

Níveis de Pu-238 e Pu-239+240 em amostras de sedimento marinho da costa sul do Brasil

(Levels of Pu-238 and Pu-239+240 in marine sediment samples from south coast of Brazil)

Rubens C. L. Figueira¹, Valdenir Veronese Furtado³, Moysés Gonzalez Tessler³ & Ieda I. L. Cunha²

¹Centro de Tecnologia e Ciências Exatas da Universidade Cruzeiro do Sul – UNICSUL
e-mail: figueira@curiango.ipen.br

²Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN/CNEN-SP
(Caixa Postal 11049, 05422-970, São Paulo, SP, Brasil)

³Instituto Oceanográfico da Universidade de São Paulo
(Praça do Oceanográfico, 191, 05508-900, São Paulo, SP, Brasil)

Introdução e objetivos

O plutônio no meio ambiente é um elemento altamente tóxico e dentre os diversos isótopos deste elemento destacam-se o Pu-238, o Pu-239 e o Pu-240, com meias-vidas de 87,5, 24.000 e 6500 anos, respectivamente. No decaimento radioativo liberam partículas alfa e embora esta não seja uma fonte de irradiação externa para os seres vivos, internamente é potencialmente perigosa. Nos seres humanos, o maior perigo é a incorporação pelos pulmões de partículas contendo o plutônio (UNEP, 1984).

Quimicamente, o plutônio é um elemento altamente interessante, seu comportamento está relacionado aos vários estados de oxidação que possui, de +3 a +6, que podem ocorrer naturalmente no meio ambiente, dos quais a forma +4 é predominante. Os sedimentos acumulam a maior fração do plutônio liberado em áreas costeiras. A natureza deste radionuclídeo nos sedimentos influencia uma maior interação deste elemento com o meio e a biota presente (Keller, 1988, Mitchell *et al.*, 1995; Strezov *et al.* 1996).

Os dois isótopos mais importantes do plutônio, Pu-239 e Pu-240 são emissores de partículas alfa com probabilidade de emissão da ordem de 73% e energia de emissão de 5,16 MeV e 5,17 MeV, respectivamente (IAEA, 1986; Bland & Truffy, 1992). Com estas energias próximas e com a baixa resolução dos equipamentos de detecção, mede-se a atividade do Pu-239 junto a atividade do Pu-240, na determinação deste elemento em amostras ambientais.

Este trabalho apresenta os resultados obtidos dos níveis de Pu-238 e Pu-239+240 em sedimento marinho da costa sul brasileira. A importância deste trabalho está no fato de que não existem, até o momento, estudos destes radionuclídeos na costa brasileira. Todavia, este levantamento é de extrema importância dentro de um contexto ambiental, salientando-se que:

- o Brasil possui dois reatores nucleares de potência em operação, na região de Angra dos Reis, localizado na costa sudeste brasileira;
- não existem dados dos níveis de Pu-238 e Pu-239+240 na costa brasileira;
- é necessário o levantamento dos teores de radionuclídeos no litoral brasileiro afim de se conhecer o *background* regional e assim poder detectar qualquer alteração no meio, evidenciando uma contaminação ambiental.

Materiais e métodos

Amostragem

A coleta das amostras foi realizada em 1997, no Projeto "Importância da Quebra da Plataforma para Recursos Vivos e não Vivos" (IOUSP/PADCT-CNPq), com o navio oceanográfico *W. Besnard*, do Instituto Oceanográfico da Universidade de São Paulo, na região entre Cabo Frio (23°00'S), no Rio de Janeiro, até Cabo de Santa Marta Grande (28°40'S), em Santa Catarina. Foram coletadas 15 amostras de sedimento marinho com as suas localizações indicadas na Figura 1.

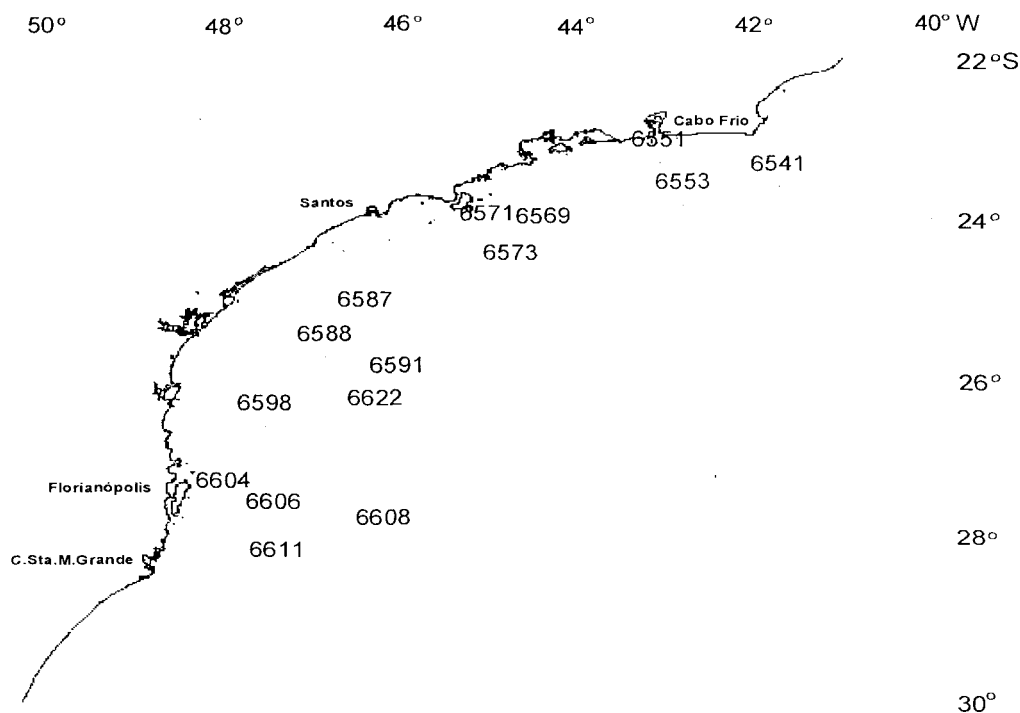


Fig. 1. Pontos de coleta das amostras de sedimento marinho na costa sul brasileira.

Equipamentos e determinação do plutônio

Digestor por microondas marca CEM CORPORATION, modelo Star System 2TM. Espectrômetro de partículas alfa, constituído de um detetor de barreira de superfície com 450 mm² de área, marca EG&ORTEC, modelo 576A acoplado a um analisador multicanal marca SPECTRUM MASTER da EG&ORTEC, modelo 919, ligado a eletrônica associada e um microcomputador do IBM-PC 486. O detetor possui uma eficiência da ordem de 31%. Fonte de alta tensão marca TECTROL, modelo TCA 100-03, e sistema para eletrodeposição de plutônio com eletrodo de platina.

A técnica de determinação do plutônio baseou-se na digestão ácida da amostra em microondas, concentração do plutônio com Fe(OH)₃, eliminação das impurezas e purificação do plutônio por troca iônica, eletrodeposição do plutônio em placa de aço polida e espectrometria alfa (Figueira, 2000).

Análise granulométrica, conteúdo de carbonato e determinação de Pu-238 e Pu-239+240 em materiais de referência

A análise granulométrica foi realizada segundo o método de peneiramento e pipetagem, descrito em Suguio (1973), e o conteúdo de carbonatos foi obtido por dissolução em ácido clorídrico a 10% e diferença de peso.

As amostras foram inicialmente secas em estufa a 80°C por dois dias. Os sedimentos foram moídos em almofariz de porcelana e armazenados em potes plásticos, procedendo-se a determinação dos radionuclídeos Pu-238 e Pu-239+240 (Figueira, 2000). A atividade do Pu-238 e Pu-239+240 foi determinada a partir da equação 1:

$$A_{Pu} = \frac{C_{Pu}}{t \cdot R_{Pu} \cdot \varepsilon \cdot m} \quad (1)$$

em que,

- A_{Pu} é a atividade do Pu-238 ou Pu-239+240, em Bq.kg⁻¹;
- C_{Pu} é a contagem do Pu-238 ou Pu-239+240;
- t é o tempo de contagem, em segundos;
- R_{Pu} é a recuperação do plutônio determinada pelos traçador radioativo de Pu-242;
- ε é a eficiência de contagem do detetor e
- m é a massa da amostra, em kg.

A metodologia foi aplicada em materiais com valores certificados de Pu-238 e Pu-239+240 como o IAEA-384 (sedimento marinho) da Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) e o EML-9804SO (solo) do Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), apresentando resultados cuja precisão variaram de 6 a 9% e exatidão de 8 a 19% (Tabela 1).

Tabela 1. Resultados obtidos para o Pu-238 e Pu-239+240, em Bq.kg⁻¹, nos materiais de intercomparação.

Amostra	Valor certificado	Valor obtido	C.V.(%) ⁽³⁾	Erro (%)
EML-9804SO ⁽¹⁾	5.3 ± 1.2	4.3 ± 0.4 (n = 3)	9.3	18.9
IAEA-384 ⁽¹⁾	107.0 (105.4 – 108.9)	95 ± 8 (n = 4)	8.4	11.2
IAEA-384 ⁽²⁾	38.95 (38.10 – 39.60)	36 ± 2 (n = 4)	5.5	7.6

(1) Pu-239+240

(2) Pu-238

(3) = coeficiente de variação

n = número de determinações

Resultados e discussão

Concentração mínima detectável

A concentração mínima detectável (CMD) foi feita a partir de uma amostra branco que continha uma mesma quantidade de reagente da amostra original, cujo procedimento de análise foi o mesmo para a determinação dos radionuclídeos em estudo. O CMD foi calculado pela equação 2 (IAEA, 1989):

$$CMD \text{ (Bq.kg}^{-1}\text{)} = \frac{4,66 \cdot s_b}{t \cdot \varepsilon \cdot m_A} \quad (2)$$

sendo,

- s_b o desvio-padrão da taxa de contagem do branco;
- t o tempo de contagem;
- ε a eficiência de contagem do detetor para o Pu-238 e Pu-239+240;
- m_A a massa da amostra em quilogramas

O CMD foi da ordem de 4,2 mBq.kg⁻¹, mostrando que a metodologia foi adequada para a determinação de radionuclídeos artificiais em amostras ambientais. Uma técnica alternativa a espectrometria alfa e com bons resultados é a espectrometria de massa com plasma acoplado (ICP-MS) cujos limites de detecção para o plutônio variam entre 1 e 10 pg.g⁻¹ de solvente, na forma de atividade os seguintes valores são obtidos: 0,63 a 6,3 Bq.kg⁻¹ para o Pu-238, 2,3 a 23 Bq.kg⁻¹ para o Pu-239 e de 8,2 a 82 Bq.kg⁻¹ para o Pu-240 (Jerome *et al.*, 1995). Apesar do menor tempo de análise, o ICP-MS possui limites de detecção maiores do que a espectrometria alfa, que são da ordem de mBq.kg⁻¹. Assim, esta técnica é indicada para regiões com baixos níveis destes radionuclídeos, característica principal da costa brasileira.

Níveis de Pu-238 e Pu-239+240 nas amostras de sedimento marinho

A partir da metodologia para a determinação de Pu-238 e Pu-239+240 em sedimento marinho, foram feitas as análises nas amostras coletadas ao longo da costa sul brasileira os resultados obtidos estão na Tabela 2.

Os níveis de Pu-238 e Pu-239+240 foram comparados a outras regiões do mundo e estão apresentados na Tabela 3. Pode-se observar que os níveis da costa brasileira são da mesma ordem de grandeza da Antártica (Marzano & Triulzi, 1999), Argélia (Benamar *et al.*, 1996; Noureddine & Baggoura, 1999) e Guatemala (Perez-Sabino *et al.*, 1999), estando estas regiões sujeitas principalmente a contaminação radioativa indireta (*fallout* atmosférico). Outras regiões como o Reino Unido (Mc Donald *et al.*, 1991), o Mar Negro (IAEA, 1995; Strezov *et al.*, 1996; Bologa *et al.*, 1999), o Mar Mediterrâneo (IAEA, 1995; Marzano & Triulzi, 1999); e o atol de Muroroa (Milles-Lacroix *et al.*, 1999) possuem níveis maiores e estão sujeitas a uma contaminação radioativa direta (descarga, deposição de rejeitos e testes nucleares).

Em alguns casos, como nos mares europeus, o acidente de Chernobyl, ocorrido em 1987, contribuiu em muito para o aumento dos níveis de radionuclídeos artificiais nesta região. Estima-se uma deposição de 1,4 PBq no Mar do Norte e 3,7 PBq na costa noroeste da Europa (Prandle & Beechey, 1991). Radiologicamente, o mar mais afetado foi o Báltico, desde quando as primeiras nuvens radioativas atravessaram o norte e causaram uma grande deposição na Escandinávia. Devido a uma baixa troca de água com o Mar do Norte o mar Báltico continua sendo o que possui os maiores níveis de contaminação da Europa, remanescente desde acidente (Povinec *et al.*, 1996).

Tabela 2. Níveis de Pu-238 e Pu-239+240, em mBq.kg⁻¹, nas amostras de sedimento marinho.

Amostra	Prof. (m)	Latitude	Longitude	Pu-238	Pu-239+240	Razão Pu-238/Pu-239+240	Areia (%)	Silte (%)	Argila (%)	CO ₃ ²⁻ (%)
6571	79	24°12.7'	44°59.0'	38 ± 2	112 ± 5	0.329	74.60	7.99	5.99	65.6
6587	84	25°17.4'	46°21.1'	28 ± 2	82 ± 4	0.341	11.02	75.29	13.13	20.2
6598	97	26°34.5'	47°29.4'	38 ± 1	18.2 ± 0.6	2.088	2.33	56.35	41.32	26.3
6604	98	27°32.1'	47°57.7'	15 ± 1	44 ± 2	0.341	7.57	61.62	30.81	17.2
6551	99	23°17.5'	43°02.6'	53 ± 3	228 ± 10	0.232	26.60	38.86	34.54	28.3
6588	100	25°43.0'	46°48.9'	27 ± 1	63 ± 3	0.428	0.52	73.53	25.95	26.6
6541	143	23°35.8'	41°42.4'	91 ± 4	58 ± 3	1.569	28.89	47.36	23.68	52.1
6569	147	24°14.9'	44°21.0'	61 ± 3	44 ± 2	1.386	76.69	7.94	7.94	85.3
6573	155	24°42.6'	44°43.4'	79 ± 4	59 ± 3	1.339	84.78	7.99	2.00	96.3
6606	176	27°48.1'	47°24.0'	83 ± 4	113 ± 5	0.734	89.68	0.48	8.00	77.7
6611	197	28°24.4'	47°21.8'	88 ± 4	69 ± 3	1.275	4.09	55.62	39.20	58.7
6553	225	23°49.1'	42°46.8'	<CMD*	96 ± 4	-	84.87	10.31	4.12	76.6
6591	450	26°06.7'	45°59.8'	131 ± 6	77 ± 3	1.701	2.24	72.41	25.34	32.6
6622	474	26°31.0'	46°15.3'	150 ± 5	117 ± 4	1.282	14.57	49.46	35.97	34.8
6608	500	28°00.0'	46°09.9'	<CMD	<CMD	-	61.95	20.02	18.02	55.2

CMD - concentração mínima detectável (4.2 mBq.kg⁻¹), conforme item 3.1.

Tabela 3. Níveis de Pu-238 e Pu-239+240, em Bq.kg⁻¹, em comparação com outras regiões do mundo.

Região	Profundidade de coleta (m)	Pu-239+240 (Pu-238)
Costa sul do Brasil	sedimento superficial (79 - 500)	0.044 - 0.228 (0.015 - 0.150)
Antártica	sedimento superficial	0.0056 - 0.0908
Atol de Mururoa (lagoa)	testemunho (0 - 2)	709 - 21400 (282 - 11700)
Argélia	sedimento superficial	0.3 - 0.6 (0.02 - 0.05)
Costa da Guatemala	sedimento superficial	0.164 - 0.348 ⁽¹⁾ (0.0028 - 0.0113)
Mar Mediterrâneo	sedimento superficial	0.08 - 1.23 (0.004 - 0.03)
Mar Negro	sedimento superficial	0.07 - 0.68 (0.01 - 0.4)
Reino Unido	sedimento superficial	0.044 - 373

(1) Região do Oceano Pacífico

Em relação a granulometria e ao teor de carbonato foram realizados estudos de correlação entre os níveis dos radionuclídeos e as características das amostras em duas profundidades de coleta, até 100 m e abaixo dos 100 m. Na profundidade até 100 m, os resultados mostraram uma correlação negativa do silte com o Pu-238 ($r = -0,54$; $p < 0,27$) e com o Pu-239+240 ($r = -0,46$; $p < 0,36$). Ambos radionuclídeos apresentaram uma correlação positiva fraca com o carbonato, Pu-238 ($r = 0,37$; $p < 0,47$) e Pu-239+240 ($r = 0,24$; $p < 0,65$), onde se supõe que pode estar havendo uma complexação do plutônio com este componente.

Keller (1988) estudou amplamente o comportamento químico do plutônio e verificou que a alta estabilidade do Pu(IV), faz com que este seja facilmente hidrolisado para $\text{PuO}_{2\text{aq}}^{2+}$, formando complexos fortes com agentes complexantes naturais (ácidos húmicos) e artificiais (ácido cítrico, EDTA). Os maiores estados de oxidação são estabilizados especialmente pelo alto pH ($\geq 6,5$) e pela presença de íons carbonato com a conseqüente formação de complexos estáveis ($\text{PuO}_2^{2+} - \text{CO}_3^{2-}$).

Outra característica interessante foi que os radionuclídeos apresentaram também uma correlação positiva fraca com a areia, Pu-238 ($r = 0,39$; $p < 0,45$) e Pu-239+240 ($r = 0,44$; $p < 0,39$). Como a areia apresentou forte correlação com o carbonato ($r = 0,93$; $p < 0,007$), e com uma possível complexação do plutônio com este componente, é de se esperar o resultado obtido, mas isto não pode ser afirmado, devido principalmente ao número reduzido de análises realizadas.

Para as amostras coletadas abaixo dos 100 m de profundidade, o Pu-238 obteve uma correlação positiva com a argila ($r = 0,64$; $p < 0,121$) e o silte ($r = 0,70$; $p < 0,082$) e, negativa com o carbonato ($r = -0,86$; $p < 0,012$). O Pu-239+240 obteve somente uma correlação negativa fraca com o carbonato ($r = -0,33$; $p < 0,425$).

Os altos teores de carbonato nesta profundidade podem ter contribuído para uma diminuição da concentração dos radionuclídeos nos sedimentos, pois o carbonato agiria como um diluente. Nos trabalhos de Gascó *et al.* (1992) e Window *et al.* (1989) estes verificaram que os materiais presentes nos sedimentos marinhos: quartzo, feldspato e carbonatos são relativamente pobres em elementos de origem antropogênica, conseqüentemente podem contribuir para a diminuição destes nos sedimentos.

Para a razão entre o Pu-238 e o Pu-239+240 foi utilizada a análise de agrupamento ou *Cluster analysis*, a Figura 2 apresenta o dendograma da razão Pu-238/Pu-239+240 com a profundidade e o teor de carbonato. Neste tipo de análise, as distâncias entre os objetos estudados dentro do espaço multiplano constituído por eixos de todas as medidas realizadas (variáveis) são calculadas e, a seguir, os objetos são

agrupados conforme a proximidade entre eles (Pereira, 1999).

Observa-se na Figura 2 a formação de 3 grupos e novamente encontramos a influência do carbonato na retenção do plutônio pelo sedimento. As amostras com teores de carbonato inferiores a 30%, localizadas no Grupo 1 (exceção 6571) tiveram os menores valores de razão Pu-238/Pu-239+240 (exceção 6598) comparadas às amostras localizadas nos Grupos 2 e 3. Neste caso, como no estudo de correlação, os resultados aqui obtidos mostraram que o carbonato parece ter grande influência na retenção do plutônio no sedimento, mas devido ao número reduzido de amostras, isto não pode ser afirmado.

Com relação aos valores de razão Pu-238/Pu-239+240 encontrado nos sedimentos foi verificado que os valores obtidos (de 0,232 a 2,088) estiveram distante do valor esperado para o *fallout*. De acordo com a UNSCEAR (1982), a razão Pu-238/Pu-239+240 pelo *fallout* global é de 0,0254, entretanto este valor não inclui os acidentes com satélites espaciais ocorridos na atmosfera, que liberaram Pu-238 e Pu-239+240 no Hemisfério Sul.

Os acidentes com satélites espaciais podem causar uma contaminação direta ou indireta do meio marinho. Quatro destas foram perdidas no mar, três continham geradores termoelétricos por radioisótopos (RTG) a bordo com Pu-238. Um dos reatores vaporizou durante a entrada na atmosfera, do SNAP-9A, em 1964, causando a contaminação por Pu-238 e pequena quantidade de Pu-239. Os outros dois caíram no mar. Destes, somente um foi recuperado sem que houvesse liberação do material radioativo para o meio ambiente. O quarto satélite, o Cosmos 954, que caiu em 1978, continha um reator com U-235. Este sofreu um dano na sua entrada na atmosfera, o que causou uma contaminação no Atlântico Sul (Holm *et al.*, 1992; Calmet & Sjoebloom, 1992).

O SNAP-9A liberou cerca de 0,51 PBq de Pu-238 no Hemisfério Sul, ou seja, duas vezes a quantidade liberada pelos testes nucleares. Aproximadamente 22% do Pu-238 liberado foi para o Hemisfério Norte enquanto o restante foi para o Hemisfério Sul (Linsalata *et al.*, 1980), isto mudou o *fallout* global no Hemisfério Norte para 0,036 enquanto no Hemisfério Sul o valor foi para 0,182 (Aarrkrog, 1988).

O acidente ocorrido com a Cosmos 954, em 1978, depositou cerca de 1,7 PBq de Pu-238 e 1,2 TBq de Pu-239+240 no fundo do Pacífico Sul, próximo a ilha de Tonga. Acredita-se que os invólucros contendo o material radioativo não romperam durante a reentrada e tenham permanecido intacto no fundo do oceano (Holm *et al.*, 1992; Calmet & Sjoebloom, 1992).

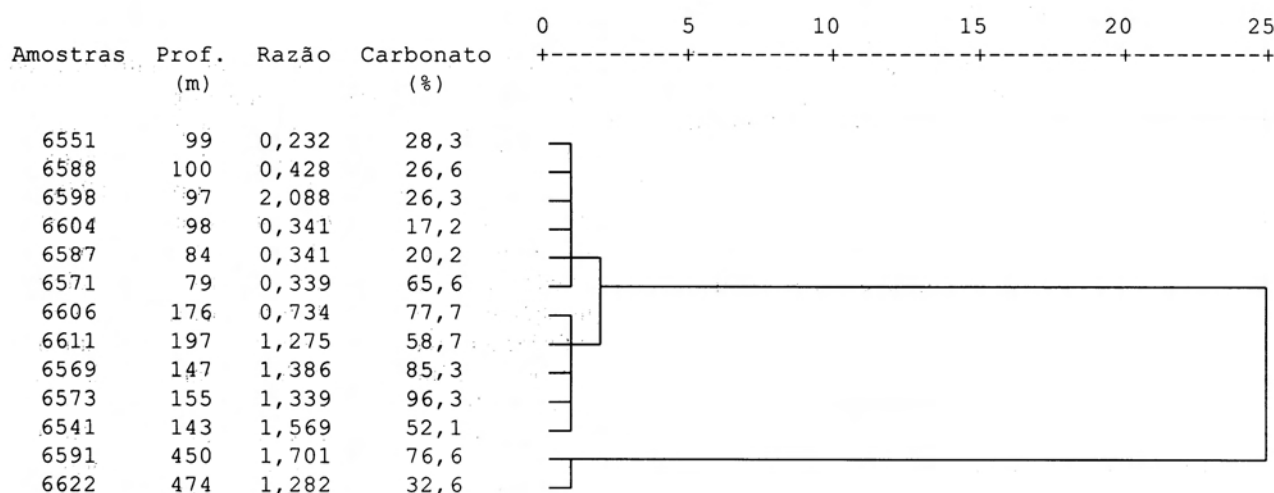


Fig. 2. Dendrograma da razão Pu-238/Pu-239+240.

Devido aos acidentes nucleares com satélites e a falta de dados relativos à concentração de Pu-238 no Hemisfério Sul, há uma dificuldade no levantamento da razão Pu-238/Pu-239+240. Para as amostras coletadas em profundidade até 100 m, correspondente ao Grupo 1 do dendrograma da Figura 2, foi feita a média da razão Pu-238/Pu-239+240, excetuando-se a amostra 6598, o valor obtido foi de $(0,336 \pm 0,069)$, para um nível de confiança de 95% este valor concorda com o valor esperado de 0,182.

Conclusões

Os níveis obtidos de Pu-238 e Pu-239+240 nos sedimentos do litoral sul brasileiro foram inferiores aos encontrados em outras regiões do mundo sujeita a contaminação radioativa direta, e estão dentro do esperado para o Hemisfério Sul como resultado do *fallout* atmosférico. Além disso, a metodologia estabelecida mostrou-se com um baixo CMD (concentração mínima detectável) adequada à determinação destes radionuclídeos em amostras com baixa atividade de plutônio, principal característica das amostras de sedimento coletadas no litoral sul brasileiro.

As características granulométricas e do teor de carbonato influenciaram a retenção dos radionuclídeos pelo sedimento. Nas amostras coletadas até os 100 m de profundidade, supõe-se uma complexação dos radionuclídeos pelo carbonato, enquanto que nas profundidades abaixo dos 100 m, os altos teores de carbonato contribuíram para uma diminuição da retenção dos radionuclídeos.

Os carbonatos em profundidades maiores que 100 m tem a sua precipitação, atualmente, inibida pela entrada de águas frias junto ao fundo (Água Central do Atlântico Sul – ACAS). O carbonato,

embora possa complexar não se precipita e o que ali é encontrado trata-se de uma deposição antiga, quando não havia os radionuclídeos disponíveis.

A razão Pu-238/Pu-239+240 de $(0,336 \pm 0,139)$ mostrou-se dentro do valor estimado para o Hemisfério Sul, em amostras coletadas até 100 m de profundidade. Deve-se lembrar que não há dados experimentais dos níveis de contaminação por Pu-238 e Pu-239+240 na região em estudo, sendo que estes dados são inéditos, tornando-se uma referência, no caso de uma futura alteração.

Atualmente, o Brasil possui duas usinas nucleares em funcionamento e uma em construção, localizadas em uma região costeira (Angra dos Reis, RJ), com isso, a energia nuclear é uma realidade presente em nosso cotidiano. O déficit energético na produção de energia e a limitação dos recursos hídricos e petrolíferos fazem com que a energia nuclear seja uma opção para geração de eletricidade nos países em desenvolvimento, e conseqüentemente, as instalações nucleares têm que se preocupar com controle ambiental sem riscos à população, assumindo que somente uma monitoração adequada e o registro dos níveis proporcionam uma estatística conveniente para avaliar as condições ambientais de uma região. Neste contexto, este trabalho apresenta uma contribuição importante quanto ao levantamento dos níveis de dois radionuclídeos extremamente importantes do ponto de vista de impacto ambiental, possibilitando a criação de um banco de dados sobre os níveis de contaminação radioativa do litoral sul brasileiro.

Agradecimentos

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) pelo apoio

financeiro e ao Instituto Oceanográfico da Universidade de São Paulo (IOUSP-SP) pela coleta das amostras.

Referências bibliográficas

- Aarkrog, A. 1988. Worldwide data on fluxes of Pu-239, Pu-240 and Pu-238 to the oceans. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Inventory of selected radionuclides in oceans. Vienna, IAEA. TECDOC-481.
- Benamar, M. A.; Zerrouki, A. & Tobbeche, S. 1996. Radioactivity levels in superficial sediments of Algiers Bay. France. Centre de Développement des Techniques Nucléaires, (INIS-mf-14719).
- Bland, C. J. & Truffy, J. 1992. Alpha-particle emission probabilities for Pu-239 and Pu-240. *Appl. Radiat. Isot.*, 43(10):1241-1245.
- Bologa, A. S.; Apas, M.; Cociasu, A.; Cuingioglu, E.; Patrascu, V.; Pecheanu, I.; Piescu, V. & Popa, L. 1999. Present level of contaminants in the Romania Black Sea sector. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM MARINE POLLUTION. Monaco, 1998. Proceedings. Vienna, IAEA-TECDOC-1094. p.58-63.
- Calmet, D. & Sjoebloom, K. 1992. Inventory of radioactive material entering the marine environment. *IAEA Bull.* (3):25-28.
- Figueira, R. C. L. 2000. Inventário de radionucléios artificiais em água do mar e sedimentos da costa sul do Brasil. PhD Thesis. Universidade de São Paulo, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. 152p.
- Gascó, C.; Romero, L.; Mingarro, E. & Lobo, A. M. 1992. Geochemical aspects and distributions of long-lived radionuclides in marine sediments from Palomares. *J. radioanalyt. Chem.* 161(2):389-400.
- Holm, E.; Rioseco, J. & Petterson, H. 1992. Fallout of transuranium elements following the Chernobyl accident. *J. radioanalyt. Chem. Articles*, 156(1):183-200.
- IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. 1986. Decay data of transactinium nuclides. Vienna, IEA. Technical reports series n° 261.
- IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. 1989. Measurement of radionuclides in food and in the environment. (Technical Reports Series n° 295), Vienna, IAEA.
- IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. 1995. Sources of radioactivity in the marine environment and their relative contributions to overall dose assessment from marine radioactivity (MARDOS). Vienna. IAEA-TECDOC-838.
- Jerome, S. M.; Smith, D.; Woods, M. J. & Woods, S. A. 1995. Metrology of plutonium for environmental measurements. *Appl. Radiat. Isot.*, 46(11):1145-50.
- Keller, C. 1988. Chemistry of radionuclides and their behaviour in air, water and soil. In: REGIONAL TRAINING COURSE ON DETERMINATION OF RADIONUCLIDES IN FOOD AND ENVIRONMENTAL SAMPLES. Rio de Janeiro, IAEA - Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), 1988.
- Linsalata, P.; Wrenn, M. E.; Cohen, N. & Singh, N. P. 1980. Pu-239+240 and Pu-238 in sediments of Hudson River estuary. *Environ. Sci. Technol.*, 14:1519-23.
- Marzano, N. & Triulzi, C. 1999. Sr-90, Cs-137, Pu-238, Pu-239+240 and Am-241 in matrices of the Terra Nova Bay ecosystem (Antarctica). In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON MARINE POLLUTION. Monaco, 1988. Proceedings. Vienna, IAEA. TECDOC-1094.
- McDonald, P.; Cook, G. T. & Baxter, M. S. 1991. Natural and artificial radioactivity in coastal regions of UK. Scottish Universities Research and Reactor Centre and IAEA - International Laboratory of Marine Radioactivity.
- Milles-Lacroix, J. C.; Chiappin, R. & Le Petit, G. 1998. Lagoon sediment radioactivity in Polynesian French nuclear tests sites. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON MARINE POLLUTION. Monaco. Proceedings. Vienna, IAEA. TECDOC-1094.
- Mitchell, P. I.; Battle, J. V. I.; Downes, A. B.; Condren, O. M.; Vintro, L. L. & Sanchez-Cabeza, J. A. 1995. Recent observations on the physico-chemical speciation of plutonium in the Irish Sea and the western Mediterranean. *Appl. Radiat. Isot.*, 46(11):1175-90.

- Noureddine, A. & Baggoura, B. 1999. Radioactivity of some alpha, beta and gamma emitting radionuclides in surface marine sediments of different bays in Algeria. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM MARINE POLLUTION. Monaco, 1998. Proceedings. Vienna, IAEA-TECDOC-1094.
- Pereira, J. C. R. 1999. Análise de dados qualitativos. São Paulo, EDUSP. 156p.
- Perez-Sabino, J. F.; Oliva de Sandoval, B. E.; Orozco-Chilel, R. M. & Aguilar-Sandoval, E. 1999. Radioactive contamination of the Guatemalan marine environment. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM MARINE POLLUTION. Monaco, 1998. Proceedings. Vienna, IAEA-TECDOC-1094.
- Povinec, P. P.; Fowler, S. & Baxter, M. 1996. Chernobyl & The Marine environment. The radiological impact in context. IAEA Bull., p.18-22.
- Prandle, D. & Beechey, P. 1991. The dispersion of Cs-137 from Sellafield and Chernobyl in the NW European shelf seas. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON RADIONUCLIDES IN THE STUDY OF MARINE PROCESSES. Norwich, 1991. Proceedings. London, Elsevier Applied Science.
- Strezov, A.; Yordanova, I.; Pimpl, M. & Stoilova, T. 1996. Natural radionuclide and plutonium content in Black Sea bottom sediments. Health Phys., 70(1):71-80.
- Suguio, K. 1973. Introdução à sedimentologia. São Paulo, Edgard Blücher/EDUSP. 317p.
- UNEP/SPC/SPEC/ESCAP. 1984. Radioactivity in the South Pacific. Geneva, UNEP. Regional seas reports and studies n° 40.
- UNSCEAR - United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. 1982. Ionizing radiation: sources and biological effects, United Nations. *apud* Aarkrog, A. Global radioecological impact of nuclear activities in the former Soviet Union. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON ENVIRONMENTAL IMPACT OF RADIOACTIVE RELEASES. Vienna, 1995. Proceedings. Vienna, IAEA, SM-339/174.
- Window, H. L.; Schropp, S. J.; Calder, F. D.; Ryan, J. D.; Smith Jr., R. G.; Burney, L. C.; Lewis, F. G. & Rawlinson, C. 1989. Natural trace metal concentrations in estuarine and coastal marine sediments of Southeastern United States. Environm. Sci. Technol., 23(3):314-20.

(Manuscrito recebido 19 junho 2001; revisado 30 outubro 2002; aceito 17 dezembro 2002)