

**THAIS HELENA DIAS**

**DISTRIBUIÇÃO DE ISÓTOPOS NATURAIS DE Ra NO COMPLEXO  
ESTUARINO DE PARANAGUÁ**

Dissertação apresentada como requisito parcial à obtenção do grau de Mestre em Sistemas Costeiros e Oceânicos. Curso de Pós-Graduação em Sistemas Costeiros e Oceânicos, Centro de Estudos do Mar, Setor de Ciências da Terra, Universidade Federal do Paraná.

Orientador: Dra. Eunice da Costa Machado

Co-Orientador: Dra. Jeselene de Oliveira

**PONTAL DO PARANÁ**

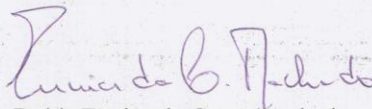
**2014**

*“DISTRIBUIÇÃO DE ISÓTOPOS NATURAIS DE Ra NO COMPLEXO  
ESTUARINO DE PARANAGUÁ”*

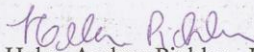
POR

Thais Helena Dias

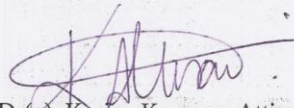
Dissertação nº 120 aprovada como requisito parcial do grau de Mestre(a)  
no Curso de Pós-Graduação em Sistemas Costeiros e Oceânicos da  
Universidade Federal do Paraná, pela Comissão formada pelos  
professores:



Dr(a). Eunice da Costa Machado  
Orientador(a) e Presidente(a)



Dr(a). Helen Audrey Pichler - UFPR  
Membro Examinador(a)



Dr(a). Karina Kammer Attisano - FURG  
Membro Examinador(a)

Pontal do Paraná, 26/03/2014.

CATALOGAÇÃO NA FONTE:  
UFPR / SIBI - Biblioteca do Centro de Estudos do Mar

D541e Dias, Thais Helena  
Distribuição de isótopos naturais de Ra no complexo estuarino de Paranaguá. / Thais Helena Dias. – Pontal do Paraná, 2014.  
41 f.; 29 cm.

Orientadora: Dra. Eunice da Costa Machado.  
Co-orientadora: Dra. Joselene de Oliviera.

Dissertação (Mestrado) – Programa de Pós-Graduação em Sistemas Costeiros e Oceânicos, Centro de Estudos do Mar, Setor de Ciências da Terra, Universidade Federal do Paraná.

1. Isótopos de rádio. 2. Traçadores. 3. Complexo Estuarino de Paranaguá. I.Título. II. Machado, Eunice da Costa. III. Oliviera, Joselene de. IV. Universidade Federal do Paraná.

CDD 539.752



**CURSO DE PÓS-GRADUAÇÃO EM SISTEMAS  
COSTEIROS E OCEÂNICOS**

**Centro de Estudos do Mar - Setor Ciências da Terra - UFPR**  
Avn. Belra-mar, s/nº - Pontal do Sul - Pontal do Paraná - Paraná - Brasil  
Tel. (41) 3511-8644 - Fax (41) 3511-8648 - www.cem.ufpr.br - E-mail: pgsisco@ufpr.br

**TERMO DE APROVAÇÃO**

Thais Helena Dias

**DISTRIBUIÇÃO DE ISÓTOPOS NATURAIS DE Ra NO COMPLEXO  
ESTUARINO DE PARANAGUÁ**

Dissertação aprovada como requisito parcial para a obtenção do grau de  
Mestre(a) em Sistemas Costeiros e Oceânicos, da Universidade Federal do  
Paraná, pela Comissão formada pelos professores:

Dr(a). Eunice da Costa Machado  
Orientador(a) e Presidente(a)

Dr(a). Helen Audrey Pichler - UFPR  
Membro Examinador(a)

Dr(a). Karina Kammer Attisano - FURG  
Membro Examinador(a)

Pontal do Paraná, 26/03/2014.

## **AGRADECIMENTOS**

Agradeço a Deus, por todas minhas conquistas até aqui.

Aos meus pais, Jamilton e Sônia por todo amor, compreensão, dedicação e apoio em minhas decisões, não há palavras para agradecer tudo que fizeram por mim, sem vocês nada seria possível.

A Prof. Eunice, obrigada por ter me acolhido no laboratório desde os tempos de graduação e toda a ajuda durante esse processo.

A Prof. Joselene, muito obrigada por ter aceitado a co-orientação, obrigada pela confiança mesmo sem me conhecer, você foi essencial para a conclusão desse trabalho.

A Dr. Franciane Carvalho, obrigada por ter realizado as análises e por todos os ensinamentos passados.

Ao Dr. Fabian Sá, obrigada por toda a ajuda no trabalho desde à graduação.

Ao Rafael e Roberto por toda ajuda na coleta e a Liciane pela ajuda nas análises em laboratório.

Ao Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD).

Aos pesquisadores do LRA Dra. Brigitte R.S. Pecequilo, que cedeu a utilização dos equipamentos, e ao MSc. Marcelo Bessa Nisti, pelo auxiliou com as medidas no espectrômetro.

Aos meus amigos Manu Zeglin, Manu Aracajú, Léo e Kalina, obrigada pelos momentos divertidos.

A todos meus colegas da turma de 2012 do PGSISCO, sentirei falta de vocês.

A CAPES pela concessão da bolsa.

## SUMÁRIO

1. Introdução Geral .....	1
2. Referências Bibliográficas.....	4
Resumo .....	8
Abstract.....	9
1. Introdução .....	10
2. Materiais e Métodos .....	12
2.1 Área de estudo .....	12
2.2 Amostragem.....	13
2.3 Preparo das fibras de acrílico impregnadas com MnO <sub>2</sub> .....	15
2.4 Determinação dos Isótopos de Rádío ( <sup>223</sup> Ra, <sup>224</sup> Ra e <sup>228</sup> Ra) na água superficial e subterrânea.....	15
2.5 Determinação dos Isótopos de Rádío ( <sup>224</sup> Ra, <sup>226</sup> Ra, <sup>228</sup> Ra) nos sedimentos.....	16
2.6 Determinações complementares .....	17
2.6.1 Salinidade, turbidez, temperatura e profundidade .....	17
3. Resultados e discussão .....	17
3.1 Parâmetros físico-químicos .....	17
3.2 Distribuição dos isótopos de naturais de rádío na água superficial.....	19
3.2.1 Eixo Leste-Oeste.....	21
3.2.2 Eixo Norte-Sul.....	23
3.2.3 Rios e Poço Artesiano.....	25
3.3 Distribuição dos isótopos de rádío nos sedimentos .....	27
3.3.1 Eixo leste oeste .....	28
3.3.2 Eixo norte sul.....	29
3.3.3 Rios.....	30
3.4 Idade aparente do Ra .....	32
4. Conclusões.....	34
5. Referências Bibliográficas.....	35

## 1. Introdução Geral

Os radionuclídeos podem ser subdivididos em três grupos conforme sua origem. O primeiro está relacionado à sua síntese durante a formação do sistema solar, sendo que as meias-vidas desses nuclídeos se aproximam da idade da Terra ( $4,5 \times 10^9$  anos). Dentro desse grupo estão incluídos:  $^{238}\text{U}$  (U),  $^{235}\text{U}$  (U),  $^{232}\text{Th}$  (Th),  $^{40}\text{K}$  (K) e  $^{87}\text{Rb}$  (Rb), entre outros menos abundantes. O segundo grupo é formado por radionuclídeos provenientes do decaimento natural dos núcleos do primeiro grupo, com suas meias-vidas variando de frações de segundos a milhões de anos, e por fim, no terceiro grupo estão os produtos da interação dos raios cósmicos com o ar, água e rochas (Bonotto, 2006).

A crosta terrestre e a atmosfera são as principais fontes naturais de radionuclídeos. Agentes intempéricos atuam nas rochas através da erosão e do processo de lixiviação carreando os elementos nela presentes para o meio oceânico. Na atmosfera os elementos radioativos se formam a partir do bombardeamento contínuo de alguns de seus constituintes instáveis por raios cósmicos, sendo esses radionuclídeos transferidos para o oceano por mecanismos de deposição, dissolução e precipitação em águas pluviais (Joseph et al., 1971).

Os radionuclídeos naturais  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  e  $^{87}\text{Rb}$  são as principais fontes de radioatividade para o meio ambiente, sendo que suas meias-vidas são longas o bastante para existirem na Terra em altas concentrações (Bonotto, 2006).

Nas áreas costeiras ocorrem vários processos como: a) material particulado proveniente dos rios encontra água do mar, b) gradientes hidráulicos permitem a descarga de água subterrânea, c) e a renovação de espécies químicas reativas é intensa (Souza, 2008). Radionuclídeos naturais são eficientes traçadores utilizados na determinação das vazões relacionadas a esses processos.

A utilização de um radioisótopo como traçador depende de suas características químicas, origem e escala de tempo de interesse, assim como o tempo de meia-vida do radionuclídeo a ser empregado no estudo (Cochran et al., 2006), com isso os isótopos de Ra tem sido utilizados por vários autores como traçadores para determinar taxas de transporte em estuários e baías (Torgersen et al., 1996; Turekian et al., 1996; Krest et al., 1999, Souza, 2010, Smoak, 2012).

Quatro isótopos de Ra ocorrem naturalmente no meio ambiente, são eles  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ , e  $^{228}\text{Ra}$ .

Com tempos de meia vida curta, o  $^{224}\text{Ra}$  ( $t_{1/2} = 3,7$  dias) e o  $^{223}\text{Ra}$  ( $t_{1/2} = 11,4$ ) são traçadores eficientes no estudo de processos que ocorrem em uma escala de tempo de dias. Esses isótopos são utilizados para quantificar fluxos de descarga de águas subterrâneas em áreas costeiras (Moore, 1996; Rama e Moore, 1996; Charette et al, 2001.; Swarzenski, 2007; Moore, 2008;. Burnett et al, 2008..), aferir taxas de descarga dos rios em estuários (Dulaiova e Burnett, 2008), traçar plumas ribeirinhas que se misturam no oceano (Moore, 2003), determinar idades das águas da plataforma continental (Moore, 2000; Swarzenski, 2007; Dulaiova e Burnett, 2008; Burnett et al., 2008), e quantificar a mistura entre águas costeiras e oceânicas ( Dulaiova et al, 2006.; Moore e Oliveira, 2008, Souza et al., 2010).

O  $^{228}\text{Ra}$  ( $t_{1/2} = 5,7$  anos) e o  $^{226}\text{Ra}$  ( $t_{1/2} = 1,6 \times 10^3$  anos) são isótopos de rádio de meia-vida longa, os quais têm sido utilizados como traçadores para processos de mistura estuarina e oceânica. Como exemplo, o  $^{228}\text{Ra}$  ( $t_{1/2} = 5,7$  anos), filho do  $^{232}\text{Th}$  é um traçador eficiente para processos de mistura estuarina e costeira na ordem de 1-30 anos (Levy et al., 1985).

Desde o início do programa Geochemical Ocean Sections Study (GEOSECS) na década de 1970, diversos isótopos tem sido largamente aplicados no estudo de uma variedade de processos oceanográficos. O programa GEOSECS constituiu-se de um levantamento global da distribuição tri-dimensional de traçadores químicos, isótopos e radionuclídeos nos oceanos. As expedições ocorreram de 1972 a 1973 no Oceano Atlântico, de 1973 a 1974 no Pacífico e de 1977 a 1978 no Índico.

No escopo do programa GEOSECS, taxas de mistura verticais de águas superficiais e profundas no oceano foram quantificadas utilizando-se o  $^{228}\text{Ra}$ . Contudo, os isótopos naturais de rádio passaram a ser intensivamente utilizados como traçadores de taxas de mistura de massas d'água costeiras na década de 1980 (Moore, 1987). Diversos trabalhos versando a respeito da determinação dos isótopos de rádio e de seus fluxos na interface continente oceano foram publicados, com dados levantados ao longo dos rios Amazonas, Mississipi e outros (Moore, 1987).

No início da década de 1990, a aplicabilidade dos isótopos naturais de Ra em oceanografia cresceu quando este quarteto foi utilizado para demonstrar a ocorrência e a importância, e para se quantificar a descarga de águas subterrâneas (SGD), cujos fluxos influenciam o balanço de massas de muitos elementos traço e nutrientes no oceano



(Burnett et al., 2008; Charette e Scholten, 2008, Moore, 1997; dentre muitos outros) (Fig. 2).

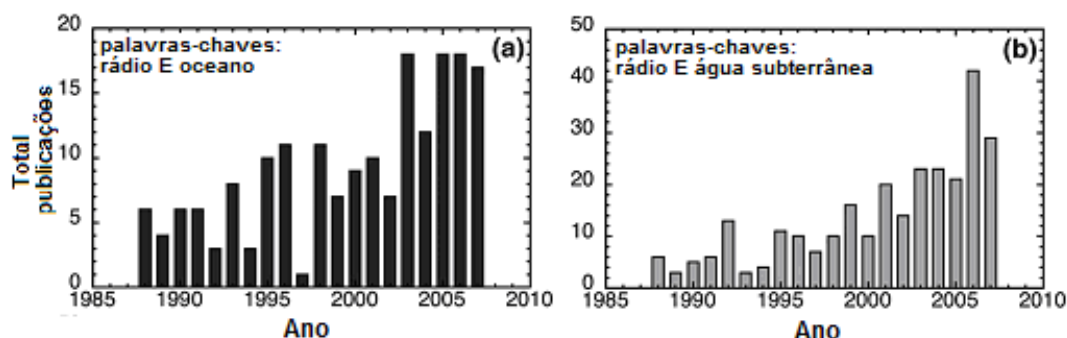


Fig. 1: Número de publicações por ano (1998–2007) contendo as palavras-chave (a) “rádio E oceano” e (b) “rádio E água subterrânea”. Verifica-se um aumento do número de trabalhos publicados a partir de 1999. Os trabalhos apresentados na Fig. 2b incluem ainda trabalhos a respeito da determinação de rádio em águas continentais. Fonte: Charette e Scholten (2008).

Os radionuclídeos naturais têm sido utilizados como traçadores na investigação de processos oceânicos e no gerenciamento da região costeira. As suas aplicações em trabalhos de cunho oceanográfico e/ou de contaminação marinha têm auxiliado aos cientistas elucidar processos que ocorrem na coluna d’água (transporte de partículas, ciclo do carbono, ciclos biogeoquímicos, processos de arraste) ou nos sedimentos (afundamento, deposição, acumulação, transporte e ressuspensão). Contudo, estudos a respeito da aplicação de radionuclídeos naturais como traçadores de processos ambientais que ocorrem ao longo da margem continental brasileira e no Atlântico Sul, não tem sido tão numerosos quanto aqueles desenvolvidos no Atlântico Norte.

Nas últimas décadas, a determinação dos isótopos naturais das séries do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$  em matrizes ambientais tem tido ampla aplicabilidade. Os resultados obtidos nestas pesquisas têm contribuído, principalmente, para um melhor entendimento dos processos geológicos que ocorrem na crosta terrestre, dos processos de transporte em sistemas rocha-água e do comportamento físico-químico destes radionuclídeos em ambientes variados (Benitez-Nelson et al., 2001; Rutgers van der Loeff et al., 2002; Buesseler et al., 2003; Savoye et al., 2006; Rutgers van der Loeff et al., 2006; Burnett et al., 2008; Moore e Oliveira, 2008; Rodriguez e Baena et al., 2006; Oliveira et al., 2009).

No Brasil estudos versando sobre o tema também tem sido realizados, aumentando o interesse sobre radionuclídeos e suas aplicações dentro da comunidade

científica (Burnett, 2008; Smoak, 2012; Niencheski, 2007; Souza, 2010; Windom, 2006, Attisano, 2013).

Desta forma, este estudo realizado no Complexo Estuarino de Paranaguá (CEP) é inédito, e seus resultados, ainda que iniciais, podem auxiliar na melhor compreensão dos processos de transporte de materiais entre continente e oceano, não somente na oceanografia química, como nas demais esferas desta ciência, como por exemplo, em processos físicos de mistura e tempo de residência das águas estuarinas e costeiras, assim como na estimativa do aporte de água subterrânea dentro da região de interesse.

## 2. Referências Bibliográficas

ATTISANO, K.K., SANTOS, I.R., C., ANDRADE, C.F.F., PAIVA, M.L., MILANI, I.C., NIENCHESKI, L.F.. (2013). Submarine groundwater discharge revealed by radium isotopes ( $^{223}\text{Ra}$  and  $^{224}\text{Ra}$ ) near a paleochannel on the southern Brazilian continental shelf. *Braz. J. Ocean.*, 61(3), 195-200.

BENITEZ-NELSON, C.R., BUESSELER, K.O., RUTGERS VAN DER LOEFF, M., ANDREWS, J., BALL, L., CROSSIN, G., CHARETTE, M.A. (2001). Testing a new small volume technique for  $^{234}\text{Th}$  determination in seawater. *J. Radioanal. Nucl. Ch.*, 248, 795-799.

BONOTTO, D.; SILVEIRA, E. *Geoquímica do Urânio aplicada a águas minerais*. São Paulo: Unesp: 2006.

BURNETT, W.C. (2008). Radon and radium isotopes as tracers of submarine groundwater discharge e results from the Ubatuba, Brazil SGD assessment intercomparison. *Estuar. Coast. Shelf S.*, 76, 501-511.

COCHRAN, J. K. (2006). Natural radionuclides as tracers of coastal biogeochemical processes. *J. Geochem. Explor.*, 88, 376- 379.

CHARETTE, M.A., BUESSELER, K.O., ANDREWS, J.E. (2001). Utility of radium isotopes for evaluating the input and transport of groundwater derived nitrogen to a Cape Cod estuary. *Limnol. Oceanogr.*, 46, 465-470.

CHARETTE, M. A.; SCHOLTEN, J. C., (2008). Marine Chemistry special issue: The renaissance of radium isotopic tracers in marine processes studies. *Mar. Chem.*, 109, 185-187.

DULAIIOVA, H ; BURNETT, W.C. (2008). Evaluation of the flushing rates of Apalachicola Bay, Florida via natural geochemical tracers. *Mar. Chem.*, 109, 395-408

IVANOVICH, M., HARMON, R.S. (1992). *Uranium serie disequilibrium; Applications to Environmental Problems*. 2.ed. Oxford, Clarendon Press., 571, 1992.

- JAWOROWSKI, Z. (1990) Sources and the Global Cycles of Radium. In: The Environmental Behavior of Radium, Technical Report Series., 1, 129-131.
- JOSEPH et al. (1971). Sources of Radioactivity and their Characteristics. In: Committee on Oceanography National Research Council, Radioactivity in the Marine Environment, chapter 2, National Academy of Sciences, Washington.
- KAUFMAN, A., TRIER, R.M., BROECKER, W.S., FEELY, H.W. (1973). Distribution of  $^{228}\text{Ra}$  in the world ocean. *J. Geophys. Res.*, 78, 8827-8848.
- KREST, M. (1999).  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  in the Mixing Zones of the Mississippi and Atchafalaya Rivers: indicators of groundwater input. *Mar. Chem.*, 64, 129-152.
- LEE, J. S. (2005). Radium Isotopes in the Ulsan Bay. *J. Environ. Radioactiv.*, 82, 129-141.
- LEVY, M., MOORE, S. (1985).  $^{224}\text{Ra}$  in Continental Shelf Waters. *Earth Planet Sc. Lett.*, 73, 226-230.
- LI, Y.H. (1977). The Flux of  $^{226}\text{Ra}$  from Estuarine and Continental Shelf Sediments. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 37, 237-241.
- MOORE, W. S. (1969). Oceanic concentrations of  $^{226}\text{Ra}$ . *Earth Planet. Sci. Lett.*, 2, 231-234.
- MOORE, W. S. (1987). Radium-228 in the South Atlantic Bight. *J. Geophys. Res.*, 92, 5177-5190.
- MOORE, W.S. (2000). Ages of Continental Shelf waters determined from Ra-223 and Ra-224. *J. Geophys. Res.* 105, 22,117-22,894.
- MOORE, W.S. (2003) Sources and fluxes of submarine groundwater discharge delineated by radium isotopes. *Biogeochemistry*, 66, 75-93.
- MOORE, W. S., OLIVEIRA, J. (2008). Determination of residence time and mixing processes of the Ubatuba, Brazil, inner shelf waters using natural Ra isotopes. *Est. Coast. Shelf Sci.*, 76, 512-521.
- Niencheski, L.F., Windom, H.L., Moore, W.S; Jahnke, R.A. (2007). Submarine groundwater discharge of nutrients to the ocean along a coastal lagoon barrier, Southern Brazil. *Mar.Chem.*, 106, 546-561.
- OLIVEIRA, J., SANTIS BRAGA, E., DE JESUS, S.C., ABRAHÃO, F.F., SANTOS, G.F., CHIOZZINI, V. (2009). Assessment of natural radium isotopes and  $^{222}\text{Rn}$  in water samples from Cananéia-Iguape estuarine Complex, São Paulo. International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2009. Rio de Janeiro, RJ, Brazil, September 27 to October 2. Associação Brasileira de Energia Nuclear – ABEN., 2009.
- PENTREATH, R. J. (1984). Alpha-emitting nuclides in the marine environment. *Nucl. Inst. and Met. Phys. Res.*, 223, 493-501.

RAMA; MOORE, W. S. (1996). Using the radium quartet for evaluating groundwater input and water exchange in salt marshes. *Geochim. Cosmochim. Acta.*, 60, 4645-4652.

RODRIGUEZ Y BAENA, A.M.; MIQUEL, J.C.; MASQUE, P.; POVINEC, P.P.; LA ROSA, J. (2006). A single VS Double Spike approach to improve the accuracy of  $^{234}\text{Th}$  measurements in small-volume seawater samples. *Mar. Chem.*, 100, 269-281.

RUTGERS VAN DER LOEFF, M.M., SARIN, M.M., BASKARAN, M., BENITEZNELSON, C.R., BUESSELER, K.O., CHARETTE, M.A., DAI, M., GUSTAFSSON, O., MASQUE, P., MORRIS, P.J., ORLANDINI, K., BAENA, A.R., SAVOYE, N., SCHMIDT, S., TURNEWITSCH, R.; VÖGE, I., WAPLES, J.T. (2006). A review of present techniques and methodological advances in analyzing  $^{234}\text{Th}$  in aquatic systems. *Mar. Chem.*, 100, 190-212.

SOUZA, T. et al. (2010). Use of multitracers for the study of water mixing in the Paraíba do Sul River estuary. *J. Environ. Radioactiv.*, 101, 564-570.

SMOAK, J.M., SANDERS, C.J., PATCHINEELAM, S.R., MOORE, W.S., (2012). Radium mass balance and submarine groundwater discharge in Sepetiba Bay, Rio de Janeiro State, Brazil. *J. S. Am. Earth Sci.*, 39, 44-51.

SWARZENSKI, P. (2007). Ra and Rn isotopes as natural tracers of submarine groundwater discharge in Tampa Bay, Florida. *Mar. Chem.*, 104, 69-84.

TORGERSEN, T. (1996).  $^{224}\text{Ra}$  Distribution in Surface and Deep Water of Long Island Sound: sources and horizontal transport rates. *Cont. Shelf Res.*, 16 (12), 1545-1559.

TUREKIAN, K.K. (1996). Transfer Rates of Dissolved Tracers Through Estuaries Based on  $^{228}\text{Ra}$ : a study of Long Island Sound. *Cont. Shelf Res.*, 16 (7), 863-873.

WINDOM, H. (2006). Submarine groundwater discharge: A large, previously unrecognized source of dissolved iron to the South Atlantic Ocean. *Mar. Chem.*, 102, 252-266.

**Distribuição de isótopos naturais de Ra no Complexo Estuarino de Paranaguá****Distribution of natural Ra isotopes in Paranaguá Estuarine Complex**

**Revista pretendida:** Journal of Environmental Radioactivity, ISSN (0265-931X), Fator de impacto: 2.119, Qualis Capes: Estrato A1

Thais H. Dias <sup>\*1</sup>, Joselene de Oliveira <sup>2</sup>, Franciane Carvalho <sup>3</sup>, Eunice Machado <sup>1</sup>, Fabian Sá <sup>1</sup>, Leonardo Sandrini <sup>1</sup>

<sup>1</sup> Centro de Estudos do Mar da Universidade Federal do Paraná – Caixa Postal 61, 83255-976, Pontal do Paraná, PR, Brasil.

<sup>2</sup> Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) – Av. Prof. Lineu Prestes, 2242, 05508-900 São Paulo, SP, Brasil

<sup>3</sup> Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) – Av. Salvador Allende- Jacarepaguá, 22780-160 Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

**Keywords:** Radium isotopes, Tracers, Paranaguá Estuarine Complex

**Palavras-chave:** Isótopos de rádio, Traçadores, Complexo Estuarino de Paranaguá

## Resumo

Quatro isótopos de rádio ocorrem naturalmente no ambiente marinho, sendo eles,  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$ . A determinação destes isótopos na área de oceanografia é uma ferramenta importante para evidenciar o transporte costa afora de águas superficiais e subterrâneas que, por sua vez subsidiam informações às determinações de balanços de massas e fluxos biogeoquímicos nos oceanos. Nesse estudo, investigou-se a distribuição das atividades dos isótopos de  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  e  $^{226}\text{Ra}$  nas águas superficiais do Complexo Estuarino de Paranaguá (CEP), em alguns dos principais rios que desaguam na região e em um poço artesiano localizado no entorno do estuário. Foram coletadas também amostras de sedimentos em todo o estuário, onde foram determinadas as atividades de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$ . As análises na água superficial foram feitas com o sistema de coincidências atrasadas (RADECSSys) e nos sedimentos por espectrometria gama. As maiores atividades dos isótopos analisados na água superficial foram encontradas na parte interna do estuário, onde há influência de aporte fluvial e presença de atividades portuárias. Nos sedimentos, o aumento das atividades de Ra foi proporcional a granulometria da região, onde em locais com predominância de sedimentos finos a atividade foi maior do que nos locais com sedimentos grossos. Por fim, as idades aparentes foram calculadas e indicaram que no eixo leste-oeste do CEP a massa d'água demora cerca de 8 dias para percorrer uma distância de 47 Km, no eixo norte-sul uma distância de 21 Km é percorrida em aproximadamente 2 dias.

## Abstract

Four radio isotopes occur naturally in the marine environment , namely ,  $^{223}\text{Ra}$  ,  $^{224}\text{Ra}$  ,  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  . The determination of these isotopes in the field of oceanography is important to highlight the coast apart from surface and groundwater, which in turn subsidize information to the determinations of mass balances and biogeochemical fluxes in the ocean transportation tool. In this study, we investigated the distribution of activities of the isotopes  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in surface waters of Paranaguá Estuarine Complex (CEP), in some of the major rivers that flow into the region and an artesian well located around of the estuary. Sediment samples throughout the estuary, where they determined the activities of  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  and  $^{224}\text{Ra}$  were also collected. The analysis in surface water were made with the system of delayed coincidences (RADECCSys) and sediments by gamma spectrometry. The major activities of the isotopes analyzed in surface water were found in the inner part of the estuary, where there is influence of river inflow and presence of port activities. Sediments, the increase in Ra activity was proportional to the particle size of the region, where in places with predominantly fine sediments activity was higher than in places with coarse sediments. Finally, the apparent ages were calculated and indicated that the east-west axis of the CEP body of water takes about 8 days to travel a distance of 47 km in the north-south axis a distance of 21 Km is covered in approximately 2 days.

## 1. Introdução

Há muito tempo as abundâncias relativas de certos radionuclídeos são utilizadas no estudo dos mais variados processos oceânicos. Quatro isótopos de rádio ocorrem naturalmente no ambiente marinho, sendo eles,  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$ . A determinação destes isótopos na área de oceanografia é uma ferramenta importante para evidenciar o transporte costa afora de águas superficiais e subterrâneas que, por sua vez subsidiam informações às determinações de balanços de massas e fluxos biogeoquímicos nos oceanos.

Os isótopos de meias-vidas curtas,  $^{223}\text{Ra}$  (meia-vida de 11,4 dias) e  $^{224}\text{Ra}$  (meia-vida de 3,66 dias), são continuamente regenerados do decaimento de seu pai Th, que está adsorvido na superfície dos sedimentos, materiais particulados ou nos sólidos dos aquíferos. Assim, os isótopos de Th fornecem continuamente isótopos de Ra de meias-vidas curtas para a água salgada. Entretanto, os isótopos de meias-vidas longas,  $^{226}\text{Ra}$  (meia-vida de 1.600 anos) e  $^{228}\text{Ra}$  (meia-vida de 5,75 anos), requerem tempo considerável para sua regeneração. As diferenças nas taxas de produção conduzem a diferenças nos fluxos de cada um destes isótopos para o ambiente costeiro. Os isótopos de Ra,  $^{223}\text{Ra}$  e  $^{224}\text{Ra}$ , têm uma aplicação restrita como traçadores do tempo de mistura de águas próximas da costa. Os gradientes dos isótopos de Ra de meias-vidas longas,  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$ , costa afora podem ser combinados com as taxas de troca dos isótopos de meias-vidas curtas, fornecendo uma estimativa dos fluxos de Ra para o oceano. Estes fluxos devem ser balanceados pelas entradas destes elementos dos rios, sedimentos, descargas de águas subterrâneas (SGD) e outras fontes.

O comportamento de isótopos de Ra em estuários demonstra que nessas áreas os processos físicos e químicos resultam no aumento da atividade de cada isótopo desse elemento. A dessorção, por exemplo, segundo alguns autores é o mecanismo primário de incremento de  $^{226}\text{Ra}$  no estuário (Elsinger e Moore, 1980; Elsinger e Moore, 1983; Li et al, 1977; Li e Chan, 1979).

A atividade de  $^{223}\text{Ra}$  e  $^{224}\text{Ra}$  em águas costeiras é proveniente principalmente da interação com sedimentos, água subterrânea e aporte de rios. Quando comparadas com oceano aberto, as águas costeiras são enriquecidas em  $^{223}\text{Ra}$  e  $^{224}\text{Ra}$  devido ao seu tempo de meia-vida ser curto com relação aos tempos de mistura do oceano aberto.

Devido a isso no oceano aberto as atividades de Ra são constantes ou muito



baixas. Portanto, o Ra em excesso indica uma fonte costeira que pode ser originária da descarga de águas subterrâneas submarinas (*submarine groundwater discharge – SGD*) (Charette et al., 2003; Windom et al., 2006).

Os isótopos de Ra são traçadores eficientes na detecção de SGD e mistura em sistemas costeiros devido à diferença das atividades entre as fontes (por exemplo, águas fluviais, águas estuarinas e do oceano aberto).

Quando a atividade inicial deste elemento no estuário pode ser determinada, as alterações nas atividades de Ra medidas em águas costeiras podem fornecer informações a respeito do tempo decorrido desde que a água deixou o estuário (idade aparente/idade da massa d'água) (Sousa, 2008).

Por esse motivo, os isótopos de Ra são amplamente utilizados para determinar a descarga de água doce, nutrientes (Cable et al., 1996; Kelly e Moran, 2002; Krest et al., 2000) e outros constituintes dissolvidos para o oceano costeiro (Shaw et al., 1998).

Os sedimentos fluviais expostos à água salgada decompõem atividades de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  e  $^{224}\text{Ra}$  em proporção às atividades de seus isótopos precursores ( $^{230}\text{Th}$ ,  $^{227}\text{Th}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{228}\text{Th}$ , respectivamente) presentes nos sedimentos (Elsinger e Moore, 1983).

A mistura frequente dos centímetros superiores de sedimentos constitui uma fonte ativa de Ra para coluna d'água (Sousa, 2008). Sendo assim o fornecimento de sedimentos novos, a quantidade de sedimentos e o tempo de mistura e permanência da água podem controlar a quantidade de Ra no sistema.

No entanto, o comportamento do Ra dentro desse ambiente é dependente de outros fatores como: troca de sedimentos, tamanho do grão e porosidade dos sedimentos (Webster et al, 1995); mudanças na força iônica (salinidade) (Elsinger e Moore, 1980; Webster et al, 1995), temperatura (Rama e Moore, 1996) e pH (Lauria et al, 2004).

Com isso o objetivo desse trabalho foi determinar as concentrações de atividade dos isótopos naturais de Ra no Complexo Estuarino de Paranaguá (CEP) com o intuito de gerar dados pioneiros que possam ser usados como ferramenta em estudos futuros na região.

## 2. Materiais e Métodos

### 2.1 Área de estudo

O Complexo Estuarino de Paranaguá (CEP) (Fig.1), situado na costa sul do Brasil, entre 25°16' e 25°34' S e 48°17' e 48°42' W, é composto por dois eixos principais, sendo o eixo leste-oeste formado pelas baías de Paranaguá e Antonina, e o eixo norte-sul que abrange a baía das Laranjeiras, apresentando área total de 612 km<sup>2</sup> (Lana et al., 2000). A conexão desta região com o Oceano Atlântico ocorre através de dois canais principais: o canal da Galheta e o canal sudeste. O clima regional é subtropical úmido mesotérmico, segundo a classificação de Koeppen (Iapar, 2000).

Na ausência de efeitos meteorológicos significativos, a circulação estuarina no CEP é dominada pelos efeitos da maré, sendo as mesmas classificadas como meso-marés (Marone et al., 1997).

O CEP recebe aproximadamente 70% da drenagem oriunda da bacia hidrográfica litorânea do Estado do Paraná, onde as bacias de Antonina e Paranaguá representam 54% da drenagem total, sofrendo assim maior influência do aporte continental de água doce (Mantovanelli, 1999).

A descarga média anual de água doce superficial proveniente da área sob influência da planície costeira (aproximadamente 1.918 km<sup>2</sup>) e das pequenas bacias hidrográficas da Serra do Mar está perto de 200 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>. Os rios Cachoeira e Nhundiaquara, principais tributários do eixo leste-oeste do CEP, apresentam uma vazão média de 21,13 e 15,88 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>, respectivamente (Bigarella, et al. 1978).

A Baía das Laranjeiras localizada no eixo norte-sul perfaz uma área de 240 km<sup>2</sup> (Martins et al., 2012) e possui uma área de drenagem de aproximadamente 1462,1 km<sup>2</sup>, compreendida com mais 3 sub-estuários: Itaqui, Benito e Guaraqueçaba (Noernberg et al., 2006).

As características geomorfológicas e hidrográficas do CEP favoreceram o desenvolvimento da navegação, evidenciada pela presença dos portos de Antonina e Paranaguá, sendo este último o maior exportador de grãos do país (Noernberg et al., 2008).

Além da sua importância econômica, devido à existência de atividades pesqueiras, portuárias, industriais e urbanas, o CEP apresenta uma grande importância ecológica, pois é composto por uma ampla variedade de ecossistemas como, ilhas, enseadas e manguezais.

## 2.2 Amostragem

Para os propósitos deste trabalho realizou-se uma campanha amostral nos dias 18 e 19 de março de 2013 durante um período chuvoso, abrangendo 22 pontos ao longo do eixo Leste-Oeste e Norte-Sul do Complexo Estuarino de Paranaguá (Fig. 1).

Os pontos amostrais foram distribuídos ao longo de transectos, seguindo-se o gradiente de salinidade do estuário principal de cada um dos eixos, durante um momento de maré vazante.

No dia 21 de março de 2013, uma amostra foi tomada dentro dos rios Guaraguaçu (R1), Sagrado (R2), Nhundiaquara (R3), Cachoeira (R4), Tagaçaba (R5) e Serra Negra (R6). Uma amostra de um poço artesiano próximo ao Rio Cachoeira também foi analisada.

Para a determinação dos isótopos naturais de Ra nas amostras de água coletou-se em cada um dos pontos com uma bomba compressora, aproximadamente 60 L de água da subsuperfície (1 m), as quais foram armazenadas em bombonas plásticas e filtradas *in situ* com um fluxo médio de 1 L/min, utilizando-se fibras de acrílico impregnadas com dióxido de manganês. Estas amostras foram encaminhadas para o Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) para serem medidas.

Para a quantificação dos isótopos de Ra nos sedimentos dos rios e do CEP coletou-se cerca de 500 g de sedimentos com auxílio de um Petit Ponar em cada ponto amostral. Após a amostragem, os sedimentos foram acondicionados em sacos plásticos e as amostras foram encaminhadas para análise no Laboratório de Radiometria Ambiental (LRA) da Gerência de Metrologia das Radiações (GMR) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN-SP).

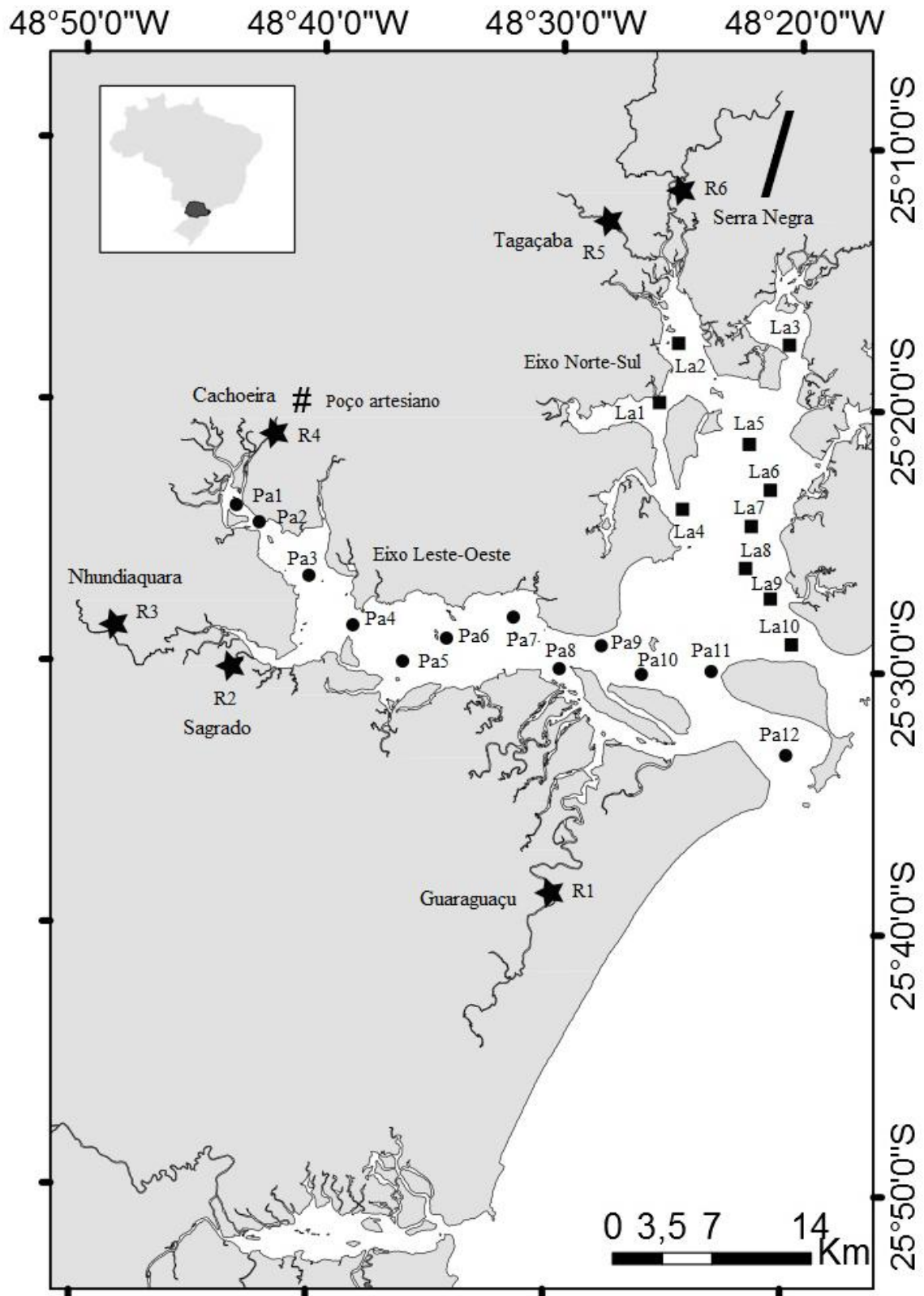


Fig. 1: Mapa da região de interesse apresentando a localização geográfica dos pontos amostrais distribuídos ao longo do CEP.

### 2.3 Preparo das fibras de acrílico impregnadas com MnO<sub>2</sub>

Uma solução de permanganato de potássio 0,5 mol L<sup>-1</sup> (158,0 g KMnO<sub>4</sub>/ 2,0 L H<sub>2</sub>O deionizada) aquecida a um temperatura constante de 70°C, foi preparada e transferida para um becker, aonde porções de fibra de acrílico foram mergulhadas de forma que ficassem submersas. Após atingir a coloração castanho-escuro, as fibras então impregnadas com MnO<sub>2</sub>, foram lavadas em grande quantidade de água deionizada até que a água de lavagem se tornasse límpida.

Após retirada do excesso de água, as fibras de acrílico impregnadas com MnO<sub>2</sub> foram armazenadas em quantidades individuais de aproximadamente 80,0 g em potes plásticos identificados.

Este método tem sido amplamente empregado na extração de radionuclídeos em amostras de água. As colunas de fibras de acrílico-MnO<sub>2</sub> apresentam uma eficiência de extração relativamente alta para a remoção de Th, Pa, Ra e Ac, atingindo-se valores próximos a 100%, se o volume percolado for elevado.

### 2.4 Determinação dos Isótopos de Rádio (<sup>223</sup>Ra, <sup>224</sup>Ra e <sup>228</sup>Ra) na água superficial e subterrânea

As atividades de <sup>223</sup>Ra e <sup>224</sup>Ra nas amostras de água foram determinadas utilizando-se um sistema de coincidências atrasadas (RaDeCC sys). O sistema foi desenvolvido por Moore e Arnold (1996) e baseia-se na medida alfa dos isótopos de radônio <sup>219</sup>Rn e <sup>220</sup>Rn e seus produtos de decaimento, que são arrastados para células de cintilação alfa com 1,1 L de volume, após a passagem de uma corrente de He gasoso por colunas contendo fibras de acrílico-MnO<sub>2</sub>, nas quais os isótopos de rádio foram inicialmente adsorvidos.

A extração quantitativa dos isótopos de meias-vidas longas (<sup>226</sup>Ra e <sup>228</sup>Ra) foi feita através da lixiviação das fibras de manganês com ácido clorídrico concentrado e co-precipitação com sulfato de bário. Após um período de repouso por três semanas do precipitado, de forma que fosse alcançada a condição de equilíbrio do <sup>226</sup>Ra e seus descendentes, as amostras foram medidas em um contador proporcional de fluxo gasoso de baixa radiação de fundo para se determinar as atividades alfa total do <sup>226</sup>Ra e beta total do <sup>228</sup>Ra (Godoy et al., 1994).

## 2.5 Determinação dos Isótopos de Rádio ( $^{224}\text{Ra}$ , $^{226}\text{Ra}$ , $^{228}\text{Ra}$ ) nos sedimentos

Foram retirados manualmente das amostras de sedimentos conchas e resíduos como pedaços de madeira, folhas e outros. As amostras foram transferidas para almofarizes de porcelana, homogeneizadas e secas em estufa por 24 horas a temperatura de aproximadamente 80°C. Terminado o processo de secagem, as amostras de sedimento foram acondicionadas em frascos padrão de polietileno de alta densidade com 100 cm<sup>3</sup> de capacidade e vedadas com batoque, tampa e fita adesiva. Por apresentar uma alta densidade, o polietileno destes frascos utilizados como geometria de contagem retêm os gases  $^{222}\text{Rn}$  e  $^{220}\text{Rn}$  e garante o equilíbrio radioativo das séries do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$ .

A medição da massa das amostras de sedimentos secas (cerca de 100 g) foi realizada em uma balança semi-analítica modelo GEHAKA BK 3000. As amostras seladas foram armazenadas por aproximadamente 4 semanas, para garantir o equilíbrio radioativo secular entre o  $^{226}\text{Ra}$  e o  $^{222}\text{Rn}$ , que ocorre após aproximadamente 21 dias. Este procedimento foi necessário tendo em vista que as concentrações de atividade de  $^{226}\text{Ra}$  foram determinadas pela atividade média ponderada do  $^{214}\text{Pb}$  e  $^{214}\text{Bi}$ , filhos do  $^{222}\text{Rn}$ .

A medição das amostras foi realizada por espectrometria gama de alta resolução. A calibração em eficiência foi obtida com uma solução padrão aquosa radioativa multielementar e a radiação de fundo, com uma amostra de água ultrapura. Todas as medições foram realizadas na mesma geometria.

As amostras de sedimentos foram armazenadas por aproximadamente 21 dias antes da medição a fim de garantir o equilíbrio radioativo (Evans, 1972). Estabelecido o equilíbrio, a concentração de atividade de  $^{226}\text{Ra}$  foi determinada pela atividade média ponderada das concentrações de seus filhos,  $^{214}\text{Pb}$  e  $^{214}\text{Bi}$ , enquanto a concentração de atividade de  $^{228}\text{Ra}$  foi determinada pela atividade de seu descendente  $^{228}\text{Ac}$ .

Para determinação das concentrações de atividade de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  e  $^{224}\text{Ra}$  foram utilizados dois detectores, HPG e ORTEC EG&G com 15% de eficiência relativa e eletrônica convencional, com analisador multicanal SpectrumMaster 4k 919 ORTEC EG&G. O tempo de contagem para cada amostra foi de 150.000 segundos. Os espectros foram analisados com o software InterWinner 6.0 (INTERWINNER 6.0, 2004).

## **2.6 Determinações complementares**

### *2.6.1 Salinidade, turbidez, temperatura e profundidade*

A salinidade foi inferida em campo com refratômetro ATAGO e pelo CTD JFE Compact, assim como a turbidez, temperatura e profundidade.

## **3. Resultados e discussão**

### **3.1 Parâmetros físico-químicos**

As profundidades dos pontos amostrais no eixo leste-oeste variaram de 3,7 m no interior do estuário até 11,9 m próximo a desembocadura. No eixo norte-sul a profundidade variou de 1,2 m (LA4) a 9,4 m (LA8) (Tabela 1).

A temperatura da água apresentou pequena variação permanecendo entre 21° e 25 °C em ambos os eixos amostrados.

No eixo leste-oeste, o transecto amostral obedeceu ao gradiente de salinidade, sendo que no ponto mais interno (PA1) foi encontrada salinidade de 0,04 e no ponto mais externo (PA12) salinidade de 29,15.

No eixo norte sul, os valores de salinidade variaram de 4,78 (LA4) até 18 (LA10).

No eixo leste-oeste, a maior turbidez de superfície foi registrada no ponto PA2 apresentou a maior turbidez de superfície entre os pontos amostrais, com 43,06 FTU. O ponto mais externo (PA12) apresentou 2,55 FTU de turbidez de superfície, sendo o menor valor encontrado. No fundo, os maiores valores ocorreram nos pontos PA4 e PA8, com 82,54 e 64,98 FTU, respectivamente.

No eixo norte-sul o local com maior turbidez de superfície foi o LA4 com 11,72 FTU, e o menor foi o LA8 com 4,38 FTU. No fundo, os maiores valores de turbidez foram detectados nos pontos LA6 e LA9, com 54,71 e 50,09 FTU, respectivamente.

Não foi possível realizar a amostragem do local LA10 com o CTD. Desta forma, a salinidade desse ponto exibida na tabela abaixo foi inferida a partir do refratômetro utilizado em campo.

Tabela 1

Profundidade, temperatura, salinidade e turbidez de superfície e de fundo tomadas a partir do CTD nas amostras de água do CEP.

Amostra	Prof. (m)	Temp. (°C)	Salinidade	Turbidez (FTU)	
				Superfície	Fundo
PA1	3,7	21	0,04	27,38	19,77
PA2	6,2	22	0,20	43,06	11,92
PA3	3,8	23	3,70	30,42	15,1
PA4	3,8	24	5,43	11,61	82,54
PA5	5,1	24	6,95	10,79	43,75
PA6	5,4	24	9,75	9,18	7,36
PA7	6,6	24	13,68	6,90	41,98
PA8	7,5	25	18,67	4,89	64,98
PA9	8,1	24	17,99	4,12	24,73
PA10	7,8	25	23,15	3,60	16,24
PA11	11,9	25	24,38	3,40	15,79
PA12	6,2	24	29,15	2,55	18,70
LA1	1,6	22	5,95	10,28	12,78
LA2	5,3	22	6,98	7,58	20,58
LA3	3,1	23	5,59	9,44	40,98
LA4	1,2	22	4,78	11,72	12,40
LA5	1,9	22	5,39	11,03	11,03
LA6	4,9	23	11,30	6,88	54,71
LA7	2,9	23	11,96	5,67	8,59
LA8	9,4	23	14,16	4,38	18,40
LA9	4,9	23	18,83	4,99	50,09
LA10	n/a	n/a	18	n/a	n/a

\*n/a: não analisado



### **3.2 Distribuição dos isótopos de naturais de rádio na água superficial**

Em águas doces, o Ra adsorve-se intensamente às partículas e, em águas salobras encontra-se principalmente dissolvido (Krest, 2000). Essas diferenças no comportamento químico desse isótopo ocorrem devido a mudanças no coeficiente de adsorção do Ra entre água doce e água do mar. Devido ao seu caráter conservativo, os isótopos de Ra apresentam a tendência de diminuição das suas respectivas atividades ao longo do gradiente de salinidade e distância da origem na costa, a menos que outras fontes estejam fornecendo estes isótopos para o sistema estudado.

O comportamento das atividades dos isótopos naturais de Ra ao longo dos transectos realizados no CEP variou consideravelmente em relação ao gradiente de salinidade, não obedecendo à tendência esperada de diminuição das atividades dos isótopos de rádio como aumento da salinidade e distância da costa.

Tabela 2

Concentrações de atividade dos isótopos naturais de Ra nas amostras de água superficial e subterrânea na área de estudo

Atividade de Ra (dpm/100L)					
Amostra	Localização	Salinidade	<sup>224</sup> Ra	<sup>223</sup> Ra	<sup>228</sup> Ra
Eixo Leste-Oeste					
PA01	25S 24'38.58" 48W 42' 25.44"	0,04	56,4 ±0,08	2,4 ±0,02	31,2 ±0,41
PA02	25S 25' 0.06" 48W 42' 26.04"	0,20	93,6 ±0,15	3 ±0,02	96 ±0,59
PA03	25S 27' 16.80" 48W 40' 4.80"	3,70	163,2 ±0,23	6,6 ±0,05	125,4 ±0,65
PA04	25S 20' 27.96" 48W 39'22.20"	5,43	289,2 ±0,42	14,4 ±0,11	586,8 ±1,13
PA05	25S 28' 24.36" 48W 38'31.92"	6,95	315 ±0,44	13,8 ±0,09	283,8 ±0,79
PA06	25S 29' 40.32" 48W 37' 1.86"	9,75	315 ±0,50	13,2 ±0,11	310,8 ±0,84
PA07	25S 29' 35.04" 48W 35'35.40"	13,68	400,8 ±0,56	16,2 ±0,11	392,4 ±0,89
PA08	25S 29' 10.92" 48W 29'17.40"	18,67	626,4 ±0,92	32,4 ±0,25	626,4 ±1,25
PA09	25S 30' 4.50" 48W 29' 17.40"	17,99	450 ±0,62	30,6 ±0,20	557,4 ±1,02
PA10	25S 30' 25.56" 48W 27'24.96"	23,15	357,6 ±0,56	21 ±0,17	575,4 ±1,02
PA11	25S 30' 17.82" 48W 23' 4.62"	24,38	366,6 ±0,53	28,2 ±0,19	651,6 ±1,09
PA12	25S 33' 12.36" 48W 20' 9.48"	29,15	299,4 ±0,48	18,6 ±0,15	391,8 ±0,98
Eixo Norte-Sul					
LA01	25S 20' 33.43" 48W 26' 12.65"	5,95	496,2 ±0,72	15,6 ±0,10	397,8 ±0,87
LA02	25S 17' 2.50" 48W 25' 23.10"	6,98	391,8 ±0,71	15 ±0,12	233,4 ±0,81
LA03	25S 17' 53.70" 48W 19' 56.40"	5,59	885 ±1,25	18,6 ±0,13	269,4 ±0,80
LA04	25S 24' 5.71" 48W 24' 53.03"	4,78	949,2 ±1,47	15,6 ±0,13	428,4 ±0,91
LA05	25S 21' 52.43" 48W 21' 48.55"	5,39	1209 ±1,83	12 ±0,08	225 ±0,88
LA06	25S 23' 1.71" 48W 21' 39.96"	11,30	1425,6 ±2,46	31,2 ±0,25	551,4 ±1,03
LA07	25S 25' 0.37" 48W 22' 19.67"	11,96	1798,8 ±2,70	40,2 ±0,27	795,6 ±1,11
LA08	25S 26' 15.00" 48W 22' 14.40"	14,16	1340,4 ±2,46	22,2 ±0,18	597,6 ±1,02
LA09	25S 27' 17.82" 48W 20' 16.44"	18,83	771,6 ±1,45	18 ±0,12	582 ±1,04
LA10	25S 28' 2.46" 48W 19' 46.44"	18	1779,6 ±3,19	43,2 ±0,35	775,8 ±1,33
Rios					
R01	25S 40' 16.4"48W 30' 44.6"	0	661,8 ±1,29	5,4 ±0,04	122,4 ±0,52
R02	25S 29' 11.8"48W 49' 30.3"	0	454,2 ±1,07	1,8 ±0,02	74,4 ±0,42
R03	25S 28' 53.0" 48W 48' 42.9"	0	3247,2 ±4,99	6,6 ±0,09	333,6 ±1,04
R04	25S 18' 56.9" 48W 42' 18.8"	0	4864,2 ±7,71	13,2 ±0,11	256,2 ±1,21
R05	25S 13' 10.5" 48W 27' 28.6"	0	4328,4 ±6,28	8,4 ±0,03	116,4 ±0,69
R06	25S 13' 16.7" 48W 27' 28.6"	0	4478,4 ±7,20	6 ±0,11	265,2 ±0,84
Poço Artesiano					
PO 01	25S 18' 56.5" 48W 42' 18.0"	0	1379,4 ±3,53	18,6 ±0,13	98,4 ±0,46

### 3.2.1 Eixo Leste-Oeste

No eixo Leste-Oeste do CEP as distribuições das atividades dos isótopos  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{223}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  foram semelhantes, variando consideravelmente em relação ao gradiente de salinidade, sendo que as maiores atividades foram encontradas na salinidade próxima a 18,67 (PA8), com valores de 626,4 dpm/100L para o  $^{224}\text{Ra}$ , 32,4 dpm/100L para o  $^{223}\text{Ra}$  e 626,4 dpm/100L para o  $^{228}\text{Ra}$  (Fig. 2) (Tabela 2).

As menores atividades foram encontradas na salinidade de 0,04 (PA1), com atividades de 56,4 dpm/100L para o  $^{224}\text{Ra}$ , 2,4 dpm/100L para o  $^{223}\text{Ra}$  e 31,2 dpm/100L para o  $^{228}\text{Ra}$ .

As elevadas atividades desses isótopos encontradas no ponto PA8, podem estar relacionadas à proximidade do Porto de Paranaguá e à possível influência de suas atividades industriais nas concentrações de Ra, em especial pela produção de fertilizantes, o qual tem como subproduto o fosfogesso, que apresenta em sua composição o U e o Th, precursores do Ra durante o decaimento de suas atividades.

Silva (2004) observou um comportamento similar no estuário de Santos e relacionou o aumento das atividades de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  com a produção e disposição do fosfogesso em pilhas a céu aberto.

A alta atividade, especialmente para o  $^{228}\text{Ra}$  no ponto PA4, possivelmente está associada ao aumento do material particulado, evidenciado pelos altos valores de turbidez (Tabela 1). Neste local, Noernberg (2001) observou a presença da zona de máxima turbidez (ZMT). Assim, a distribuição das atividades dos isótopos nesse local são suportadas pelos processos de dessorção das partículas fluviais com o aumento da força iônica.

O aumento da atividade de  $^{228}\text{Ra}$  e  $^{224}\text{Ra}$  próximo a desembocadura da baía, (PA11) pode estar associada a presença de SGD nesse local, os baixos valores de turbidez na superfície e no fundo (3,4 ;15,79 FTU, respectivamente) e a ausência de rios que deságuam nesse ponto, podem ser indícios que o incremento de rádio está ocorrendo por meio de fontes secundárias e não apenas através da dessorção de partículas fluviais.

Hwang et al. (2005) concluiu em seu estudo que as fontes de Ra de meias-vidas curtas para áreas costeiras são provenientes principalmente das águas das partes internas da Baía Yeolja, e as anomalias nos padrões de distribuição de Ra podem estar associados ao decaimento desse isótopo e possíveis entradas secundárias adjacentes às margens

rasas que podem contribuir para a adição de Ra no sistema. Tal constatação condiz com o presente trabalho, onde no transecto amostrado o Ra exibiu um comportamento anômalo em alguns pontos, possivelmente devido à presença de diversas fontes (end members) como rios, canais de maré, manguezais, descarga subterrânea e águas costeiras, bem como o impacto antrópico de processos industriais (fertilizantes), que podem influenciar, agindo separadamente ou em conjunto, para o aumento das atividades dos isótopos de rádio.

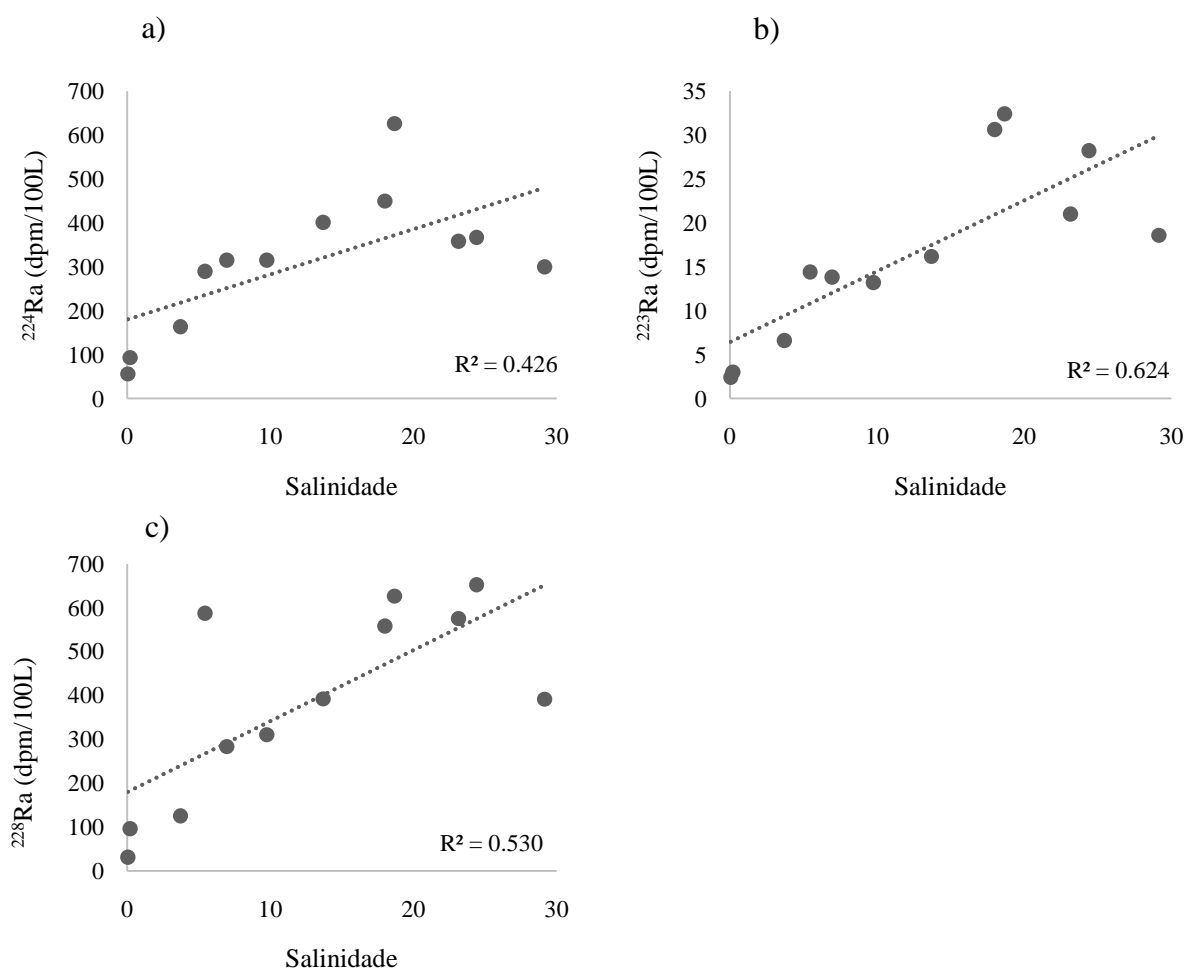


Fig. 2: Distribuição das concentrações de atividade de  $^{224}\text{Ra}$  (a),  $^{223}\text{Ra}$  (b) e  $^{228}\text{Ra}$  (c), em função da salinidade no eixo Leste-Oeste do Complexo Estuarino de Paranaguá.

### 3.2.2 Eixo Norte-Sul

Nesse eixo as atividades dos isótopos de Ra variaram amplamente, apresentando comportamento não-conservativo, não obedecendo ao padrão esperado de diminuição da concentração em relação a distância da costa.

As maiores atividades de  $^{224}\text{Ra}$  foram encontradas no ponto LA7 com 1798,8 dpm/100L e a menor atividade para esse isótopo no ponto LA2 com 391,8 dpm/100L (Fig. 3).

Apesar da baixa turbidez detectada no ponto LA7, as altas atividades podem estar associadas ao material particulado provindo da descarga fluvial do Rio Guamandituba.

Quanto ao  $^{223}\text{Ra}$ , a maior atividade foi observada no ponto LA10 com 43,2 dpm/100L e a menor atividade foi detectada no ponto LA5 com 12 dpm/100L.

O aumento da atividade no ponto próximo a desembocadura do estuário (LA10) pode estar associada a influência da descarga fluvial do Rio das Peças, ou até mesmo a presença de fontes de água subterrânea nessa região.

As atividades de  $^{228}\text{Ra}$  nesse eixo apresentaram comportamento semelhante aos demais isótopos de Ra, sendo que a maior concentração foi encontrada no ponto LA7 e a menor atividade no ponto LA2 com sanidade próxima a 7.

O  $^{224}\text{Ra}$  foi o isótopo que apresentou a maior atividade entre os isótopos analisados, indicando que os sedimentos de fundo podem ser responsáveis por grande parte do incremento de Ra no sistema investigado, como verificado em outros estudos (Souza, 2010; Hancock, 1996; Lee, 2005; Vieira, 2011; Gomes, 2010)

Lee (2005) encontrou em seu trabalho atividades de  $^{224}\text{Ra}$  condizentes com o presente estudo. As maiores atividades foram encontradas no interior da baía, onde há grande influência de aporte fluvial e as menores atividades foram encontradas nas partes mais externas da área estudada.

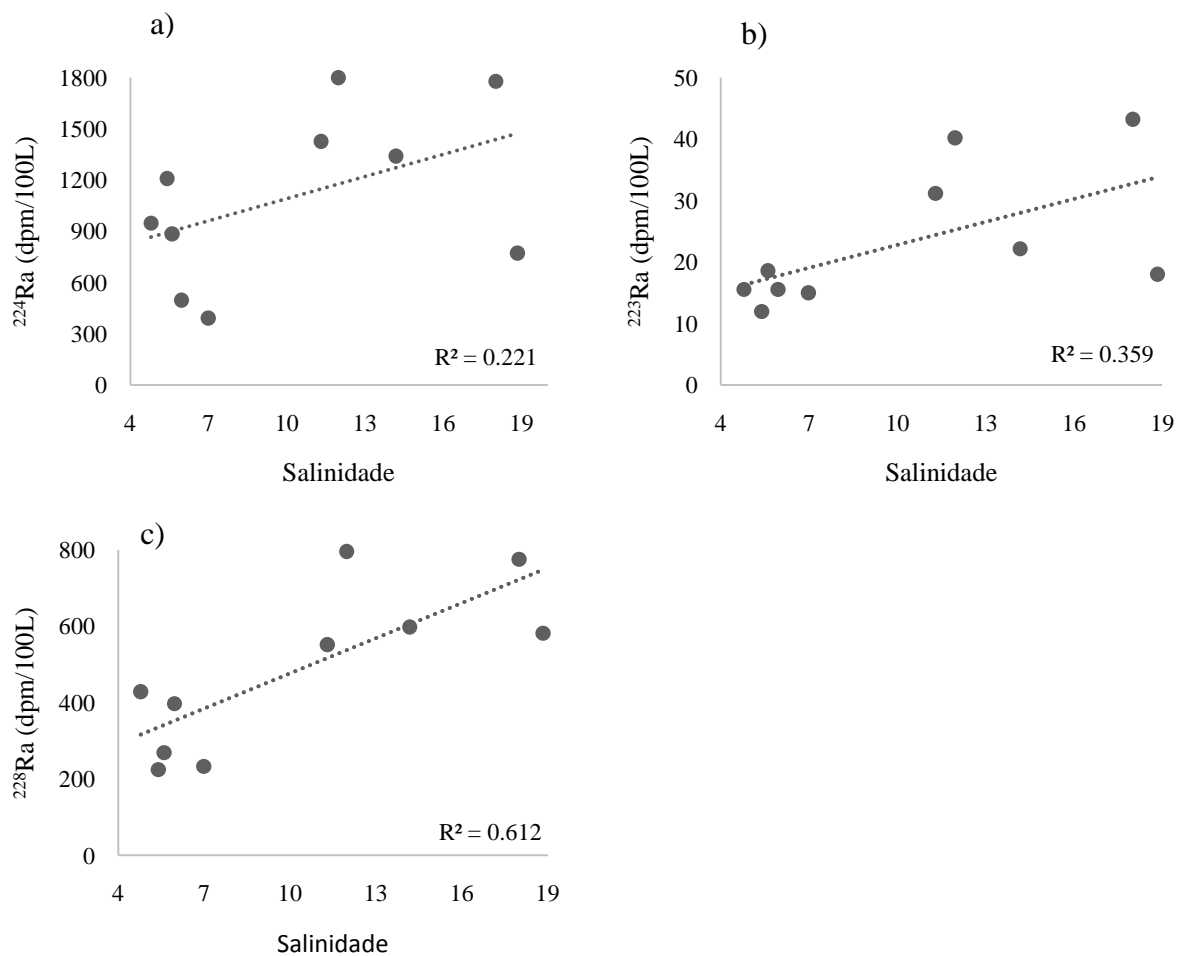


Fig. 3: Distribuição das concentrações de atividade de  $^{224}\text{Ra}$  (a),  $^{223}\text{Ra}$  (b) e  $^{228}\text{Ra}$  (c) em função da salinidade no eixo Norte-Sul do Complexo Estuarino de Paranaguá.

### 3.2.3 Rios e Poço Artesiano

Atividades elevadas de  $^{224}\text{Ra}$ , quando comparadas com as amostras tomadas na água superficial do estuário, foram verificadas nas amostras coletadas nos rios no entorno do CEP. As maiores atividades dos isótopos de  $^{224}\text{Ra}$  e  $^{223}\text{Ra}$  analisados foram determinadas no Rio Cachoeira (R04), enquanto que a maior concentração do isótopo de  $^{228}\text{Ra}$  foi observada no Rio Nhundiaquara (R03) (Fig. 4).

O Rio Cachoeira é considerado a principal fonte de água doce e material particulado em suspensão para o estuário. Nos anos de 1997 e 1998, a soma deste e do rio Nhundiaquara foram responsáveis por 82% do total do aporte de água doce para a baía. Neste mesmo período o rio Cachoeira forneceu 88% da carga de material particulado em suspensão com uma carga de 355 ton/dia de material e aporte médio de  $182 \text{ m}^3/\text{s}$  (Mantovanelli, 1999).

De modo geral, as atividades de  $^{224}\text{Ra}$  foram maiores que os outros isótopos analisados, indicando a predominância da difusão dos sedimentos no incremento desse elemento para o ambiente, sendo esse comportamento também um reflexo das diferentes distribuições de  $^{232}\text{Th}$  e  $^{235}\text{U}$ , radionuclídeos precursores das séries radioativas naturais aos quais estes isótopos de Ra pertencem.

As atividades de  $^{223}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  encontradas nos rios foram relativamente menores do que as determinadas no estuário. Segundo Kaufman (1973) em alguns casos isso ocorre devido ao fato dos isótopos de rádio encontrarem-se fortemente adsorvidos nas partículas fluviais em suspensão e nos sedimentos dos rios, assim com o aumento da salinidade próximo à foz de um estuário, os isótopos de rádio desorvem do material particulado em suspensão e dos sedimentos, aumentando suas atividades dentro do sistema estuarino.

As atividades dos isótopos de Ra na água do poço artesiano amostrado próximo ao Rio Cachoeira foram relativamente baixas quando comparadas as atividades determinadas na água dos rios. Em relação ao  $^{224}\text{Ra}$  a atividade ficou em torno de  $1379,4 \text{ dpm}/100\text{L}$ , para o  $^{223}\text{Ra}$   $18,6 \text{ dpm}/100\text{L}$  e para o  $^{228}\text{Ra}$   $98,4 \text{ dpm}/100\text{L}$ .

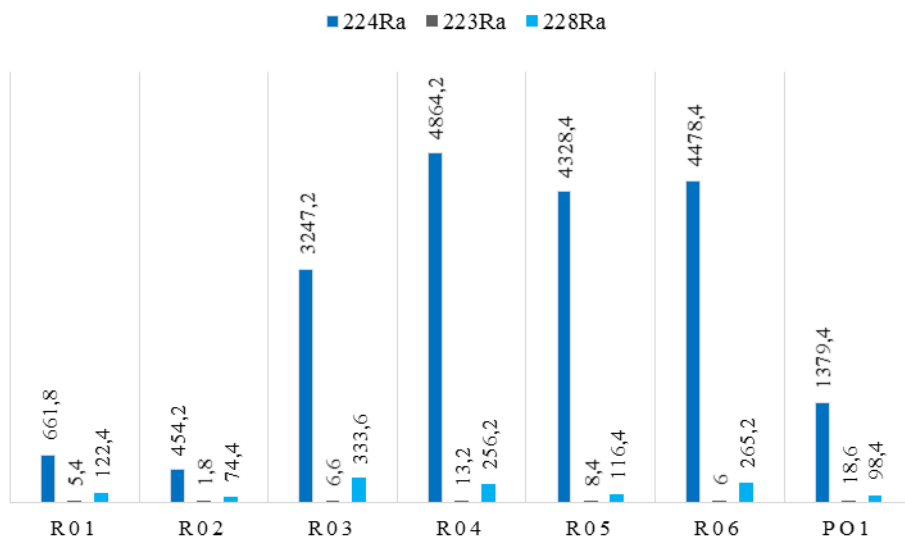


Fig. 4: Distribuição das concentrações de atividade de  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{223}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  em dpm/100L nos rios do Complexo Estuarino de Paraguá e no poço artesiano próximo ao Rio Cachoeira.



### 3.3 Distribuição dos isótopos de rádio nos sedimentos

Na Tabela 3 estão descritas as atividades dos isótopos de Ra nos sedimentos nos pontos amostrados na área de estudo.

Tabela 3

Atividades dos isótopos de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  e  $^{224}\text{Ra}$  nos sedimentos do eixo leste-oeste, norte-sul e rios do CEP.

\*não foi possível realizar a amostragem dos sedimentos no local PA1

Amostra	$^{226}\text{Ra}$ (Bq/kg)	$^{228}\text{Ra}$ (Bq/kg)	$^{224}\text{Ra}$ (Bq/kg)
<b>Eixo Leste-Oeste</b>			
PA1	----	----	----
PA2	7,5 ±0,50	15,2 ±1,0	17,2 ±2,0
PA3	12,4 ±1,4	16,7 ±1,2	16,8 ±2,6
PA4	21,5 ±2,7	31,5 ±1,9	50,3 ±3,8
PA5	15,8 ±2,1	24,0 ±1,5	28,1 ±2,8
PA6	24,5 ±3,0	44,7 ±2,6	56,0 ±4,4
PA7	22,8 ±3,6	35,9 ±2,1	48,9 ±3,7
PA8	17,0 ±1,9	24,13 ±1,5	30,9 ±2,9
PA9	7,8 ±0,30	6,5 ± 0,58	6,4 ±1,6
PA10	4,6 ±0,28	4,8 ± 0,50	6,8 ±1,6
PA11	5,0 ±0,74	4,8 ± 0,47	1,9 ±1,3
PA12	3,9 ±0,05	3,2 ± 0,42	2,0 ±1,3
<b>Eixo Norte-Sul</b>			
LA1	14,0 ±1,6	22,7 ±1,4	22,5 ±2,4
LA2	16,2 ±2,1	24,1 ±1,6	31,1 ±3,2
LA3	14,1 ±1,2	23,7 ±1,5	25,5 ±2,6
LA4	17,5 ±1,9	24,7 ±1,5	32,9 ±2,8
LA5	15,9 ±1,5	24,4 ±1,5	31,2 ±3,1
LA6	15,5 ±1,3	23,4 ±1,5	38,0 ±3,4
LA7	10,3 ±1,9	15,7 ±1,0	16,7 ±2,1
LA8	9,6 ±1,1	11,1 ±0,77	11,5 ±1,6
LA9	11,9 ±2,0	21,4 ±1,5	26,5 ±3,3
LA10	8,6 ±1,6	9,8 ±0,77	10,7 ±2,5
<b>Rios</b>			
R1	14,2 ±1,3	18,7 ±1,2	18,4 ±2,0
R2	16,1 ±1,9	36,4 ±2,1	40,8 ±3,2
R3	36,0 ±2,8	77,0 ±4,1	177,4 ±10,5
R4	35,9 ±3,2	60,3 ±3,4	72,6 ±5,2
R5	14,4 ±1,5	41,6 ±2,3	48,4 ±3,5
R6	19,5 ±1,4	37,7 ±2,2	48,8 ±3,8

### 3.3.1 Eixo leste oeste

No eixo leste-oeste os isótopos analisados nos sedimentos demonstraram comportamento similar, com maiores atividades na parte central do estuário, na salinidade de 10 a 20. As maiores atividade para  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  e  $^{224}\text{Ra}$  foram detectadas no ponto PA6 (Fig. 5).

Baixas atividades para os isótopos analisados foram encontradas nos pontos próximos a desembocadura do estuário, em contraposição ao padrão da distribuição de Ra nas águas superficiais, onde verificou-se um aumento nas atividades dos isótopos em alguns pontos na parte externa do estuário.

Segundo Moore (1987) a contribuição dos sedimentos como fontes potenciais de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  em águas costeiras ocorre predominantemente nas regiões de plataforma interna, pois na plataforma externa os sedimentos apresentam pouco potencial de liberação de Ra.

A distribuição dos isótopos de Ra nos sedimentos pode ser explicada pela granulometria da região, segundo Lamour (2004), no setor mediano e no interior do estuário é observada a distribuição de silte médio e fino, o que pode aumentar o potencial de difusão dos isótopos de Ra através dos sedimentos, já próximo à desembocadura do estuário ocorre a presença de sedimentos grossos, o que pode dificultar essa ação.

Torgersen et al. (1996) revelaram que enquanto em águas próximas da região de praia se observavam concentrações aumentadas de  $^{224}\text{Ra}$ , a água de fundo coletada no centro das enseadas estudadas se encontrava duas vezes mais enriquecida neste isótopo, possivelmente devido à presença de sedimentos com granulometria muito fina.

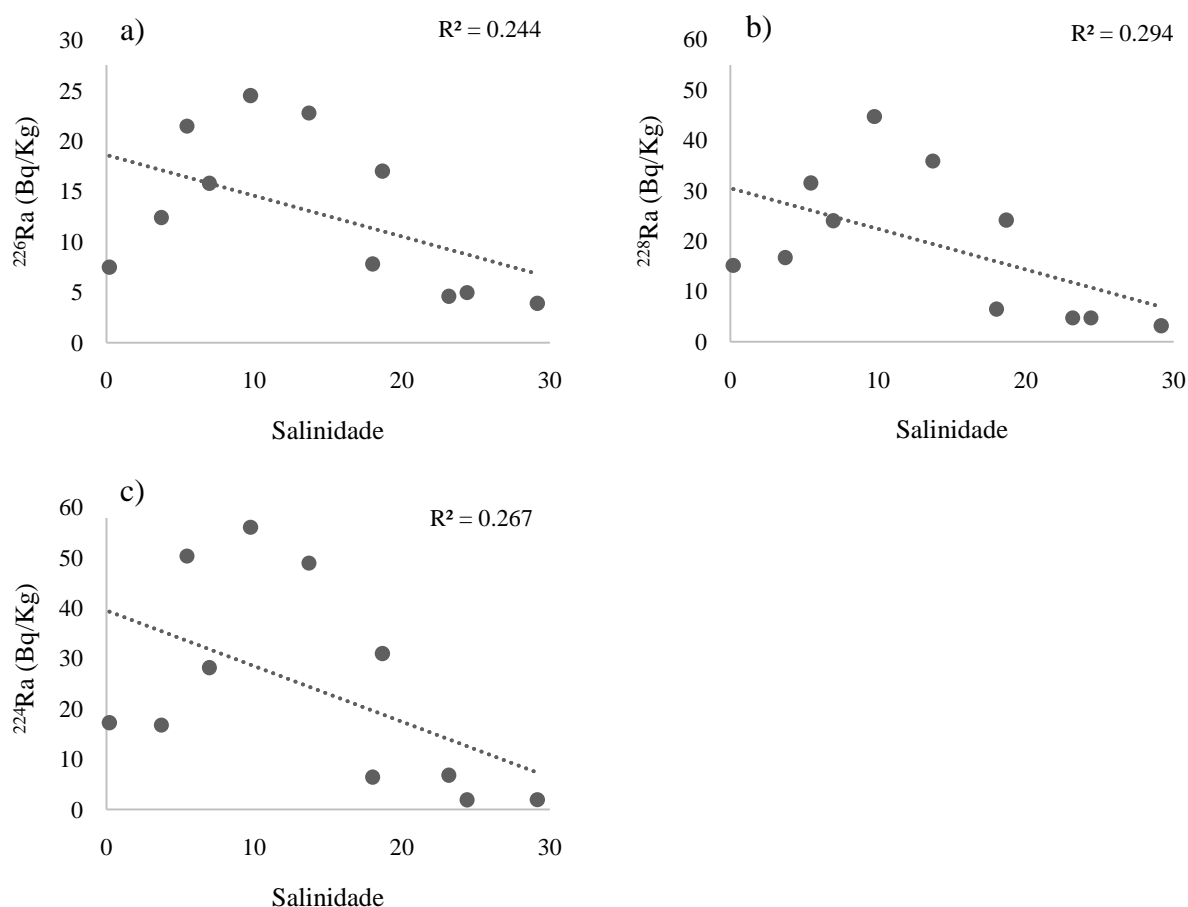


Fig. 5: Gráfico da distribuição dos isótopos de  $^{226}\text{Ra}$  (a),  $^{228}\text{Ra}$  (b) e  $^{224}\text{Ra}$  (c) nos sedimentos do eixo leste-oeste do Complexo Estuarino de Paraguá.

### 3.3.2 Eixo norte sul

Nesse eixo as maiores atividades dos isótopos foram encontradas na porção central do estuário até salinidade próxima a 15 (LA8), após esse local a tendência das atividades dos isótopos de Ra foi de diminuir com a aproximação da desembocadura do estuário, exceto pelo incremento das atividades no local LA9 (salinidade 18) (Fig. 6).

Segundo Lamour (2004), nesse eixo do CEP existe a predominância de sedimentos finos, sendo que a maior parte do estuário é constituído por areia fina e silte grosso, as mais baixas concentrações de sedimentos grossos estão localizadas em Guaqueçaba, local onde foram encontradas altas atividades dos isótopos de Ra.

Assim como no eixo leste-oeste, no eixo norte-sul a distribuição das atividades de Ra nos sedimentos foram diferentes daquelas encontradas na água superficial, na qual altas concentrações dos isótopos ocorreram em pontos próximo a desembocadura do estuário enquanto que nas amostras dos sedimentos houve uma tendência de

diminuição dos isótopos exceto pelo incremento de Ra no ponto LA9.

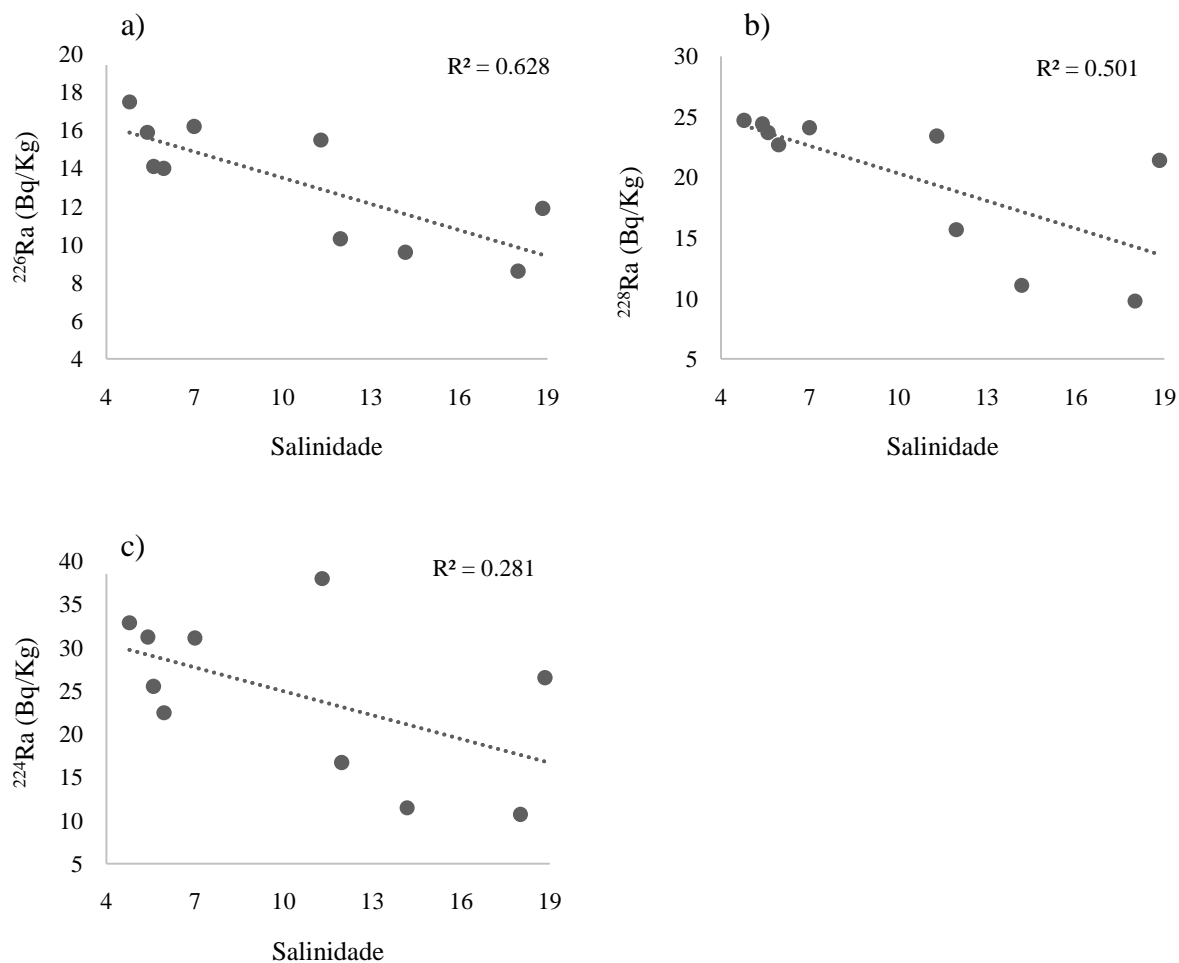


Fig. 6: Gráfico da distribuição dos isótopos de  $^{224}\text{Ra}$  (a),  $^{228}\text{Ra}$  (b) e  $^{226}\text{Ra}$  (c) nos sedimentos do eixo norte-sul do Complexo Estuarino de Paranaguá.

### 3.3.3 Rios

Em comparação com os sedimentos estuarinos, verificou-se atividades elevadas de todos os isótopos nas amostras dos sedimentos dos rios investigados.

O  $^{224}\text{Ra}$  foi o isótopo que apresentou a maior atividade entre os isótopos em todos os rios analisados e o  $^{226}\text{Ra}$  apresentou as menores atividades.

As maiores atividades foi registrada no rio Nhundiaquara (R3), e no rio Guaraguaçu (R2) foram encontradas as menores atividades (Fig. 7).

Levy (1985) apresentou evidências de que o  $^{224}\text{Ra}$  pode ser produzido na plataforma a partir do  $^{228}\text{Th}$ . Como o  $^{228}\text{Th}$  é produzido pelo decaimento do  $^{228}\text{Ra}$  no sistema, ele é rapidamente removido para o sedimento, e por sua vez, produz e libera o  $^{224}\text{Ra}$ .

Medidas realizadas no Rio Hudson, demonstraram que as atividades de  $^{226}\text{Ra}$  nos sedimentos estuarinos são frequentemente maiores do que as atividades observadas nos rios e no oceano (Li et al., 1977). Eles postularam que a dessorção do Ra ligado à superfície dos sedimentos ocorre quando os sedimentos entram em águas estuarinas de alta força iônica. No presente estudo as atividades de  $^{226}\text{Ra}$  nos sedimentos fluviais foram relativamente maiores do que as encontradas nas amostras do estuário, não compactuando com o estudo de Li et al. (1977).

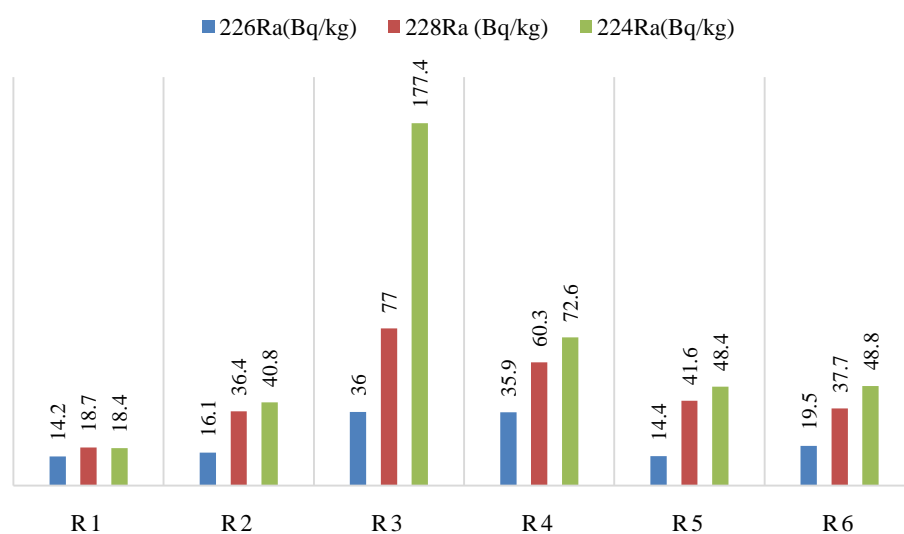


Fig. 7: Gráfico da distribuição das atividades dos isótopos de Ra e nos rios amostrados dentro da área de estudo.

### 3.4 Idade aparente do Ra

Segundo Dulaiova e Burnett (2008), idades aparentes de rádio podem ser calculadas usando uma razão de um isótopo de rádio de meia-vida curta. A aproximação supõe que o rádio é adicionado de uma fonte com uma composição isotópica fixa e que a troca nesta razão ocorre unicamente por decaimento radioativo.

A idade aparente das amostras de Ra nos eixos leste-oeste e norte-sul do CEP foi calculada usando a seguinte expressão:

$$Ax = A_0 x e^{-\lambda t}$$

Onde:

$Ax$  = atividade de  $^{223}\text{Ra}$  ou  $^{224}\text{Ra}$  na distância  $x$  km da costa;  $A_0$  = atividade de  $^{223}\text{Ra}$  ou  $^{224}\text{Ra}$  na distância 0 km da costa;  $\lambda$  = constante de desintegração radioativa do  $^{223}\text{Ra}$  ou  $^{224}\text{Ra}$  em  $\text{d}^{-1}$ . ( $\lambda^{223}\text{Ra} = 0,06080238 / \lambda^{224}\text{Ra} = 0,18938448$ )

Os isótopos de Ra analisados apresentaram comportamento similar na distribuição do logaritmo natural em função da distância do ponto mais interno da baía ao ponto mais externo amostrado, tanto no eixo leste-oeste (Fig. 8), como no eixo norte-sul (Fig.10), o que evidencia em princípio, a possibilidade de se usar qualquer um dos três isótopos para estimar as idades aparentes das amostras.

De acordo com esse modelo, a distância percorrida entre o ponto mais interno do estuário e o ponto mais externo no eixo leste-oeste foi de aproximadamente 47,71 km (Tabela 6). Segundo os cálculos de idade aparente, o  $^{223}\text{Ra}$  demora cerca de 8 dias para percorrer essa distância. Já o  $^{224}\text{Ra}$  leva 6 dias para chegar na parte mais externa da baía.

No eixo norte sul, foi tomado como o ponto mais interno estuário a amostra La3, a distância percorrida entre a costa e a desembocadura foi de aproximadamente 21,75 km. De acordo com o cálculo das idades aparentes o  $^{223}\text{Ra}$  demora 2,46 dias para percorrer esse trajeto e o  $^{224}\text{Ra}$ , 2,43 dias.

Tabela 5  
 Cálculo da idade aparente a partir dos isótopos de  $^{223}\text{Ra}$  e  $^{224}\text{Ra}$  no eixo leste-oeste do Complexo Estuarino de Paranaguá.

	$^{223}\text{Ra}$	$^{224}\text{Ra}$	
<b>Eixo leste-oeste</b>			
Amostra	Idade aparente (dias)	Idade aparente (dias)	Distancia (Km)
Pa1	0	0	0
Pa2	1,32	2,00	1,41
Pa3	2,92	2,91	7,37
Pa4	6,37	6,19	11,64
Pa5	6,11	6,74	15,85
Pa6	5,84	6,74	20,08
Pa7	7,17	8,58	24,6
Pa8	14,34	13,42	29,17
Pa9	13,54	9,64	32,28
Pa10	9,29	7,66	35,97
Pa11	12,48	7,85	40,49
Pa12	8,23	6,41	47,71
<b>Eixo norte-sul</b>			
La3	0	0	0
La5	0,68	1,65	5,7
La6	1,78	1,94	10,34
La7	2,29	2,45	12,41
La8	1,26	1,83	15,58
La9	1,02	1,06	18,36
La10	2,46	2,43	21,75

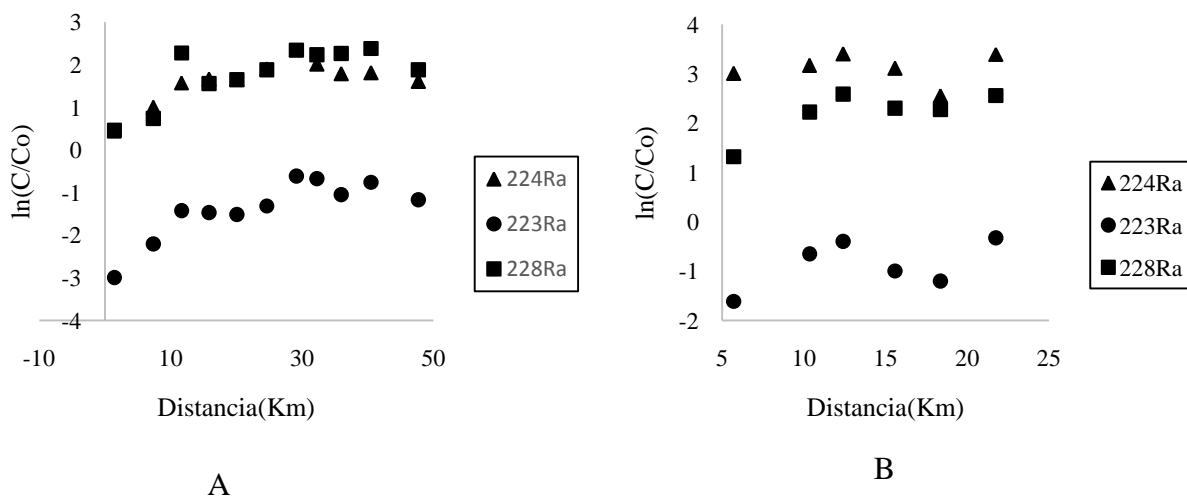


Fig. 8: Distribuição do logaritmo natural dos isótopos de rádio em função da distância em relação a costa (A) Eixo leste-oeste (B) Eixo norte-sul.

## 4. Conclusões

Foram encontradas diferentes respostas de atividade de rádio nos pontos amostrados, demonstrando a acentuada variabilidade dos isótopos  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  no meio hídrico do CEP. As atividades excessivas de rádio em alguns pontos se devem, provavelmente, ao aporte por diferentes fontes que podem ser de origem fluvial, processos de difusão nos sedimentos e aporte de água subterrânea, as quais podem contribuir para o acréscimo desse elemento no sistema.

A presença de fábricas de fertilizantes nas áreas próximas ao CEP pode influenciar o incremento das concentrações dos isótopos de Ra de meias-vidas curtas no estuário. Tais atividades de Ra em excesso ao longo do transecto, onde há possível presença de rejeitos dessas fábricas, indicam que o tráfego de navios do Porto de Paranaguá que transportam fertilizantes e/ou rejeitos oriundos dessas fábricas podem constituir uma fonte potencialmente importante.

Elevadas atividades de Ra dentro do CEP foram também encontradas nos pontos sob influência da zona de máxima turbidez, indicando que o excesso de rádio nesses locais é proveniente da dessorção de partículas suspensas na coluna d'água.

A distribuição dos isótopos de Ra nos sedimentos pode ser explicada pela granulometria da região. Nos ambientes deposicionais com predominância de sedimentos finos foram encontradas as maiores atividades dos isótopos, já naqueles com maior distribuição de sedimentos grossos as atividades foram menores. Tais aspectos podem influenciar no potencial de difusão dos isótopos de Ra através dos sedimentos, afetando as atividades desse elemento na coluna d'água.

Baseado nos cálculos de idade aparente foi possível determinar que o tempo necessário para que a massa d'água do rio com salinidade próxima a 0, leva cerca de 8 dias para atingir uma distância de 47 km no eixo leste oeste. Já no eixo norte sul a massa d'água percorre uma distância de 21 km em aproximadamente 2 dias.

Estudos futuros com uma amostragem mais abrangente são recomendáveis para que se possa fazer uma estimativa do fluxo de SGD dentro do CEP usando isótopos de Ra como traçadores.



## 5. Referências Bibliográficas

- BIGARELLA, J.J., BECKER, R.D., MATOS, J.D., WERNER, A., (1978). A Serra do Mar e a Porção Oriental do Estado do Paraná... Um problema de segurança ambiental e nacional. Curitiba, Gov. Par./SEPL/ADEA, 249 p.
- CABLE, J.E., BURNETT, W.C., CHANTON, J.P., CORBETT, D.R., CABLE, P.H., (1996). Field evaluation of seepage meters in the coastal marine environment. *Estuar. Coast. Shelf Sci.*, 45, 367–375.
- CHARETTE, M.A., Splivallo, R., Herbolda, C., Bollinger, M.S., Moore, W.S. (2003). Salt marsh submarine groundwater discharge as traced by radium isotopes. *Mar. Chem.*, 84, 113-121.
- DULAIIOVA, H., BURNETT, W.C. (2008). Evaluation of the Flushing Rates of Apalachicola Bay, Florida via Natural Geochemical Tracers. *Mar. Chem.*, 109, 395-408.
- ELSINGER, R.J., MOORE, W.S. (1980). Ra-226 behaviour in the Pee Dee River-Winyah Bay estuary. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 48, 239-249.
- ELSINGER, R.J., MOORE, W.S. (1983). Ra-224, Ra-228 and Ra-226 sources in Winyah Bay and Delaware Bay. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 64, 430-436.
- GODOY, J. M. (1994). Development of a Sequential Method for the Determination of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  in Environmental Samples. *J. Radioanal. Nucl. Ch.*, 182, 165-169.
- GOMES, F. **Estudo da Dispersão de Radionuclídeos na Baía da Ilha Grande- RJ.** 135f. Tese (Doutorado em Engenharia Nuclear) – Programa de Engenharia Nuclear, Universidade federal do Rio de Janeiro/COPPE, 2010.
- GRASSHOFF, K., EHRHARDT, M., KREMILING, K. *Methods of Seawater Analyses*, 3. ed., Verlag Chemie: Weinheim. Federal Republic of Germany (1983).
- HANCOCK, G.J., MURRAY, A.S. (1996). Source and distribution of dissolved radium in the Bega River estuary, Southeastern Australia. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 38, 145- 155.
- HWANG, D., Kim, G., Lee, Y., Yang, H. (2005). Estimating submarine inputs of groundwater and nutrients to a coastal bay using radium isotopes. *Mar. Chem.* 96, 61–71.
- IAPAR – INSTITUTO AGRONÔMICO DO PARANÁ. (2000). *Cartas climáticas do Estado do Paraná.* Londrina/PR.
- KAUFMAN, A., TRIER, R., BROECKER, W., FEELY, H., (1973). Distribution of  $^{228}\text{Ra}$  in the World Ocean. *J. Geophys. Res.*, 78 (36), 8827 – 8848.

KELLY, R.P., MORAN, S.B. (2002). Seasonal changes in groundwater input to a well-mixed estuary estimated using radium isotopes and implications for coastal nutrient budgets. *Limnol. Oceanogr.*, 47, 1796-1807.

KNOPPERS, B.A., BRANDINI, F.A., THAMM, C.A., (1987). Ecological studies in the Bay of Paranaguá. II. Some physical and chemical characteristics. *Neritica*, 2, 1-36.

KREST, J.M., MOORE, W.S., GARDNER, L.R., MORRIS, J., (2000). Marsh nutrient export supplied by groundwater discharge: evidence from radium measurements. *Global Biogeochem Cy.*, 14, 167-176.

LAMBERT, J.M., BURNETT, W.C., (2003). Submarine groundwater discharge estimates at a Florida coastal site based on continuous radon measurements. *Biogeochemistry*, 66, 55-73.

LAMOUR, M.R., SOARES, C.R., CARRILHO, J.C., (2004) Mapas de Parâmetros Texturais de Sedimentos de Fundo do Complexo Estuarino de Paranaguá – PR. *Boletim Paranaense de Geociências*. 55, 77-82.

LANA, P. C., MARONE, E., LOPES, R.M., MACHADO, E.C. (2001). The subtropical estuarine complex of Paranaguá Bay, Brazil. In: *ECOLOGICAL STUDIES, COASTAL MARINE ECOSYSTEMS OF LATIN AMERICA*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 144, 131-145.

LAURIA, D.C., ALMEIDA, R.M.R., FERREIRA, A.C. (2004). Evaluating the Occurrence and Spatial Distribution of the Radioactive Isotopes  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{238}\text{U}$  in the Groundwaters of Região Dos Lagos - Rj – Brazil. *Revista Latino-Americana de Hidrogeologia*, 4, 47-55.

LEE, J. S. (2005). Radium Isotopes in the Ulsan Bay. *J. Environ. Radioactiv.*, 82, 129-141.

LEVY, D.M., MOORE, W.S. (1985).  $^{224}\text{Ra}$  in continental shelf waters. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 73, 226 – 230.

LI, Y.H., MATHIEU, G., BISCAYE, P., SIMPSON, H.J. (1977). The flux of  $^{226}\text{Ra}$  from estuarine and continental shelf sediments. *Earth Planet Sc Lett.*, 37, 237-241.

LI, Y.H., CHAN, L.H. (1979) Desorption of Ba and Ra-226 from river-borne sediments in the Hudson Estuary. *Earth Planet. Sc. Lett.*, 43, 343-350.

MANTOVANELLI, A. **Caracterização da dinâmica hídrica e do material particulado em suspensão na Baía de Paranaguá e em sua bacia de drenagem.** 146 f. Dissertação (Mestrado em Geologia Ambiental) Setor de Ciências da Terra, Universidade Federal do Paraná, Curitiba, 1999.

MARONE, E., JAMIYANAA, D. (1997). Tidal characteristics and a numerical model for the M2 tide at the estuarine complex of the Bay of Paranaguá. *Nerítica*, 11, 95-107.

MARTINS, C.C., BÍCEGO, M.C., FIGUEIRA, R.C.L., ANGELLI, J.L.F, COMBI, T., GALLICE, W.C., MANSUR, A.V., NARDES, E., ROCHA, M.L., WISNIESKI, E., CESCHIM, L.M.M., RIBEIRO, A.P. (2012). Multi-molecular markers and metals as tracers of organic matter inputs and contamination status form a Environmental Protection area in the SW Atlantic (Laranjeiras Bay, Brazil). *Sc. Total Envir.*, 417, 158-168.

MOORE, W.S., (1969). Oceanic concentrations of  $^{228}\text{Ra}$ . *Earth Planet Sc. Lett.*, 6, 437 – 446.

MOORE, W.S. (1996). Large groundwater inputs to coastal waters revealed by  $^{226}\text{Ra}$  enrichments. *Nature*, 380, 612 – 614.

MOORE, W.S., ARNOLD, R. (1996). Measurement of  $^{224}\text{Ra}$  and  $^{223}\text{Ra}$  in coastal waters using delayed coincidence counter. *J. Geophys. Res.*, 101, 1321-1329.

MOORE, W.S. (1999). The subterranean estuary: a reaction zone of ground water and sea water. *Mar Chem.*, 65, 111 – 125.

MOORE, W.S., KREST, J. (2004). Distribution of  $^{223}\text{Ra}$  and  $^{224}\text{Ra}$  in the plumes of the Mississippi and Atchafalaya Rivers and the Gulf of Mexico. *Mar. Chem.*, 86, 105–119.

MULLIGAN, A.E., CHARETTE, M.A. (2006). Intercomparison of submarine groundwater discharge estimates from a sandy unconfined aquifer. *J. Hydrology.*, 327 (3–4), 411–425.

NOERNBERG, M. A. (2001). **Processos morfodinâmicos no Complexo Estuarino de Paranaguá: um estudo utilizando dados Landsat-TM e medições in situ**. 118 f. Tese (Doutorado em Geologia Ambiental – Departamento de Geologia), Setor de Ciências da Terra, Universidade Federal do Paraná, Curitiba.

NOERNBERG, M.A. (2006). Remote sensing and GIS integration for modelling the Paranaguá Estuarine Complex –Brazil. *J. Coastal Res.*, 39, 1627-1631.

NOERNBERG, M.A., ANGELOTTI, R., CALDEIRA, G.A., RIBEIRO DE SOUSA, A.F., (2008). Determinação da sensibilidade do litoral paranaense à contaminação por óleo. *Braz. J. Aquat. Sci., Technol.* 12 (2), 49-59.

RAMA; MOORE, W.S., 1996. Using the radium quartet for evaluating groundwater input and water exchange in salt marshes., *Geochim. Cosmochim. Ac.*, 60, 4645 - 4652.

SÁ, F. **Geoquímica do arsênio no Complexo Estuarino da baía de Paranaguá- PR**. 128f. Tese (Doutorado em Geociências) – Departamento de Geoquímica, Universidade Federal Fluminense, 2008.

SILVA, P. (2004). **Caracterização Química e Radiológica dos Sedimentos do Estuário de Santos, São Vicente e Baía de Santos**. 282 f. Tese (Doutorado em Ciências na área de Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo.

SOUSA, K. (2008). **Estudo dos fluxos fluviais de isótopos naturais de rádio e bário dissolvido para as enseadas de Ubatuba, litoral norte do estado de São Paulo.** 171 f. Dissertação (Mestrado em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, São Paulo.

SOUZA, T. (2008). **Isótopos de rádio como uma ferramenta para o estudo de mistura de águas no estuário do Rio Paraíba do Sul.** 92 f. Dissertação (Mestrado em Química) – Pontifícia Universidade Católica, Rio de Janeiro.

SOUZA, T. et al. (2010). Use of multitracers for the study of water mixing in the Paraíba do Sul River estuary. *J. Environ. Radioactiv.*, 101, 564–570.

TORGERSEN, Thomas et al. (1996).  $^{224}\text{Ra}$  Distribution in Surface and Deep Water of Long Island Sound: sources and horizontal transport rates. *Cont. Shelf. Res.*, 16, 1545-1559.

VIEIRA, L. H. (2011). **Aplicação dos isótopos de Ra e do Th-234 como traçadores de carbono exportado para o Estreito de Bransfield, Antártica.** 153 f. Dissertação (Mestrado em Ciências- Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

WEBSTER, I.T.; HANCOCK, T.G. MURRAY, A.S. (1995). Use of radium isotopes to examine porewater exchange in estuary. *Limnol Oceanogr.*, 39, 1917-1927.

WINDOM, H et al., (2006). Submarine groundwater discharge: A large, previously unrecognized source of dissolved iron to the South Atlantic Ocean. *Mar. Chem.*, 252-266.

## 6. Anexos

Anexo 1: Dados da coleta de amostras do eixo Leste-Oeste realizada em 18/03/2013

Amostra	Horário	Salinidade	Coordenadas
PA1	12:03	0	25S 24'38.58" 48W 42' 25.44"
PA2	12:42	1	25S 25' 0.06" 48W 42' 26.04"
PA3	13:24	3	25S 27' 16.80" 48W 40' 4.80"
PA4	13:45	5	25S 20' 27.96" 48W 39'22.20"
PA5	14:24	6	25S 28' 24.36" 48W 38'31.92"
PA6	14:45	10	25S 29' 40.32" 48W 37' 1.86"
PA7	15:04	13	25S 29' 35.04" 48W 35'35.40"
PA8	15:28	20	25S 29' 10.92" 48W 29'17.40"
PA9	16:05	19	25S 30' 4.50" 48W 29' 17.40"
PA10	16:36	25	25S 30' 25.56" 48W 27'24.96"
PA11	16:57	25	25S 30' 17.82" 48W 23' 4.62"
PA12	17:05	30	25S 33' 12.36" 48W 20' 9.48"

\*No ponto 1 amostra de sedimentos não foi feita;

Anexo 2: Dados da coleta de amostras do eixo Norte-Sul realizada em 19/03/2013

Amostra	Horario	Salinidade	Coordenadas
LA1	12:00	5	25S 20' 33.43" 48W 26' 12.65"
LA2	13:12	7	25S 17' 2.50" 48W 25' 23.10"
LA3	13:28	5	25S 17' 53.70" 48W 19' 56.40"
LA4	13:43	4	25S 24' 5.71" 48W 24' 53.03"
LA5	13:58	4	25S 21' 52.43" 48W 21' 48.55"
LA6	14:25	11	25S 23' 1.71" 48W 21' 39.96"
LA7	14:46	12	25S 25' 0.37" 48W 22' 19.67"
LA8	15:11	14	25S 26' 15.00" 48W 22' 14.40"
LA9	15:28	20	25S 27' 17.82" 48W 20' 16.44"
LA10	15:54	18	25S 28' 2.46" 48W 19' 46.44"

Anexo 3: Dados da coleta de amostras dos rios e poço artesiano realizada em 21/03/2013

Amostra	Horário	Coordenadas	
R1	7:47	25S 40' 16.4" 48W 30' 44.6"	Rio guaraguaçu
R2	9:00	25S 29' 11.8" 48W 49' 30.3"	Rio Sagrado
R3	10:05	25S 28' 53.0" 48W 48' 42.9"	Nhundiaquara
R4	12:05	25S 18' 56.9" 48W 42' 18.8"	Rio cachoeira
R5	15:00	25S 13' 10.5" 48W 27' 28.6"	Taguaqueçaba
R6	17:05	25S 13' 16.7" 48W 27' 28.6"	Serra Negra
PO1	13:03	25S 18' 56.5" 48W 42' 18.0"	Poço (Rio Cachoeira)

Anexo 4: Contagens das amostras de  $^{223}\text{Ra}$  e  $^{224}\text{Ra}$  analisadas no sistema RADECCSys

Amostra	data da coleta	horario da coleta	vol,	grupo	data e hora da contagem	Runtime	CPM219	Cnt219	CPM220	Cnt220	CPMTot	CntTot
La1	19/03/2013	12:00	60	1	4/4/2013 07:40:52"	500,52	0,08	40	0,575	288	3.676	1840
La1 (2)	19/03/2013	12:00	60	1	8/4/2013 07:33:30"	484,93	0,169	82	0,79	383	3.419	1658
La2	19/03/2013	13:12	60	2	4/4/2013 07:40:55"	500,52	0,104	52	0,509	255	2.819	1411
La2(2)	19/03/2013	13:12	60	2	8/4/2013 07:33:32"	484,93	0,091	44	0,388	188	2.543	1233
La3	19/03/2013	13:28	60	3	4/4/2013 07:40:57"	500,5	0,172	86	1.177	589	3.990	1997
La 3(2)	19/03/2013	13:28	60	3	8/4/2013 07:33:34"	484,92	0,128	62	1.138	552	3.648	1769
La 4	19/03/2013	13:43	60	4	4/4/2013 07:40:59"	500,48	0,138	69	1.243	622	4.416	2210
La 4(2)	19/03/2013	13:43	60	4	8/4/2013 07:33:37"	484,92	0,148	72	1.048	508	3.836	1860
La5	19/03/2013	13:58	60	1	9/4/2013 08:00:01"	476,98	0,09	43	0,744	355	3.124	1490
La5 (2)	19/03/2013	13:58	60	1	10/4/2013 07:53:36"	313,58	0,045	14	0,459	144	3.112	976
La6	19/03/2013	14:25	60	2	9/4/2013 08:00:08"	476,88	0,164	78	0,547	261	3.202	1527
La6 (2)	19/03/2013	14:25	60	2	10/4/2013 07:53:43"	313,48	0,121	38	0,705	221	3.330	1044
La7	19/03/2013	14:46	60	3	9/4/2013 08:00:13"	476,83	0,214	102	0,956	456	3.666	1748
La7(2)	19/03/2013	14:46	60	3	10/4/2013 07:53:49"	313,42	0,274	86	0,83	260	3.408	1068
La8	19/03/2013	15:11	60	4	9/4/2013 08:00:19"	476,77	0,141	67	0,661	315	3.125	1490
La8(2)	19/03/2013	15:11	60	4	10/4/2013 07:53:59"	313,28	0,163	51	0,648	203	2.981	934
La9	19/03/2013	15:28	60	1	10/4/2013 13:22:18"	151,52	0,139	21	0,482	73	3.274	496
La9(2)	19/03/2013	15:28	60	1	11/4/2013 08:23:08"	466,03	0,088	41	0,315	147	2.792	1301
La10	19/03/2013	15:54	60	2	10/4/2013 13:22:26"	151,4	0,231	35	0,7	106	3.395	514
La10(2)	19/03/2013	15:54	60	2	11/4/2013 08:23:19"	465,87	0,176	82	0,577	269	3.228	1504
Pa1	18/03/2013	12:03	60	1	25/3/2013 11:00:49"	310,88	0,035	11	0,518	161	2.207	686
Pa1(2)	18/03/2013	12:03	60	1	26/3/2013 07:29:46"	475,17	0,025	12	0,434	206	2.178	1035
Pa2	18/03/2013	12:42	60	2	25/3/2013 11:00:58"	310,77	0,029	9	0,644	200	2.919	907
Pa2(2)	18/03/2013	12:42	60	2	26/3/2013 07:29:56"	475,03	0,032	15	0,598	284	2.897	1376
Pa3	18/03/2013	13:24	60	3	25/3/2013 11:01:07"	310,65	0,119	37	1.358	422	4.027	1251
Pa3(2)	18/03/2013	13:24	60	3	26/3/2013 07:30:06"	474,88	0,078	37	1.217	578	3.797	1803
Pa4	18/03/2013	13:45	60	4	25/3/2013 11:01:16"	310,58	0,238	74	2.173	675	6.919	2149
Pa4(2)	18/03/2013	13:45	60	4	26/3/2013 07:30:14"	474,78	0,198	94	2.249	1068	6.900	3276
Pa5	18/03/2013	14:24	60	1	27/3/2013 08:07:41"	477,47	0,168	80	1.686	805	5.644	2695
Pa6	18/03/2013	14:45	60	2	27/3/2013 08:07:43"	477,47	0,13	62	1.435	685	6.059	2893
Pa7	18/03/2013	15:04	60	3	27/3/2013 08:07:45"	477,45	0,203	97	2.076	991	6.361	3037
Pa8	18/03/2013	15:28	60	4	27/3/2013 08:07:48"	477,43	0,392	187	3.064	1463	9.384	4480
Pa9	18/03/2013	16:05	60	1	28/3/2013 07:40:40"	501,82	0,361	181	1.997	1002	6.658	3341
Pa10	18/03/2013	16:36	60	2	28/3/2013 07:40:42"	501,8	0,193	97	1.259	632	5.082	2550
Pa11	18/03/2013	16:57	60	3	28/3/2013 07:40:43"	501,82	0,331	166	1.606	806	5.376	2698
Pa12	18/03/2013	17:05	60	4	28/3/2013 07:40:46"	501,8	0,227	114	1.230	617	4.719	2368
Po1	21/03/2013	13:03	60	1	22/4/2013 07:33:42"	498,98	0,038	19	0,094	47	1.880	938
Po1(2)	21/03/2013	13:03	60	1	24/4/2013 07:44:54"	475,73	0,078	37	0,118	56	1.705	811
R1	21/03/2013	07:47	60	3	10/4/2013 13:22:34"	151,3	0,053	8	0,377	57	1.718	260
R1(2)	21/03/2013	07:47	60	3	11/4/2013 08:23:29"	465,73	0,028	13	0,371	173	1.791	834
R2	21/03/2013	09:00	60	1	15/4/2013 07:41:12"	452,7	0,009	4	0,091	41	1.606	727
R2(2)	21/03/2013	09:00	60	1	17/4/2013 08:07:09"	478,82	0,008	4	0,146	70	1.759	842
R3	21/03/2013	10:05	60	4	10/4/2013 13:22:40"	151,22	0,093	14	1.647	249	5.218	789
R3(2)	21/03/2013	10:05	60	4	11/4/2013 08:23:40"	465,57	0,062	29	1.723	802	5.522	2571
R4	21/03/2013	12:05	60	2	15/4/2013 07:41:14"	452,7	0,055	25	1.069	484	4.884	2211
R4(2)	21/03/2013	12:05	60	2	17/4/2013 08:07:21"	478,65	0,044	21	1	441	4.634	2218
R5	21/03/2013	15:00	60	3	15/4/2013 07:41:16"	452,68	0,051	23	1.029	466	3.404	1541
R5(2)	21/03/2013	15:00	60	3	17/4/2013 08:07:31"	478,52	0,04	19	1	475	3.323	1590
R6	21/03/2013	17:05	60	4	15/4/2013 07:41:19"	452,67	0,055	25	1.047	474	3.824	1731
R6(2)	21/03/2013	17:05	60	4	17/4/2013 08:07:39"	478,4	0,063	30	0,974	466	3.869	1851

Anexo 5: Dados brutos das amostras de <sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ra e <sup>224</sup>Ra analisados nos sedimentos

Determinação das concentrações de atividade de Ra-226 e Ra-228 nas amostras de sedimentos Thais							
<b>Coleta Eixo Leste -Oeste (18/03/2013)</b>							
Amostra	Ra-226 (Bq/kg)	Ra-228 (Bq/kg)	Ra-224(Bq/kg)	K-40(Bq/kg)	massa da amostra (g)	tempo de medida (s)	d(g/cm3)
PA1	não houve coleta neste ponto						
PA2	7,5+/-0,50	15,2+/-1,0	17,2+/-2,0	545,3+/-77,8	147,6	150.000	1,48
PA3	12,4+/-1,4	16,7+/-1,2	16,8+/-2,6	757,2+/-108,1	107,6	133.000	1,08
PA4	21,5+/-2,7	31,5+/-1,9	50,3+/-3,8	438,5+/-62,7	116,2	150.000	1,16
PA5	15,8+/-2,1	24,0+/-1,5	28,1+/-2,8	715,3+/-102,0	123,9	150.000	1,24
PA6	24,5+/-3,0	44,7+/-2,6	56,0+/-4,4	356,8+/-51,2	93,0	150.000	0,93
PA7	22,8+/-3,6	35,9+/-2,1	48,9+/-3,7	640,2+/-91,4	120,2	150.000	1,20
PA8	17,0+/-1,9	24,13+/-1,5	30,9+/-2,9	603,6+/-86,2	119,8	150.000	1,20
PA9	7,8+/-0,30	6,5+/-0,58	6,4+/-1,6	1000,2+/-14,6	142,3	150.000	1,42
PA10	4,6+/-0,28	4,8+/-0,50	6,8+/-1,6	116,7+/-16,9	141,3	150.000	1,41
PA11	5,0+/-0,74	4,8+/-0,47	1,9+/-1,3	59,6+/-8,9	158,5	150.000	1,59
PA12	3,9+/-0,05	3,2+/-0,42	2,0+/-1,3	113,9+/-16,5	149,9	150.000	1,50
geometria F-100 (frasco de polietileno, com 100 cm3 de volume)							
<b>Coleta Eixo Norte-Sul (19/03/2013)</b>							
Amostra	Ra-226 (Bq/kg)	Ra-228 (Bq/kg)	Ra-224(Bq/kg)	K-40(Bq/kg)	massa da amostra (g)	tempo de medida (s)	d(g/cm3)
LA1	14,0+/-1,6	22,7+/-1,4	22,5+/-2,4	310,3+/-44,4	134,3	150.000	1,34
LA2	16,2+/-2,1	24,1+/-1,6	31,1+/-3,2	421,3+/-60,3	102,3	150.000	1,02
LA3	14,1+/-1,2	23,7+/-1,5	25,5+/-2,6	390,5+/-55,8	125,0	150.000	1,25
LA4	17,5+/-1,9	24,7+/-1,5	32,9+/-2,8	167,8+/-24,2	137,8	150.000	1,38
LA5	15,9+/-1,5	24,4+/-1,5	31,2+/-3,1	501,0+/-71,6	107,0	150.000	1,07
LA6	15,5+/-1,3	23,4+/-1,5	38,0+/-3,4	410,8+/-58,8	102,0	150.000	1,02
LA7	10,3+/-1,9	15,7+/-1,0	16,7+/-2,1	288,6+/-41,3	132,9	150.000	1,33
LA8	9,6+/-1,1	11,1+/-0,77	11,5+/-1,6	92,8+/-13,5	159,8	150.000	1,60
LA9	11,9+/-2,0	21,4+/-1,5	26,5+/-3,3	341,9+/-49,1	82,8	150.000	0,82
LA10	8,6+/-1,6	9,8+/-0,77	10,7+/-2,5	312,7+/-44,8	127,6	150.000	1,27
geometria F-100 (frasco de polietileno, com 100 cm3 de volume)							
<b>Coleta Rios e Poços (25/03/2013)</b>							
Amostra	Ra-226 (Bq/kg)	Ra-228 (Bq/kg)	Ra-224(Bq/kg)	K-40(Bq/kg)	massa da amostra (g)	tempo de medida (s)	d(g/cm3)
R1	14,2+/-1,3	18,7+/-1,2	18,4+/-2,0	285,2+/-40,8	152,9	150.000	1,53
R2	16,1+/-1,9	36,4+/-2,1	40,8+/-3,2	582,7+/-83,2	139,9	150.000	1,40
R3	36,0+/-2,8	77,0+/-4,1	177,4+/-10,5	759,5+/-108,4	143,9	150.000	1,44
R4	35,9+/-3,2	60,3+/-3,4	72,6+/-5,2	735,8+/-105,0	98,5	150.000	0,99
R5	14,4+/-1,5	41,6+/-2,3	48,4+/-3,5	456,6+/-65,2	139,4	150.000	1,39
R6	19,5+/-1,4	37,7+/-2,2	48,8+/-3,8	637,5+/-91,0	106,2	150.000	1,06
geometria F-100 (frasco de polietileno, com 100 cm3 de volume)							

Anexo 6: Dados de nutrientes analisados em cada um so pontos amostrais dentro do CEP

Amostra	NO <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NH <sub>4</sub>	PO4	SiO <sub>3</sub>
Pa1	5,087091	0,168808	10,42438	0,570551	89,27171
Pa2	2,97154	0,232759	9,263442	0,59766	97,32353
Pa3	4,558459	1,597321	10,68148	0,50027	113,3873
Pa4	3,994039	2,033574	12,35263	0,549467	127,6631
Pa5	5,443943	3,41728	10,55691	0,603684	121,9118
Pa6	5,080956	4,189174	10,21511	0,756294	107,4709
Pa7	4,464389	4,514225	9,152829	0,51031	89,39129
Pa8	3,919397	5,961068	7,453775	0,671957	63,24282
Pa9	0,776234	1,286119	4,008833	0,782399	37,60114
Pa10	2,694443	3,81728	5,759705	0,689025	38,92792
PA11	4,055775	2,310152	6,556914	0,403885	24,17385
PA12	1,888132	0,636832	4,404448	0,37778	13,83859
LA1	2,16225	0,416466	7,865335	0,371756	82,9339
LA2	3,351502	0,63724	9,313267	0,265331	90,80349
LA3	3,254506	0,387138	9,624179	0,288423	70,69103
LA4	2,873903	0,267382	9,561399	0,270351	68,80051
LA5	4,383663	0,43561	0,298818	0,314527	72,41642
LA6	2,814863	0,880824	9,613217	0,370752	66,5911
LA7	2,829623	0,796506	9,799565	0,387821	72,946
LA8	3,330416	0,549256	7,554423	0,411917	75,10985
LA9	1,431079	0,57614	5,63813	0,414929	51,34161
LA10	1,390301	0,418502	0,930607	0,194045	59,40482
R2	8,527465	0,112596	1,130905	0,51031	18,75282
R3	6,67297	0,111781	0,393486	0,526375	23,22858
R4	7,571951	0,044572	2,837931	0,581596	97,80755
R5	5,518197	0,005875	6,653576	0,659909	51,89966
R6	5,456103	0,100376	6,569869	0,564527	38,02252
PO1	1,907446	0,109745	6,641618	0,285411	44,71908