



Datación de sedimentos recientes utilizando radionucleidos de vida corta

Recent sediments dating using short-lived radionuclides

Cearreta, A. ⁽¹⁾; Gómez-Arozamena, J.E. ⁽²⁾; Irabien, M.J. ⁽¹⁾; Ruiz-Fernández, A.C. ⁽³⁾; Sanchez-Cabeza, J.A. ⁽³⁾; Ortiz, J. ⁽⁴⁾; Sáez-Muñoz, M. ⁽⁴⁾

(1) Departamento de Geología, Facultad de Ciencia y Tecnología, Universidad del País Vasco UPV/EHU. Apartado 644, 48080 Bilbao, España. alejandro.cearreta@ehu.eus

(2) Departamento de Ciencias Médicas y Quirúrgicas, Facultad de Medicina, Universidad de Cantabria, Avenida Herrera Oria s/n, 39011 Santander, España.

(3) Instituto de Ciencias del Mar y Limnología, Unidad Académica Mazatlán, Universidad Nacional Autónoma de México, Calz. J. Montes Camarena s/n, Col. Playa Sur, 82040 Mazatlán, Sinaloa, México.

(4) Laboratorio de Radiactividad Ambiental, Universitat Politècnica de València, Camino de Vera s/n, 46022 Valencia, España.

Resumen

Se presentan las características principales del método de datación de sedimentos recientes mediante el radioisótopo natural ^{210}Pb y su validación utilizando radionucleidos artificiales tales como ^{137}Cs y $^{239,240}\text{Pu}$. Se hace una revisión de los principios generales de esta metodología, se aportan recomendaciones prácticas para la recogida de testigos sedimentarios en el campo y su posterior procesamiento en el laboratorio, se describen diferentes técnicas analíticas utilizadas en la determinación de sus concentraciones y se explican brevemente varios modelos para la interpretación de los perfiles obtenidos. Por último, se incluyen ejemplos prácticos de su aplicación en secuencias sedimentarias procedentes de distintos ambientes marinos (estuario, bahía y plataforma continental) en el norte de la Península Ibérica.

Palabras clave: ^{210}Pb ; ^{137}Cs ; $^{239,240}\text{Pu}$; Antropoceno.

Abstract

The main characteristics of the dating method of recent sediments using the natural radioisotope ^{210}Pb and its validation with artificial radionuclides such as ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ are presented. A review of the general principles of this methodology is made, practical recommendations for the collection of sedimentary cores in the field and their subsequent processing in the laboratory are provided, several analytical techniques used to measure their concentrations are described and several models for the interpretation of the profiles are



briefly explained. Finally, practical examples of its application in sedimentary sequences from different marine environments (estuary, bay and continental shelf) in the northern Iberian Peninsula are also included.

Key words: ^{210}Pb ; ^{137}Cs ; $^{239,240}\text{Pu}$; Anthropocene.

1. Introducción

El desarrollo de una cronología con la mayor resolución temporal posible es de crucial importancia para interpretar los archivos geológicos. El método más utilizado para datar sedimentos recientes se basa en el análisis de las concentraciones del radioisótopo ^{210}Pb , es un radionucleido natural con un periodo de semidesintegración de $22,23 \pm 0,12$ años (Bé *et al.*, 2008). Debido a su presencia en distintos compartimentos ambientales (atmósfera, hidrosfera y litosfera), los desequilibrios de este radioisótopo juegan un papel importante en la datación de los procesos naturales y los impactos ambientales antropogénicos que han quedado registrados en los archivos sedimentarios limnológicos y oceanográficos durante el último siglo. Goldberg (1963) desarrolló los principios iniciales de este método de datación para establecer las tasas de acumulación en testigos de hielo, y esta técnica fue adaptada posteriormente por Krishnaswamy *et al.* (1971) y Koide *et al.* (1972) aplicándola a sedimentos lacustres y marinos respectivamente. Desde entonces se han desarrollado diferentes modelos de datación con el fin de interpretar adecuadamente la distribución temporal de este radionucleido en los archivos sedimentarios.

Adicionalmente, y con el fin de validar la geocronología derivada del ^{210}Pb , se han utilizado técnicas basadas en la presencia de radionucleidos de origen antropogénico, como el ^{137}Cs y el $^{239,240}\text{Pu}$ (Appleby *et al.*, 1991; Oldfield *et al.*, 1995; Corcho-Alvarado *et al.*, 2014). Estos radionucleidos artificiales se liberaron globalmente al medio ambiente como consecuencia de más de 500 pruebas atmosféricas con armas termonucleares desde 1952 hasta 1980 (UNSCEAR, 2000). Estos radioisótopos se pueden usar como marcadores

globales cronoestratigráficos en secuencias sedimentarias asumiendo: a) que su pico de actividad se corresponde con el máximo de depósito atmosférico ocurrido en 1963 o 1964 CE, en los hemisferios norte y sur respectivamente; y b) que la primera detección en los sedimentos, en ausencia de procesos de removilización postdeposicional, indica el inicio de su depósito significativo a partir de 1952 CE provocado por las pruebas termonucleares (UNSCEAR, 2000).

La posible ausencia de un trazador radiactivo secundario que permita validar las edades y las tasas de acumulación derivadas del ^{210}Pb complica la interpretación cronológica. En este caso, la información geoquímica contenida en los sedimentos puede también proporcionar un marco temporal adicional. Por ejemplo, indicadores tales como los isótopos estables de Pb (Gehrels *et al.*, 2005), los plásticos (Zalasiewicz *et al.*, 2016), las partículas carbonáceas esféricas (Rose, 2015), los isótopos de mercurio (Bonsignore *et al.*, 2020) o los bifenilos policlorados (Gałuszka *et al.*, 2020), han sido utilizados como marcadores quimio-estratigráficos regionales y/o globales para los sedimentos acumulados durante las últimas décadas.

Las subdivisiones del tiempo geológico en épocas dentro del periodo Cuaternario se han establecido tradicionalmente mediante evidencias de variaciones climáticas. Sin embargo, la época denominada Antropoceno es una propuesta que hace referencia al intervalo de tiempo reciente caracterizado por un cambio rápido y profundo en la geología superficial de la Tierra y provocado por el impacto global de las actividades de origen antropogénico, cuyo punto de inflexión se sitúa a mediados del siglo XX, coincidiendo con la denominada Gran Aceleración (Syvitski *et*

al., 2020). Debido a que la señal antropogénica más generalizada y globalmente sincrónica que conocemos actualmente es consecuencia de las pruebas militares con armas nucleares en la atmósfera, el comienzo del Antropoceno podría definirse coincidiendo con la detonación de la primera bomba atómica (denominada Trinity) en Alamogordo, Nuevo México (USA), el 16 de julio de 1945 (UNSCEAR, 2000; Zalasiewicz *et al.*, 2015). Los radioisótopos liberados en la atmósfera entre los años 1945 y 1951 fueron generados por bombas de fisión, incluyendo las utilizadas en Hiroshima y Nagasaki, y se depositaron sobre la superficie terrestre sólo a escala local. En cambio, las pruebas con armas termonucleares provocaron señales radiactivas en el registro quimio-estratigráfico global que muestran un aumento en 1952 CE, un pico entre 1963 y 1964 CE y una disminución desde entonces debido al tratado de prohibición parcial de estas pruebas que permitió su continuación bajo tierra. Entre los isótopos radiactivos inexistentes o extremadamente raros en la naturaleza (como el ^{239}Pu , el ^{137}Cs , el ^{241}Am y el ^{90}Sr), el primero de ellos es el más adecuado como marcador primario del Antropoceno debido a su dilatada persistencia temporal e inmovilidad en los sedimentos y el hielo (Waters *et al.*, 2015; Zalasiewicz *et al.*, 2017). En consecuencia, los depósitos del Antropoceno serían aquellos que incluyan la señal de los radionucleidos artificiales primarios distribuidos globalmente, si bien pueden caracterizarse asimismo utilizando una amplia gama de otros criterios estratigráficos.

2. Metodología

2.1. Principios generales

El ^{210}Pb es un radioisótopo natural perteneciente a la serie de desintegración radiactiva del ^{238}U . Dentro de ésta se encuentra el gas noble radón (^{222}Rn) que se forma en los suelos y rocas de la corteza terrestre por desintegración del ^{226}Ra y que, debido a su carácter de gas noble, puede exhalar a la atmósfera. El radón atmosférico se desintegra en sus

descendientes, entre los que se encuentra el ^{210}Pb . Éste, con un tiempo de residencia en la atmósfera de varios días, debido a su elevada reactividad se asocia con los aerosoles (0,05-2 micras) y se deposita continuamente sobre la superficie terrestre por vía húmeda o seca. Es importante destacar que su flujo varía geográficamente y de forma estacional en función de las condiciones meteorológicas locales (Preiss *et al.*, 1996).

En el medio acuático, el ^{210}Pb se asocia principalmente a la materia fina en suspensión de la columna de agua que lo arrastra hacia el sedimento del fondo. En las zonas someras, el flujo principal de ^{210}Pb a los sedimentos procede de la atmósfera, aunque los ríos y la escorrentía son fuentes adicionales de ^{210}Pb . En zonas más profundas, una fracción del ^{210}Pb , que se incrementa cuanto mayor sea la profundidad, procede del ^{226}Ra disuelto en el agua. A escala local, y considerando períodos de tiempo de varios años, los flujos de ^{210}Pb son prácticamente constantes y están normalmente correlacionados con la precipitación (García-Orellana y Sanchez-Cabeza, 2012). El sedimento contiene una mezcla del ^{210}Pb producido continuamente in situ por la desintegración del ^{226}Ra presente (denominado ^{210}Pb soportado) junto con el ^{210}Pb atmosférico procedente de la columna de agua (denominado ^{210}Pb en exceso o $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$) cuya concentración disminuye con el tiempo, de acuerdo a su período de semidesintegración. La diferencia entre el ^{210}Pb total y el ^{210}Pb soportado, es decir el $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, es el parámetro fundamental para realizar la datación de los testigos sedimentarios (García-Orellana y Sanchez-Cabeza, 2012).

Si el transporte de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ a través de la columna de agua al sedimento es cuantitativo, y en ausencia de procesos de mezcla o de migración postdeposicional que lo redistribuyan verticalmente (por ejemplo, por bioturbación), debido a su desintegración radiactiva, las actividades del $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ muestran un perfil descendente, idealmente de tipo exponencial, a lo largo del testigo de sedimento hasta su total anulación en unos 110-150 años.

Conocidas las actividades de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en el testigo, es posible datar las diferentes capas de sedimento y estimar las tasas de sedimentación aplicando modelos matemáticos. Ya que la concentración de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en un sedimento superficial es el cociente entre el flujo del radionucleido y la tasa de acumulación másica (Krishnaswamy *et al.*, 1971), los modelos de datación contemplan diversas hipótesis sobre estas variables (Sanchez-Cabeza y Ruiz-Fernández, 2012a).

2.2. Muestreo de campo y laboratorio

Un aspecto fundamental para una adecuada determinación cronológica es la obtención de un testigo de sedimento inalterado que permita obtener muestras que preserven su información geológica lo mejor posible. En este sentido, el depósito no debe haber sido afectado por procesos de mezcla (asociados a bioturbación o dragados, por ejemplo) que tienen como principal consecuencia una homogenización de las capas sedimentarias, con la consecuente pérdida de la información estratigráfica contenida en ellas. Por ello, antes del muestreo es recomendable recabar información histórica y ambiental de la zona de estudio con el fin de identificar el lugar más adecuado para obtener un registro sedimentario inalterado.

Debido a que el ^{210}Pb es útil para datar materiales de unos 110 años, es importante elegir puntos de muestreo cuya tasa de sedimentación oscile entre 0,3 y 1 cm año^{-1} (110 años estarían representados por 33 y 110 cm, respectivamente), de modo que cada sección de 1 cm de espesor contiene la información correspondiente a un intervalo entre 1 y 3 años. Unas tasas de sedimentación más pequeñas reducirían la longitud del testigo datable (por ejemplo, una tasa de sedimentación de 0,1 cm año^{-1} sólo permitiría encontrar $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en los primeros 10 cm) y velocidades de sedimentación mayores exigirían testigos largos y difíciles de extraer en el campo (Ruiz-Fernández y Díaz Asencio, 2012).

Con independencia del instrumento que se utilice para la recolección del testigo sedi-

mentario (por ejemplo, un tubo de muestreo introducido manualmente en zonas intermareales, o un muestreador de pistón o de gravedad operados desde una embarcación), es importante utilizar tubos de material plástico (polimetacrilato o PVC) para evitar la posibilidad de contaminación de los sedimentos con metales traza. Si además el tubo es transparente, es posible observar la disposición de las capas sedimentarias, lo que permite verificar que la muestra recolectada sea adecuada para el estudio (por ejemplo, que la superficie no esté inclinada o los sedimentos no presenten fragmentaciones u oquedades que sugieran perturbaciones), así como realizar una descripción inicial del testigo en el campo (Fig. 1). Adicionalmente, es recomendable utilizar tubos con el mayor diámetro interno posible para evitar la distorsión del registro sedimentario por deformación y/o compresión, y para obtener una cantidad de sedimento suficiente que permita llevar a cabo otros posibles análisis. Igualmente, es fundamental recuperar siempre la capa superficial del testigo (la interfase agua-sedimento) ya que contiene el material más reciente y de mayor actividad de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, y permite conocer la actividad del ^{210}Pb en la fecha del muestreo, que constituye el origen temporal de la datación. Asimismo, es importante mantener el testigo sedimentario en posición vertical con el fin de evitar una posible mezcla de los sedimentos menos consolidados. Por último, es recomendable mantener el testigo refrigerado hasta el momento de procesarlo (Ruiz-Fernández y Díaz Asencio, 2012).

Antes del corte y muestreo del testigo, es conveniente realizar algún tipo de análisis no destructivo como radiografías de rayos X, fluorescencia de rayos X, tomografías computarizadas o susceptibilidad magnética para identificar posibles cambios en la composición de los sedimentos con la profundidad, observar la presencia de laminaciones o la ausencia de estratificación, identificar bioturbaciones o aportar evidencias de mezcla sedimentaria (Arias-Ortiz *et al.*, 2018). Esta información adicional del testigo no estaría disponible si se muestreara directamente en el campo.



Figura 1. Extracción en el campo del testigo submareal Abra1 (Ría de Bilbao) mediante un muestreador hammer corer operado por buzos en el año 2015 (izquierda) y fotografía del testigo cortado longitudinalmente en el laboratorio con indicación de la profundidad y edad radiométrica de los sedimentos obtenidos (derecha).

Figure 1. Extraction in the field of the subtidal core Abra1 (Bilbao estuary) using a hammer corer sampler operated by divers in 2015 (left) and photograph of the core cut longitudinally in the laboratory with indication of the depth and radiometric age of the sediments obtained (right).

Una vez en el laboratorio, y tras abrir el testigo que ha sido transportado cuidadosamente, es importante realizar fotografías y una descripción visual del registro sedimentario (por ejemplo, la presencia de restos biológicos, cambios de color y textura, o materiales de origen antropogénico) que serán útiles para interpretar tanto los perfiles de ^{210}Pb como de otros parámetros que se puedan analizar (metales traza, microfósiles, compuestos orgánicos, etc). Antes de cortar las muestras del testigo, se debe recoger cuidadosamente el agua sobrenadante (interfase agua-sedimento) utilizando una jeringa de plástico o un tubo fino flexible. Este material debe ser agregado a la primera muestra (superficie) cortada del testigo ya que puede contener una fracción significativa del inventario total de ^{210}Pb (Arias-Ortiz *et al.*, 2018).

El corte de las muestras debe realizarse con instrumentación que minimice su posible contaminación: no metálica, si se van a realizar análisis posteriores de metales traza, o metálica para posteriores estudios de contaminantes orgánicos. El espesor recomendable de cada muestra será igual o menor a 1 cm de modo que, como hemos mencionado anteriormente, cada una de ellas represente de 1 a 3 años de sedimentación. Aunque no se pretenda inicialmente analizar todas las muestras, es aconsejable mantener esta resolución, pues los resultados pueden indicar la conveniencia de realizar análisis con mayor detalle en determinadas secciones del testigo. Por otra parte, el desplazamiento vertical del tubo durante el muestreo en el campo y la extrusión del sedimento en el laboratorio pueden provocar que las muestras

profundas tengan contacto con restos de sedimento superficial adherido en las paredes del tubo. Debido a que las concentraciones de ^{210}Pb en las secciones superficiales del testigo son mayores que en los sedimentos profundos, existe un riesgo de contaminación que debe ser evitado mediante la eliminación del contorno más externo de cada muestra (Ruiz-Fernández y Díaz Asencio, 2012). De manera similar, el material orgánico de tamaño grande, como raíces, hojas y conchas, debe excluirse de las muestras antes del análisis de ^{210}Pb ya que puede contribuir a la dilución de su actividad.

Una vez seccionado el testigo, cada muestra debe pesarse con precisión antes y después de su secado, incluido el material que se haya decidido eliminar, para determinar los valores de la profundidad másica (g cm^{-2}) y de la densidad in situ (g cm^{-3}) que serán necesarios para la datación. En el caso de utilizar una estufa para su secado, es conveniente mantener la temperatura de la muestra por debajo de los 45°C con el fin de reducir la pérdida de mercurio y otros compuestos orgánicos de posible interés para estudios complementarios. Finalmente, las muestras de sedimento seco se pulverizan con un mortero de ágata y se conservan en ambiente fresco y seco hasta su análisis (Ruiz-Fernández y Díaz Asencio, 2012; Swarzenski, 2014).

2.3. Análisis del ^{210}Pb

El ^{210}Pb se desintegra en ^{210}Bi (periodo de semidesintegración: $5,01 \pm 0,005$ días) mediante la emisión de partículas beta y acompañado por la emisión de rayos gamma. Asimismo, la desintegración beta del ^{210}Bi resulta en la producción de ^{210}Po (periodo de semidesintegración: $138,38 \pm 0,002$ días), que a su vez se transforma, mediante la emisión de partículas alfa, en el isótopo estable ^{206}Pb . Así, la actividad de ^{210}Pb total en los sedimentos se determina indirectamente a través del análisis de la actividad de su descendiente ^{210}Po (por espectrometría de partículas alfa) bajo la premisa de su equilibrio

secular con el ^{210}Pb ; o bien, directamente, a través de la detección de fotones gamma por espectrometría de rayos gamma. No obstante, es necesario destacar que para la datación con ^{210}Pb es imprescindible conocer las actividades del $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ para lo cual se deben determinar las actividades del ^{210}Pb soportado, mediante espectrometría de rayos gamma, a través del análisis de ^{226}Ra . Los equipos portátiles que permitirían realizar estas detecciones directamente en el campo no tienen la sensibilidad suficiente. Por ello, estos análisis se llevan a cabo tanto en laboratorios comerciales como en centros de investigación.

El análisis de ^{210}Po por espectrometría alfa requiere una separación radioquímica previa a la medición, por lo que es una metodología relativamente laboriosa. Sin embargo, este análisis es ventajoso porque necesita cantidades pequeñas de muestra (usualmente $<0,5$ g), unos pocos días de contaje en el detector y tiene un límite de detección muy bajo (<1 Bq kg^{-1}). Por otra parte, presenta dos importantes limitaciones: la necesidad de tiempo de espera para la realización de los análisis de la muestra superficial y la incertidumbre relacionada con el desconocimiento del ^{210}Pb soportado. La primera limitación se debe a la posibilidad de que la condición de equilibrio entre ^{210}Po y ^{210}Pb pudiera no cumplirse para sedimentos recientemente depositados en aquellos lugares con elevada tasa de acumulación, por lo que antes de analizarlos se requiere un tiempo de espera que podría ser de hasta 2 años en el improbable caso de que la materia en suspensión muestre una actividad inicial nula de ^{210}Po . Sin embargo, considerando que en medios sedimentarios con una tasa de acumulación moderada (por ejemplo, $<0,5$ cm a^{-1}), la mayor parte de los sedimentos en el primer centímetro de profundidad habrían estado enterrados más de 2 años y el tiempo de espera podría reducirse considerablemente. Una práctica útil para mitigar el impacto del tiempo de espera es iniciar el análisis de los testigos con las muestras por debajo de la superficie y analizar la muestra superficial al menos 6 meses más tarde. La segunda

limitación se debe a que el análisis de ^{210}Po sólo permite determinar la actividad total de ^{210}Pb , así que la contribución del ^{210}Pb soportado se estima a partir del valor promedio de la región asintótica del perfil de ^{210}Po , bajo la suposición de que este valor es constante a lo largo de todo el testigo sedimentario, condición que podría no ser cierta. Por ejemplo, una sección aparentemente asintótica podría ser el resultado de la presencia de una capa de sedimentos mezclados con valores homogéneos de ^{210}Pb , causando un error en la cronología.

Las medidas de ^{210}Pb por espectrometría de rayos gamma son más complejas y requieren cuidadosas y exhaustivas calibraciones para que los resultados sean fiables (Díaz-Asencio *et al.*, 2020). Esto se debe a que el fotón gamma emitido por el ^{210}Pb es de baja energía, su probabilidad de emisión es de sólo 4,25% y puede ser fácilmente absorbido por la propia muestra que lo contiene (autoabsorción). Dado que en la región de baja energía del espectro gamma la radiación de fondo es alta, las actividades a medir deben ser relativamente elevadas para tener medidas significativas. La autoabsorción depende de la composición y densidad de las muestras y, por tanto, son necesarios cuidados especiales para la preparación de las muestras y los materiales utilizados con el fin de calibrar el sistema, así como ciertos factores de corrección. Todo lo anterior en su conjunto tiene como resultado que tanto los límites de detección (2-10 Bq kg^{-1} ; Swarzenski, 2014) como las incertidumbres de medida del ^{210}Pb por espectrometría de rayos gamma sean generalmente más altas que las obtenidas a través del análisis de ^{210}Po . No obstante, tiene la ventaja de ser una técnica no destructiva, que requiere una preparación mínima de las muestras y que, además, permite la determinación simultánea de ^{226}Ra , para estimar la actividad del ^{210}Pb soportado, así como de otros radioisótopos de interés como el ^{137}Cs y el ^{241}Am originados en los ensayos nucleares atmosféricos y que se pueden utilizar para validar el modelo de edad.

2.4. Parámetros de interés

Existen una serie de parámetros cuya determinación puede mejorar la interpretación del perfil de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$. Por ejemplo, para compensar la posible compactación de los sedimentos debido al enterramiento deposicional, una de las variables fundamentales que se utiliza es la profundidad másica (kg m^{-2}). Ésta se calcula midiendo la densidad de cada capa del testigo sedimentario mediante la determinación del peso seco y el volumen de cada muestra (producto de su espesor por la superficie) (Ruiz-Fernández y Mulsow, 2012).

Por otra parte, la concentración del $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ es usualmente baja en muestras arenosas y aumenta claramente con el incremento del contenido en materiales finos. Los efectos del tamaño de grano en la adsorción de radionucleidos muestran que la fracción más fina contiene concentraciones hasta 5 veces más altas que la fracción más gruesa de los sedimentos (He y Walling, 1996). En el caso de que un perfil de ^{210}Pb muestre tendencias atípicas que puedan estar relacionadas con variaciones en la textura del sedimento, es posible corregir las concentraciones de este radioisótopo utilizando un factor normalizador que represente adecuadamente los cambios en la distribución vertical del tamaño de grano. Esta normalización se realiza correlacionando la concentración del radionucleido con otro componente del sedimento. Por ejemplo, el aluminio se utiliza comúnmente como normalizador ya que se trata de un elemento mayoritario y representativo de la fracción litogénica de los sedimentos (específicamente de la fracción arcilla) que se comporta habitualmente de forma conservativa y no está afectado significativamente por los procesos diagenéticos o los cambios en las condiciones redox que puedan tener lugar en los sedimentos (Ruiz-Fernández y Mulsow, 2012).

La mezcla de sedimentos es también perjudicial para la datación y puede estar provocada por perturbaciones físicas derivadas de corrientes u oleaje, por perturbaciones antrópicas provocadas por la pesca de arrastre

y el fondeo, o por la bioturbación de la meio y macrofauna. La presencia de laminaciones finas en el sedimento es un indicador evidente de la ausencia de bioturbación, pero la falta de laminación simplemente puede reflejar la deposición de sedimentos muy homogéneos. El grado de bioturbación en un testigo se puede evaluar mediante el examen de imágenes de rayos X o tomografías computarizadas del sondeo, que permiten ver la actividad de la infauna o revelar la presencia de laminaciones (Swarzenski, 2014; Li *et al.*, 2021) que deben ser consideradas con precaución pues su formación puede también deberse a la deposición preferencial en función del tamaño de grano en sedimentos mezclados.

Por último, y debido a que los modelos de datación requieren que el ^{210}Pb no se redistribuya en la columna sedimentaria tras su depósito, es necesario tener en cuenta la posible alteración diagenética de los perfiles de ^{210}Pb . El ^{210}Pb se puede considerar inmóvil en los sedimentos dominados por partículas de grano fino y, por tanto, la movilidad postdeposicional no es un problema (Andersen, 2017). Sin embargo, ya que la reconstrucción temporal derivada del ^{210}Pb siempre debe ser contrastada con algún otro método alternativo que permita confirmar la datación obtenida, en caso de que un perfil de ^{210}Pb pueda estar afectado por diagénesis, debe tenerse en cuenta que el ^{137}Cs no será una buena opción para esa validación de la cronología ya que es más móvil y soluble que el ^{210}Pb , especialmente si los sedimentos tienen un elevado contenido en materia orgánica (Ruiz-Fernández y Sanchez-Cabeza, 2012).

2.5. Modelos de interpretación

Debido a los múltiples factores que actúan en la formación y posterior evolución de un sedimento, no existe un modelo de datación que sea aplicable en todos los casos. Las hipótesis de partida de los modelos con ^{210}Pb son las siguientes: 1) el sedimento es un sistema cerrado y, por tanto, el $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ se encuentra integrado en la matriz sedimentaria; 2) el trans-

porte de ^{210}Pb a través de la columna de agua al sedimento es cuantitativa; y 3) no existe migración postdeposicional de ^{210}Pb ni se ve afectado por procesos de mezcla de sedimentos. Aunque algunas de estas condiciones no se cumplan en todos los casos y los perfiles observados no sean casi nunca perfectamente exponenciales, se han desarrollado distintos modelos de datación por ^{210}Pb diferenciando dos posibles situaciones: velocidad de sedimentación constante o velocidad variable (Andersen, 2017).

Los modelos conceptuales utilizados se basan en la relación que existe entre la concentración inicial de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en el sedimento, su flujo a la superficie del sedimento y la tasa de acumulación másica (MAR, por sus siglas en inglés). Mediante la formulación de distintas hipótesis para estas tres variables, se han propuesto tres modelos clásicos de datación por ^{210}Pb : (1) modelo de concentración inicial constante (Constant Initial Concentration, CIC); (2) modelo de flujo constante (Constant Rate of Supply, CRS); y (3) modelo de flujo y sedimentación constantes (Constant Flux Constant Sedimentation, CFCS) (Arias-Ortiz *et al.*, 2018; Li *et al.*, 2021).

La elección del modelo de datación a utilizar para la interpretación del perfil de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ obtenido es fundamental. La pregunta básica que debe abordarse al estimar cronologías basadas en $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ es si su flujo a los sedimentos o su concentración en los sedimentos pueden considerarse constantes. Si tanto la velocidad de sedimentación como el flujo de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ al lugar de estudio han sido constantes, cualquiera de estos modelos producirá resultados similares. Sin embargo, muchos sondeos muestran perfiles irregulares de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ que sugieren que o la velocidad de sedimentación, o el flujo de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, o ambos han variado a lo largo del tiempo. En estos casos, los modelos darán resultados diferentes y será necesario elegir qué modelo o combinación de modelos se debe utilizar. Cuando sea posible, la elección del modelo debería basarse en un conocimiento previo sobre los posibles procesos sedimentarios que hayan operado

en el sistema que se está estudiando (Sanchez-Cabeza y Ruiz-Fernández, 2012b).

Si suponemos que la concentración inicial de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en los sedimentos del testigo ha sido relativamente constante a lo largo del tiempo, independientemente de los posibles cambios en la velocidad de sedimentación que hayan podido tener lugar, el modelo CIC puede ser la opción a aplicar. Este modelo es adecuado en testigos donde aparezcan representadas secciones con distintos eventos sedimentarios, o si se han producido cambios hidrológicos significativos o hay hiatos en el registro sedimentario causados por eventos erosivos. El modelo CIC asume que la actividad inicial del $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en la interfase agua-sedimento es constante en el tiempo independientemente de la velocidad de sedimentación, de modo que el flujo de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ varía simultáneamente con la MAR. Este modelo permite una estimación de la edad a cualquier profundidad a la que se haya medido $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ si se conoce su actividad inicial. Sin embargo, el modelo CIC requiere una disminución monótona en la actividad del $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ hacia el fondo del testigo para evitar inversiones en la edad de los sedimentos. Este modelo presenta ciertos problemas que lo hacen poco recomendable en la mayor parte de los casos. Por ejemplo, la hipótesis CIC implica que los flujos y las tasas de acumulación másica sean proporcionales. De este modo, si la tasa de acumulación se duplica, también debe duplicarse el flujo de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ al sedimento. Además, la hipótesis de sistema cerrado supone necesariamente que las capas más profundas deben ser más antiguas. Por ese motivo, el perfil de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ debe disminuir monótonamente. Sin embargo, éste no es el caso en la mayoría de los perfiles, lo que conlleva que las secciones más profundas que presenten concentraciones más altas de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ de lo esperado serían más jóvenes que las superiores, y esto representa una contradicción para los testigos de sedimentos no perturbados. Por tanto, excepto en unos pocos casos especiales, la hipótesis del modelo CIC es demasiado restrictiva (Sanchez-Cabeza y Ruiz-Fernández, 2012a, 2012b; Arias-Ortiz *et al.*, 2018).

El modelo CRS es el más utilizado para datar sedimentos recientes y se suele utilizar en la mayoría de los sistemas sedimentarios donde el suministro de sedimentos pueda variar en respuesta a cambios climáticos o antropogénicos (Sanchez-Cabeza y Ruiz-Fernández, 2012a, 2012b; Arias-Ortiz *et al.*, 2018). En este modelo, la hipótesis fundamental es que el flujo de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ a la superficie del sedimento es constante a lo largo del tiempo. Esto permite el cálculo de edades incluso en sondeos que no muestren una concentración decreciente monótona de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ con la profundidad, ya que las elevadas tasas de sedimentación dan como resultado concentraciones bajas de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ y viceversa. En una determinada sección del testigo, la concentración inicial y la tasa de acumulación másica pueden cambiar con el tiempo, pero deben ser inversamente proporcionales entre sí. De este modo, en cualquier zona de estudio, un mayor aporte de sedimento (por ejemplo, debido a inundaciones) no debe ir necesariamente acompañado de mayores flujos de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, por lo que la concentración de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ observada sería menor por efecto de la dilución. La actividad acumulada por unidad de área debajo de esa determinada sección en el momento de su formación, es decir, cuando representaba la superficie del testigo, también sería constante. En este caso, la datación se basa en la comparación entre los inventarios de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ por debajo de una determinada profundidad (integración de la actividad específica de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en función de la masa acumulada) y el inventario total de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en el testigo sedimentario. La determinación precisa de los inventarios de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ es de importancia crítica y necesaria para la aplicación de este modelo. El uso adecuado del modelo CRS requiere que el inventario se calcule sobre la base de las mediciones de la actividad del $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ y de la densidad aparente seca de las capas individuales en el testigo, ya que la densidad casi siempre aumenta con la profundidad debido a la compactación del sedimento. Un problema común para la datación con $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ es la selección de la profundidad de equilibrio, es decir, aquella profundidad donde el $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ se extingue. Por un

lado, debido a que la incertidumbre asociada a las mediciones de actividades bajas es elevada y ésta se propaga en los cálculos de la datación. Por otro lado, debido a que el cálculo de las edades con el modelo CRS está basado en una función logarítmica y, conforme el valor de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ se aproxima a cero, la función de edad tiende a infinito, lo que resulta en un incremento artificial de las edades. La magnitud de este sesgo está influenciada por el límite de detección de la técnica (MacKenzie *et al.*, 2011), por lo que es importante medir ^{210}Pb con el mejor límite de detección y la menor incertidumbre posibles. Ante el inevitable sesgo sistemático hacia edades más antiguas de este modelo y sus grandes incertidumbres, una aproximación conservadora es evitar extender las cronologías a periodos mayores de 100 años.

Por último, el modelo CFCS asume tanto un flujo constante de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ a la superficie del sedimento como una tasa de acumulación másica constante. Cuando se cumplen estos supuestos, la actividad específica del $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en la superficie es constante y disminuye exponencialmente en profundidad con la masa acumulada. Este modelo puede ser utilizado cuando el perfil del logaritmo neperiano de las concentraciones respecto a la profundidad se ajusta bien a una recta. Si la disminución de la actividad específica del $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en este perfil muestra uno o más segmentos lineales (con pendientes significativamente diferentes), se puede derivar una MAR media para cada segmento. De esta manera, el modelo es capaz de hacer frente a las variaciones temporales de las tasas de acumulación másica. Las ecuaciones permiten obtener tasas medias de acumulación (másica o lineal) que, si se cumplen las hipótesis del modelo, es posible utilizar para estimar edades. El uso adecuado de este modelo exige el cálculo de la profundidad másica acumulada en el testigo y la relación existente entre la concentración de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ y este parámetro, en lugar de la profundidad lineal (Sanchez-Cabeza y Ruiz-Fernández, 2012a, 2012b; Arias-Ortiz *et al.*, 2018).

La elección y el uso de un modelo en particular dependen del ambiente deposicional estudiado y de la capacidad para demostrar el cumplimiento de sus respectivas hipótesis. Los modelos CIC y CFCS se han utilizado típicamente en registros sedimentarios marinos, y el modelo CRS es el más frecuente en sedimentos lacustres y se está aplicando también en ambientes estuarinos y ecosistemas costeros (Andersen, 2017; Arias-Ortiz *et al.*, 2018).

2.6. Otros radionucleidos para la validación

Los perfiles reales de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ obtenidos en los testigos presentan generalmente características que los diferencian de un perfil ideal debido a distintos procesos sedimentarios como, por ejemplo, la bioturbación, los eventos catastróficos, la erosión o la heterogeneidad de los materiales. Aunque los modelos interpretativos permiten la utilización de este radionucleido para las dataciones de materiales recientes, es necesario obtener otros indicadores geocronológicos independientes que puedan validar las edades obtenidas.

Normalmente, los trazadores radiactivos más utilizados con este objetivo son el ^{137}Cs y el $^{239,240}\text{Pu}$, que se pueden usar como marcadores estratigráficos utilizando las fechas de referencia de 1952 CE para su primera aparición en el registro sedimentario y 1963 CE para su pico de precipitación atmosférica. Además, el ^{137}Cs puede mostrar un pico de actividad elevada adicional en los testigos sedimentarios del centro y norte de Europa en 1986 CE, correspondiente a las emisiones causadas por el accidente nuclear de Chernobyl. Si bien el ^{137}Cs puede ser relativamente móvil en los sedimentos, el plutonio se puede considerar inmóvil, aunque su análisis es más costoso en tiempo y recursos. El ^{137}Cs en el sedimento se determina directamente por espectrometría gamma, pero actualmente su identificación en los testigos de sedimento se ha hecho más difícil debido a que el 74% de la actividad global inicial del ^{137}Cs ha decaído después de

casi 6 décadas (300 kg generados; periodo de semidesintegración: $30,17 \pm 0,03$ años) y a la consiguiente inexactitud instrumental (Hancock *et al.*, 2014). Además, debido a que las detonaciones nucleares fueron más numerosas y de mayor magnitud en el hemisferio norte, y particularmente en latitudes medias, los niveles de ^{137}Cs en algunas regiones (como la zona ecuatorial o el hemisferio sur) son difíciles de detectar.

Los máximos de actividad de $^{239,240}\text{Pu}$ coinciden bien con las determinadas por ^{137}Cs en sedimentos recientes y los del $^{239,240}\text{Pu}$ funcionan de manera similar al ^{137}Cs para corroborar las edades y las tasas de sedimentación (Sáez-Muñoz *et al.*, 2020; Sanchez-Cabeza *et al.*, 2021). Sin embargo, el plutonio, aunque también depende de la distribución de la precipitación atmosférica radiactiva derivada de las pruebas nucleares, ofrece varias ventajas sobre el ^{137}Cs ya que es relativamente inmóvil en ambientes de agua dulce y salada, y su perdurabilidad en los sedimentos es mucho más larga debido a su mayor periodo de semidesintegración. Los radioisótopos de plutonio (2.900 kg generados; periodo de semidesintegración del ^{239}Pu : 24.110 años y del ^{240}Pu : 6.563 años) serán aún detectables en los sedimentos durante los próximos 100.000 años (Hancock *et al.*, 2014). Los radioisótopos de plutonio se determinan tras su extracción radioquímica de las muestras, que habitualmente consiste en su trituración e incineración a 550°C durante 48 h, su digestión ácida en vaso abierto, por microondas de alta presión o por fusión, y el uso de resinas cromatográficas de extracción selectiva para su separación y purificación. Posteriormente este plutonio se fija por electrodeposición sobre discos de acero inoxidable y se mide mediante espectrometría alfa de alta resolución (Corcho-Alvarado *et al.*, 2014), o bien se determina en una solución purificada mediante espectrometría de masas como ICP-MS (Levy *et al.*, 2011), ICP-MS-MC (Sanchez-Cabeza *et al.*, 2021) o incluso utilizando aceleradores AMS (Chamizo *et al.*, 2010).

3. Rango temporal de aplicación del método

En general, se asume que el ^{210}Pb puede ser detectado en los sedimentos hasta 5 veces su periodo de semidesintegración (vida media: $22,23 \pm 0,12$ años) por lo que puede proporcionar edades y tasas de acumulación, potencialmente con una resolución anual, para los últimos 110 años aproximadamente (García-Orellana y Sanchez-Cabeza, 2012). Otros autores (por ejemplo, Andersen, 2017) consideran que, en circunstancias ideales, esta metodología es capaz de datar con precisión las secuencias sedimentarias hasta 6 ó 7 veces su periodo de semidesintegración, es decir, entre 130 y 150 años. Esta edad representaría el “horizonte de datación” a partir del cual la incertidumbre en la medición sería demasiado grande para estimar una cronología fiable. Este rango de edades es especialmente adecuado para el estudio y definición del Antropoceno, ya que comprende el intervalo temporal en el que los impactos antropogénicos sobre el medio ambiente global se han ido haciendo rápidamente más significativos.

4. Ejemplos en nuestro territorio

Existen numerosos ejemplos en la costa vasca que aplican las técnicas de reconstrucción histórica de los medios sedimentarios recientes utilizando ^{210}Pb y otros radionucleidos de vida corta. Uno de ellos se realizó en la ría del Urola (Geoparque de la Costa Vasca, Gipuzkoa), un pequeño estuario (5,7 km de longitud) bajo condiciones semidiurnas y mesomareales. Las principales intervenciones humanas, concentradas en su zona inferior, son la presencia de un astillero y un puerto deportivo y la existencia de actividades de dragado, junto con industrias de galvanizado y fundición. Cearreta *et al.* (2021) estudiaron la evolución ambiental de este estuario a lo largo del tiempo, y con el fin de reconstruir sus impactos recientes recogieron manualmente 2 testigos (Z1: 47 cm y Z2: 47 cm) de sus zonas intermareales media e inferior en 2018 y 2015 respectivamente. La datación de esos registros sedimentarios

se basó en la distribución vertical de las concentraciones de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ y se utilizó ^{137}Cs para su validación. Las determinaciones de estos radionucleidos se llevaron a cabo mediante espectrometría gamma, empleando un detector de germanio de alta pureza (HPGe) y fondo bajo. La disminución exponencial del $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, que desapareció a 30 cm de profundidad en el testigo Z1, reflejó un flujo de ^{210}Pb y una tasa de sedimentación constantes, por lo que se aplicó el modelo CFCS a este registro. Z1 mostró una tasa media de acumulación sedimentaria de $0,22 \pm 0,02 \text{ cm año}^{-1}$ y permitió ubicar temporalmente las dos unidades identificadas en base a las concentraciones de metales y microfósiles (unidad inferior depositada entre principios del siglo XX y 1954 CE, y unidad superior acumulada durante las siguientes seis décadas). Esta cronología derivada del $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ fue concordante con el pico del radiotrazador independiente ^{137}Cs , cuya máxima actividad se detectó a 13 cm (Fig. 2). Por el contrario, en el testigo Z2 las concentraciones de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ presentaron un perfil irregular que no se ajustaba a una curva exponencial ideal. La concentración de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ se extinguió a 38 cm de profundidad, y su cronología y las tasas de acumulación se establecieron aplicando el modelo CRS que asume un flujo constante de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ y una tasa de sedimentación variable con el tiempo. Aunque su actividad mostró una tendencia decreciente en los 15 cm superiores del testigo y por debajo de los 35 cm de profundidad, no se observó una disminución general en el segmento 35-15 cm de profundidad, lo que sugirió la posibilidad de una deposición repentina de materiales. Debido a que la ubicación del testigo se encuentra a menos de 200 m aguas arriba del astillero Balenciaga, los autores concluyeron que se trataba de sedimentos recientes dragados del fondo, removilizados pero no extraídos durante las operaciones para mantener un canal de navegación adecuado a la salida de los barcos. Este proceso postdeposicional podría explicar asimismo la distribución vertical del ^{137}Cs en ese registro, que no mostró un máximo claro (Fig. 2). La unidad basal se dató desde finales del siglo XIX hasta 1965

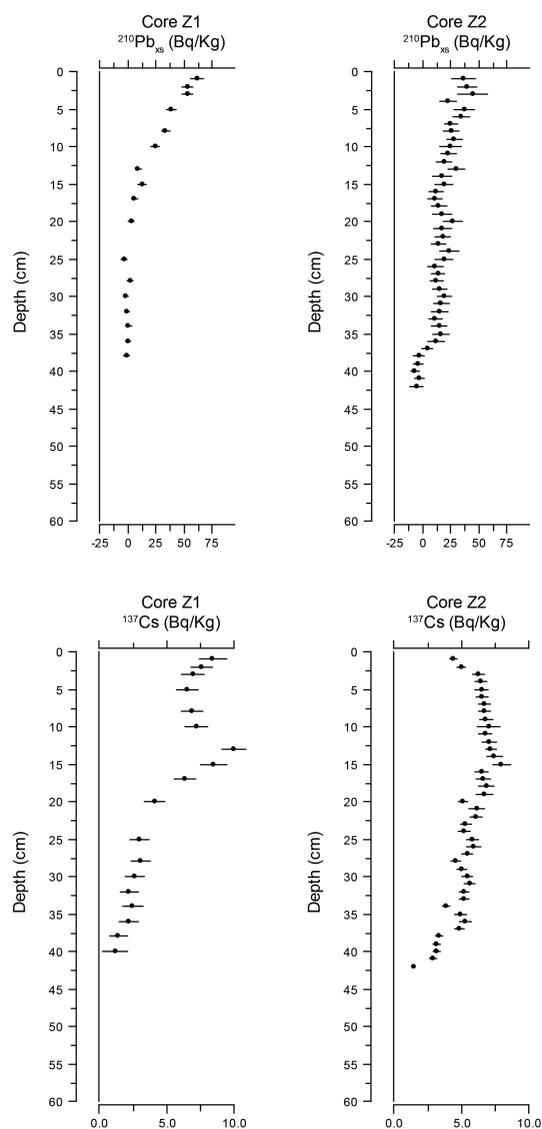


Figura 2. Distribución de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ (Bq kg^{-1}) mostrando un perfil decreciente a lo largo de la secuencia sedimentaria y de ^{137}Cs (Bq kg^{-1}) con su pico de precipitación atmosférica (1963 CE) en función de la profundidad (cm) en los testigos Z1 y Z2 (Estuario del Urola, Geoparque de la Costa Vasca) (modificada de Cearreta et al., 2021).

Figure 2. Distribution of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ (Bq kg^{-1}) showing a decreasing profile along the sedimentary sequence and ^{137}Cs (Bq kg^{-1}) with its atmospheric precipitation peak (1963 CE) as a function of depth (cm) in cores Z1 and Z2 (Urola estuary, Basque Coast Geopark) (modified from Cearreta et al., 2021).

CE, mientras que la edad calculada para la unidad intermedia fue 1965-1980 CE. Por último, la unidad superior se habría depositado entre los años 1980-2015 CE. Las tasas de sedimentación mostraron una tendencia creciente en el tiempo, con 0,4-0,6 cm año⁻¹ durante la década de 1960 y alcanzaron un valor máximo de 0,8 cm año⁻¹ a mediados de la década de 1980.

Otro caso de estudio se llevó a cabo en la ría de Bilbao, una de las zonas más contaminadas de la costa cantábrica debido al vertido directo de efluentes urbanos, mineros e industriales durante los últimos 170 años. Irabien *et al.* (2019) examinaron el registro sedimentario reciente de la bahía interior del Abra (<30 m de profundidad) en la que desemboca el estuario, utilizando un enfoque multidisciplinar que incluyó indicadores geoquímicos (Pb, Zn y Cd), micropaleontológicos (foraminíferos) y radioisotópicos (²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs) con el fin de analizar su estado ambiental y destacar las posibles consecuencias de eventos meteorológicos extremos sobre las áreas costeras históricamente industrializadas. En 2015 se recolectaron seis testigos (entre 50 y 69 cm de longitud) utilizando un muestreador hammer corer operado por buzos (Fig. 1). Todos los testigos se describieron, fotografiaron y radiografiaron antes de ser cortados en secciones de 1 cm. Las actividades de ²¹⁰Pb, ²²⁶Ra y ¹³⁷Cs en los testigos Abra1 y Abra4 se analizaron mediante espectrometría gamma se analizaron mediante espectrometría gamma, utilizando un detector HPGe de fondo bajo. Las muestras de sedimento se homogeneizaron, tamizaron (<0,5 mm), empaquetaron herméticamente y se almacenaron durante al menos 30 días para garantizar el equilibrio secular entre el ²²⁶Ra, el ²²²Rn y los radionucleidos de vida corta descendientes de este último. Por su parte, en los testigos Abra2, Abra3, Abra5 y Abra6, la actividad del ²¹⁰Pb se determinó a través de su descendiente radiactivo ²¹⁰Po por espectrometría alfa (Ortec-Ametek Alpha Ensemble), y el ²²⁶Ra y el ¹³⁷Cs se midieron por espectrometría gamma de fondo bajo y alta resolución (Ortec-Ametek HPGe well detector). Aunque todos los testigos mostraron una disminución de la acti-

vidad radiactiva del ²¹⁰Pb_{ex} con la profundidad, ninguno de los perfiles fue claramente exponencial, lo que indicó que las tasas de acumulación no eran constantes. Por tanto, los modelos de edad, las tasas de acumulación de sedimento (SAR) y las tasas de acumulación másica (MAR) se estimaron, en la mayoría de los testigos, aplicando el modelo CRS que asume un flujo constante de ²¹⁰Pb pero tasas de sedimentación variables. En los casos en que no fue posible usar el modelo CRS, se utilizó el modelo CFCS que supone una sedimentación constante. El modelo CRS requiere el conocimiento del inventario total de ²¹⁰Pb_{ex} en el testigo, pero, a excepción de Abra2, no se alcanzó el equilibrio entre el ²¹⁰Pb-²²⁶Ra en la base de los testigos, lo que indicó que los inventarios de ²¹⁰Pb_{ex} estaban incompletos. Los perfiles de ²¹⁰Pb_{ex} mostraron una tendencia general decreciente con la profundidad, pero en los tramos intermedios (unidad DI2), las actividades de ²¹⁰Pb_{ex} fueron pequeñas o nulas (Fig. 3). Aunque esto podría sugerir que DI2 se depositó hace más de 100 años, la presencia de mayores actividades de ²¹⁰Pb_{ex} en la unidad infrayacente DI1 junto con la presencia de ¹³⁷Cs en ambas unidades (DI1 y DI2) indicaron que su deposición había tenido lugar después de 1952 CE. La hipótesis para esta pequeña o nula actividad de ²¹⁰Pb_{ex} en ese intervalo es que fue causada por un evento sedimentario que transportó materiales antiguos (con ²¹⁰Pb-²²⁶Ra en equilibrio) provocando un aumento dramático en las tasas de acumulación másica, además de cambios en la textura y la composición de los materiales sedimentados. El testigo Abra1 mostró este intervalo en equilibrio con un mayor espesor (42-26 cm de profundidad) y para estimar su inventario completo se utilizó el método de la tasa de acumulación de referencia (Sanchez-Cabeza y Ruiz-Fernández, 2012b). La fecha obtenida para esta unidad intermedia fue compatible con las inundaciones catastróficas de Bilbao en 1983, durante las cuales se transportaron al Abra interior cantidades muy importantes de sedimentos de grano grueso y de naturaleza más limpia que los materiales finos contaminados infra y suprayacentes.

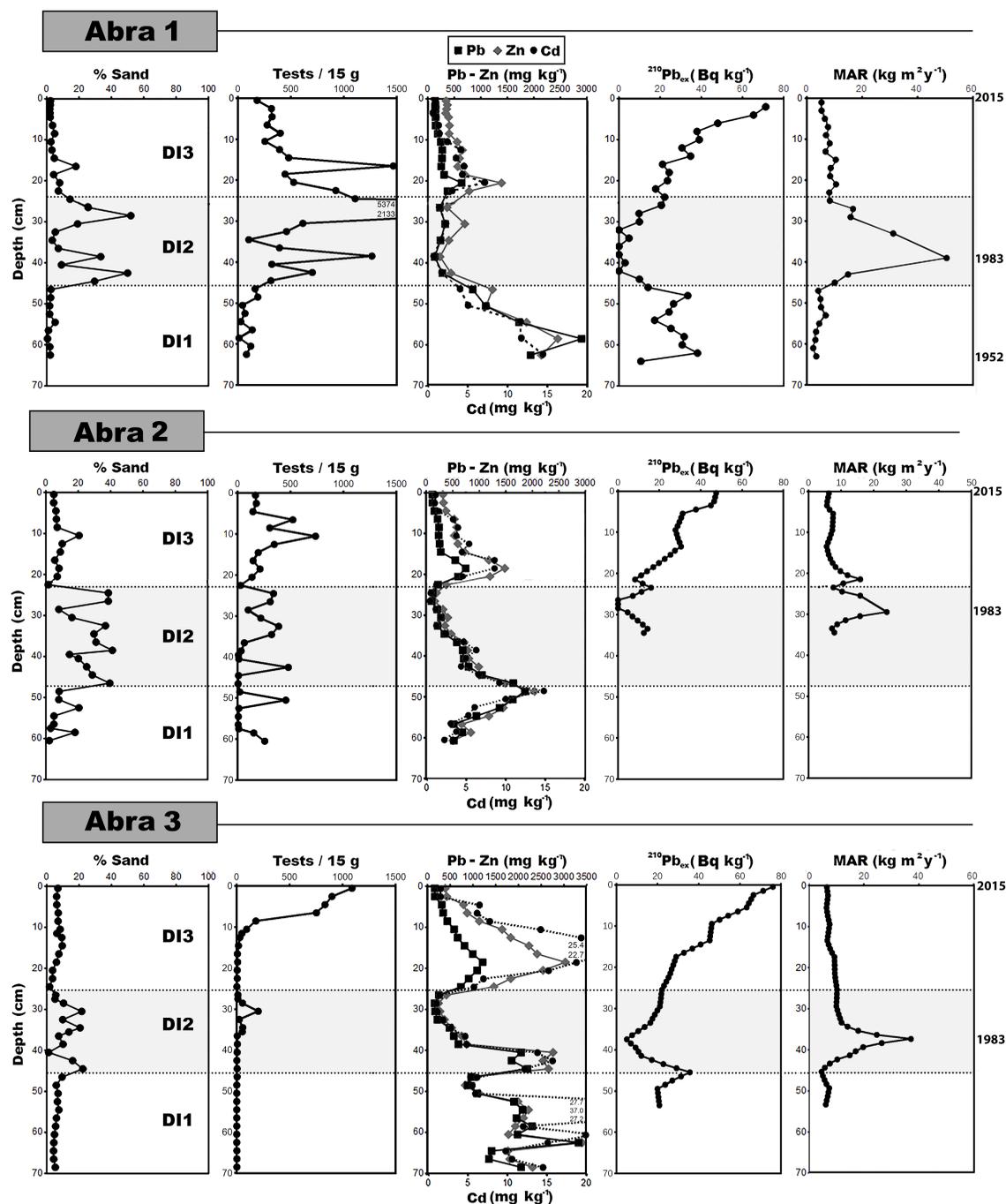


Figura 3. Distribución en profundidad del contenido en arena (%), abundancia de foraminíferos (15 g de sedimento seco), Pb, Zn y Cd (mg kg^{-1}), ^{210}Pb (Bq kg^{-1}) y tasas de acumulación másica (MAR, $\text{kg m}^{-2} \text{año}^{-1}$) en los testigos submareales Abra1, Abra2 y Abra3 (Ría de Bilbao) mostrando la anomalía en todos los parámetros representada por el tramo intermedio DI2 (adaptada de Irabien *et al.*, 2019).

Figure 3. Distribution with depth of sand content (%), foraminiferal abundance (15 g of dry sediment), Pb, Zn and Cd (mg kg^{-1}), ^{210}Pb (Bq kg^{-1}) and mass accumulation rates (MAR, $\text{kg m}^{-2} \text{año}^{-1}$) in cores Abra1, Abra2 and Abra3 (Bilbao estuary) showing the anomaly in all the parameters represented by the intermediate unit DI2 (adapted from Irabien *et al.*, 2019).

Por último, Irabien *et al.* (2020) exploraron el impacto antrópico sobre los sedimentos de la plataforma continental adyacente al País Vasco que recibe el vertido de los materiales en suspensión provenientes de doce sistemas fluviales (alrededor de $1,57 \times 10^6$ t año⁻¹). El testigo KS-04 (44 cm de longitud) se perforó a 135 m de profundidad en un extenso depósito sedimentario de grano fino (680 km²), denominado Basque Mud Patch y situado frente a la ciudad de Donostia-San Sebastián. Para ello, se utilizó un muestreador Kullenbeg operado desde el buque R/V *Côtes de la Manche* y el testigo se cortó a intervalos de 1 cm de espesor. La radiografía de rayos X reveló una laminación horizontal sin alteraciones que sugirió una bioturbación de baja intensidad. Se midieron las actividades de los radionucleidos naturales (²¹⁰Pb y ²²⁶Ra) y artificiales (¹³⁷Cs, ^{239,240}Pu y ²³⁸Pu) y se determinaron además las concentraciones de la actividad de otros radionucleidos naturales como ²³²Th, ²¹²Pb y ²²⁸Ac (que se generan en la cadena de desintegración del ²³⁵U), y el ⁴⁰K. Se analizaron mediante espectrometría gamma, utilizando un detector HPGe de alta pureza y fondo bajo. Las muestras de sedimento se homogeneizaron, se empaquetaron herméticamente y se almacenaron durante al menos 25 días para garantizar el equilibrio secular entre el ²²⁶Ra, el ²²²Rn y los radionucleidos de vida corta descendientes de este último. Por su parte, las medidas de ^{239,240}Pu y ²³⁸Pu se realizaron mediante espectrometría alfa tras un proceso de separación cromatográfica (Sáez-Muñoz *et al.*, 2020). La actividad del ²¹⁰Pb_{ex} mostró una disminución claramente exponencial con la profundidad, por lo que se utilizó el modelo CFCS que asume las hipótesis de flujo constante de ²¹⁰Pb y tasa de acumulación másica constante. Ésta se determinó a partir de la pendiente de la regresión lineal entre el $\ln^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ y la profundidad másica. Las concentraciones de ²³²Th, ²¹²Pb, ²²⁸Ac y ⁴⁰K mostraron perfiles casi homogéneos, lo que sugirió la ausencia de cambios significativos en la composición del testigo. La disminución exponencial con la profundidad observada para el ²¹⁰Pb_{ex} permitió derivar una tasa de sedimentación media de $1,0 \pm 0,1$ mm año⁻¹.

El ¹³⁷Cs y el ^{239,240}Pu aparecieron por primera vez a 6 cm de profundidad, un poco más profundo (1 cm) de lo esperado según las edades derivadas del ²¹⁰Pb, y arrojaron una tasa de sedimentación comparable, pero algo mayor ($\sim 1,3$ mm año⁻¹). Esta penetración anómala de los radiotrazadores a profundidades algo mayores de lo esperado confirmó que la acumulación sedimentaria podría estar asimismo influida por la bioturbación. El marco cronológico construido sobre la base de la tasa de sedimentación derivada del ²¹⁰Pb indicó que este registro sedimentario comenzó a depositarse antes de 1880 CE. Este trabajo confirmó que la influencia de las actividades antrópicas desarrolladas en la costa vasca desde finales del siglo XIX se extiende asimismo al medio marino, donde los depósitos fangosos actúan como una trampa sedimentaria para los contaminantes.

5. Resumen y Conclusiones

Durante las últimas décadas se ha producido un avance sin precedentes en el estudio de los procesos de transformación ambiental y, asimismo, en la diferenciación entre los cambios de origen natural y aquellos provocados por el ser humano. Este intervalo corresponde precisamente al momento de mayor crecimiento industrial y demográfico experimentado por la humanidad y ha conducido, desde la década de 1950, a la diferenciación de una posible época geológica denominada Antropoceno. La determinación radiométrica del ²¹⁰Pb es el método más empleado para la datación de los sedimentos recientes depositados durante los últimos 110 años y su cronología se ha visto apoyada por la utilización adicional de radionucleidos de origen artificial (¹³⁷Cs y ^{239,240}Pu). Este trabajo geocronológico debe ser realizado en colaboración con un equipo multidisciplinar que aporte información y conocimiento adicionales necesarios para la interpretación de los depósitos sedimentarios como archivos ambientales a lo largo del tiempo. Los medios sedimentarios integran en un registro complejo los diferentes procesos naturales y los impactos antrópicos

recibidos. Por tanto, una reconstrucción multidisciplinar exhaustiva de estos ambientes deposicionales sería muy poco eficaz sin un conocimiento preciso de su evolución temporal, idealmente con una resolución anual.

Agradecimientos

Este artículo se ha inspirado en el manual de referencia publicado por Sanchez-Cabeza, J.A., Díaz-Asencio, M., Ruiz-Fernández, A.C., eds. (2012). *Radiocronología de sedimentos costeros utilizando ^{210}Pb : Modelos, Validación y Aplicaciones*. Organismo Internacional de Energía Atómica, Viena, 105 pp., donde se profundizan diferentes aspectos tratados aquí. Trabajo financiado por los proyectos RTI2018-095678-B-C21, MCIU/AEI/FEDER, UE (MINECO) e IT976-16 (EJ/GV). Dos revisoras/es anónimas/os mejoraron el manuscrito original con sus comentarios y sugerencias. Contribución nº 56 de la Unidad de Investigación Geo-Q Zentroa (Laboratorio Joaquín Gómez de Llarena).

Bibliografía

- Andersen, T.J. (2017). Some practical considerations regarding the application of ^{210}Pb and ^{137}Cs dating to estuarine sediments. En: *Applications of Paleoenvironmental Techniques in Estuarine Studies* (K. Weckström, K.M. Saunders, P.A. Gell, C.G. Skilbeck, eds.). Developments in Paleoenvironmental Research, 20. Springer, 121-140. https://doi.org/10.1007/978-94-024-0990-1_6
- Appleby, P.G., Richardson, N., Nolan, P.J. (1991). ^{241}Am dating of lake sediments. *Hydrobiology*, 214, 35-42. <https://doi.org/10.1007/BF00050929>
- Arias-Ortiz, A., Masqué, P., Garcia-Orellana, J., Serrano, O., Mazarrasa, I., Marbà, N., Lovelock, C.E., Lavery, P., Duarte, C.M. (2018). Reviews and syntheses: ^{210}Pb -derived sediment and carbon accumulation rates in vegetated coastal ecosystems – setting the record straight. *Biogeosciences*, 15, 6791-6818. <https://doi.org/10.5194/bg-15-6791-2018>
- Bé, M.M., Chisté, V., Dulieu, C., Browne, E., Chechev, V., Kuzmenko, N., Kondev, F., Luca, A., Galán, M., Pearce, A., Huang, X. (2008). *Table of Radionuclides*. Bureau International des Poids et Mesures, Sèvres, France.
- Bonsignore, M., Salvagio Manta, D., Barsanti, M., Conte, F., Delbono, I., Horvat, M., Quinci, E.M., Schirone, A., Shlyapnikov, Y., Sprovieri, M. (2020). Mercury isotope signatures in sediments and marine organisms as tracers of historical industrial pollution. *Chemosphere*, 258, 127435. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.127435>
- Cearreta, A., Irabien, M.J., Gómez Arozamena, J.E., El bani Altuna, N., Goffard, A., García-Artola, A. (2021). Environmental evolution of the Basque Coast Geopark estuaries (southern Bay of Biscay) during the last 10,000 years. *Journal of Marine Systems*, 219, 103557. <https://doi.org/10.1016/j.jmarsys.2021.103557>
- Chamizo, E., Jiménez-Ramos, M.C., Enamorado, S.M., García-León, M., García-Tenorio, R., Mas, J.L., Masqué, P., Merino, J., Sanchez-Cabeza, J.A. (2010). Characterisation of the plutonium isotopic composition of a sediment core from Palomares, Spain, by low-energy AMS and alpha-spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 268, 1273-1276. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2009.10.151>
- Corcho-Alvarado, J.A., Diaz-Asencio, M., Froidevaux, P., Bochud, F., Alonso-Hernández, C.M., Sanchez-Cabeza, J.A. (2014). Dating young Holocene coastal sediments in tropical regions: Use of fallout $^{239,240}\text{Pu}$ as alternative chronostratigraphic marker. *Quaternary Geochronology*, 22, 1-10. <https://doi.org/10.1016/j.quageo.2014.02.001>
- Díaz-Asencio, M., Sanchez-Cabeza, J.A., Ruiz-Fernández, A.C., Corcho-Alvarado, J.A., Pérez-Bernal, L.H. (2020). Calibration and use of well-type germanium detectors for low-level gamma-ray spectrometry of sediments using a semi-empirical method. *Journal of Environmental Radioactivity*, 225, 106385. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106385>
- Gatuszka, A., Migaszewski, Z.M., Rose, N.L. (2020). A consideration of polychlorinated biphenyls as a chemostratigraphic marker of the Anthropocene. *The Anthropocene Review*, 7, 138-158. <https://doi.org/10.1177/2053019620916488>
- García-Orellana, J., Sanchez-Cabeza, J.A. (2012). El ^{210}Pb como trazador de procesos ambientales. En: *Radiocronología de sedimentos costeros utilizando ^{210}Pb : Modelos, Validación y Aplicaciones* (J.A. Sanchez-Cabeza, M.

- Díaz-Asencio, A.C. Ruiz-Fernández, eds.). Organismo Internacional de Energía Atómica, Viena, 4-9.
- Gehrels, W.R., Kirby, J.R., Prokoph, A., Newnham, R.M., Achterberg, E. P., Evans, H., Black, S., Scott, D.B. (2005). Onset of recent rapid sea-level rise in the western Atlantic Ocean. *Quaternary Science Reviews*, 24, 2083-2100. <https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2004.11.016>
- Goldberg, E.D. (1963). Geochronology with ^{210}Pb . En: *Radioactive Dating. Proceedings of a Symposium* (International Atomic Energy Agency, ed.). Viena, 121-131.
- Hancock, G.J., Tims, S.G., Fifield, L.K., Webster, I.T. (2014). The release and persistence of radioactive anthropogenic nuclides. En: *A Stratigraphical Basis for the Anthropocene* (C.N. Waters; J. Zalasiewicz; M. Williams; M.A. Ellis; A. Snelling, eds.). Geological Society of London-Special Publications, 395, 265-281. <https://doi.org/10.1144/SP395.15>
- He, Q., Walling, D.E. (1996). Interpreting particle size effects in the adsorption of ^{137}Cs and unsupported ^{210}Pb by mineral soils and sediments. *Journal of Environmental Radioactivity*, 30, 117-137. [https://doi.org/10.1016/0265-931X\(96\)89275-7](https://doi.org/10.1016/0265-931X(96)89275-7)
- Irabien, M.J., Cearreta, A., Gómez-Arozamena, J., Gardoki, J., Fernández Martín-Consuegra, A. (2020). Recent coastal anthropogenic impact recorded in the Basque mud patch (southern Bay of Biscay shelf). *Quaternary International*, 566-567, 357-367. <https://doi.org/10.1016/j.quaint.2020.03.042>
- Irabien, M.J., Cearreta, A., Gómez-Arozamena, J., Serrano, H., Sanchez-Cabeza, J.A., Ruiz-Fernández, A.C. (2019). Geological record of extreme floods and anthropogenic impacts on an industrialised bay: The inner Abra of Bilbao (northern Spain). *Science of the Total Environment*, 696, 133946. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.133946>
- Koide, M., Soutar, A., Goldberg, E.D. (1972). Marine geochronology with ^{210}Pb . *Earth and Planetary Science Letters*, 14, 442-446. [https://doi.org/10.1016/0012-821X\(72\)90146-X](https://doi.org/10.1016/0012-821X(72)90146-X)
- Krishnaswamy, S., Lal, D., Martin, J.M., Meybeck, M. (1971). Geochronology of lake sediments. *Earth and Planetary Science Letters*, 11, 407-414. [https://doi.org/10.1016/0012-821X\(71\)90202-0](https://doi.org/10.1016/0012-821X(71)90202-0)
- Levy, I., Povinec, P., Aoyama, M., Hirose, K., Sanchez-Cabeza, J.A., Comanducci, J.F., Gastaud, J., Eriksson, M., Hamajima, Y., Kim, C.S., Komura, K., Osvath, I., Roos, P., Yim, S.A. (2011). Marine anthropogenic radiotracers in the Southern Hemisphere: New sampling and analytical strategies. *Progress in Oceanography*, 89, 120-133. <https://doi.org/10.1016/j.pcean.2010.12.012>
- Li, W., Li, X., Mei, X., Zhang, F., Xu, J., Liuf, C., Wei, C., Liub, Q. (2021). A review of current and emerging approaches for Quaternary marine sediment dating. *Science of the Total Environment*, 780, 146522. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.146522>
- MacKenzie, A.B., Hardie, S.M.L., Farmer, J.G., Eades, L.J., Pulford, I.D. (2011). Analytical and sampling constraints in ^{210}Pb dating. *Science of the Total Environment*, 409, 1298-1304. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2010.11.040>
- Oldfield, F., Richardson, N., Appleby, P.G. (1995). Radiometric dating (^{210}Pb , ^{137}Cs , ^{241}Am) of recent ombrotrophic peat accumulation and evidence for changes in mass balance. *The Holocene*, 5, 141-148. <https://doi.org/10.1177/095968369500500202>
- Preiss, N., Mélières, M.A., Pourchet, M. (1996). A compilation of data on lead 210 concentration in surface air and fluxes at the air-surface and water-sediment interfaces. *Journal of Geophysical Research*, 101, 28847-28862. <https://doi.org/10.1029/96JD01836>
- Rose, N.L. (2015). Spheroidal carbonaceous fly ash particles provide a globally synchronous stratigraphic marker for the Anthropocene. *Environmental Science and Technology*, 49, 4155-4162. <https://doi.org/10.1021/acs.est.5b00543>
- Ruiz-Fernández, A.C., Díaz Asencio, M. (2012). Muestreo de cores sedimentarios. En: *Radiocronología de sedimentos costeros utilizando ^{210}Pb : Modelos, Validación y Aplicaciones* (J.A. Sanchez-Cabeza, M. Díaz-Asencio, A.C. Ruiz-Fernández, eds.). Organismo Internacional de Energía Atómica, Viena, 10-20.
- Ruiz-Fernández, A.C., Mulsow, S. (2012). Análisis complementarios para interpretar perfiles de ^{210}Pb . En: *Radiocronología de sedimentos costeros utilizando ^{210}Pb : Modelos, Validación y Aplicaciones* (J.A. Sanchez-Cabeza, M. Díaz-Asencio, A.C. Ruiz-Fernández, eds.). Organismo Internacional de Energía Atómica, Viena, 29-38.
- Ruiz-Fernández, A.C., Sanchez-Cabeza, J.A. (2012). Diagénesis y ^{210}Pb . En: *Radiocronología de sedimentos costeros utilizando ^{210}Pb : Modelos, Validación y Aplicaciones* (J.A. Sanchez-Cabeza, M. Díaz-Asencio, A.C. Ruiz-Fernández,

- eds.). Organismo Internacional de Energía Atómica, Viena, 39-46.
- Sáez-Muñoz, M., Ortiz, J., Martorell, S., Gómez-Arozamena, J., Cearreta, A. (2020). Sequential determination of uranium and plutonium in soil and sediment samples by borate salts fusion. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 323, 1167-1177. <https://doi.org/10.1007/s10967-020-07028-5>
- Sanchez-Cabeza, J.A., Rico-Esenaro, S.D., Corcho-Alvarado, J.A., Röllin, S., Carricart-Ganivet, J.P., Montagna, P., Ruiz-Fernández, A.C., Cearreta, A. (2021). Plutonium in coral archives: A good primary marker for an Anthropocene type section. *Science of the Total Environment*, 771, 145077. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.145077>
- Sanchez-Cabeza, J.A., Ruiz-Fernández, A.C. (2012a). Modelos de fechado por ^{210}Pb . En: *Radiocronología de sedimentos costeros utilizando ^{210}Pb : Modelos, Validación y Aplicaciones* (J.A. Sanchez-Cabeza, M. Díaz-Asencio, A.C. Ruiz-Fernández, eds.). Organismo Internacional de Energía Atómica, Viena, 47-61.
- Sanchez-Cabeza, J.A., Ruiz-Fernández, A.C. (2012b). ^{210}Pb sediment radiochronology: An integrated formulation and classification of dating models. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 82, 183-200. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2010.12.024>
- Swarzenski, P.W. (2014). ^{210}Pb dating. En: *Encyclopedia of Scientific Dating Methods* (W.J. Rink, J.W. Thompson, eds.). Springer, Dordrecht, 1-11. https://doi.org/10.1007/978-94-007-6304-3_236
- Syvitski, J., Waters, C.N., Day, J., Milliman, J.D., Summerhayes, C., Steffen, W., Zalasiewicz, J., Cearreta, A., Gałuszka, A., Hajdas, I., Head, M.J., Leinfelder, R., McNeill, J.R., Poirier, C., Rose, N.L., Shotyk, W., Wagemreich, M., Williams, M. (2020). Extraordinary human energy consumption and resultant geological impacts beginning around 1950 CE initiated the proposed Anthropocene Epoch. *Communications Earth & Environment*, 1, 32. <https://doi.org/10.1038/s43247-020-00029-y>
- UNSCEAR (2000). *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. Volume 1, UNSCEAR Report to the General Assembly, New York.
- Waters, C.N., Syvitski, J.P.M., Gałuszka, A., Hancock, G.J., Zalasiewicz, J., Cearreta, A., Grinevald, J., Jeandel, C., McNeill, J.R., Summerhayes, C., Barnosky, A. (2015). Can nuclear weapons fallout mark the beginning of the Anthropocene Epoch? *Bulletin of the Atomic Scientists*, 71, 46-57. <https://doi.org/10.1177/0096340215581357>
- Zalasiewicz, J., Waters, C.N., Williams, M., Barnosky, A.D., Cearreta, A., Crutzen, P., Ellis, E., Ellis, M., Fairchild, I.J., Grinevald, J., Haff, P.K., Hajdas, I., Leinfelder, R., McNeill, J., Odada, E.O., Poirier, C., Richter, D., Steffen, W., Summerhayes, C., Syvitski, J.P.M., Vidas, D., Wagemreich, M., Wing, S.L., Wolfe, A.P., Zhisheng, A. (2015). When did the Anthropocene begin? A mid-twentieth century boundary level is stratigraphically optimal. *Quaternary International*, 383, 196-203. <https://doi.org/10.1016/j.quaint.2014.11.045>
- Zalasiewicz, J., Waters, C.N., Ivar do Sul, J.A., Corcoran, P.L., Barnosky, A.D., Cearreta, A., Edgeworth, M., Gałuszka, A., Jeandel, C., Leinfelder, R., McNeill, J.R., Steffen, W., Summerhayes, C., Wagemreich, M., Williams, M., Wolfe, A.P., Yonan, Y. (2016). The geological cycle of plastics and their use as a stratigraphic indicator of the Anthropocene. *Anthropocene*, 13, 4-17. <https://doi.org/10.1016/j.ance.2016.01.002>
- Zalasiewicz, J., Waters, C.N., Summerhayes, C.P., Wolfe, A.P., Barnosky, A.D., Cearreta, A., Crutzen, P., Ellis, E., Fairchild, I.J., Gałuszka, A., Haff, P., Hajdas, I., Head, M.J., Ivar do Sul, J.A., Jeandel, C., Leinfelder, R., McNeill, J.R., Neal, C., Odada, E., Oreskes, N., Steffen, W., Syvitski, J., Vidas, D., Wagemreich, M., Williams, M. (2017). The Working Group on the Anthropocene: Summary of evidence and interim recommendations. *Anthropocene*, 19, 55-60. <https://doi.org/10.1016/j.ance.2017.09.001>

Recibido el 16 de febrero de 2022

Aceptado el 29 de agosto de 2022