e HEGGIE, 2000).

[7] (PICHAT et al., 2004).

Como a determinação dos radionuclídeos foi realizada apenas na fração fina dos sedimentos, os valores apresentados na Tabela 13 permitem observar que todos os níveis aqui medidos são maiores que os citados. Há influência da distribuição de tamanho de grãos sobre as atividades, com os valores maiores, numa mesma região, correspondentes justamente aos resultados referentes à fração acumuladora de metais. Dessa forma, a análise na fração < 63 µm teve o vantajoso efeito de remover a influência da distribuição granulométrica sobre as atividades medidas (Figura 23).

Com os níveis dos três radionuclídeos naturais e o método de cálculo descrito no item 6.4, os perfis de atividade de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ foram calculados (Figura 23a). Observa-se tendência de diminuição das atividades com o aumento da profundidade (devido ao decaimento desta fração de ^{230}Th , a qual não tem fonte após a deposição do sedimento) em todos os testemunhos, com a presença de aumento em algumas secções, registro de alguma mudança local em alguma propriedade geológica no período correspondente à deposição da camada em questão (ex. 680 cm em KF16, 1368 cm em U1431).

Figura 23. Perfis verticais de atividade de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ (em Bq kg^{-2}) (a) e perfis linearizados (b) para os testemunhos da MCSB e MMSC.

O cálculo da taxa de sedimentação por este método parte do princípio teórico do registro sedimentar do decaimento exponencial de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$. Assim, conforme [33], que lineariza este decaimento, as curvas de atividades foram linearizadas com uma transformação $\ln$ (Figura 23b) e as idades foram calculadas com [34]. A seguir, a Figura 24 apresenta a comparação dos

resultados dos modelos de idade de ^{230}Th em excesso com os dos métodos de datação relativa (isótopos estáveis de oxigênio para os testemunhos da MCSB e bio/magnetoestratigrafia para os da MMSC).

Figura 24. Comparação dos modelos de idade de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ com os métodos de datação relativa, e respectivos intervalos de valores dos desvios relativos entre as idades calculadas (Δ_{idades}). (a) KF16, (b) KF18, (c) U1431, (d) U1432.

Os desvios relativos (porcentagem da diferença entre as idades dos modelos em relação à idade do testemunho analisado) entre as idades calculadas pelo método radiométrico e as datações relativas variou entre 0 e 14% para todo o conjunto amostral analisado, indicando que o método estimou satisfatoriamente as idades das amostras.

A qualidade da intercomparação dos modelos de idade dos testemunhos da MCSB está intimamente ligada à excelente resolução das idades derivadas do registro de isótopos estáveis de oxigênio já que, nos testemunhos com resultados de bio/magnetoestratigrafia, o modelo de idade de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ está limitado a uma secção pequena quando comparado aos dados estratigráficos. Este fato certamente limita a qualidade da calibração do modelo de idade nos testemunhos da MMSC, tendo o testemunho U1431 apresentado os maiores desvios relativos (máximo de 14%).

Antes de se apresentar os resultados quantitativos de taxa de sedimentação, a observação dos gráficos de modelo de idade permite avaliar qualitativamente o comportamento da taxa de sedimentação ao longo do tempo analisado, e notam-se dois tipos de comportamento em relação a esta variável. Os gráficos dos testemunhos KF18 e U1431 mostraram variações na taxa de sedimentação em alguns setores dos perfis estudados, o que justifica a necessidade da divisão das curvas de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ apresentada na Figura 23b.

Por outro lado, verifica-se que os testemunhos KF16 e U1432 apresentam bastante linearidade nos modelos de idade, o que implicaria na ausência de variações significativas na taxa de sedimentação. Esta mesma conclusão pode ser obtida ao verificar o perfil vertical de $\ln ^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ para o testemunho U1432, mas não para KF16, cujo perfil de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ foi dividido em três secções. Para este caso, deve-se ponderar sobre as características deposicionais de ^{230}Th .

Apesar da linearidade observada nos perfis verticais de $\ln ^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ apontar para homogeneidade de sedimentação, o espalhamento dos pontos dentro de uma mesma secção e a (muitas vezes brusca) mudança nos valores de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ entre secções diferentes de um mesmo testemunho sugere variação da concentração de deposição inicial de ^{230}Th . Este caso invalidaria a premissa i do modelo de sedimentação com ^{230}Th em excesso, mesmo sendo U um elemento conservativo e o tempo de residência de Th na coluna de água (cerca

de 100 anos) (KU, 1976) ser muito inferior à escala dos processos sedimentares aqui estudados.

Então, este fenómeno de brusca mudança no valor de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ em um curto intervalo de tempo em comparação à escala de tempo analisada pode ser explicado por outros fatores, como variações na taxa de sedimentação e influências de ciclos orbitais na deposição dos radionuclídeos. Cada um destes pontos será tratado a seguir.

i. Variações na taxa de sedimentação

A partir das equações de reta ($r > 0,60$ e $p < 0,05$) de ajuste de $\ln ^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ nas diferentes secções dos testemunhos, as taxas de sedimentação puderam ser estimadas e os resultados estão apresentados na Tabela 14.

Tabela 14. Taxas de sedimentação (em cm ka^{-1}) nos testemunhos da MCSB e MMSC.

Testemunho	Secção (cm)	Idade (ka)	Taxa de sedimentação (cm ka^{-1})
KF16	0-260	0-36	$6,77 \pm 0,37$
	260-680	36-75	$10,91 \pm 0,60$
	680-950	75-99	$11,05 \pm 0,61$
KF18	0-1006	0-240	$4,27 \pm 0,33$
	1006-1700	240-472	$3,00 \pm 0,23$
U1431	0-1368	0-458	$2,86 \pm 0,21$
	1368-2141	458-527	$11,13 \pm 0,83$
U1432	0-2343	0-188	$12,49 \pm 0,42$

Percebe-se que há significativa variação na taxa de sedimentação no testemunho U1431, sendo esta a possível resposta para a brusca mudança no valor de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ neste testemunho. Considerando o caso de não haver variação da concentração de deposição inicial de ^{230}Th , a redução/aumento da taxa de sedimentação pode ter um efeito de concentração/diluição da atividade depositada de ^{230}Th , e o coeficiente angular da reta de regressão dos perfis $\ln ^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ versus z (Figura 23b) é inversamente proporcional à taxa de sedimentação.

Agora, em relação ao método de cálculo destes valores [33], quando estes perfis são comparados, por exemplo, com os de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ do item 4.7 (que

representam um fenômeno semelhante, apesar de em uma escala de tempo diferente), verifica-se que ambos estimam a taxa de sedimentação a partir de uma regressão do comportamento vertical linearizado do radionuclídeo em excesso. Em outras palavras, o modelo aqui utilizado é matematicamente similar ao CIC para $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$.

Em contrapartida, aqui se optou por não utilizar uma modelagem do comportamento de $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$ como a apresentada pelo modelo CRS (que possibilitaria o cálculo da taxa de sedimentação ponto a ponto), pois haveria necessidade de, inicialmente, avaliar o inventário por unidade de volume destes radionuclídeos e as influências do transporte horizontal de sedimento sobre esta variável antes de emitir um parecer sobre a validade das premissas deste modelo para o caso particular do $^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$. Assim, o que se escolheu neste trabalho que pode ser considerado como intermediário entre as situações propostas pelo CIC e CRS.

ii. Influências de ciclos orbitais na deposição de radionuclídeos

Conforme observado por outros autores, o espectro de séries temporais de variáveis ambientais em sedimentos depositados no Pleistoceno é dominado por ciclos com períodos de 100 mil anos (MULLER e MACDONALD, 1997a,b). Dessa forma, pode-se esperar que regiões com fortes influências dos ciclos pleistocênicos glaciais/interglaciais de 100 mil anos apresentem alguma ciclicidade relacionada a este período.

Esta influência orbital sobre os sinais de radionuclídeos depositados, em conjunto com a interferência de outros fatores, como transporte horizontal de sedimentos, é extremamente relevante em estudos de taxas de acumulação de massa, origem do sedimento e de balanço sedimentar de bacias oceânicas (LYLE et al., 2007). Entretanto, o objetivo deste estudo é estabelecer um modelo de idade com base na taxa de sedimentação específica do testemunho, assim estas influências não afetam diretamente estes cálculos, já que o equacionamento proposto para o modelo pode considerar esta alternância de ciclos como mudanças na sedimentação entre as diferentes secções de um mesmo testemunho.

De qualquer forma, as influências orbitais podem ser uma das razões para a variação da concentração de deposição de radionuclídeos,

especialmente no que diz respeito aos isótopos de U, sendo que ^{234}U é utilizado para quantificar a parcela autigênica de ^{230}Th nos sedimentos. U é um elemento muito sensível a mudanças nas condições redox do ambiente e na oxigenação de águas profundas, sendo usado como um *proxy* de paleoredox (TRIBOVILLARD et al., 2006). Sua deposição é controlada pelo conteúdo de matéria orgânica e pela produção biológica na coluna de água (KLINKHAMMER e PALMER, 1991), e seu balanço nos sedimentos é influenciado pelo ciclo climático glacial/interglacial (DUNK, MILLS e JENKINS, 2002; HENDERSON e ANDERSON, 2003).

Com estas considerações em mente, procedeu-se a uma análise mais detalhada da deposição de ^{234}U ao longo dos ciclos glaciais/interglaciais no testemunho KF18. Foi escolhido este testemunho, pois a secção total analisada abrange um longo período (cerca de 500 mil anos), por ter a melhor resolução dentre todos os testemunhos analisados (uma subamostra a cada 14 mil anos, em média), e por apresentar um registro detalhado de isótopos estáveis de oxigênio, que é um excelente marcador dos ciclos glaciais/interglaciais.

Quando o perfil vertical de ^{234}U é comparado com o registro de isótopos estáveis de oxigênio (Figura 25), mesmo o primeiro apresentando uma resolução muito inferior à curva de $\delta^{18}\text{O}$, é possível observar que há alguma similaridade visual entre as duas curvas, e que a série de deposição de ^{234}U apresenta máximos a cada 100 mil anos, principalmente os correspondentes aos valores ao redor de 100, 200 e 300 ka nas secções mais recentes do testemunho, com melhor preservação das variáveis ambientais.

Figura 25. Comparação entre o perfil de ^{234}U (em Bq kg^{-1}) e o registro de isótopos estáveis de oxigênio em foraminíferos ($\delta^{18}\text{O}$, em ‰) no testemunho KF18, com marcação dos MIS.

O gráfico também indica que U tende a ser incorporado aos sedimentos durante períodos interglaciais, que correspondem aos estágios marinhos isotópicos ímpares. Pode-se relacionar isso ao fato de que as concentrações de U nos sedimentos tendem a ser maiores quando os níveis de oxigênio nas águas profundas são menores (HENDERSON e ANDERSON, 2003), o que ocorre nos períodos mais quentes.

Um estudo cicloestratigráfico da série temporal de ^{234}U foi realizado com uma análise espectral pelo método de mínimos quadrados, o qual serve para estimar espectros de frequências e, diferentemente do método de Fourier, é recomendado para amostras de espaçamento heterogêneo sem necessidade de interpolar dados.

Antes da análise espectral, a série foi pré-processada conforme as recomendações de Weedon (2003) para séries de variáveis ambientais em sedimentos pleistocênicos. Este pré-processamento consistiu de: normalização (subtração da média), remoção de tendência (subtração dos valores da regressão linear pelo método de mínimos quadrados) e pré-branqueamento (subtração de cada valor da série pelo sucessivo multiplicado pelo coeficiente de autocorrelação lag-1 ρ_1).

Figura 26. Periodograma do tipo Lomb-Scargle da série temporal de ^{234}U comparada com o registro de isótopos de O para o testemunho KF18, com indicação dos valores de período dos picos dominantes.

A análise do periodograma do tipo Lomb-Scargle produzido pela análise espectral (Figura 26) indica a presença de ciclos de 36, 48 e 90 mil anos (mesmo não significativos considerados mesmo assim para esta discussão, já a resolução da série não é ideal) na série de deposição de ^{234}U do testemunho KF18. Isso é um indicativo de que este registro estratigráfico possui alguma associação com os ciclos orbitais de Milankovitch. Estes ciclos regem as mudanças climáticas na Terra, a evolução das eras do gelo pleistocênicas e a circulação de águas de fundo oceânicas.

Assim, demonstra-se que os ciclos orbitais influenciam na deposição de U autigênico e, por consequência, nos valores calculados de ^{230}Th em excesso.

6.7 Considerações finais

Este capítulo apresentou a aplicação e validação de um modelo envolvendo as relações entre isótopos de Th e U e as suas diferentes propriedades geoquímicas com o intuito de estimar taxas de sedimentação ao longo de períodos de cerca de 700 mil anos. O decaimento de ^{234}U , um

elemento solúvel, para ^{230}Th , que é insolúvel, faz com que o último seja rapidamente transferido à fração particulada da água do mar e então ao sedimento. Isso gera um excesso de ^{230}Th proveniente da coluna de água cuja produção não é suportada na matriz sedimentar.

Foram utilizados quatro testemunhos marinhos coletados na Margem Continental Sudeste do Brasil e na Margem Continental do Mar do Sul da China, em regiões com profundidades maiores que 2000 m. Estes testemunhos já foram estudados em relação a modelos de idades por métodos de datação relativa (isótopos estáveis de oxigênio, bio/magnetoestratigrafia), dados estes que foram usados para validar os resultados do modelo de ^{230}Th em excesso. Esta validação foi realizada através da confrontação dos modelos de idade com ^{230}Th em excesso e das datações relativas, e observou-se diferença máxima de 14% entre as idades para todo o conjunto de amostras.

Os perfis verticais de ^{230}Th em excesso permitiram observar o seu comportamento de decaimento exponencial, já que esta fração do ^{230}Th total não tem fonte pós-deposicional nos sedimentos. Em contrapartida, observou-se períodos de aumento nos níveis de ^{230}Th em excesso, que não necessariamente indicam variação na taxa de sedimentação, mas podem sugerir a influência de outros fatores, como casos de variações na taxa de deposição de ^{230}Th e ciclos orbitais de Milankovitch.

Em relação ao impacto de variações na taxa de sedimentação sobre os resultados do modelo de idade, o equacionamento descrito para o modelo de taxa de sedimentação considera a curva de atividade de ^{230}Th em excesso como um conjunto de curvas de decaimento exponencial (ou uma reta de regressão, no caso do gráfico de $\ln ^{230}\text{Th}_{\text{xs}}$), cada uma não apenas correspondendo a uma secção distinta do testemunho como, por consequência, um período com um valor estimado de taxa de sedimentação.

Este formato de cálculo escolhido, que pode ser visto como intermediário entre um cenário entre taxa de sedimentação constante ao longo de todo o testemunho e um de taxa de sedimentação variável, não torna necessária a adição de um fator específico para esta influência. Isso porque seria imperativo avaliar antes a validade de premissas acerca do inventário dos radionuclídeos para o caso de taxa de sedimentação variável, o que não é possível com os dados em mãos.

Finalmente, considerações sobre o uso do método radiométrico apresentado devem ser feitas. Ele é baseado na análise por espectrometria gama, e está sujeito às suas vantagens e desvantagens, como análise não destrutiva, multielementar, simultânea, mas com longos tempos de contagens, necessidade de estabelecimento de geometria de contagem própria para análise de diversos elementos.

Apesar dos avanços nas técnicas de medição de radioatividade, foi a evolução da espectrometria de massa (que possibilitou a determinação de isótopos de C e O) e o aprofundamento do conhecimento da Estratigrafia que colocou o uso de métodos de comportamento geoquímico de radionuclídeos (como o de ^{230}Th em excesso, ^{226}Ra e $^{230}\text{Th}/^{231}\text{Pa}$) em segundo plano no que diz respeito a técnicas de datação, limitando a aplicação de radionuclídeos em técnicas de datação absoluta apenas em matrizes como rochas, fósseis e corais. Entretanto, este estudo buscou justamente demonstrar que o uso desta técnica tem vantagens, principalmente a não destruição das amostras e similaridade dos resultados com as curvas de isótopos estáveis de O.

7. CONCLUSÕES

Este trabalho propôs estudar as características ambientais de radionuclídeos (^{137}Cs , ^{210}Pb , ^{226}Ra , $^{230,232}\text{Th}$, ^{234}U) através de modelos matemáticos e verificar suas aplicações em estudos de dinâmica sedimentar marinha, com a espectrometria gama como técnica de determinação destes elementos.

Na primeira parte deste estudo, desenvolveu-se e aplicou-se um modelo único de contagem das amostras para determinação de todos os elementos de interesse. Então, a partir de um conjunto de testemunhos marinhos (um total de 27 colunas sedimentares) de diferentes ambientes (de sistemas costeiros e de mar aberto), buscou-se exemplificar aplicações dos radionuclídeos e como suas peculiaridades geoquímicas e ambientais podem ser utilizadas para estudar processos de dinâmica sedimentar.

A segunda parte do trabalho abordou o uso de modelos matemáticos com dois radionuclídeos, ^{137}Cs e ^{210}Pb , na avaliação de taxas de sedimentação e de acumulação de massa no Sistema Santos-São Vicente, escolhido pela sua hidrodinâmica e sedimentação bastante estudada e presente na literatura.

Tabela 15. Comparação entre as premissas dos diferentes modelos de cálculo de taxas de sedimentação e datação recentes.

Premissa	^{210}Pb			^{137}Cs	
	CIC	CFCS	CRS	ADE	MDC
Condição inicial	Atividade inicial de ^{210}Pb constante	Atividade inicial de ^{210}Pb constante	Atividade inicial de ^{210}Pb variável	Atividade inicial de ^{210}Pb constante	Todo ^{137}Cs foi depositado em 1963
Aporte sedimentar	Constante	Constante	Variável	Constante	Constante
Forma de expressão	Taxa de sedimentação	Taxa de acumulação de massa	Taxa de sedimentação e de acumulação de massa	Taxa de sedimentação	Taxa de sedimentação
Considera migração vertical?	Não	Não	Não	Sim	Sim

Estes modelos matemáticos foram baseados apenas nos níveis de atividade de ^{137}Cs , ^{210}Pb e ^{226}Ra e no teor de água dos sedimentos com diferentes premissas de uso (Tabela 15). Eles permitiram um estudo das variações espaciais recentes (neste caso, desde o início do século XX) e das mudanças ao longo do tempo na sedimentação do sistema costeiro em questão.

A terceira parte tratou do uso da ocorrência e distribuição espacial de ^{137}Cs como uma ferramenta estratigráfica para o Antropoceno, uma nova terminologia geológica baseada nas inúmeras mudanças que a civilização humana está criando nos ecossistemas ao redor do mundo. Horizontes de profundidade associados com os máximos de atividade de ^{137}Cs foram encontrados em um conjunto de 23 testemunhos de vários sistemas costeiros da costa oeste do Atlântico Sul, e podem servir como marcadores dos limites de idade para o Antropoceno.

O uso do MDC permitiu estimar a atividade pretérita de ^{137}Cs devido ao *fallout* atmosférico dos testes nucleares da Guerra Fria independentemente das características ambientais particulares de cada sistema costeiro. Identificou-se um padrão latitudinal nos níveis de radioatividade com um máximo em 35°S e valores menores em direção ao Equador, o que é consistente com as observações reportadas pela literatura internacional em relação a este padrão deposicional.

No quarto e último capítulo, relações entre isótopos de Th e U e as suas diferentes propriedades geoquímicas foram estudadas com o intuito de estimar taxas de sedimentação ao longo de períodos de cerca de 700 mil anos, em um conjunto de 4 testemunhos longos de duas margens continentais passivas (oeste do Oceano Atlântico Sul e Mar do Sul da China).

Um modelo de sedimentação e idade baseado nos perfis deposicionais de ^{230}Th em excesso (atividade não suportada pela produção pós-deposicional através do decaimento de ^{234}U) foi validado através da confrontação dos seus resultados com os de métodos de datações relativas (isótopos estáveis de oxigênio, bio/magnetoestratigrafia), e verificou-se diferença máxima de 14% das idades reportadas para todo o conjunto de amostras.

Observou-se períodos de aumento nos níveis de ^{230}Th em excesso, que não necessariamente indicam variação na taxa de sedimentação, mas

podem sugerir a influência de outros fatores, como variações na taxa de deposição de ^{230}Th e ciclos orbitais de Milankovitch.

Assim, os objetivos deste trabalho foram atingidos, apresentando três diferentes métodos de aplicação de radionuclídeos em estudos desde variação espacial e temporal de taxas de sedimentação em diferentes escalas de tempo a uso de radionuclídeos como marcadores estratigráficos em diferentes escalas geológicas.

No que diz respeito à hipótese científica, ela pode ser validada, já que as relações dos radionuclídeos com variáveis e processos sedimentares puderam ser utilizadas como marcadores e quantificadores de processos de dinâmica sedimentar em várias escalas de tempo.

---

8. REFERÊNCIAS

ADSLEY, I. et al. U-238 decay chain: resolution of observed anomalies in the measured secular equilibrium between Th-234 and daughter Pa-234m. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 49, n. 9-11, p. 1337-1344, 1998.

AGENCY FOR TOXIC SUBSTANCES AND DISEASES REGISTRY. **Thorium**. Agency for Toxic Substances and Diseases Registry. Atlanta, p. 2. 1999.

AJAYI, I. R.; RAJI, A. T. Evaluation of the ^{137}Cs activity-depth profiles by the diffusion-convection model. **International Journal of the Physical Sciences**, v. 5, n. 2, p. 154-157, 2010.

ALMEIDA, T. M. et al. Reorganização socioeconômica no extremo sul da Bahia decorrente da introdução da cultura do eucalipto. **Sociedade & Natureza**, v. 20, n. 2, p. 5-18, 2008.

ANDRELLO, A. C. et al. Use of cesium-137 methodology in the evaluation of superficial erosive processes. **Brazilian Archives of Biology and Technology**, v. 46, n. 3, p. 307-314, 2003.

ANJOS, R. M. et al. Natural radionuclide distribution in Brazilian commercial granites. **Radiation Measurements**, v. 39, n. 2, p. 245-253, 2005.

AOYAMA, M.; HIROSE, K.; IGARASHI, Y. Re-construction and updating our understanding on the global weapons tests ^{137}Cs fallout. **Journal of Environmental Monitoring**, v. 8, p. 431-438, 2006.

APPLEBY, P. G.; OLDFIELD, F. The calculation of Lead-210 dates assuming constant rate of supply of unsupported ^{210}Pb to the sediment. **Catena**, v. 5, p. 1-8, 1978.

APPLEBY, P. G.; OLDFIELD, F. Application of lead-210 to sedimentation studies. In: IVANOVICH, M.; HARMON, R. S. **Uranium-series disequilibrium**. Nova lorque: Oxford Science, 1992. p. 731-778.

ARAÚJO, A. P. B.; FERNANDES, A. L. T. O passivo ambiental do fosfogesso gerado nas indústrias de fertilizantes fosfatados e as possibilidades de aproveitamento. **Enciclopédia Biosfera**, v. 9, n. 16, p. 2952-2965, 2013.

BACON, M. P. Glacial to interglacial changes in carbonate and clay sedimentation in the Atlantic Ocean estimated from ^{230}Th measurements. **Isotope Geoscience**, v. 2, p. 97-111, 1984.

BARRÉ, P. et al. Clay minerals as a soil potassium reservoir: observation and quantification through X-ray diffraction. **Plant and Soil**, v. 302, n. 1, p. 213-220, 2008.

- BASDEVANT, J. L.; RICH, J.; SPIRO, M. **Fundamentals in nuclear physics**. 1. ed. Nova Iorque: Springer, 2005.
- BASKARAN, M. et al. Pu, ^{137}Cs and excess ^{210}Pb in Russian Arctic sediments. **Earth and Planetary Science Letters**, v. 140, p. 243-257, 1996.
- BENNINGER, L. K.; KRISHNASWAMI, S. Sedimentary processes in the inner New York Bight: evidence from excess ^{210}Pb and $^{239,240}\text{Pu}$. **Earth and Planetary Science Letters**, v. 53, p. 158-174, 1981.
- BERNARDES, M. E. C. **Circulação estacionária e estratificação de sal em canais estuarinos parcialmente misturados: simulação com modelos analíticos**. Dissertação de mestrado. São Paulo: Universidade de São Paulo, 2001.
- BERNAT, M.; CHURCH, T. M. Uranium and thorium decay series in the modern marine environment. In: FRIZT, P.; FONTES, J. C. **Handbook of environmental isotope geochemistry**. Amsterdã: Elsevier, 1988.
- BILOS, C.; COLOMBO, J. C.; PRESA, M. J. R. Trace metals in suspended particles, sediments and Asiatic clams (*Corbicula fluminea*) of the Rio de la Plata Estuary, Argentina. **Environmental Pollution**, v. 99, p. 1-11, 1998.
- BUNZL, K. et al. Spatial variability of the vertical migration of fallout ^{137}Cs in the soil of a pasture, and consequences for long-term predictions. **Radiation and Environmental Biophysics**, v. 39, p. 197-205, 2000.
- BURTON, J. D. Radioactive nuclides in the marine environment. In: RILEY, J. P.; SKIRROW, G. S. **Chemical oceanography**. 2. ed. Londres: Academic Press, 1975. p. 91-191.
- CARRINGTON, D. The Anthropocene epoch: scientists declare dawn of human-influenced age. **The Guardian**, 29 Agosto 2016. Disponível em: <https://www.theguardian.com/environment/2016/aug/29/declare-anthropocene-epoch-experts-urge-geological-congress-human-impact-earth>.
- CATUNEANU, O. **Principles of sequence stratigraphy**. 1. ed. Amsterdã: Elsevier, 2006.
- CERTINI, G.; SCALENGHE, R. Anthropogenic soils are the golden spikes for the Anthropocene. **Holocene**, v. 21, n. 8, p. 1269-1274, 2011.
- CHO, Y. H.; JEONG, C. H.; HAHN, P. S. Sorption characteristics of ^{137}Cs onto clay minerals: effect of mineral structure and ionic strength. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 204, p. 33-43, 1996.
- CHOUERI, R. B. et al. Integrated sediment quality assessment in Paranaguá Estuarine System, Southern Brazil. **Ecotoxicology and Environmental Safety**, v. 72, p. 1824-1831, 2009.
- CHUNG, Y.; CHANG, W. C. Uranium and thorium isotopes in marine sediments off northeastern Taiwan. **Marine Geology**, v. 133, p. 89-102, 1996.

CHURCH, T. M.; LORD III, C. J.; SOMAYAJULU, B. L. K. Uranium, thorium and lead nuclides in a Delaware salt marsh sediment. **Estuarine, Coastal and Shelf Science**, v. 13, p. 267-275, 1981.

CIENTISTAS DA EXPEDIÇÃO 349. **South China Sea tectonics**: opening of the South China Sea and its implications for southeast Asian tectonics, climates, and deep mantle processes since the late Mesozoic. International Ocean Discovery Program. Preliminary report 349. 2014. (doi:10.14379/iodp.pr.349.2014).

CLAYTON, D. D. **Principles of stellar evolution and nucleosynthesis**. 1. ed. Chicago: University of Chicago Press, 1983.

CLIFT, P. D.; BLUSZTAJN, J.; NGUYEN, A. D. Large-scale drainage capture and surface uplift in eastern Tibet–SW China before 24 Ma inferred from sediments of the Hanoi Basin, Vietnam. **Geophysical Research Letters**, v. 33, n. 19, p. L19403, 2006.

CLIFTON, R. J. et al. A study of processes affecting the uptake of contaminants by intertidal sediments, using the radioactive tracers: ^7Be , ^{137}Cs and unsupported ^{210}Pb . **Estuarine, Coastal and Shelf Research**, v. 41, p. 459-474, 1995.

COLOMBO, J. C. et al. Sources, vertical fluxes, and equivalent toxicity of aromatic hydrocarbons in coastal sediments of the Rio de la Plata Estuary, Argentina. **Environmental Science and Technology**, v. 40, p. 734-740, 2006.

COMANS, R. N. J. et al. Mobilization of radiocaesium in pore water of lake sediments. **Nature**, v. 339, p. 367-369, 1989.

COMBI, T. et al. Sources and temporal patterns of polychlorinated biphenyls around a large South American grain-shipping port (Paranaguá Estuarine System, Brazil). **Archives of Environmental Contamination and Toxicology**, v. 64, p. 573-582, 2013.

CORDERO, L. M. **Estudo dos processos sedimentológicos na Margem Continental Sudeste do Brasil pelo uso de radionuclídeos naturais**. Dissertação de mestrado. São Paulo: Universidade de São Paulo, 2010.

COUTO, J. M. **Entre estatais e transnacionais**: o polo industrial de Cubatão. Tese de doutorado. Campinas: Universidade Estadual de Campinas, 2003.

CRUTZEN, P. J. Geology of mankind: the Anthropocene. **Nature**, v. 415, p. 23, 2002.

CRUTZEN, P. J.; STOERMER, E. F. The "Anthropocene". **Global Changes Newsletter**, v. 41, p. 17-18, 2000.

CUNHA, I. I. L.; FIGUEIRA, R. C. L.; SAITO, R. T. Application of radiochemical methods and dispersion models in the study of environmental pollution in Brazil. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 239, n. 3, p. 477-482, 1999.

CUNHA, J. M. P. **Novas metrópoles paulistas: população, vulnerabilidade e segregação**. 1. ed. Campinas: Editora da UNICAMP, 2006.

DICKIN, A. P. **Radiogenic isotope geology**. 2. ed. Cambridge: Cambridge University Press, 2005.

DOUGHTY, C. E.; WOLF, A.; FIELD, C. B. Biophysical feedbacks between the Pleistocene megafauna extinction and climate: the first human-induced global warming? **Geophysical Research Letters**, v. 37, p. 157-203, 2010.

DRESSELHAUS, M. S.; THOMAS, I. L. Alternative energy technologies. **Nature**, v. 414, p. 332-337, 2001.

DUNK, R. M.; MILLS, R. A.; JENKINS, W. J. A reevaluation of the oceanic uranium budget for the Holocene. **Chemical Geology**, v. 190, p. 45-67, 2002.

EISENBUD, M.; GESELL, T. **Environmental radioactivity: from natural, industrial, and military sources**. 4. ed. Cambridge: Academic Press, 1997.

EPSTEIN, S.; MAYEDA, T. Variation of O^{18} content of waters from natural sources. **Geochimica et Cosmochimica Acta**, v. 4, p. 213-224, 1953.

FAURE, G. **Principles of isotope geology**. 1. ed. Hoboken: John Wiley & Sons, 1986.

FELIX, C. A. **Evolução quaternária superior e formação de gás raso em ambiente estuarino tropical: o caso do Canal de Bertioga, São Paulo**. Dissertação de mestrado. São Paulo: Universidade de São Paulo, 2012.

FERREIRA, P. A. L. **Aplicação do modelo de migração vertical de ^{137}Cs para o cálculo de taxas de sedimentação recentes em ambientes costeiros**. Dissertação de mestrado. São Paulo: Universidade de São Paulo, 2014.

FERREIRA, P. A. L. et al. ^{137}Cs in marine sediments of Admiralty Bay, King George Island, Antarctica. **Science of the Total Environment**, v. 443, p. 505-510, 2013.

FERREIRA, P. A. L. et al. Sedimentation rates and age modeling of Late Quaternary marine sediments with unsupported ^{230}Th . **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 304, n. 2, p. 829-836, 2015.

FERREIRA, P. A. L. et al. Statistical validation of the model of diffusion-convection (MDC) of ^{137}Cs for the assessment of recent sedimentation rates in coastal systems. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 303, n. 3, p. 2059-2071, 2015.

FERRONSKY, V. I.; POLYAKOV, V. A. **Isotopes of the Earth's hydrosphere**. 1. ed. Amsterdã: Elsevier, 2012.

FIGUEIRA, R. C. L. **Inventário de radionuclídeos artificiais em água do mar e sedimentos da costa sul do Brasil**. Tese de doutorado. São Paulo: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, 2000.

FIGUEIRA, R. C. L. et al. Distribution of ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ in sediments of the southeastern Brazilian shelf–SW Atlantic margin. **Science of the Total Environment**, v. 357, p. 146-159, 2006.

FIGUEIRA, R. C. L.; CUNHA, I. I. L. A contaminação dos oceanos por radionuclídeos antropogênicos. **Química Nova**, v. 21, n. 1, p. 73-77, 1998.

FISCHER-KOWALSKI, M.; KRAUSMANN, F.; PALLUA, I. A sociometabolic reading of the Anthropocene: modes of subsistence, population size and human impact on Earth. **The Anthropocene Review**, v. 1, n. 1, p. 8-33, 2014.

FRANÇOIS, R. et al. ^{230}Th normalization: an essential tool for interpreting sedimentary fluxes during the late Quaternary. **Paleoceanography**, v. 19, n. PA1018, p. 1-16, 2004.

FRENZ, M. et al. Surface sediment bulk geochemistry and grain-size composition related to the oceanic circulation along the South American continental margin in the Southwest Atlantic. In: WEFER, G.; MULITZA, S.; RATMEYER, V. **The South Atlantic in the Late Quaternary**: reconstruction of material budgets and current systems. Berlim: Springer, 2003. p. 347-373.

FRIEDLANDER, G.; KENNEDY, J. W. **Introduction to radiochemistry**. 1. ed. Nova Iorque: John Wiley & Sons, 1949.

FUKUMOTO, M. M. **Determinação da história deposicional recente do Alto Estuário Santista, com base nos teores de metais e na susceptibilidade magnética dos sedimentos**. Tese de doutorado. São Paulo: Universidade de São Paulo, 2007.

FÚLFARO, V. J.; PONÇANO, W. L. **Sedimentação atual do estuário e baía de Santos**: um modelo geológico aplicado a projetos de expansão da zona portuária. Anais do 1º Congresso Brasileiro de Geologia de Engenharia. Rio de Janeiro: Associação Brasileira de Geologia de Engenharia. 1976.

GILMORE, G. R. **Practical gamma-ray spectrometry**. 2. ed. Hoboken: John Wiley & Sons, 2008.

GODOY, J. M.; GODOY, M. L. Natural radioactivity in Brazilian groundwater. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 85, p. 71-83, 2006.

GODOY, J. L. D. P. et al. ^{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, 2006.

GOFF, J. R.; WHITEHEAD, N. E.; DITCHBURN, R. G. ^{210}Pb chronology from Wellington Harbour, New Zealand. **New Zealand Journal of Marine and Freshwater Research**, v. 32, p. 181-186, 1998.

GOLDSBY, K.; CHANG, R. **Chemistry**. 11. ed. Nova Iorque: McGraw-Hill Education, 2012.

GONÇALVES, C. et al. Reconstruction of historical trends in potentially toxic elements from sediment cores collected in Bertioga Channel, southeastern Brazil. **Brazilian Journal of Oceanography**, v. 61, n. 2, p. 149-160, 2013.

GORAYEB, A.; LOMBARDO, M. A.; PEREIRA, L. C. C. Qualidade da água e abastecimento na Amazônia: o exemplo da bacia hidrográfica do rio Caeté. **Mercator**, v. 9, n. 18, p. 135-157, 2010.

GREENWOOD, N. N.; EARNSHAW, A. **Chemistry of the elements**. 2. ed. Oxford: Butterworth-Heinemann, 1997.

HAI, X. et al. Geochronology of a surface core in the northern basin of Lake Qinghai: Evidence from ^{210}Pb and ^{137}Cs radionuclides. **Chinese Journal of Geochemistry**, v. 25, n. 4, p. 301-306, 2006.

HANDL, J. et al. Accumulation of ^{137}Cs in Brazilian soils and its transfer to plants under different climatic conditions. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 99, p. 271-287, 2008.

HARVEY, C. C.; MURRAY, H. H. Clays: an overview. In: KOGEL, J. E., et al. **Industrial minerals and rocks: commodities, markets and uses**. 7. ed. Littleton: SME, 2006. p. 335-414.

HE, Q.; WALLING, D. E. Interpreting particle size effects in the adsorption of ^{137}Cs and unsupported ^{210}Pb by mineral soils and sediments. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 30, p. 117-137, 1996.

HEIJNIS, H. **Uranium/thorium dating of Late Pleistocene peat deposits in N.W. Europe**. 1. ed. Groninga: Universidade de Groninga, 1995.

HENDERSON, G. M. Seawater ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) during the last 800 thousand years. **Earth and Planetary Science Letters**, v. 199, p. 97-110, 2002.

HENDERSON, G. M.; ANDERSON, R. F. The U-series toolbox for paleoceanography. **Reviews in Mineralogy and Geochemistry**, v. 52, p. 493-531, 2003.

HORTELLANI, M. A. et al. Evaluation of mercury contamination in sediments from Santos - São Vicente Estuarine System, São Paulo State, Brazil. **Journal of the Brazilian Chemistry Society**, v. 16, n. 6A, p. 1140-1149, 2005.

HORTELLANI, M. A. et al. Avaliação da contaminação por elementos metálicos dos sedimentos do estuário Santos-São Vicente. **Química Nova**, v. 31, n. 1, p. 10-19, 2008.

HOUSECRAFT, C.; SHARPE, A. G. **Inorganic chemistry**. 4. ed. Nova Jérsei: Prentice Hall, 2012.

- HWANG, C. A bathymetric model for the South China Sea from satellite altimetry and depth data. **Marine Geodesy**, v. 22, n. 1, p. 37-51, 1999.
- IMBRIE, J.; IMBRIE, J. Z. Modelling the climate response to orbital variations. **Science**, v. 207, p. 943-953, 1980.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Measurements of radionuclides in food and the environment**. 1. ed. Viena: IAEA Press, v. 295, 1989.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Generic models for use in assessing the impact of discharges of radioactive substances to the environment**. 1. ed. Viena: IAEA Press, v. 19, 2001.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **INES: the international nuclear and radiological event scale**. Viena: IAEA Press, v. 2008, 2009.
- INTERNATIONAL HYDROGRAPHIC ORGANIZATION. **Limits of oceans and seas**. 3. ed. Monte-Carlo: International Hydrographic Organization, 1953.
- INTERNATIONAL UNION OF PURE AND APPLIED CHEMISTRY. **Compendium of chemical terminology**. 2. ed. Oxford: Blackwell Scientific Publications, 1997.
- JOHNSON-PYRTLE, A. et al. ^{137}Cs distribution and geochemistry of Lena River (Siberia) drainage basin lake sediments. **Science of the Total Environment**, v. 255, p. 145-159, 2000.
- JONES, D. G. et al. Distribution of ^{137}Cs and inventories of ^{238}Pu , $^{239/240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{137}Cs in Irish Sea intertidal sediments. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 44, p. 159-189, 1999.
- JWEDA, J.; BASKARAN, M. Interconnected riverine–lacustrine systems as sedimentary repositories: case study in southeast Michigan using ^{210}Pb and ^{137}Cs -based sediment accumulation and mixing models. **Journal of Great Lakes Research**, v. 37, p. 432-446, 2011.
- KADKO, D. ^{230}Th , ^{226}Ra and ^{222}Rn in abyssal sediments. **Earth and Planetary Science Letters**, v. 49, p. 360-380, 1980.
- KATHREN, R. L. **Radioactivity in the environment: sources, distribution and surveillance**. 1. ed. Nova Iorque: Harwood Academic Publishers, 1984.
- KIENAST, S. S. et al. Thorium-230 normalized particle flux and sediment focusing in the Panama Basin region during the last 30,000 years. **Paleoceanography**, v. 22, p. PA2213, 2007.
- KIRSCHVINK, J. L. The least-squares line and plane and the analysis of paleomagnetic data. **Geophysical Journal of the Royal Astronomical Society**, v. 62, n. 3, p. 699-718, 1980.

KLAMINDER, J. et al. Postdeposition diffusion of ^{137}Cs in lake sediment: implications for radiocesium dating. **Sedimentology**, v. 59, p. 2259-2267, 2012.

KLINKHAMMER, G. P.; PALMER, M. R. Uranium in the oceans: where it goes and why. **Geochimica et Cosmochimica Acta**, v. 55, p. 1799-1806, 1991.

KNOLL, G. F. **Radiation detection and measurement**. 4. ed. Nova Iorque: John Wiley & Sons, 2010.

KRISHNASWAMY, S. et al. Geochronology of lake sediments. **Earth and Planetary Science Letters**, v. 11, p. 407-411, 1971.

KRISHNASWAMY, S.; LAL, D. Radionuclide limnology. In: LERMAN, A. **Lakes: chemistry, geology and physics**. Nova Iorque: Springer-Verlag, 1978. p. 153-177.

KU, T. L. The uranium-series methods of age determination. **Annual Review of Earth and Planetary Sciences**, v. 4, p. 347-379, 1976.

KUMAR, B. et al. Sedimentation rate in North Indian lakes estimated using ^{137}Cs and ^{210}Pb dating techniques. **Current Science**, v. 92, n. 10, p. 1416-1420, 2007.

L'ANNUNZIATA, M. **Radioactivity: introduction and history**. 1. ed. Amsterdã: Elsevier, 2007.

LEEDER, M. R.; HARRIS, T.; KIRKBY, M. J. Sediment supply and climate change: implications for basin stratigraphy. **Basin Research**, v. 10, p. 7-18, 1998.

LEONARDO, L. **Utilização de líquens como bioindicadores de contaminação atmosférica por radionuclídeos naturais e metais em região impactada por TENORM**. Tese de doutorado. São Paulo: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, 2010.

LI, C. F. et al. Site U1431. **Proceedings of the International Ocean Discovery Program**, v. 349, p. 1-54, 2015a.

LI, C. F. et al. Site U1432. **Proceedings of the International Ocean Discovery Program**, v. 349, p. 1-21, 2015b.

LIGERO, R. A. et al. Relationships between sea-bed radionuclide activities and some sedimentological variables. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 57, p. 7-19, 2001.

LIGERO, R. A. et al. An alternative radiometric method for calculating the sedimentation rates: application to an intertidal region (SW of Spain). **Applied Radiation and Isotopes**, v. 68, p. 1602-1609, 2010.

LIGERO, R. A.; BARRERA, M.; CASAS-RUIZ, M. Levels of ^{137}Cs in muddy sediments of the seabed of the Bay of Cádiz, Spain. Part I. Vertical and spatial

distribution of activities. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 80, p. 75-86, 2005a.

LIGERO, R. A.; BARRERA, M.; CASAS-RUIZ, M. Levels of ^{137}Cs in muddy sediments on the seabed in the Bay of Cadiz (Spain). Part II. Model of vertical migration of ^{137}Cs . **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 80, p. 87-103, 2005b.

LIKAR, A. et al. A theoretical description of diffusion and migration of ^{137}Cs in soil. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 57, p. 191-201, 2001.

LIN, D. et al. Millennial-scale changes in terrestrial sediment input and Holocene surface hydrography in the northern South China Sea (IMAGES MD972146). **Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology**, v. 236, n. 1-2, p. 56-73, 2006.

LISIECKI, L. E.; RAYMO, M. E. A Pliocene-Pleistocene stack of 57 globally distributed benthic $\delta^{18}\text{O}$ records. **Paleoceanography**, v. 20, p. PA1003, 2005.

LIU, J. et al. Temporal and spatial patterns of sediment deposition in the northern South China Sea over the last 50,000 years. **Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology**, v. 465A, p. 212-224, 2017.

LIVINGSTON, H. D.; POVINEC, P. P. Anthropogenic marine radioactivity. **Ocean & Coastal Management**, v. 43, n. 8-9, p. 689-712, 2000.

LOUREIRO, F. E. V. L. **Terras-raras no Brasil: depósitos, recursos identificados, reservas**. 1. ed. Rio de Janeiro: CETEM, v. 21, 1994.

LOVELAND, W. D.; MORRISSEY, D. J.; SEABORG, G. T. **Modern nuclear chemistry**. 1. ed. Hoboken: John Wiley & Sons, 2006.

LUBIS, A. A. Constant rate of supply (CRS) model for determining the sediment accumulation rates in the coastal area using ^{210}Pb . **Journal of Coastal Development**, v. 10, n. 1, p. 9-18, 2006.

LUIZ-SILVA, W. et al. Taxas de sedimentação em estuário do sudeste do Brasil, baseadas em assinatura geoquímica e histórico industrial. **Geociências**, v. 31, n. 1, p. 69-78, 2012.

LYLE, M. et al. Reply to comment by R. Francois et al. on "Do geochemical estimates of sediment focusing pass the sediment test in the equatorial Pacific?": further explorations of ^{230}Th normalization. **Paleoceanography**, v. 22, p. PA1217, 2007.

MACHADO, K. S. et al. Sedimentary record of PAHs in the Barigui River and its relation to the socioeconomic development of Curitiba, Brazil. **Science of the Total Environment**, v. 482-483, p. 42-52, 2014.

MAFRA, O. Y. **Técnicas e medidas nucleares**. 1. ed. São Paulo: Edgar Blücher, 1973.

- MAHIQUES, M. M. et al. Hydrodynamically driven patterns of recent sedimentation in the shelf and upper slope off Southeast Brazil. **Continental Shelf Research**, v. 24, p. 1685-1697, 2004.
- MAHIQUES, M. M. et al. Anthropogenic influences in a lagoonal environment: a multiproxy approach at the Valo Grande mouth, Cananéia-Iguape System (SE Brazil). **Brazilian Journal of Oceanography**, v. 57, n. 4, p. 325-337, 2009.
- MAHIQUES, M. M. et al. 150 years of anthropogenic metal input in a Biosphere Reserve: the case study of the Cananéia-Iguape coastal system, Southeastern Brazil. **Environmental Earth Science**, v. 68, p. 1073-1087, 2013.
- MARTINI, E. Standart Tertiary and Quaternary calcareous nannoplankton zonation. In: FARINACCI, A. **Proceedings of the Second Planktonic Conference**. Roma: Edizioni Tecnoscienza, v. 2, 1971. p. 739-785.
- MATISHOV, G. G. et al. Artificial radionuclides in sediments of the Don River Estuary and Azov Sea. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 59, p. 309-327, 2002.
- MATTHEWS, K. M. **Radioactive fallout in the South Pacific: a history**, part 2: radioactivity measurements in the Pacific Islands. National Radiation Laboratory. Christchurch, p. 122. 1992.
- MEIJER, R. J.; DONOGHUE, J. E. Radiometric fingerprinting of sediments on the Dutch, German and Danish coasts. **Quaternary International**, v. 26, p. 43-47, 1995.
- MILANKOVITCH, M. **Canon of insolation and the Ice Age problem**. 1. ed. Belgrado: Agency for Textbooks, 1941.
- MIRANDA, L. B.; CASTRO, B. M. **Condições oceanográficas no Canal de Bertiooga**. FUNDESPA. São Paulo. 1998.
- MULLER, R. A.; MACDONALD, G. J. Simultaneous presence of orbital inclination and eccentricity in proxy climate records from Ocean Drilling Program Site 806. **Geology**, v. 25, p. 3-6, 1997a.
- MULLER, R. A.; MACDONALD, G. J. Reply to comment on: "Simultaneous presence of orbital inclination and eccentricity in proxy climate records from Ocean Drilling Program Site 806", by Schultz, M.; Mudelsee, M. **Geology**, v. 25, p. 861-862, 1997b.
- NAGAI, R. H. et al. Hydrodynamic controls on the distribution of surface sediments from the southeast South American continental shelf between 23°S and 38°S. **Continental Shelf Research**, v. 89, p. 51-60, 2014.
- NATIONAL RESOURCES DEFENSE COUNCIL. Archive of nuclear data. **NRDC**, 2002. Disponível em: <<http://www.nrdc.org/nuclear/nudb/datab15.asp>>. Acesso em: 28 Maio 2016.

NERY, J. R. C.; BONOTTO, D. M. ^{210}Pb and composition data of near-surface sediments and interstitial waters evidencing anthropogenic inputs in Amazon River mouth, Macapá, Brazil. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 102, p. 348-362, 2011.

NEVES, P. A. et al. Radioanalytical assessment of sedimentation rates in Guajará Bay (Amazon Estuary, N Brazil): a study with unsupported ^{210}Pb and ^{137}Cs modeling. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 299, p. 407-414, 2014.

NISHIZAKI, C. **Caracterização do Último Interglacial sensu lato com base em geoquímica e foraminíferos bentônicos na margem continental sudeste brasileira**. Dissertação de mestrado. São Paulo: Universidade de São Paulo, 2013.

NOLLER, J. S. Lead-210 geochronology. In: NOLLER, J. S.; SOWERS, J. M.; LETTIS, W. R. **Quaternary geochronology: methods and applications**. 1. ed. Washington: AGU Press, v. 4, 2000. Cap. 9, p. 115-120.

NYFFELER, F. et al. Radionuclides in the Atlantic Ocean: a survey. In: GUÉGUÉNIAT, P.; GERMAIN, P.; MÉTIVER, H. **Radionuclides in the ocean: inputs and inventories**. 1. ed. Les Ulis: EDP Sciences, 2003. Cap. 1, p. 1-28.

OKLAHOMA GEOLOGICAL SURVEY. Catalog of nuclear explosions. **University of Oklahoma**, 2014. Disponível em: <<http://www.okgeosurvey1.gov/level2/nuke.cat.index.html>>. Acesso em: 12 Março 2016.

OLIVEIRA, M. L. J. et al. Mercúrio total em solos de manguezais da Baixada Santista e Ilha do Cardoso, Estado de São Paulo. **Química Nova**, v. 30, n. 3, p. 519-524, 2007.

OPDYKE, N. D.; CHANNELL, J. G. **Magnetic stratigraphy**. 1. ed. Cambridge: Academic Press, 1996.

PETERSON, L. E. **Gamma-ray spectroscopy: an historical perspective**. AIP Conference Proceedings. Washington: AIP Publishing. 1988.

PICCIOTTO, E.; WILGAIN, S. Thorium determination in deep-sea sediments. **Nature**, v. 173, p. 632-633, 1954.

PICHAT, S. et al. Lower export production during glacial periods in the equatorial Pacific derived from $(^{231}\text{Pa}/^{230}\text{Th})_{\text{xs},0}$ measurements in deep-sea sediments. **Paleoceanography**, v. 19, n. PA4023, p. 1-21, 2004.

PIVEL, M. A. G. et al. The Holocene onset in the southwestern South Atlantic. **Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology**, v. 374, p. 164-172, 2013.

POVINEC, P. P.; BURNETT, W. C.; OLIVEIRA, J. Submarine groundwater discharge studies along the Ubatuba coastal area in south-eastern Brazil. **Estuarine, Coastal and Shelf Research**, v. 76, p. 455-456, 2008.

PUTYRSKYA, V.; KLEMT, E.; RÖLLIN, S. Migration of ^{137}Cs in tributaries, lake water and sediment of Lago Maggiore (Italy, Switzerland): analysis and comparison with Lago di Lugano and other lakes. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 100, p. 35-48, 2009.

RANKAMA, K. **Isotope geology**. 1. ed. Oxford: Pergamon Press, 1954.

REYSS, J. L.; YOKOYAMA, Y.; DUPLESSY, J. C. A rapid determination of oceanic sedimentation rates by non-destructive gamma-gamma coincidence spectrometry. **Deep-Sea Research**, v. 25, p. 491-498, 1978.

RIO, D. et al. The Gelasian Stage (Upper Pliocene): a new unit of the Global Standard Chronostratigraphic Scale. **Episodes**, v. 21, n. 2, p. 82-87, 1998.

ROBBINS, J. A.; EDGINGTON, D. N. Determination of recent sedimentation rates in Lake Michigan using Pb-210 and Cs-137. **Geochimica et Cosmochimica Acta**, v. 39, p. 285-304, 1975.

ROMANI, C. O discurso cultural e ambientalista das comunidades de pescadores caiçaras na luta pela terra: uma análise histórica do conflito ambiental no canal de Bertioga, na Baixada Santista. **História Oral**, v. 2, n. 14, p. 31-62, 2011.

RUBIO, L. et al. Sediment accumulation rate and radiological characterisation of the sediment of Palmones River estuary (southern of Spain). **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 65, p. 267-280, 2003.

RUSSO, A. C. **Avaliação da biodisponibilidade dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb presentes nos fertilizantes fosfatados e no fosfogesso de procedência nacional**. Dissertação de mestrado. São Paulo: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, 2013.

SAITO, R. T. et al. ^{210}Pb and ^{137}Cs geochronologies in the Cananeia-Iguape Estuary (São Paulo, Brazil). **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 249, n. 1, p. 257-261, 2001.

SAITO, R. T. et al. ^{210}Pb and ^{210}Po levels in sediments, water, and bioindicators in the Cananeia-Iguape estuary - Sao Paulo - Brazil. **Czechoslovak Journal of Physics**, v. 53A, p. 75-81, 2003.

SANDERS, C. J. et al. Mercury flux to estuarine sediments, derived from Pb-210 and Cs-137 geochronologies (Guaratuba Bay, Brazil). **Marine Pollution Bulletin**, v. 52, p. 1085-1089, 2006.

SANDERS, C. J. et al. Recent ^{137}Cs deposition in sediments of Admiralty Bay, Antarctica. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 101, p. 421-424, 2010.

SANTOS, I. R.; BURNETT, W. C.; GODOY, J. M. Radionuclides as tracers of coastal processes in Brazil: review, synthesis, and perspectives. **Brazilian Journal of Oceanography**, v. 56, n. 2, p. 115-131, 2008.

- SANTOS, T. P. et al. Prolonged warming of the Brazil Current precedes deglaciations. **Earth and Planetary Science Letters**, v. 463, p. 1-12, 2017.
- SARTORETTO, J. R. **Histórico da atividade antrópica no Sistema Estuarino Santos e São Vicente**. Dissertação de mestrado. São Paulo: Universidade de São Paulo, 2014.
- SAUEIA, C. H.; MAZZILLI, B. P. Distribution of natural radionuclides in the protection and the use of phosphate fertilizers in Brazil. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 89, p. 229-239, 2006.
- SCHAEFFER-NOVELLI, Y. **Rompimento do oleoduto: avaliação de impacto ambiental**. Canal de Bertioga, São Paulo - Brasil. Perícia de Juízo. Ministério Público do Estado de São Paulo. 1986.
- SCHUILING, R. D. et al. Grain size distribution of different minerals in a sediment as a function of their specific activity. **Geologie en Mijnbouw**, v. 64, p. 199-203, 1985.
- SCHULL, W. J. **Effects of atomic radiation: a half-century of studies from Hiroshima and Nagasaki**. 1. ed. Hoboken: John Wiley & Sons, 1995.
- SHUKLA, B. S. **Transport of pesticides from watershed by volatilization, infiltration and runoff (models and applications)**. Hamilton: Environmental Research & Publications, 1996.
- SHULTIS, J. K.; FAW, R. E. **Fundamentals of nuclear science and engineering**. 2. ed. Boca Ratón: CRC Press, 2007.
- SMART, P. L.; FRANCES, P. D. **Quaternary dating methods: a user's guide**. 1. ed. Cambridge: Quaternary Research Association, 1991.
- SOUSA, S. H. M. et al. Environmental evolution of the Caravelas Estuary (northeastern Brazilian coast, 17° S, 39° W) based on multiple proxies in a sedimentary record of the last century. **Journal of Coastal Research**, v. 30, n. 3, p. 474-486, 2014.
- SOUZA, L. A. P. **A planície costeira Cananéia-Iguape, litoral sul do Estado de São Paulo: um exemplo de utilização de métodos geofísicos no estudo de áreas costeiras**. Dissertação de mestrado. São Paulo: Universidade de São Paulo, 1995.
- SOVACOOOL, B. K. Valuing the greenhouse gas emissions from nuclear power: a critical survey. **Energy Policy**, v. 36, p. 2940-2953, 2008.
- STEFFEN, W.; CRUTZEN, P. J.; MCNEILL, J. R. The Anthropocene: are humans now overwhelming the great forces of Nature? **Ambio**, v. 36, p. 614-621, 2007.
- SU, C. C.; HUH, C. A. ^{210}Pb , ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ in East China Sea sediments: sources, pathways and budgets of sediments and radionuclides. **Marine Geology**, v. 183, p. 163-178, 2002.

SUGUIO, K. **Introdução à sedimentologia**. 1. ed. São Paulo: Edgard-Blucher, 1973.

SUGUIO, K. **Geologia sedimentar**. 1. ed. São Paulo: Edgard-Blucher, 2003.

SUGUIO, K.; MARTIN, L. **Formações quaternárias marinhas do litoral paulista e fluminense**. Proceedings of the '78 International Symposium on Coastal Evolution in the Quaternary. São Paulo: Sociedade Brasileira de Geologia. 1978.

SUMAN, D. O.; BACON, M. P. Variations in Holocene sedimentation in the North American Basin determined from ^{230}Th measurements. **Deep-Sea Research**, v. 36, n. 6, p. 869-878, 1989.

TANG, Y. et al. Late Quaternary tectonics of the Pearl River Delta, SE China: evidence from Xilingang. **Geodinamica Acta**, v. 24, n. 3-4, p. 133-139, 2011.

TAYLOR, B.; HAYES, D. E. The tectonic evolution of the South China Sea Basin. In: AGU Meeting, **The tectonic and geologic evolution of southeast Asian seas and islands**. Washington: AGU Press, 1980. p. 89-104.

TAYLOR, R. **Radiocarbon dating: an archaeological perspective**. 2. ed. Amsterdã: Academic Press, 2012.

TEIXEIRA, W. et al. **Decifrando a Terra**. 2. ed. São Paulo: Companhia Editora Nacional, 2009.

TESSLER, M. G. et al. Sedimentation rates and contamination levels by heavy metals at the shallow sedimentary columns from Santos Estuary and Bay, SP, Brazil. **Journal of Coastal Research**, v. SI 39, p. 713-717, 2006.

TESSLER, M. G. **Taxa de sedimentação holocênica na Plataforma Continental do Estado de São Paulo**. Tese de livre-docência. São Paulo: Universidade de São Paulo, 2001.

TOLEDO, F. A. L. et al. Plankton biochronology for the last 772,000 years from the western South Atlantic Ocean. **Marine Micropaleontology**, v. 127, p. 50-62, 2016.

TRIBOVILLARD, N. et al. Trace metals as paleoredox and paleoproductivity proxies: an update. **Chemical Geology**, v. 232, p. 12-32, 2006.

UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION. **Ionizing radiation: sources and biological effects**. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Nova Iorque, p. 36. 1982.

UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION. **Sources and effects of ionizing radiation**. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Nova Iorque, p. 11. 2000.

UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY. **Requirements for quality assurance project plans**. 1. ed. Washington: Office of Environmental Information, v. QA/R-5, 2001.

VEEH, H. H.; MCCORKLE, D. C.; HEGGIE, D. T. Glacial/interglacial variations of sedimentation on the West Australian continental margin: constraints from excess ^{230}Th . **Marine Geology**, v. 166, p. 11-30, 2000.

WADE, B. S. et al. Review and revision of Cenozoic tropical planktonic foraminiferal biostratigraphy and calibration to the geomagnetic polarity and astronomical times scale. **Earth-Science Reviews**, v. 104, n. 1-3, p. 111-142, 2011.

WALKER, M. **Quaternary dating methods**. 1. ed. Chichester: John Wiley & Sons, 2005.

WANG, C. Y. **Geochemistry of uranium and thorium isotopes in marine sediments off Taiwan and northern South China Sea**. Dissertação de mestrado. Kaohsiung (Taiwan): Universidade Nacional Sun Yat-sen, 2003.

WANG, L. et al. East Asian monsoon climate during the Late Pleistocene: high-resolution sediment records from the South China Sea. **Marine Geology**, v. 156, n. 1-4, p. 245-284, 1999.

WANG, P.; LI, Q.; TIAN, J. Pleistocene paleoceanography of the South China Sea: progress over the past 20 years. **Marine Geology**, v. 352, p. 381-396, 2014.

WANG, R.; ABELMANN, A. Pleistocene radiolarian biostratigraphy in the South China Sea. **Science in China (Series D)**, v. 42, n. 5, p. 537-543, 1999.

WATERS, C. N. et al. A stratigraphical basis for the Anthropocene? **Geological Society**, v. 395, p. 1-21, 2014.

WATERS, C. N. et al. Can nuclear weapons fallout mark the beginning of the Anthropocene Epoch? **Bulletin of Atomic Scientists**, v. 71, n. 3, p. 46-57, 2015.

WETHERILL, G. W.; ALDRICH, L. T.; DAVIS, G. L. Ar-40/K-40 ratios of feldspars and micas from the same rock. **Geochimica et Cosmochimica Acta**, v. 8, p. 171-172, 1955.

WOLFE, A. P.; HOBBS, W. O.; BIRKS, H. H. Stratigraphic expressions of the Holocene-Anthropocene transition revealed in sediments from remote lakes. **Earth Science Reviews**, v. 116, p. 17-34, 2013.

WRIGHT, J. D. Global climate change in Marine Stable Isotope records. In: NOLLER, J. S.; SOWERS, J. M.; LETTIS, W. R. **Quaternary geochronology: methods and applications**. 1. ed. Washington: AGU Press, v. 4, 2000. p. 427-433.

XU, Z. et al. Pb-210 and Cs-137 distribution in Burullus lagoon sediments of Nile river delta, Egypt: sedimentation rate after Aswan High Dam. **Frontiers of Earth Science in China**, v. 2, n. 4, p. 434-438, 2008.

YAMADA, M.; AONO, T. ^{238}U , Th isotopes, ^{210}Pb and $^{239+240}\text{Pu}$ in settling particles on the continental margin of the East China Sea: Fluxes and particle transport processes. **Marine Geology**, v. 227, p. 1-21, 2006.

ZABORSKA, A.; WINOGRADOW, A.; PEMPKOWIAK, J. Caesium-137 distribution, inventories and accumulation history in the Baltic Sea. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 127, p. 11-25, 2014.

ZALASIEWICZ, J. et al. Stratigraphy of the Anthropocene. **Philosophical transactions of the Royal Society A**, v. 369, p. 1036-1055, 2011.

ZALASIEWICZ, J. et al. When did the Anthropocene begin? A mid-twentieth century boundary level is stratigraphically optimal. **Quaternary International**, v. 383, p. 196-203, 2014.

ZALASIEWICZ, J.; WILLIAMS, M.; STEFFEN, W. & C. P. J. Response to "The Anthropocene forces us to reconsider adaptationist models of human-environment interactions". **Environmental Science Technology**, v. 44, n. 16, p. 6008, 2010.

ZERFASS, G. S. A.; ANDRADE, E. J. Foraminíferos e bioestratigrafia: uma abordagem didática. **Terra Didática**, v. 3, n. 1, p. 18-35, 2008.

ZHANG, Y. G. et al. Mid-Pliocene Asian monsoon intensification and the onset of Northern Hemisphere glaciation. **Geology**, v. 37, p. 599-602, 2009.

ZHAO, M. et al. A millennial-scale U37K' sea-surface temperature record from the South China Sea (8°N) over the last 150 kyr: monsoon and sea-level influence. **Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology**, v. 236, p. 39-55, 2006.

A N E X O S

Anexo 1. Atividades para os testemunhos analisados.
Anexo 2. Publicações geradas diretamente com os resultados deste trabalho.

1. Atividades para os testemunhos analisados. Valores em Bq kg⁻¹ (* = valores em mBq cm⁻³).

Testemunho A1	
z	¹³⁷ Cs*
0	< AMD
2	1,65 ± 0,12
4	1,88 ± 0,14
6	1,84 ± 0,14
8	3,37 ± 0,25
10	2,56 ± 0,19
14	1,12 ± 0,08
16	2,69 ± 0,20
18	2,60 ± 0,20
20	0,80 ± 0,06
22	2,56 ± 0,19
24	1,80 ± 0,13

Testemunho A2	
z	¹³⁷ Cs*
0	< AMD
2	0,27 ± 0,01
4	< AMD
6	0,42 ± 0,02
8	0,61 ± 0,03
10	0,84 ± 0,04
12	0,80 ± 0,04
14	0,46 ± 0,02
16	0,58 ± 0,03
18	< AMD

Testemunho A3	
z	¹³⁷ Cs*
0	1,02 ± 0,04
2	< AMD
4	1,89 ± 0,07

Testemunho A3	
z	¹³⁷Cs*
6	2,13 ± 0,08
8	1,42 ± 0,06
12	< AMD
14	0,39 ± 0,02
16	0,56 ± 0,02
18	0,54 ± 0,02

Testemunho A4	
z	¹³⁷Cs*
0	< AMD
2	0,39 ± 0,02
4	0,57 ± 0,03
6	< AMD
8	0,64 ± 0,03
10	0,97 ± 0,05
12	< AMD
14	0,95 ± 0,05
16	0,71 ± 0,04
18	0,59 ± 0,03

Testemunho B1	
z	¹³⁷Cs*
1	< AMD
5	0,54 ± 0,08
9	< AMD
13	< AMD
17	< AMD
21	1,18 ± 0,15
25	< AMD
29	0,25 ± 0,04
33	0,24 ± 0,03
41	0,24 ± 0,03
46	< AMD
51	< AMD
66	0,38 ± 0,05

Testemunho C1	
z	¹³⁷Cs*
0	0,89 ± 0,10
2	0,71 ± 0,08
4	< AMD
6	1,83 ± 0,19
8	0,32 ± 0,04
10	0,55 ± 0,06
12	1,13 ± 0,12
14	1,52 ± 0,17
16	0,49 ± 0,06
18	1,65 ± 0,12
20	1,24 ± 0,10
24	2,22 ± 0,16
28	2,42 ± 0,14
32	2,38 ± 0,11
36	4,99 ± 0,22
42	1,88 ± 0,09
50	4,06 ± 0,21
60	< AMD

Testemunho C2	
z	¹³⁷Cs*
0	0,62 ± 0,11
2	< AMD
4	< AMD
6	0,96 ± 0,17
8	0,74 ± 0,13
12	1,13 ± 0,20
16	0,78 ± 0,14
22	1,03 ± 0,17
24	< AMD
28	< AMD
30	1,08 ± 0,16
32	< AMD
36	< AMD
40	< AMD
48	1,88 ± 0,23
52	< AMD
56	2,73 ± 0,37
60	2,84 ± 0,36
70	1,63 ± 0,19
80	1,65 ± 0,23

90	< AMD
100	1,09 ± 0,15

Testemunho C3	
z	¹³⁷ Cs*
2	< AMD
4	0,36 ± 0,03
6	< AMD
8	< AMD
10	1,76 ± 0,11
12	2,00 ± 0,11
14	1,94 ± 0,11
16	0,97 ± 0,06
18	1,09 ± 0,07
20	3,33 ± 0,19
22	1,94 ± 0,13
24	2,97 ± 0,18
26	3,64 ± 0,22
28	< AMD
32	4 ± 0,24
34	2,91 ± 0,15
36	3,21 ± 0,19
38	5,58 ± 0,31
50	2,97 ± 0,16
60	2,85 ± 0,16
70	0,97 ± 0,07
90	1,39 ± 0,08

Testemunho D1			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
0	38,82 ± 2,71	30,61 ± 3,95	< AMD
2	40,58 ± 2,78	39,61 ± 3,81	1,65 ± 0,12
4	56,69 ± 4,01	57,00 ± 5,55	1,88 ± 0,14
6	44,78 ± 3,14	29,35 ± 3,52	1,84 ± 0,14
8	66,67 ± 4,70	42,77 ± 5,05	3,37 ± 0,25
10	30,97 ± 2,15	24,74 ± 3,05	2,56 ± 0,19
12	62,77 ± 4,42	19,92 ± 2,89	1,12 ± 0,08
14	33,15 ± 2,43	26,84 ± 3,14	2,69 ± 0,20
16	51,94 ± 3,51	38,41 ± 4,36	2,60 ± 0,20
18	28,90 ± 2,08	29,86 ± 3,73	0,80 ± 0,06
20	39,72 ± 2,88	30,22 ± 3,69	2,56 ± 0,19

Testemunho D1			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
22	48,47 ± 3,74	51,97 ± 5,83	1,80 ± 0,13
25	44,52 ± 3,14	25,09 ± 3,22	0,98 ± 0,07
26	59,21 ± 4,15	39,50 ± 4,37	4,10 ± 0,31
28	34,27 ± 2,55	7,40 ± 1,33	2,11 ± 0,16
30	22,16 ± 1,67	29,17 ± 3,56	3,38 ± 0,25
32	22,37 ± 1,72	13,84 ± 2,15	1,74 ± 0,13
34	42,74 ± 3,17	29,17 ± 3,81	2,07 ± 0,16
36	36,72 ± 2,76	17,56 ± 2,47	0,42 ± 0,03
38	41,75 ± 3,09	67,10 ± 5,16	1,22 ± 0,09
42	39,44 ± 2,68	37,56 ± 3,95	1,22 ± 0,09
46	25,77 ± 1,98	32,58 ± 3,68	3,43 ± 0,26
50	38,83 ± 2,99	28,53 ± 3,50	2,45 ± 0,18
54	49,84 ± 3,34	28,80 ± 3,44	2,40 ± 0,18
58	55,38 ± 3,79	27,27 ± 3,22	2,72 ± 0,20
60	30,60 ± 2,37	16,32 ± 2,33	1,33 ± 0,10
70	45,16 ± 3,16	23,42 ± 2,78	2,55 ± 0,19
80	33,46 ± 2,56	16,01 ± 2,21	1,64 ± 0,12
90	17,13 ± 1,23	30,75 ± 2,83	1,95 ± 0,15
100	20,66 ± 1,70	36,68 ± 3,79	0,48 ± 0,04
110	19,76 ± 1,57	45,97 ± 4,04	0,74 ± 0,06
120	31,45 ± 2,35	28,11 ± 3,19	0,68 ± 0,05
130	51,59 ± 3,57	21,92 ± 2,60	2,97 ± 0,22
140	33,15 ± 2,51	19,37 ± 2,62	1,54 ± 0,12
150	29,43 ± 2,23	16,28 ± 2,31	< AMD
160	54,41 ± 3,78	28,11 ± 3,19	0,43 ± 0,03

Testemunho D2			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
0	59,84 ± 3,44	29,75 ± 3,40	1,14 ± 0,08
2	68,24 ± 3,91	26,69 ± 3,46	1,73 ± 0,13
4	48,34 ± 3,14	41,03 ± 4,45	1,39 ± 0,10
6	72,63 ± 4,10	32,61 ± 3,91	0,19 ± 0,01
8	28,53 ± 2,14	57,40 ± 5,92	0,51 ± 0,04
10	38,27 ± 2,42	23,18 ± 2,93	0,94 ± 0,07
12	36,39 ± 2,53	21,79 ± 2,72	0,85 ± 0,06
14	55,14 ± 3,31	32,91 ± 3,79	1,08 ± 0,08
16	39,76 ± 2,51	20,24 ± 2,74	0,99 ± 0,07
18	26,61 ± 1,93	31,00 ± 3,76	2,19 ± 0,16
20	58,40 ± 3,52	28,24 ± 3,43	< AMD
22	29,25 ± 2,45	10,63 ± 1,91	< AMD
24	36,48 ± 2,75	< AMD	0,56 ± 0,04

Testemunho D2			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
26	19,72 ± 1,61	5,18 ± 1,05	1,03 ± 0,08
30	47,90 ± 2,88	15,42 ± 2,25	1,91 ± 0,14
32	29,70 ± 2,16	17,70 ± 2,84	0,34 ± 0,03
34	32,49 ± 2,32	32,48 ± 3,63	1,16 ± 0,08
36	28,29 ± 2,04	23,31 ± 3,08	0,81 ± 0,06
38	19,32 ± 1,89	17,93 ± 2,68	2,61 ± 0,19
40	2,81 ± 0,69	11,18 ± 1,79	0,56 ± 0,04
48	18,54 ± 1,41	25,63 ± 3,06	0,92 ± 0,07
52	28,79 ± 2,12	40,14 ± 4,03	0,99 ± 0,07
54	29,15 ± 2,11	34,44 ± 3,79	0,68 ± 0,05
56	35,27 ± 2,43	40,21 ± 4,45	1,08 ± 0,08
60	21,60 ± 1,58	17,90 ± 2,46	0,82 ± 0,06
70	22,71 ± 1,70	16,71 ± 2,63	2,52 ± 0,18
80	30,36 ± 2,12	32,62 ± 3,86	1,44 ± 0,11
90	28,30 ± 2,09	35,44 ± 4,18	0,28 ± 0,02
100	27,75 ± 2,09	47,87 ± 4,48	0,42 ± 0,03
110	12,98 ± 1,01	26,13 ± 3,56	0,94 ± 0,07
120	13,67 ± 1,07	10,71 ± 2,02	0,57 ± 0,04
130	23,06 ± 1,62	28,16 ± 3,27	7,23 ± 0,53

Testemunho D3			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
0	73,91 ± 2,03	34,26 ± 1,54	3,21 ± 0,25
2	54,18 ± 1,48	32,58 ± 1,37	2,10 ± 0,16
4	60,05 ± 1,61	30,01 ± 1,27	2,62 ± 0,20
6	36,41 ± 1,01	35,04 ± 1,43	3,04 ± 0,23
8	67,24 ± 1,80	42,29 ± 1,69	2,94 ± 0,23
10	54,43 ± 1,48	38,62 ± 1,54	2,70 ± 0,21
12	43,98 ± 1,19	19,71 ± 0,88	2,21 ± 0,17
14	< AMD	5,24 ± 0,27	< AMD
16	38,37 ± 1,07	20,46 ± 0,92	2,56 ± 0,20
18	16,50 ± 0,48	24,69 ± 1,10	1,11 ± 0,09
20	39,27 ± 1,10	15,96 ± 0,73	2,01 ± 0,15
22	57,04 ± 1,58	23,01 ± 0,99	1,75 ± 0,13
24	49,52 ± 1,36	27,45 ± 1,16	2,22 ± 0,17
26	49,42 ± 1,37	20,63 ± 0,92	1,26 ± 0,10
28	51,04 ± 1,40	24,45 ± 1,03	2,68 ± 0,21
30	50,09 ± 1,36	24,38 ± 1,04	1,63 ± 0,13
32	32,73 ± 0,91	32,06 ± 1,31	2,29 ± 0,18
34	35,79 ± 0,99	36,27 ± 1,49	2,52 ± 0,19
36	20,58 ± 0,57	30,10 ± 1,25	3,26 ± 0,25

Testemunho D3			
z	²¹⁰Pb	²²⁶Ra	¹³⁷Cs
38	29,82 ± 0,83	29,29 ± 1,23	2,23 ± 0,17
42	38,92 ± 1,08	46,42 ± 1,73	3,65 ± 0,28
46	31,95 ± 0,89	25,04 ± 1,07	1,63 ± 0,12
50	36,64 ± 1,02	25,53 ± 1,09	1,31 ± 0,10
54	37,26 ± 1,03	36,11 ± 1,43	2,44 ± 0,19
58	49,62 ± 1,33	36,84 ± 1,47	1,82 ± 0,14
80	33,95 ± 0,93	20,70 ± 0,92	< AMD
90	28,16 ± 0,78	28,26 ± 1,15	1,19 ± 0,09
100	32,62 ± 0,90	30,86 ± 1,26	3,17 ± 0,24
110	37,92 ± 1,02	33,38 ± 1,34	2,35 ± 0,18
120	34,27 ± 0,95	36,97 ± 1,47	2,98 ± 0,23
130	48,76 ± 1,31	32,81 ± 1,32	2,65 ± 0,20
140	55,77 ± 1,51	28,53 ± 1,19	2,39 ± 0,18
150	50,98 ± 1,38	40,46 ± 1,59	1,66 ± 0,13
160	34,92 ± 0,95	35,45 ± 1,39	1,44 ± 0,11
170	44,85 ± 1,20	39,16 ± 1,54	1,96 ± 0,15

Testemunho D4			
z	²¹⁰Pb	²²⁶Ra	¹³⁷Cs
0	61,63 ± 4,24	< AMD	3,21 ± 0,25
2	41,44 ± 2,72	22,84 ± 2,43	2,10 ± 0,16
4	36,58 ± 2,56	27,58 ± 3,02	2,62 ± 0,20
6	39,54 ± 2,71	34,72 ± 3,60	3,04 ± 0,23
8	32,60 ± 2,18	20,92 ± 2,17	2,94 ± 0,23
10	26,99 ± 1,92	34,30 ± 3,36	2,70 ± 0,21
12	52,39 ± 3,20	26,12 ± 2,86	2,21 ± 0,17
14	52,67 ± 3,65	17,67 ± 2,25	< AMD
16	30,46 ± 2,19	13,51 ± 1,77	2,56 ± 0,20
18	30,32 ± 2,11	30,41 ± 2,95	1,11 ± 0,09
20	25,34 ± 1,78	53,65 ± 4,60	2,01 ± 0,15
22	43,91 ± 2,98	29,50 ± 3,22	1,75 ± 0,13
24	29,47 ± 2,15	30,13 ± 2,84	2,22 ± 0,17
26	32,18 ± 2,32	42,68 ± 3,58	1,26 ± 0,10
28	46,75 ± 3,08	19,07 ± 2,26	2,68 ± 0,21
30	45,36 ± 3,19	23,99 ± 2,67	1,63 ± 0,13
32	48,82 ± 3,26	19,59 ± 2,25	2,29 ± 0,18
34	36,95 ± 2,62	23,99 ± 2,82	2,52 ± 0,19
36	45,56 ± 2,91	23,87 ± 2,67	3,26 ± 0,25
38	48,64 ± 3,11	31,70 ± 2,85	2,23 ± 0,17
40	30,27 ± 2,23	17,89 ± 2,09	3,65 ± 0,28
44	29,56 ± 2,07	26,48 ± 2,93	1,63 ± 0,12

Testemunho D4			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
48	31,94 ± 2,30	30,42 ± 3,15	1,31 ± 0,10
52	25,11 ± 1,72	13,67 ± 1,83	2,44 ± 0,19
56	49,20 ± 3,32	23,00 ± 2,70	1,82 ± 0,14
60	25,73 ± 1,77	21,87 ± 2,66	< AMD
70	37,34 ± 2,49	30,40 ± 3,21	1,19 ± 0,09
80	38,51 ± 2,59	30,33 ± 2,92	3,17 ± 0,24
90	27,02 ± 1,91	12,16 ± 1,68	2,35 ± 0,18
100	30,02 ± 2,13	19,68 ± 2,31	2,98 ± 0,23
110	34,78 ± 2,42	32,60 ± 3,22	2,65 ± 0,20
120	37,76 ± 2,53	20,34 ± 2,26	2,39 ± 0,18
130	46,48 ± 3,17	28,24 ± 2,85	1,66 ± 0,13
140	26,65 ± 1,87	19,66 ± 2,32	1,44 ± 0,11
150	37,45 ± 2,62	23,60 ± 2,61	1,96 ± 0,15

Testemunho D5			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
0	13,71 ± 0,42	35,93 ± 1,55	0,27 ± 0,02
2	44,30 ± 1,28	24,57 ± 1,07	3,18 ± 0,23
4	50,59 ± 1,46	41,49 ± 1,66	1,48 ± 0,11
6	55,05 ± 1,57	24,15 ± 1,08	2,01 ± 0,15
8	64,11 ± 1,81	23,52 ± 1,06	1,21 ± 0,09
10	47,34 ± 1,37	39,55 ± 1,58	2,97 ± 0,22
12	34,84 ± 1,03	24,13 ± 1,08	1,57 ± 0,11
14	53,87 ± 1,54	37,26 ± 1,49	2,10 ± 0,15
16	39,16 ± 1,14	32,43 ± 1,35	2,41 ± 0,17
18	30,89 ± 0,92	31,85 ± 1,35	1,45 ± 0,11
20	45,80 ± 1,32	33,55 ± 1,38	2,19 ± 0,16
22	49,53 ± 1,41	35,74 ± 1,41	0,83 ± 0,06
24	53,75 ± 1,52	32,50 ± 1,32	1,97 ± 0,14
26	48,73 ± 1,38	30,59 ± 1,22	3,18 ± 0,23
28	54,62 ± 1,57	25,45 ± 1,14	1,47 ± 0,11
30	30,79 ± 0,91	25,80 ± 1,14	1,98 ± 0,14
32	32,13 ± 0,95	24,65 ± 1,10	2,15 ± 0,16
34	21,73 ± 0,65	33,55 ± 1,38	1,79 ± 0,13
36	43,61 ± 1,27	29,18 ± 1,26	1,21 ± 0,09
38	51,36 ± 1,48	39,23 ± 1,58	2,30 ± 0,17
42	53,93 ± 1,53	44,02 ± 1,67	0,98 ± 0,07
46	38,63 ± 1,13	30,29 ± 1,29	2,46 ± 0,18
50	36,79 ± 1,09	41,80 ± 1,69	2,48 ± 0,18
54	42,20 ± 1,24	49,46 ± 1,92	1,15 ± 0,08
58	43,83 ± 1,28	37,58 ± 1,53	3,28 ± 0,24

Testemunho D5			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
60	47,19 ± 1,38	36,44 ± 1,55	3,37 ± 0,24
70	61,42 ± 1,76	31,73 ± 1,38	1,12 ± 0,08
80	47,43 ± 1,39	30,04 ± 1,33	1,75 ± 0,13
90	33,99 ± 1,00	30,04 ± 1,28	2,63 ± 0,19
102	45,81 ± 1,34	24,25 ± 1,12	2,20 ± 0,16
110	43,37 ± 1,27	29,10 ± 1,27	2,71 ± 0,20
120	19,31 ± 0,58	18,92 ± 0,88	0,86 ± 0,06
130	27,05 ± 0,81	21,85 ± 1,00	1,38 ± 0,10
140	33,54 ± 0,99	21,68 ± 0,98	1,21 ± 0,09

Testemunho D6			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
0	30,36 ± 2,46	26,57 ± 2,13	1,37 ± 0,11
2	24,28 ± 1,85	30,10 ± 2,2	2,56 ± 0,20
4	44,63 ± 3,13	22,57 ± 1,81	2,67 ± 0,21
6	34,11 ± 2,48	29,65 ± 2,05	1,68 ± 0,13
8	31,53 ± 2,38	29,79 ± 2,15	2,10 ± 0,17
10	37,51 ± 2,84	13,48 ± 1,18	1,83 ± 0,15
12	29,06 ± 2,21	18,78 ± 1,53	2,41 ± 0,19
14	30,75 ± 2,31	23,33 ± 1,92	2,43 ± 0,19
16	30,31 ± 2,51	41,94 ± 2,87	3,81 ± 0,30
18	29,11 ± 2,46	23,61 ± 2,03	2,68 ± 0,21
20	22,23 ± 1,90	31,82 ± 2,56	2,76 ± 0,22
22	26,36 ± 2,10	15,54 ± 1,42	2,56 ± 0,21
24	34,35 ± 2,59	18,51 ± 1,59	2,70 ± 0,22
26	39,49 ± 3,10	26,97 ± 2,20	3,72 ± 0,30
28	32,49 ± 2,58	49,63 ± 3,57	2,69 ± 0,22
30	19,80 ± 1,64	28,31 ± 2,39	2,91 ± 0,23
32	30,70 ± 2,67	39,36 ± 2,98	2,10 ± 0,17
34	22,73 ± 1,89	37,45 ± 2,56	3,48 ± 0,28
36	29,63 ± 2,29	35,15 ± 2,71	4,91 ± 0,39
38	24,78 ± 1,92	31,40 ± 2,24	2,27 ± 0,18
40	25,38 ± 2,05	46,09 ± 3,35	3,40 ± 0,27
44	32,59 ± 2,47	19,63 ± 1,67	2,93 ± 0,23
48	35,96 ± 2,49	41,90 ± 2,88	2,82 ± 0,23
52	29,52 ± 2,18	28,93 ± 2,17	1,38 ± 0,11
56	35,96 ± 2,60	21,51 ± 1,82	2,22 ± 0,18
60	29,37 ± 2,25	30,81 ± 2,34	3,10 ± 0,25
70	29,30 ± 2,20	32,68 ± 2,56	3,32 ± 0,27
80	26,19 ± 1,98	23,90 ± 1,86	2,97 ± 0,24
90	32,30 ± 2,56	28,36 ± 2,30	1,99 ± 0,16

Testemunho D6			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
100	27,38 ± 2,03	21,33 ± 1,78	1,86 ± 0,15
110	24,80 ± 1,82	30,00 ± 2,34	1,78 ± 0,14
120	31,29 ± 2,22	33,62 ± 2,52	3,69 ± 0,30
130	42,05 ± 2,89	31,07 ± 2,33	1,10 ± 0,09
140	39,56 ± 2,71	31,65 ± 2,43	3,04 ± 0,24

Testemunho D7			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
0	49,60 ± 1,37	32,24 ± 2,53	2,38 ± 0,18
2	54,88 ± 1,49	24,69 ± 1,98	3,30 ± 0,25
4	58,50 ± 1,56	33,71 ± 2,47	3,50 ± 0,26
6	44,89 ± 1,24	34,68 ± 2,78	4,90 ± 0,37
8	61,99 ± 1,61	14,57 ± 1,06	2,02 ± 0,15
10	54,06 ± 1,43	29,27 ± 2,20	2,48 ± 0,19
12	57,02 ± 1,49	23,85 ± 1,72	3,20 ± 0,24
14	59,26 ± 1,64	22,51 ± 1,90	2,36 ± 0,18
16	59,27 ± 1,56	25,76 ± 1,70	2,96 ± 0,22
18	62,63 ± 1,63	32,92 ± 2,53	3,68 ± 0,28
20	50,44 ± 1,37	27,12 ± 2,11	3,48 ± 0,26
22	49,02 ± 1,36	32,10 ± 2,51	5,15 ± 0,39
24	42,52 ± 1,18	39,26 ± 3,33	3,98 ± 0,30
26	47,02 ± 1,31	29,66 ± 2,22	5,41 ± 0,41
28	55,25 ± 1,50	29,86 ± 2,43	4,40 ± 0,33
30	40,44 ± 1,09	20,16 ± 1,49	2,96 ± 0,22
32	41,09 ± 1,11	25,92 ± 1,95	3,63 ± 0,27
34	42,53 ± 1,17	28,61 ± 2,40	1,83 ± 0,14
36	45,88 ± 1,26	27,63 ± 2,04	3,78 ± 0,29
38	33,27 ± 0,91	37,08 ± 2,47	3,22 ± 0,24
40	38,42 ± 1,07	21,84 ± 1,67	2,13 ± 0,16
44	34,35 ± 0,95	33,49 ± 2,49	2,64 ± 0,20
48	38,09 ± 1,06	31,00 ± 2,16	3,99 ± 0,30
52	33,39 ± 0,94	23,19 ± 1,81	3,58 ± 0,27
80	36,55 ± 1,05	30,16 ± 2,46	2,54 ± 0,19
90	32,91 ± 0,96	31,30 ± 2,33	2,38 ± 0,18
100	31,85 ± 0,91	39,92 ± 3,03	4,16 ± 0,31
110	18,15 ± 0,53	31,04 ± 2,19	1,59 ± 0,12
120	28,56 ± 0,81	38,15 ± 2,99	1,42 ± 0,11
130	27,10 ± 0,78	31,18 ± 2,25	3,46 ± 0,26
140	32,59 ± 0,93	27,49 ± 2,11	2,18 ± 0,16
150	34,07 ± 0,96	28,61 ± 2,01	1,76 ± 0,13

Testemunho D8			
z	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs
0	54,52 ± 3,30	21,02 ± 1,32	3,27 ± 0,23
2	77,40 ± 4,47	23,70 ± 1,61	5,43 ± 0,39
4	72,75 ± 4,44	18,23 ± 1,29	5,60 ± 0,40
6	37,46 ± 2,50	22,01 ± 1,61	4,12 ± 0,29
8	34,56 ± 2,38	23,21 ± 1,44	4,29 ± 0,31
12	30,22 ± 2,13	18,19 ± 1,24	3,97 ± 0,28
16	30,22 ± 2,10	19,44 ± 1,24	3,85 ± 0,27
18	23,64 ± 1,75	19,50 ± 1,41	3,38 ± 0,24
20	< AMD	15,86 ± 1,68	3,72 ± 0,27
22	25,87 ± 1,84	15,75 ± 1,19	3,95 ± 0,28
24	25,99 ± 1,83	18,59 ± 1,44	4,80 ± 0,34
26	10,69 ± 0,87	19,37 ± 1,33	4,18 ± 0,30
28	17,53 ± 1,43	20,00 ± 1,49	4,52 ± 0,32
30	32,49 ± 2,24	15,93 ± 1,23	5,28 ± 0,38
32	23,08 ± 1,66	17,32 ± 1,28	4,00 ± 0,29
34	33,55 ± 2,23	17,32 ± 1,27	4,46 ± 0,32
36	23,89 ± 1,66	12,19 ± 0,87	1,57 ± 0,11
40	14,01 ± 1,09	20,46 ± 1,60	5,46 ± 0,39
44	< AMD	23,26 ± 1,54	3,45 ± 0,25
48	28,96 ± 1,97	24,49 ± 1,57	1,76 ± 0,13
52	16,49 ± 1,31	24,40 ± 1,38	3,96 ± 0,28
78	13,39 ± 1,08	22,85 ± 1,40	3,06 ± 0,22
90	4,08 ± 0,36	27,16 ± 1,65	3,41 ± 0,24
100	15,18 ± 1,12	21,15 ± 1,48	3,82 ± 0,27
110	26,62 ± 1,86	25,13 ± 1,46	3,32 ± 0,24
120	20,60 ± 1,51	19,91 ± 1,35	2,41 ± 0,17
130	24,56 ± 1,78	17,61 ± 1,16	3,22 ± 0,23
140	16,55 ± 1,24	23,43 ± 1,52	1,47 ± 0,10
150	27,70 ± 2,00	27,40 ± 1,67	2,23 ± 0,16

Testemunho E1	
z	¹³⁷ Cs*
2	0,43 ± 0,03
4	2,50 ± 0,13
6	< AMD
8	1,99 ± 0,11
10	3,43 ± 0,18
12	< AMD
14	4,22 ± 0,18
16	2,96 ± 0,12
18	3,38 ± 0,15

Testemunho E1	
z	¹³⁷Cs*
20	4,76 ± 0,19
22	< AMD
26	4,52 ± 0,15
28	4,82 ± 0,15
30	< AMD
34	< AMD
38	5,99 ± 0,21
46	< AMD
50	5,66 ± 0,14
54	< AMD
58	3,09 ± 0,10
62	3,55 ± 0,09
78	0,46 ± 0,02

Testemunho E2	
z	¹³⁷Cs*
26	1,86 ± 0,03
28	2,70 ± 0,04
30	< AMD
32	< AMD
34	3,87 ± 0,07
36	< AMD
38	< AMD
40	4,70 ± 0,08
44	< AMD
54	< AMD
58	6,56 ± 0,18
60	< AMD
70	3,72 ± 0,10
80	3,80 ± 0,07
100	1,53 ± 0,04

Testemunho E3	
z	¹³⁷Cs*
1	1,04 ± 0,02
3	< AMD
5	< AMD
7	1,06 ± 0,02
8	1,72 ± 0,03

Testemunho E3	
z	¹³⁷Cs*
9	2,14 ± 0,03
10	2,70 ± 0,04
11	3,26 ± 0,05
12	3,59 ± 0,06
13	2,43 ± 0,04
15	4,58 ± 0,06
17	< AMD
19	< AMD
21	4,42 ± 0,06
23	3,93 ± 0,05
25	< AMD
27	4,21 ± 0,07
29	4,95 ± 0,07
33	5,72 ± 0,08
37	< AMD
39	5,65 ± 0,09
43	3,91 ± 0,08
47	< AMD
51	2,74 ± 0,05
55	2,42 ± 0,03
59	< AMD
63	1,40 ± 0,03
71	2,01 ± 0,05
75	1,12 ± 0,03

Testemunho E4	
z	¹³⁷Cs*
0	2,24 ± 0,12
4	2,18 ± 0,13
8	< AMD
12	< AMD
14	2,48 ± 0,11
16	< AMD
18	3,14 ± 0,14
20	1,91 ± 0,08
24	< AMD
26	2,97 ± 0,15
28	2,45 ± 0,14
30	< AMD
32	2,68 ± 0,14
34	3,28 ± 0,17

Testemunho E4	
z	¹³⁷Cs*
36	3,82 ± 0,20
38	3,83 ± 0,20
42	4,78 ± 0,27
46	< AMD
54	3,77 ± 0,18
58	4,08 ± 0,18
68	3,39 ± 0,17
78	4,64 ± 0,22
88	3,35 ± 0,17
98	< AMD
108	3,57 ± 0,17
118	1,83 ± 0,09

Testemunho E5	
z	¹³⁷Cs*
18	3,46 ± 0,10
20	< AMD
22	< AMD
24	4,00 ± 0,09
26	4,39 ± 0,11
28	4,97 ± 0,14
30	4,34 ± 0,12
32	< AMD
34	< AMD
36	< AMD
38	6,46 ± 0,15
40	5,10 ± 0,17
46	< AMD
50	< AMD
54	4,11 ± 0,14
58	4,36 ± 0,15
68	4,11 ± 0,14
78	< AMD
88	3,28 ± 0,11

Testemunho F1	
z	¹³⁷Cs*
0	1,30 ± 0,13
2	0,93 ± 0,10

Testemunho F1	
z	¹³⁷Cs*
4	< AMD
6	1,10 ± 0,11
8	1,97 ± 0,18
11	2,32 ± 0,18
14	< AMD
17	1,18 ± 0,10
20	1,90 ± 0,15
23	0,81 ± 0,07
26	1,37 ± 0,11

Testemunho F2	
z	¹³⁷Cs*
0	1,82 ± 0,11
2	< AMD
4	1,98 ± 0,13
6	< AMD
8	2,54 ± 0,17
10	2,91 ± 0,21
12	2,28 ± 0,16
14	2,54 ± 0,18
16	3,61 ± 0,24
20	< AMD
24	< AMD
26	2,60 ± 0,15
28	2,30 ± 0,14
30	2,98 ± 0,17
32	1,83 ± 0,11
34	1,47 ± 0,09
36	1,42 ± 0,09

Testemunho F3	
z	¹³⁷Cs*
8	0,11 ± 0,02
11	0,45 ± 0,09
13	0,15 ± 0,03
16	0,70 ± 0,13
19	0,54 ± 0,10

Testemunho F3	
z	¹³⁷ Cs*
22	1,60 ± 0,27
25	0,75 ± 0,12
27	0,86 ± 0,14

Testemunho G1	
z	¹³⁷ Cs*
0	1,41 ± 0,10
2	2,28 ± 0,16
3	2,29 ± 0,16
4	< AMD
6	< AMD
8	3,17 ± 0,22
9	5,36 ± 0,35
10	< AMD
12	< AMD
13	5,56 ± 0,38
14	3,65 ± 0,25
15	2,26 ± 0,15
16	1,57 ± 0,11
17	1,52 ± 0,11

Testemunho KF16			
z	²³⁰ Th	²³² Th	²³⁴ U
0	32,10 ± 1,66	62,58 ± 4,93	76,15 ± 3,38
10	57,49 ± 3,10	63,10 ± 4,99	63,15 ± 2,87
30	14,12 ± 0,72	34,94 ± 3,05	70,10 ± 3,29
60	44,02 ± 2,23	48,53 ± 4,02	29,83 ± 1,48
110	33,28 ± 1,65	59,12 ± 4,75	15,63 ± 0,82
180	21,99 ± 0,94	39,34 ± 2,86	30,39 ± 1,28
190	35,56 ± 1,53	64,43 ± 4,3	48,05 ± 1,95
219	21,90 ± 0,94	45,27 ± 3,22	59,06 ± 2,3
260	38,39 ± 1,64	53,29 ± 3,66	41,42 ± 1,69
300	30,40 ± 1,31	40,18 ± 2,91	18,71 ± 0,81
340	25,63 ± 1,10	40,84 ± 2,94	37,37 ± 1,53
370	18,75 ± 0,77	42,04 ± 3,02	36,94 ± 1,51
420	41,62 ± 1,74	48,14 ± 3,40	57,57 ± 2,26
440	< AMD	54,07 ± 3,73	60,78 ± 2,37
480	10,24 ± 0,44	73,77 ± 4,76	62,46 ± 2,41
520	23,75 ± 0,99	44,65 ± 3,19	44,60 ± 1,79

Testemunho KF16			
z	²³⁰ Th	²³² Th	²³⁴ U
570	49,14 ± 2,07	58,56 ± 3,98	97,85 ± 3,51
600	10,01 ± 0,41	45,01 ± 3,19	82,81 ± 3,18
610	31,17 ± 1,34	26,78 ± 2,05	42,87 ± 1,75
630	53,06 ± 2,26	49,78 ± 3,49	67,39 ± 2,72
660	1,49 ± 0,06	38,57 ± 2,82	112,77 ± 4,33
680	61,03 ± 2,61	70,94 ± 4,64	45,36 ± 1,85
690	63,66 ± 2,73	47,53 ± 3,34	56,26 ± 2,22
730	10,19 ± 0,43	55,92 ± 3,82	105,37 ± 3,9
740	28,77 ± 1,23	57,91 ± 3,92	12,16 ± 0,53
790	34,56 ± 1,45	64,63 ± 4,28	50,15 ± 2,01
810	34,71 ± 1,43	36,14 ± 2,66	99,04 ± 3,89
850	67,13 ± 2,95	79,47 ± 5,96	105,6 ± 4,34
880	66,96 ± 2,77	50,76 ± 3,52	44,08 ± 1,85
891	55,75 ± 2,32	63,8 ± 4,25	34,49 ± 1,42
920	25,92 ± 1,09	35,97 ± 2,64	51,54 ± 2,05
940	38,97 ± 1,69	58,77 ± 3,97	88,99 ± 3,19
950	71,71 ± 2,99	49,43 ± 3,46	96,15 ± 5,07

Testemunho KF18			
z	²³⁰ Th	²³² Th	²³⁴ U
0	128,33 ± 11,54	35,44 ± 2,13	79,59 ± 5,10
22	107,01 ± 10,25	109,97 ± 6,55	83,51 ± 5,30
46	40,02 ± 2,33	34,27 ± 1,02	50,17 ± 1,59
81	53,42 ± 6,75	77,97 ± 4,61	54,07 ± 3,58
141	94,39 ± 9,19	74,96 ± 4,66	94,58 ± 6,12
183	71,33 ± 3,39	68,42 ± 1,84	48,34 ± 1,45
218	64,41 ± 5,99	84,67 ± 4,61	82,49 ± 4,82
268	47,98 ± 6,03	101,8 ± 6,11	41,22 ± 2,79
325	47,02 ± 2,62	51,40 ± 1,43	25,85 ± 0,83
358	52,42 ± 5,40	74,18 ± 3,78	49,14 ± 3,09
373	83,75 ± 7,03	81,67 ± 4,48	94,47 ± 5,23
428	71,21 ± 7,63	84,32 ± 5,03	108,16 ± 6,74
503	55,36 ± 6,57	73,08 ± 4,42	127,40 ± 7,65
588	93,74 ± 7,28	53,52 ± 3,14	58,17 ± 3,42
611	51,93 ± 5,48	59,88 ± 3,32	61,24 ± 3,77
636	45,56 ± 5,06	81,73 ± 4,44	70,21 ± 4,11
691	56,33 ± 2,92	50,34 ± 1,41	63,74 ± 1,87
701	82,32 ± 8,66	59,29 ± 3,56	106,15 ± 6,58
781	43,44 ± 5,36	47,97 ± 2,80	89,2 ± 5,57
846	42,62 ± 5,33	44,58 ± 2,83	109,81 ± 6,96
961	45,27 ± 4,98	44,64 ± 2,51	78,53 ± 4,77

Testemunho KF18			
z	²³⁰ Th	²³² Th	²³⁴ U
1006	47,64 ± 2,66	40,64 ± 1,20	48,90 ± 1,43
1076	48,34 ± 5,02	62,58 ± 3,28	39,96 ± 2,60
1111	31,83 ± 4,33	85,05 ± 5,18	74,65 ± 4,68
1166	177,86 ± 14,01	148,58 ± 8,54	66,67 ± 4,40
1206	29,36 ± 4,08	80,71 ± 4,69	130,77 ± 7,47
1296	78,27 ± 8,06	93,50 ± 5,78	106,24 ± 6,72
1345	59,61 ± 6,92	35,85 ± 2,38	72,63 ± 4,79
1400	42,34 ± 5,29	89,12 ± 5,53	116,86 ± 6,98
1455	62,03 ± 7,12	44,98 ± 2,83	94,43 ± 5,97
1500	70,50 ± 7,63	68,22 ± 3,98	101,14 ± 6,65
1540	24,49 ± 3,55	76,49 ± 5,04	56,81 ± 3,91
1555	47,38 ± 5,29	62,36 ± 3,32	47,51 ± 2,91
1620	111,57 ± 8,53	50,68 ± 3,05	82,73 ± 4,75
1665	41,58 ± 2,38	57,13 ± 1,59	48,92 ± 1,47
1700	109,56 ± 10,29	62,36 ± 3,85	90,71 ± 5,62

Testemunho U1431			
z	²³⁰ Th	²³² Th	²³⁴ U
0	146,23 ± 10,42	4,42 ± 0,25	62,18 ± 1,40
149	237,74 ± 14,83	99,26 ± 5,26	108,99 ± 2,37
248	152,16 ± 9,81	19,20 ± 1,04	121,53 ± 2,55
321	19,90 ± 1,99	94,64 ± 4,64	63,51 ± 1,43
470	124,68 ± 8,22	110,79 ± 5,47	54,38 ± 1,23
620	103,43 ± 7,48	23,85 ± 1,22	85,41 ± 1,88
770	36,46 ± 3,36	81,78 ± 4,00	78,77 ± 1,76
809	110,53 ± 7,82	65,64 ± 3,33	75,74 ± 1,68
869	14,81 ± 1,53	31,42 ± 1,73	26,56 ± 0,61
920	28,50 ± 2,88	43,23 ± 2,25	57,18 ± 1,30
960	67,21 ± 5,50	35,42 ± 1,91	68,65 ± 1,52
1020	19,56 ± 1,95	85,00 ± 4,33	71,99 ± 1,64
1288	17,02 ± 1,73	85,51 ± 4,21	44,53 ± 1,02
1368	70,71 ± 5,68	65,52 ± 3,51	45,55 ± 1,02
1428	70,33 ± 5,86	55,86 ± 2,84	83,60 ± 1,90
1468	275,28 ± 15,03	110,08 ± 5,44	82,32 ± 1,83
1528	25,67 ± 2,58	47,85 ± 2,37	29,59 ± 0,69
1582	74,69 ± 5,88	92,03 ± 4,74	67,37 ± 1,53
1616	37,85 ± 3,57	38,58 ± 2,03	54,42 ± 1,24
1656	< AMD	< AMD	41,62 ± 0,96
1736	67,75 ± 5,58	41,79 ± 2,23	53,72 ± 1,22
1816	52,44 ± 4,53	58,58 ± 3,09	53,73 ± 1,23
1876	76,20 ± 6,11	62,45 ± 3,22	57,00 ± 1,29

Testemunho U1431			
z	²³⁰ Th	²³² Th	²³⁴ U
1913	77,44 ± 6,18	33,14 ± 1,83	81,46 ± 1,82
1976	77,82 ± 6,24	35,64 ± 1,88	70,36 ± 1,59
2040	12,65 ± 1,33	< AMD	39,43 ± 0,89
2120	32,26 ± 3,04	< AMD	63,9 ± 1,47
2141	84,24 ± 6,53	67,51 ± 3,45	69,95 ± 1,57

Testemunho U1432			
z	²³⁰ Th	²³² Th	²³⁴ U
61	46,20 ± 1,36	72,91 ± 2,87	54,10 ± 1,55
149	58,83 ± 1,66	61,68 ± 2,48	32,99 ± 0,94
226	86,45 ± 2,36	62,87 ± 2,54	39,18 ± 1,12
298	17,40 ± 0,49	77,24 ± 3,11	52,04 ± 1,49
360	68,83 ± 1,94	63,65 ± 2,55	49,76 ± 1,44
431	5,92 ± 0,17	55,02 ± 2,27	45,08 ± 1,29
492	28,54 ± 0,84	63,15 ± 2,53	59,15 ± 1,65
580	53,26 ± 1,55	70,59 ± 2,80	51,68 ± 1,47
642	93,24 ± 2,61	57,39 ± 2,33	49,58 ± 1,37
711	104,91 ± 2,87	53,99 ± 2,21	67,36 ± 1,83
771	125,1 ± 3,53	54,26 ± 2,30	62,37 ± 1,75
850	76,87 ± 2,21	71,90 ± 2,85	49,38 ± 1,41
942	13,43 ± 0,39	58,45 ± 2,37	32,98 ± 0,95
1001	13,48 ± 0,39	66,74 ± 2,65	45,25 ± 1,31
1091	44,41 ± 1,25	58,80 ± 2,38	60,62 ± 1,70
1151	58,55 ± 1,65	77,77 ± 3,01	65,74 ± 1,82
1241	48,96 ± 1,39	58,78 ± 2,38	67,78 ± 1,86
1301	46,41 ± 1,37	73,29 ± 2,87	51,10 ± 1,46
1342	44,81 ± 1,30	81,79 ± 3,14	48,34 ± 1,35
1732	24,46 ± 0,72	69,20 ± 2,74	51,39 ± 1,43
1801	110,24 ± 3,12	59,05 ± 2,39	63,39 ± 1,73
1840	126,19 ± 3,47	72,91 ± 2,85	45,68 ± 1,30
1892	56,68 ± 1,60	66,70 ± 2,65	45,81 ± 1,27
1951	30,15 ± 0,87	55,98 ± 2,28	57,11 ± 1,59
2042	20,66 ± 0,59	61,42 ± 2,47	52,32 ± 1,44
2101	93,18 ± 2,57	51,09 ± 2,11	57,75 ± 1,55
2191	23,59 ± 0,69	58,33 ± 2,37	47,97 ± 1,38
2251	8,78 ± 0,26	56,55 ± 2,30	48,34 ± 1,38

2. Publicações geradas diretamente com os resultados deste trabalho.

FERREIRA, P. A. L. et al. Sedimentation rates and age modeling of Late Quaternary marine sediments with unsupported ^{230}Th . **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 304, n. 2, p. 829-836, 2015.

FERREIRA, P. A. L. et al. Statistical validation of the model of diffusion-convection (MDC) of ^{137}Cs for the assessment of recent sedimentation rates in coastal systems. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 303, n. 3, p. 2059-2071, 2015.

FERREIRA, P. A. L. et al. Using a cesium-137 (^{137}Cs) sedimentary fallout record in the South Atlantic Ocean as a supporting tool for defining the Anthropocene. **Anthropocene**, v. 14, p. 34-45, 2016.