

DETERMINACIÓN DEL COCIENTE ISOTÓPICO $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ EN PARTÍCULAS CALIENTES

M.C. JIMÉNEZ-RAMOS,¹ E. CHAMIZO¹, R. GARCIA-TENORIO^{1,2} y M. GARCÍA-LEON³

¹ Centro Nacional de Aceleradores (CNA), Sevilla

² Dep. Física Aplicada II, Universidad de Sevilla

³ Dep. Física Atómica Molecular y Nuclear, Universidad de Sevilla

RESUMEN

En este trabajo se exponen las principales características de las tres técnicas de medida utilizadas y puestas a punto en nuestro laboratorio para la determinación del cociente isotópico $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ en partículas calientes. La medida de este cociente tiene un alto interés, pues permite caracterizar el origen del plutonio presente en la partícula analizada. Se ha puesto especial énfasis en mostrar las ventajas y limitaciones del método propuesto para la determinación del mencionado cociente por espectrometría gamma, al ser dicha técnica no destructiva.

Palabras claves: Partículas calientes, plutonio, espectrometría gamma, ICP-MS, AMS.

ABSTRACT

In this work the main characteristics of the three measurement techniques used and adjusted in our laboratory for determining the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotopic ratio in hot particles, are exposed. The measurement of this isotopic ratio is of high interest for characterising the origin of the plutonium present in the analyzed hot-particle. Special interest have been given to show the main advantages and limitations of the original method proposed for determining the mentioned ratio by gamma-ray spectrometry, because it is a non destructive technique.

Key Words: hot-particles, plutonium, gamma-ray spectrometry, ICP-MS, AMS

1. Introducción.

Diversos elementos transuránicos se han incorporado al medioambiente desde el comienzo de la era nuclear. Entre ellos, el plutonio es de especial interés debido a su radiotoxicidad y a su complejo comportamiento medioambiental. Hasta la actualidad, la mayor proporción del plutonio incorporado al medio ambiente proviene de la deposición atmosférica global con origen en las pruebas nucleares atmosféricas realizadas principalmente a finales de los años 50 y principio de los años 60 del pasado siglo, aunque cantidades adicionales de este elemento se han incorporado al medioambiente a escala local como consecuencia de accidentes de reactores nucleares civiles, vertidos de plantas de reprocesamiento de combustible nuclear, y pruebas y accidentes involucrando armamento nuclear. En muchas de las áreas contaminadas localmente con plutonio, una fracción significativa de esta contaminación se encuentra en la forma de partículas radiactivas (también denominadas partículas calientes). Estas partículas calientes se pueden definir como agregados de material conteniendo elementos radiactivos en cantidades muy variables y teniendo diámetros mayores que 0.45 μm . Estas partículas se encuentran distribuidas en general de forma heterogénea en la zona contaminada, provocando una distribución inhomogénea de los radionucleidos totalmente diferente de la distribución de contaminación con origen en la contaminación global debida a las pruebas nucleares atmosféricas.

En las partículas calientes conteniendo plutonio, la determinación del cociente isotópico $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ es de particular interés, pues su valor da una información esencial sobre el origen de la contaminación. En este sentido, podemos indicar que el cociente $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (en masas) toma valores que van desde 0.03-0.06 en el material utilizado en el armamento nuclear no explosionado (weapon-grade plutonium) hasta valores iguales o superiores a 0.4 en combustible gastado parcial

o totalmente en reactores nucleares civiles (reactor-grade plutonium). Debido a la dificultad de cuantificar separadamente ^{239}Pu y ^{240}Pu por espectrometría alfa, el cociente isotópico $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ suele ser normalmente determinado aplicando técnicas alternativas.

En este trabajo, resumimos los estudios realizados por nuestro grupo de investigación para la determinación del cociente isotópico $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ en partículas calientes de diverso origen, mediante la aplicación de diferentes técnicas espectrométricas radiométricas y no radiométricas.

2. Materiales y Métodos

Hemos procedido a la determinación del cociente isotópico $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ en partículas calientes aisladas de suelos contaminados de Palomares (España) y Semipalatinsk (Kazajistán), aplicando una técnica radiométrica no destructiva: la espectrometría gamma de alta resolución con detectores de Germanio para bajas energías (low-energy high-resolution gamma spectrometry).. Adicionalmente, en algunas de las partículas calientes el cociente isotópico $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ fue determinado recurriendo a dos técnicas espectrométricas de masas diferentes: Espectrometría de Masas con Acelerador (AMS) y Espectrometría de Masas con Plasma Inductivamente Acoplado (ICP-MS).

2.1 Espectrometría gamma

Hemos desarrollado en nuestro laboratorio un método original para la determinación de las actividades de ^{239}Pu , ^{240}Pu y ^{241}Am en partículas calientes individuales enriquecidas en elementos transuránicos., mediante la técnica de espectrometría gamma de alta resolución [1]. El método se fundamenta en la medida de las emisiones gamma de baja intensidad del ^{240}Pu (45.2 keV) y del ^{239}Pu (51.6 keV), así como de la emisión principal del ^{241}Am (59.2 keV), utilizando para ello un detector planar de germanio de baja energía (LeGe) con una muy alta sensibilidad. La eficiencia de detección se ha determinado recurriendo a un procedimiento semiempírico, mientras que las correcciones por autoabsorción aplicables a cada partícula se realizan a partir de las diferentes emisiones gamma del ^{241}Am (26.34, 33.19, 59.54, and 102.98 keV) presente en ellas.

El detector utilizado es un detector planar de baja energía LEGe tipo-n con ventana de berilio de 0.5 mm de espesor (CANBERRA model GL1015R) situado en el interior de un blindaje de plomo de 10 cm de espesor. El cristal de germanio empleado tiene un espesor de 15 mm y un área activa de 1000 mm², y el preamplificador del sistema se encuentra directamente conectado con un procesador de señal digital, lo que permite conseguir resoluciones (FWHM) de 398 eV a 5.9 keV (^{55}Fe) y 535 eV a 122 keV (^{57}Co). El trabajar con sistemas espectrométricos gamma que permitan la obtención de muy buenas resoluciones en energías es esencial para la aplicación del método propuesto al permitir discriminar emisiones gamma muy cercanas en energías. En este sentido, la emisión de 51.62 keV del ^{239}Pu debe estar separada de los picos de escape del Ge a 48.6 y 49.7 keV, y del pico de backscattering del Am a 48.3 keV, mientras que la emisión de 45.24 keV del ^{240}Pu debe poder discriminarse del fotopico de fondo del ^{210}Pb a 46.5 keV, y de las emisiones de 43.4 and 43.5 keV del ^{241}Am y ^{238}Pu , respectivamente. Los detectores LEGe ofrecen generalmente mejor resolución y sensibilidad que los detectores coaxiales de germanio a bajas energías y son capaces de discriminar las emisiones gamma de interés de los isótopos ^{239}Pu y ^{240}Pu (ver Figura 1).

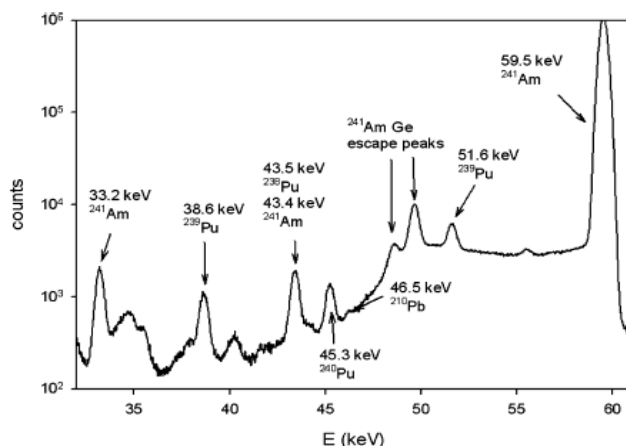


Fig 1.- Espectro correspondiente a una partícula caliente de Palomares mostrando las emisiones gamma de ^{239}Pu , ^{240}Pu y ^{241}Am , así como emisiones gamma interferentes.

Con el objetivo de cuantificar las actividades de ^{239}Pu , ^{240}Pu y ^{241}Am en partículas calientes previamente aisladas, el detector LEGe fue calibrado en energías, resolución y eficiencia. La calibración en energías y resolución se realizó de forma convencional utilizando una fuente puntual certificada con 0.98 ± 0.01 KBq de ^{241}Am mientras que la curva de calibración en eficiencias para el rango de energías de interés se fundamentó en la siguiente expresión:

$$\varepsilon_E = \varepsilon_0 \exp(-\mu_{E,\text{Be}}\delta(\text{Be})) \exp(-\mu_{E,\text{Ge}}\delta(\text{Ge})) \quad (1)$$

donde ε_E es la eficiencia de detección a la energía E , ε^0 es la eficiencia ideal (absorción cero), $\mu_{E,\text{Be}}$, y $\mu_{E,\text{Ge}}$ son los coeficientes de absorción másicos (cm^2/g) para el berilio y germanio, y $\delta(\text{Be})$, $\delta(\text{Ge})$ son los espesores de la ventana de entrada de berilio y de la capa muerta de germanio, respectivamente. Al ser conocido el espesor de la ventana de berilio (datos facilitado por el fabricante), solo dos parámetros ($\delta(\text{Ge})$ and ε^0) deben ser determinados para conocer la expresión semiempírica de la eficiencia. Para ello, se han usado las eficiencias experimentales para los rayos X de $(13.76 + 13.95)$ keV y para la emisión gamma de 26.34 keV gamma-ray, determinadas con la fuente puntual de ^{241}Am . La curva de eficiencias resultante se muestra en la Figura 2, conjuntamente con las eficiencias experimentales obtenidas usando la fuente puntual de ^{241}Am .

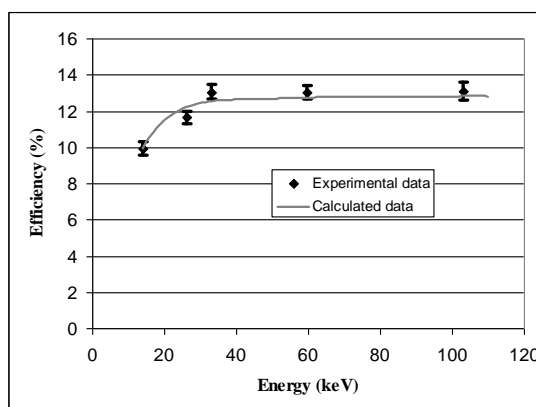


Fig 2.- Eficiencias experimentales obtenidas utilizando la fuente puntual certificada de ²⁴¹Am, y curva de calibración calculada utilizando la ecuación (1)

Teniendo en cuenta las dimensiones de las partículas calientes analizadas (prácticamente equivalentes a geometría puntual), es posible utilizar la curva de calibración en eficiencias obtenida para cuantificar las actividades de ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, and ²⁴¹Am en esas partículas. Las eficiencias para ²³⁹Pu y ²⁴⁰Pu fueron interpoladas a partir de la mencionada curva. Finalmente, y para un cálculo correcto de las actividades de ²³⁹Pu y ²⁴⁰Pu es necesario aplicar correcciones por autoabsorción individuales para cada partícula analizada pues estando fundamentalmente compuestas por elementos de Z alto presentarán diferentes densidades y composición. La magnitud de estas correcciones dependerá además de la energía considerada, y se han determinado para cada partícula usando las diferentes emisiones gamma del ²⁴¹Am contenido en ellas. Concretamente, si la emisión del ²⁴¹Am a 102.98 keV se encuentra presente en el espectro, se selecciona como emisión de referencia (asumiendo que no se ve afectada por autoabsorción), mientras que las emisiones adicionales de 26.34, 33.19, and 59.54 keV del ²⁴¹Am se utilizan para calcular los valores de los factores de corrección por autoabsorción a esas energías mediante la aplicación de la siguiente ecuación:

$$f(E) = (N_E / \varepsilon_E I_E) / (N_{ref} / \varepsilon_{ref} I_{ref}) \quad (2)$$

donde N_E y N_{ref} son las cuentas netas en los fotopicos del ²⁴¹Am correspondientes a la energía E y a la emisión de referencia, I_E y I_{ref} son sus intensidades de emisión, y ε_E y ε_{ref} son sus eficiencias calculadas mediante la aplicación de la ecuación 1. Los valores de f obtenidos para todas las partículas analizadas en este trabajo se encuentran muy cercanos a la unidad para la emisión de 59.54 keV, lo que avala la hipótesis de que la emisión de 102.98 keV no se encuentra afectada por el efecto de autoabsorción. Si la mencionada emisión de 102.98 keV no es observada en el espectro, entonces como primera aproximación se puede seleccionar la emisión de 59.54 keV como emisión de referencia.

Los factores de corrección f calculados para cada partícula individual para las tres emisiones gamma del ²⁴¹Am consideradas (26.34, 33.19, and 59.54 keV) son finalmente ajustadas a una recta, cubriendo ese ajuste un rango de energías en el que se encuentran las emisiones gamma del ²³⁹Pu y del ²⁴⁰Pu. Se escogió un ajuste lineal, siguiendo las deducciones de Debertin [2], que observó que la corrección por atenuación para una fuente delgada ($\mu\delta \ll 1$) es proporcional al coeficiente de absorción. A partir del ajuste los factores de corrección por atenuación para las emisiones gamma del ²³⁹Pu y del ²⁴⁰Pu pueden ser calculados y utilizados para determinar las actividades de estos isótopos en cada partícula analizada.

En el caso de las partículas procedentes de Senipalatsinsk fué necesario aplicar una corrección adicional por la presencia de pequeñas cantidades de ¹⁵²Sm (hijo del producto de fisión ¹⁵²Eu), que

posee una emisión que interfiere con la emisión gamma del ^{240}Pu a 45.24 keV. El número de cuentas debido al ^{152}Sm en el fotopico del ^{240}Pu se estimó a partir del fotopico del ^{152}Eu a 121.78 keV, obviamente teniendo en cuenta sus intensidades relativas y sus eficiencias de recuento, y fueron restadas del área total del fotopico de 45.24 keV con el fin de obtener las cuentas netas de ^{240}Pu . Esta corrección no fue aplicada en las partículas de Palomares, pues éstas no contienen productos de fisión.

La Figura 3 nos muestra los valores experimentales de la actividad mínima detectable (MDA) obtenidos para ^{241}Am , ^{239}Pu , and ^{240}Pu mediante la técnica propuesta: Los valores de MDA han sido determinados siguiendo la formulación de Currie [3]. Es evidente observando dicha figura, que en la práctica la técnica propuesta solo puede ser aplicada para determinar de forma precisa las actividades de ^{239}Pu and ^{240}Pu en partículas calientes, si estas actividades exceden varios bequerelios. Por otra parte es esencial usar unos sistemas espectrométricos gamma de bajo fondo, alta sensibilidad y la mejor resolución en energías, con el fin de minimizar el fondo en la región de interés y obtener fotopicos para ^{239}Pu y ^{240}Pu lo más limpios posibles, con nulas o muy pequeñas interferencias.

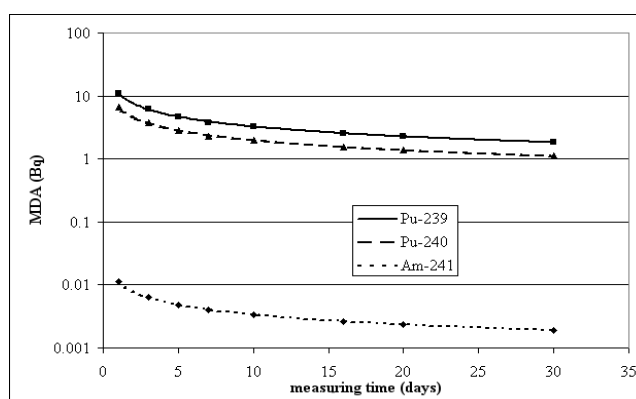


Fig 3.- Actividades mínimas detectables (MDA) de la técnica espectrométrica gamma propuesta para ^{241}Am (59.5 keV), ^{239}Pu y ^{240}Pu calculados utilizando espectros de fondo medidos durante diversos intervalos temporales.

Todos los espectros gamma fueron analizados utilizando el software GENIE 2000 (Canberra Industries Inc., U.S.) con un algoritmo de ajuste no lineal. El uso de este software es esencial para determinar con precisión las áreas de los fotopicos en espectros muy complejos que presentan la superposición de continuos Compton con picos de backscattering, fotopicos del fondo natural y, en algunos casos, fotopicos interferentes de otros radionucleidos presentes en las partículas calientes analizadas.

2.2 ICP-MS

Algunas de las partículas calientes fueron también analizadas utilizando un sistema ICP cuadrupolar (ICPMS, ThermoElemental X7 Series) para la determinación de las actividades de los isótopos de uranio y plutonio [4]. El sistema experimental fue ajustado y optimizado para la medida de isótopos con alta masa, comprobando que la sensibilidad para masas superior a la del ^{235}U era constante. Dicha sensibilidad fue determinada de forma precisa en cada conjunto de medidas, mediante la medida de una muestra de calibración conteniendo ^{238}U . Se confirmó adicionalmente que el tiempo muerto del detector no afectaba la determinación del cociente atómico $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ midiendo un gran conjunto de suelos no contaminados. Para estas muestras naturales obtuvimos un valor medio de 138 ± 1 para el cociente atómico $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$, valor

prácticamente coincidente con el valor esperado de 137.5 ± 0.5 para uranio natural [5]. Adicionalmente, se evaluó la magnitud de la posible interferencia isobárica en la masa 239 debido al conteo de ^{238}UH , midiendo un conjunto de muestras de calibración de ^{238}U que cubrían un amplio rango de concentraciones. Se obtuvieron valores del cociente $^{238}\text{UH}/^{238}\text{U}$ del orden de 10^{-4} en las condiciones de medida finalmente adoptadas.

Para la realización de las medidas mediante ICP-MS, las partículas calientes fueron totalmente digeridas con una mezcla de HNO_3 (65%) y HF (50%) en un horno microondas. Después del proceso de digestión, se comprobó que la disolución de las partículas era total comprobando la uniformidad de la distribución de ^{241}Am (mediante espectrometría gamma) en varias alícuotas de la muestra digerida. La solución resultante de la digestión fue posteriormente reducida en volumen mediante evaporación hasta casi sequedad y acondicionada en un medio apropiado (2% HNO_3) para su posterior medida. Esta etapa de reducción por evaporación y acondicionamiento en 2% HNO_3 se repitió varias veces con el fin de eliminar las trazas de fluoruros que podrían causar problemas en la etapa de medida por la tendencia del Pu y del U a formar fácilmente complejos con F.

Un espectro típico obtenido por ICP-MS en la medida de una partícula caliente de Palomares se muestra en la Figura 4.

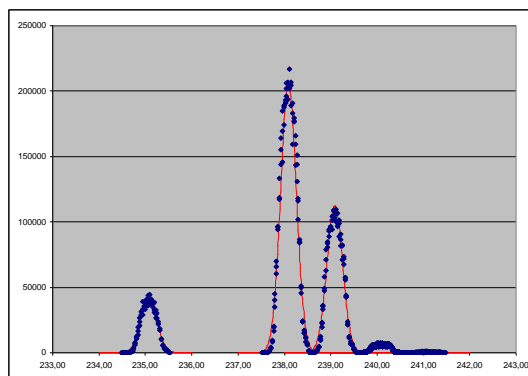


Fig 4.- Espectro de ICP-MS obtenido en la medida de una partícula caliente de Palomares. Se observan los picos correspondientes a ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu y ^{240}Pu .

2.3 Espectrometría de masas con acelerador (AMS)

Para la determinación del cociente isotópico $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ en partículas calientes mediante AMS, las partículas calientes fueron totalmente digeridas con una mezcla de HNO_3 (65%) y HF (50%) en un horno microondas. El plutonio disuelto fue ajustado a Pu(IV) con NaNO_2 en una solución 3 M HNO_3 , fue purificado utilizando una resina cromatográfica TEVA y finalmente acondicionado para la medida, tal y como se describe en [6].

Las medidas de AMS fueron realizadas con el acelerador Tandatron compacto de 1 MV del CNA, Sevilla [7]. Brevemente, indicaremos que los isótopos de interés ^{239}Pu y ^{240}Pu , así como ^{242}Pu (que fue utilizado como isótopo trazador y normalizador en la medida), fueron extraídos de la fuente de iones en la forma de $^x\text{Pu}^{16}\text{O}^-$. Estos aniones fueron descompuestos en la terminal del acelerador trabajando a 670 KV para obtener Pu^{3+} con un rendimiento del 11% y en su etapa final fueron contados en un detector de ionización gaseosa acoplada al acelerador y equipado con una ventana de $\text{Si}_3\text{N}_{3,2}$ de 30 nm de espesor.

Las tres masas (^{239}Pu , ^{240}Pu y ^{242}Pu) fueron inyectadas en el detector de una forma automatizada mediante el ajuste del magneto de baja energía, el voltaje del terminal y el deflector electrostático de alta energía. Los tiempos de contaje en cada ciclo fueron 5 s para el ^{242}Pu , 10 s para el ^{239}Pu , y 20 s para el ^{240}Pu . De media, el tiempo de análisis de cada muestra fue de 20 min.

3.- Resultados y Discusión

En la Tabla 1 se muestran las actividades de ^{239}Pu y ^{240}Pu en dos partículas calientes aisladas en suelos superficiales colectados en Palomares conjuntamente con los correspondientes cocientes $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. El valor medio del cociente $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (en masa) obtenido, 0.055 ± 0.006 , está en excelente acuerdo con el valor medio de 0.056 ± 0.003 obtenido por Mitchell et al. [8] en suelos y sedimentos de Palomares conteniendo partículas calientes y determinados mediante la deconvolución de los espectros alfa medidos tras separación radioquímica. El cociente másico de $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ determinado por espectrometría gamma en las dos partículas calientes de Palomares es por otra parte muy diferentes del esperado si la contaminación tiene su origen en el fallout atmosférico y es claramente indicativo de “weapon-grade” plutonio [9]. Ello es lo esperado dado el origen del plutonio en el área contaminada. Las bombas involucradas en el accidente de Palomares experimentaron únicamente una explosión química convencional tras su impacto en tierra, dispersando el material fisible que contenían en los suelos del entorno.

partícula	^{239}Pu (Bq)	^{240}Pu (Bq)	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ activity ratio	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio
A1-5	38 ± 4	6.9 ± 0.6	0.18 ± 0.03	0.050 ± 0.009
HP3	27 ± 3	5.7 ± 0.9	0.22 ± 0.05	0.059 ± 0.013

Tabla 1.- Actividades de ^{239}Pu y ^{240}Pu y valor del cociente $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ determinados por espectrometría gamma en dos partículas calientes de Palomares.

Una partícula caliente con origen también en el accidente de Palomares fue analizada, tras digestión, por ICP-MS. Los resultados obtenidos en dicho análisis se encuentran recogidos en la Tabla 2. Debido a las concentraciones presentes en la solución analizada fue posible determinar las actividades de ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu y ^{240}Pu con suficiente precisión. Estos resultados muestran la presencia de ^{235}U en cantidades enriquecidas (cociente másico $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ igual a 5.4 ± 0.2) y de altos niveles de “weapon-grade” Pu (23.6 Bq de $^{239+240}\text{Pu}$, cociente másico $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ de 0.063 ± 0.003). Estos resultados son una fuerte evidencia de que las bombas involucradas en el accidente de Palomares contenían también ^{235}U enriquecido.

El cociente $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ determinado en la partícula caliente de palomares por ICP-MS está en excelente acuerdo con los valores obtenidos previamente en otras partículas del mismo origen por espectrometría gamma. Por otra parte el cociente $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ determinado debe tomarse con precaución porque puede estar ligeramente afectado por la presencia de pequeñas cantidades de suelo adheridas a la partícula, y también por la posible presencia de contaminación de ^{238}U , difícil de evitar a los niveles de U que se están midiendo.

^{239}Pu (ng)	^{240}Pu (ng)	^{239}Pu (Bq)	^{240}Pu (Bq)	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio
8.3 0.4	0.53 0.02	19.1 0.9	4.5 0.2	0.063 0.003
^{238}U (ng)	$^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ atom ratio	^{238}U (mBq)		
16.0 0.3	5.4 0.2	0.199 0.003		

Tabla 2.- Actividades de ^{239}Pu , ^{240}Pu y ^{238}U y valor de los cocientes $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ y $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ determinados por espectrometría gamma en una partícula caliente de Palomares.

En la Tabla 3 se compilan los resultados obtenidos para las actividades de ^{239}Pu y ^{240}Pu , y del cociente isotópico $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ en tres partículas calientes aisladas en suelos superficiales de Semipalatinsk (región en Kazajistán donde se realizaron numerosas pruebas nucleares). Los cocientes atómicos medidos de $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, con un valor medio de 0.044 ± 0.006 , fueron consistentes con la presencia de “weapon-grade” plutonio. Como estas partículas calientes fueron colectadas en zonas afectadas por local fallout generado por explosiones nucleares de bajo rendimiento, la presencia de “weapon grade” Pu no es sorprendente. De hecho, un cociente atómico $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ de 0.054 ± 0.003 fue publicado por Jimenez-Nápoles [10] para una muestra de suelo recogida en las cercanías de donde se colectaron las partículas calientes analizadas en este trabajo.

Tabla 3.- Actividades de ^{239}Pu y ^{240}Pu y valor del cociente $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ determinados por espectrometría gamma en tres partículas calientes de Semipalatinsk.

Partícula	^{239}Pu (Bq) AMS	^{240}Pu (Bq) AMS	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio AMS	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio gamma
HK30C	45.2 ± 1.1	7.8 ± 0.3	0.047 ± 0.002	0.040 ± 0.007
Tk14	146 ± 3	26.4 ± 0.6	0.049 ± 0.001	0.041 ± 0.006
Tk13a	83 ± 2	16.1 ± 0.5	0.052 ± 0.002	0.050 ± 0.009

Para confirmar la validez de los cocientes $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ medidos por espectrometría gamma en las partículas calientes de Semipalatinsk, las mismas partículas fueron analizadas por espectrometría de masas con acelerador (AMS) tras su análisis destructivo y separación radioquímica. Como se muestra en la table 4, los resultados obtenidos por AMS estan en excelente acuerdo con los obtenidos previamente por espectrometría gamma con detectores LEGe. Y aunque las incertidumbres en las determinaciones son claramente inferiores por AMS, es necesario recordar que la espectrometría gamma presente una enorme ventaja: es una técnica no destructiva. Obviamente los límites de detección por AMS son varios ordenes de magnitud inferiores a los obtenidos por espectrometría gamma, por lo que podemos considerar la técnica AMS como muy apropiada para estudiar el cociente $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ en partículas calientes que contengan bajas actividades de ambos isótopos.

Tabla 4.- Actividades de ^{239}Pu y ^{240}Pu y valor del cociente $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ determinados por AMS en tres partículas calientes de Semipalatinsk. Por comparación, se muestran también los valores del cociente $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ determinando por espectrometría gamma en las mismas partículas.

Partícula	^{239}Pu (Bq)	^{240}Pu (Bq)	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ activity ratio	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio
HK30C	45 ± 5	6.6 ± 0.7	0.15 ± 0.03	0.040 ± 0.007
Tk14	156 ± 11	24 ± 2	0.15 ± 0.03	0.041 ± 0.006
Tk13a	97 ± 9	18 ± 2	0.18 ± 0.03	0.050 ± 0.009

REFERENCIAS

- [1] M.C. Jiménez-Ramos, S. Hurtado, E. Chamizo, R. García-Tenorio, L. León-Vintró y P.I. Mitchell. ^{239}Pu , ^{240}Pu and ^{241}Am determination in hot particles by low-level gamma-spectrometry. Environmental Science and Technology 2010, 44, 4247-4252.
- [2] K. Debertiin y G. Helmer, *Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*; Elsevier: Amsterdam, 2001.
- [3] L.A. Currie, *Limits for qualitative detection and quantitative determination*. Analytical. Chemistry. 1968, 40, 586-593.
- [4] M.C. Jiménez-Ramos, H. Barros, R. García-Tenorio, M. García-León, I. Vioque y G. Manjón. *On the presence of enriched amounts of ^{235}U in hot particles from the terrestrial area affected by the Palomares accident (Spain)*. Environmental Pollution. 2007, 145 (2), 391-394.

- [5] A. Meinrath, P. Schneider y G. Meinrath. *Uranium ores and depleted uranium in the environment, with a reference to uranium in the biosphere*, Journal of Environmental Radioactivity 2003, 62, 175-193.
- [6] E. Chamizo, M.C. Jiménez-Ramos, L. Wacker, I. Vioque, A. Calleja, M. García-León, y R. García-Tenorio, *The isolation of Pu from environmental samples using ion chromatography for accelerator mass spectrometry and alpha spectrometry*. Analytica Chimica Acta, 2008, 606 239-245.
- [7] E. Chamizo, S.M. Enamorado, M. García-León, M. Suter, L. Wacker, *Plutonium measurements on the 1 MV AMS system at the Centro Nacional de Aceleradores (CNA)*. Nuclear Instruments and Methods, serie B, 2008, 266, 4948-4954
- [8] P.I. Mitchell, L. LeónVintró, H. Dahlgard, C. Gascó y J.A. Sánchez-Cabeza. *Perturbation in the Pu-240/Pu-239 global fallout ratio in local sediments following the nuclear accidents at Thule (Greenland) and Palomares (Spain)*. Science Total Environment. 1997, 202 (1-3), 147-153.
- [9] L.W.Cooper, J.M. Kelly, L.A. Bond, K.A, Orlandini y J.M. Grebmeier. *Sources of the transuranic elements plutonium and neptunium in Arctic marine sediments*. Marine Chemistry 2000, 69 (3-4), 253-256.
- [10] H. Jiménez-Nápoles, L. León Vintró, P.I. Mitchell, A. Omarova, M. Burkitbayev, N. Priest, O. Artemyev y S, Lukashenko. *Source-term characterization and solid speciation of plutonium at the Semipalatinsk NTS, Kazakhstan*. Applied Radiation Isotopes 2004, 61 (2-3), 325-331.