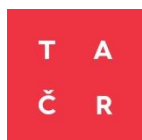


<b>Metodika použití zobrazovací XRF analýzy v kombinaci s APM-SIMS pro stírané vzorky jaderných materiálů</b>	
Schválená metodika	
Centrum výzkumu Řež s.r.o. Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská ČVUT	
Autorský kolektiv	RNDr. Jan Lorinčík, CSc., Mgr. Kristína Sihelská, Ing. Daniela Veselá, Ph.D., Ing. Hana Paterová, Ph.D., Ing. Ivan Elantjev, Ing. Jan Gut, Prof. doc. Ing. Tomáš Trojek, Ph.D., Prof. doc. Tomáš Čechák, CSc., Ing. Pavel Novotný, Ph.D.
Výzkumná aktivita	Projekt TAČR v rámci programu BETA2; kód projektu TITSSUJB315; název projektu Pokročilý proces mapování rozložení uranu ve stíraných vzorcích pro zárukové účely
Účinnost od	7/2025
Interval ověřování schopnosti řešitele používat metodiku	3 roky
Interval ověřování platnosti metodiky	5 let



Program veřejných zakázek v aplikovaném výzkumu a inovacích pro potřeby státní správy BETA2 byl schválen usnesením vlády České republiky č. 278 ze dne 30. 3. 2016 a je zaměřen na podporu aplikovaného výzkumu a inovací pro potřeby orgánů státní správy. Poskytovatelem finančních prostředků je Technologická agentura ČR.

# OBSAH

Metodika použití zobrazovací XRF analýzy v kombinaci s APM-SIMS pro stírané vzorky jaderných materiálů.....	1
1. Cíl metodiky .....	3
2. Popis metodiky .....	3
2.1. Úvod.....	3
2.2. Přístroje, vybavení a materiál.....	4
2.2.1. Přístroje.....	4
2.2.2. Software .....	4
2.2.3. Vybavení, materiál, chemikálie pro extrakci částic.....	4
2.2.4. Další vybavení a materiál.....	5
2.2.5. Legislativní požadavky.....	5
2.3. Přehledová analýza environmentálního stěru pomocí XRF .....	6
2.4. Extrakce uranových částic na podložku pro SIMS s využitím XRF map.....	10
2.4.1. Postup při extrakci částic s využitím XRF map .....	10
2.5. Identifikace zájmových částic JM pomocí APM-SIMS.....	13
2.5.1. Příprava SIMS .....	13
2.5.2. Vložení vzorku.....	14
2.5.3. Hledání zájmových částic JM .....	14
2.6. Izotopová analýza vybraného souboru jednotlivých částic JM pomocí SIMS .....	17
2.6.1. Přesná izotopová analýza jednotlivých částic .....	17
2.6.2. Zpracování experimentálních dat.....	18
2.6.3. Sestavení výsledné tabulky výsledků pro analyzovaný stěr .....	19
2.7. Řízení kvality .....	20
3. Novost postupů .....	20
4. Uplatnění metodiky .....	21
5. Provozování metodiky.....	21
6. Seznam použité související literatury .....	21
7. Seznam publikací, které předcházely metodice.....	22
8. Dedikace.....	22

# 1. Cíl metodiky

Cílem metodiky jsou analýzy stíraných vzorků pro podporu kontrolní činnosti SÚJB a dalších národních a mezinárodních orgánů v oblasti systému jaderných záruk pomocí zdokonalené metody oproti doposud používanému postupu. Tohoto cíle je dosaženo integrací systému rentgenové fluorescenční analýzy (XRF), který poskytne přehledovou informaci o rozložení uranu ve stěru, do měřicí trasy APM-SIMS. Zdokonalení analýz kombinované metody XRF-APM-SIMS je jak kvalitativní – snížení pravděpodobnosti nesprávných výsledků, tak kvantitativní – snížení průměrné doby analýz v porovnání s doposud v České republice používanou metodikou APM-SIMS [1].

## 2. Popis metodiky

### 2.1. Úvod

Analýza stíraných vzorků v režimu charakterizace jednotlivých mikroskopických částic jaderného materiálu (JM) pro zárukové účely představuje multi-instrumentální úlohu, kterou lze rozdělit do tří hlavních kroků:

1. extrakce částic z environmentálních stěrů (ES) a jejich nanesení na podložku křemíku nebo skelného uhlíku,
2. identifikace zájmových částic JM mezi obrovským množstvím nespecifického prachu,
3. prvková nebo izotopová analýza vybraného souboru jednotlivých částic JM.

Popis těchto kroků tak, jak jsou v současné době v České republice používány, je uveden v metodice APM-SIMS [1] obsahující odkazy na mezinárodní odborné články a v českém článku [2].

Při praktickém provádění laboratorních analýz podle [1] nastávají situace, kdy není extrahována žádná částice JM nebo naopak dojde k přesycení podložky, na kterou jsou částice nanášeny. V případě nenalezení částic JM může dojít buď k ukončení analýzy s negativním výsledkem anebo opakování extrakce spolu s časově náročným hledáním částic uranu pomocí SIMS a software APM. V případě přesycení podložky je potřeba vždy opakovat extrakci i hledání zájmových částic. V obou případech dochází k prodlužování celkové doby analýzy.

Pro zlepšení analýzy a zvýšení efektivity, ES mohou být před samotnou extrakcí analyzovány nedestruktivními metodami jako XRF [3] pro ověření přítomnosti a určení místa výskytu zájmových částic na ES. Detekce uranu metodou XRF se provádí na nerozbaleném ES v plastovém uzavíratelném sáčku. Získaná mapa rozložení uranu na povrchu stěru slouží poté jako předloha pro výběr míst odsávání částic ze stěru. To vede ke zvýšení míry spolehlivosti negativního výsledku o nález částice JM nebo k úspoře času, protože není potřeba opakované extrakce. Tento postup však doposud nebyl v České republice dostupný.

Popisovaná metodika je založena na kombinaci metod XRF a APM-SIMS [1] do jedné integrované měřicí trasy a její pracovní název je XRF-APM-SIMS, kde APM-SIMS je zkrácený název pro Hmotnostní spektrometrii sekundárních iontů/Secondary ion mass spektrometry (SIMS) doplněnou softwarem APM (Automated Particle Measurement) pro automatizované měření částic [4].

Metodika XRF-APM-SIMS má 4 hlavní kroky:

1. přehledová analýza environmentálního stěru pomocí XRF,
2. extrakce uranových částic na podložku pro SIMS s využitím XRF map,
3. identifikace zájmových částic JM pomocí APM-SIMS,
4. izotopová analýza vybraného souboru jednotlivých částic JM pomocí SIMS,

kteřé budou dále podrobně popsány v podkapitolách 2.3. – 2.6.

## 2.2. Přístroje, vybavení a materiál

Metodiku XRF-APM-SIMS je z technického hlediska možné provozovat pouze za předpokladu, že pracoviště má k dispozici přístroje, vybavení a materiál specifikované v této kapitole nebo přístroje, vybavení a materiál s obdobnými technickými parametry.

### 2.2.1. Přístroje

- SIMS IMS-7f (Cameca SAS, Francie)
- XRF (prototyp popsáný v [5])

### 2.2.2. Software

- IMS 7FN, (Cameca SAS, Francie), řídicí program SIMS IMS 7f
- APM – 7FX, (Cameca SAS, Francie), automatizované hledání částic pomocí SIMS IMS 7f
- WinCurve, WinImage (Cameca SAS, Francie), zpracování SIMS dat
- Origin (OriginLab Corporation), zpracování vědeckých dat obecně
- SPEKTR (JFJI ČVUT), řídicí program XRF
- MINI-X Controller (Amptek), řídicí program rentgenky
- MATLAB, zpracování spekter a obrazu XRF
- PAINT (Malování), přeškálování obrazu XRF pro tablet
- QuickPic Gallery, zobrazení XRF mapy v tabletu

### 2.2.3. Vybavení, materiál, chemikálie pro extrakci částic

- Laminární box TRIGON PLUS SAFE 2020 (TRIGON PLUS s.r.o.)
- Tablet Samsung Galaxy Tab S9 FE+
- Membránová vývěva
- Silikonové hadičky
- Parafilm
- Jednorázový plastový rukavicový box (glove bag)
- Přívod inertního plynu (Ar, N<sub>2</sub>)
- Vakuový impaktor (model navržený v laboratoři MAAE v Seibersdorfu, Rakousko)

- Křemíková planžeta (wafer) s průměrem 1" (Tab. 1)
- Uhlíková planžeta s průměrem 1" (Tab. 1)
- Malá plastová krabička na uložení planžety
- Plastová pinzeta
- Pipeta 2-20  $\mu$ l + špička
- Kovová a plastová pinzeta
- Rukavice do čistých prostor
- Vlhčené nevláknité utěrky PROSATZásobní roztok vazelíny v *n*-heptanu
- Ethanol
- Drobné laboratorní vybavení

Tabulka 1: Specifikace materiálů planžet vhodných pro analýzu APM-SIMS.

<b>Materiál</b>	Uhlík	Křemík (monokrystal)	Křemík (monokrystal)
<b>Povrch</b>	Sklovitý, vodivý	Vyleštěný, vodivý	Vyleštěný, vodivý
<b>Plocha</b>	průměr 25,2 mm	průměr 25,2 mm	20 mm x 20 mm
<b>Tloušťka</b>	3 mm	0,5 – 3 mm	0,5 – 3 mm
<b>Měrný odpor</b>	<50 $\Omega$ .m	<50 $\Omega$ .m	<50 $\Omega$ .m

#### 2.2.4. Další vybavení a materiál

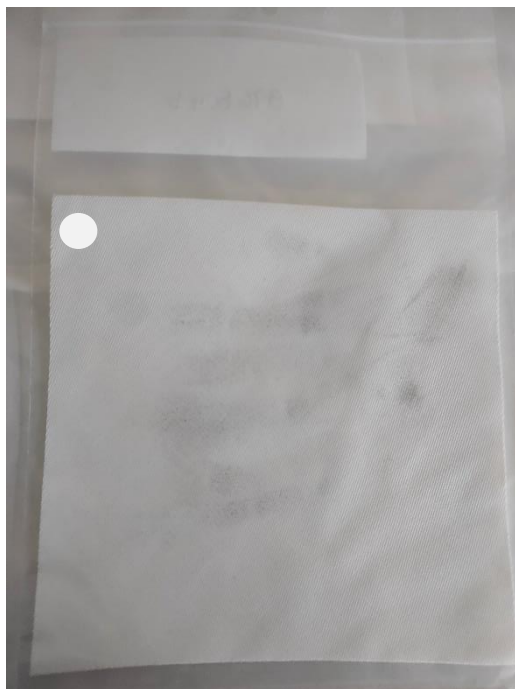
- Referenční stěr pro mapování uranu metodou XRF (CVŘ)
- Držák na vzorky s jedním kruhovým otvorem: 1-okénkový držák (Cameca SAS, Francie)
- Kalibrační mřížka typu MIREAS (mřížky a mikroskopické struktury tantalu na monokrystalu křemíku) v držáku na vzorky s maskou se 4 čtvercovými otvory: 4-okénkový držák (Cameca SAS, Francie)
- Referenční vzorek tvořený uranovými částicemi z certifikovaného standardu CRM 129-A nebo ekvivalentního CRM (NBL Program office, USA) nanesený na křemíkové planžetě a upevněný v 1-okénkovém držáku

#### 2.2.5. Legislativní požadavky

- Povolení regulačního úřadu k nakládání s radiologickými a jadernými materiály

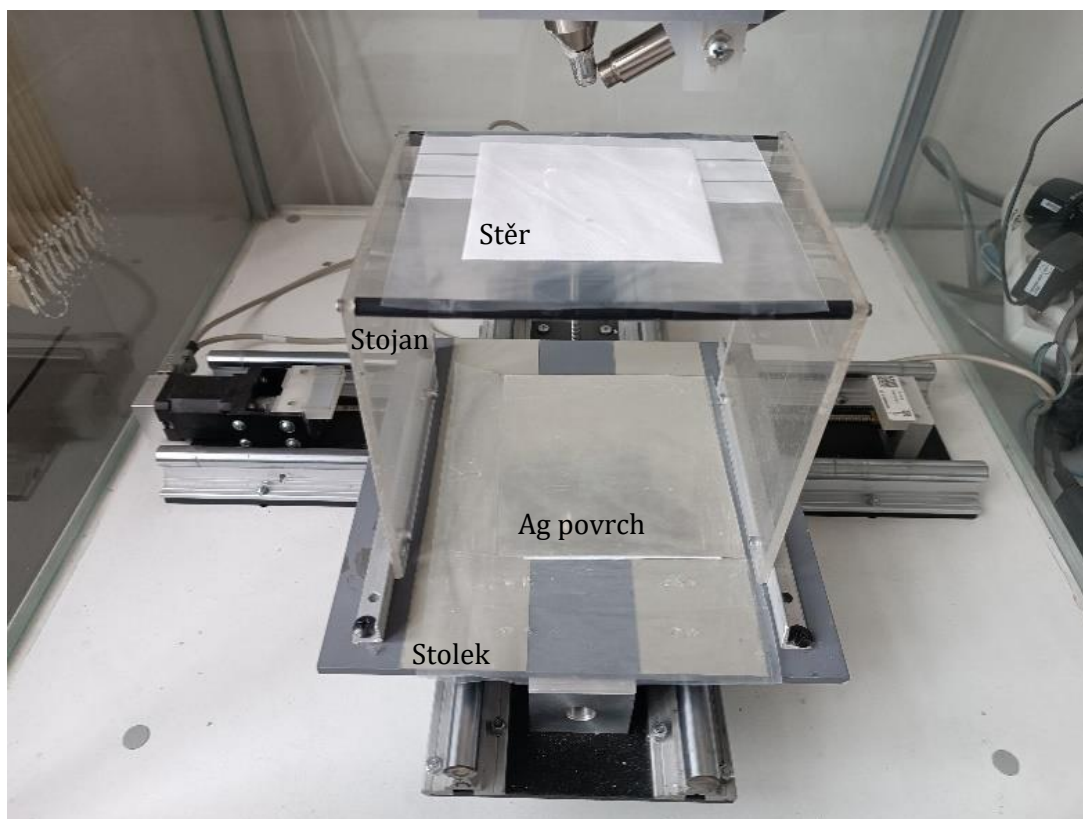
### 2.3. Přehledová analýza environmentálního stěru pomocí XRF

Vzorky jsou přijímány ve formě ES – bavlněné tkaniny o rozměrech 10 cm x 10 cm s obsahem prachových a zájmových částic odebraných z jaderných zařízení. Stěr je uložen a dodáván ve dvojitě uzavíratelném plastovém sáčku (Obr. 1). Uranové částice, pokud jsou ve stěru obsaženy, bývají nehomogenně rozptýleny, přičemž tmavý prach viditelný na stěru nemusí nutně korelovat s výskytem uranových částic. Cílem měření XRF je získat mapu rozložení uranu ve stěru ještě před vyjmutím stěru z přepravního sáčku dle následujícího postupu:



Obr. 1. Environmentální stěr prachu. Blízko levého horního rohu stěru je značka ze zinkové běloby určená k sesouhlasení orientace stěru s jeho XRF obrazem rozložení uranu.

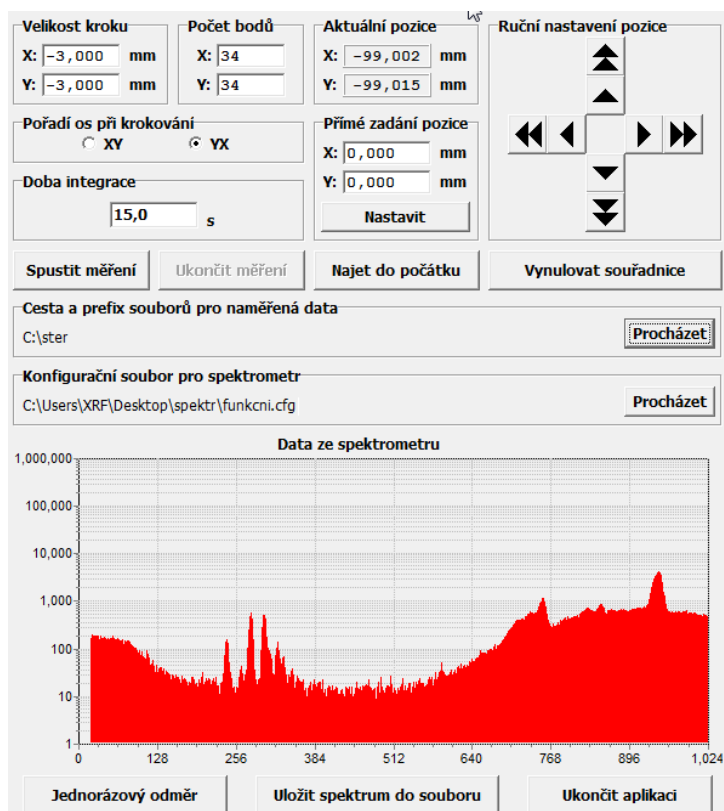
1. Z důvodu sesouhlasení orientace stěru a XRF mapy se pomocí zinkové běloby na vnějším povrchu přepravního sáčku v blízkosti jednoho z rohů textilie udělá značka ve formě kruhové stopy o průměru 0,5 – 1 mm (Obr. 1).
2. Připevnění referenčního stěru (pro kalibraci intenzit signálu XRF) uzavřeného v uzavíratelném plastovém sáčku pomocí izolepy na stojan připevněný k motorizovanému stolku XRF (Obr. 2).
3. Zapnutí aparatury XRF.
4. Připevnění krytu rentgenky s kolimátorem a filtry:  
Průměr použitého kolimátoru: 4 mm,  
Filtry rentgenky s řazením k rentgence: 1 mm hliníku a 0,25 mm cínu.



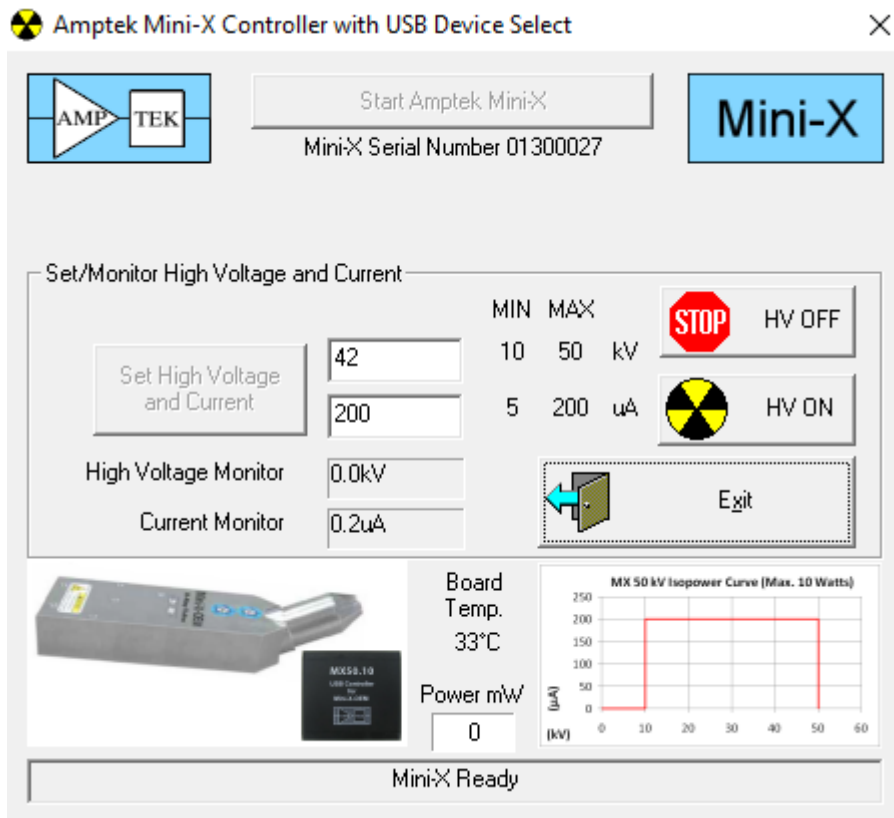
Obr. 2. Stěr připevněný na stojanu, který je umístěný na motorizovaném stolku systému XRF. Vzdálenost mezi stěrem a povrchem stolku ze stříbra pod ním je 17 cm.

5. Nastavení parametrů XRF skenování v programu SPEKTR (Obr. 3):  
Počet skenovaných bodů v ose X a Y: 34 x 34 pro stěr o velikosti 10 cm x 10 cm  
Velikost kroku při skenování: 3 mm v ose X a Y,  
Doba měření jednoho bodu: 15 s - 30 s.
6. Nastavení provozních parametrů rentgenky (Obr. 4):  
Urychlující napětí na rentgence: 42 kV,  
Proud rentgenky: 0,2 mA.
7. Zapnutí rentgenky.
8. Sběr dat z referenčního stěru pomocí programu SPEKTR po stisknutí tlačítka „Spustit měření“; každý pixel XRF mapy rozložení uranu představuje jedno XRF spektrum.
9. Vypnutí rentgenky.
10. Připevnění analyzovaného stěru uzavřeného v uzavíratelném sáčku pomocí izolepy na stojanu připevněném k motorizovanému stolku XRF.
11. Zapnutí rentgenky.
12. Sběr dat z analyzovaného vzorku pomocí programu SPEKTR po stisknutí tlačítka „Spustit měření“; každý pixel XRF mapy rozložení uranu představuje jedno XRF spektrum.
13. Vypnutí rentgenky.
14. Načtení naměřených spekter referenčního i analyzovaného vzorku do programu MATLAB.

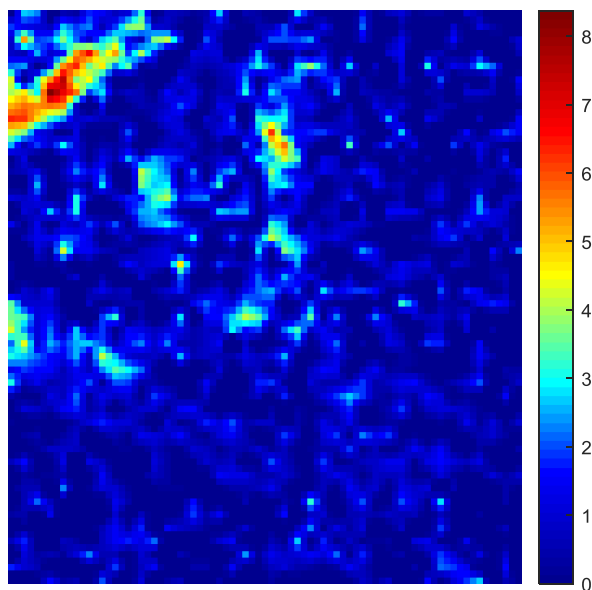
15. Výpočet čistých ploch píků uranu linky L3M5; čistá plocha píku uranu se vypočte jako rozdíl mezi součtem počtu impulsů ve spektru v kanálech v místě píku (rozmezí energií 13,35 keV až 13,85 keV) a součtem počtu impulsů v kanálech pozadí (rozmezí energií 12,80 keV až 13,30 keV).
16. Vykreslení obrazu rozložení uranu; analogický postup lze aplikovat i na případné další prvky přítomné ve stěru nebo v orientačních značkách.
17. Počítačová úprava obrazu.
18. Přeškálování intenzit analyzovaného stěru na koncentrace uranu v  $\text{ng}/\text{mm}^2$  pomocí výsledků měření referenčního stěru; po změření referenčního stěru v místech nanesení známých koncentrací uranu je stanovena citlivost přístroje jako poměr čisté plochy píku ve spektrech naměřených uprostřed místa s uranem a koncentrace uranu v tomto místě. Koncentrace uranu v místě analyzovaného stěru se pak vypočte jako poměr stanovené čisté plochy píku a citlivosti přístroje. V případě různé doby měření jednotlivých míst referenčního a analyzovaného stěru je nutné toto korigovat a převést hodnoty čistých ploch píků na četnosti.
19. Uložení XRF-obrazu rozložení uranu ve formátu JPG, příklad je na Obr. 5.
20. Otevření XRF-mapy uranu v programu Windows Paint, změna pixelové velikosti mapy na 320 pix x 320 pix (v případě jiné velikosti stěru než 10 cm x 10 cm je potřeba počet pixelů adekvátně upravit), otočení mapy nebo vytvoření zrcadlového obrazu původní mapy tak, aby se výsledný obraz shodoval s orientací stěru při extrakci, uložení změněné mapy.
21. Odeslání upravené XRF-mapy na emailovou adresu eima.cvr1@gmail.com, která byla vytvořena za účelem přenosu dat do tabletu používaného pro vizualizaci rozložení uranu na stěru při extrakci částic.



Obr. 3. Ovládací panel programu SPEKTR, který řídí systém XRF.



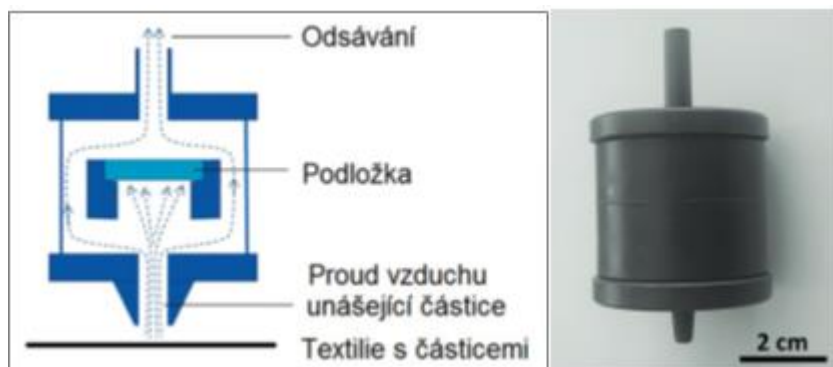
Obr.4. Ovládací panel rentgenového zdroje Mini-X, který je součástí systému XRF.



Obr. 5. XRF mapa rozložení uranu v reálném inspekčním stěru s vysokým obsahem uranu. Barevná škála je v jednotkách  $\text{ng}/\text{mm}^2$ .

## 2.4. Extrakce uranových částic na podložku pro SIMS s využitím XRF map

K extrakci/odsávání částic ze stěrů se používá vakuový impaktor (Obr. 6) – model navržený v laboratoři MAAE v Seibersdorfu (Rakousko). Částice jsou nanášeny na křemíkovou planžetu (alternativně planžetu ze skelného uhlíku) s průměrem 25 mm pokrytou vazelínou, která zajišťuje adhezi částic na planžetě. Planžeta s lepivým povrchem se vkládá do vakuového impaktoru, který je následně připojen k membránové vakuové vývěvě. Proud vzduchu procházející vakuovým impaktorem odsává ze stěru částice, které se zachytí na křemíkovou planžetu umístěnou uvnitř impaktoru. Po extrakci je odstraněna vrstva organického materiálu zahřátím planžety s částicemi na 400 °C. Extrakce probíhá v jednorázovém plastovém rukavicovém boxu. Postup extrakce po jednotlivých krocích je popsán v části 2.4.2.



Obr. 6. a) Nákres řezu impaktorem, (b) Plastový impaktor (jednorázově používaný) [2].

### 2.4.1. Postup při extrakci částic s využitím XRF map

Příprava pracovního místa pro extrakci částic probíhá v dedikované laboratoři mající technické vybavení specifikované v kapitole 2.2. Pracovníci mají nasazené rukavice.

Příprava pracovního místa (probíhá v laboratoři určené k extrakci částic JM):

1. Nejprve je nutné veškeré používané prostory dané laboratoře, vybavení a materiál umýt ethanolem, případně otřít utěrkami PROSAT.
2. Následně se připraví laminární box: obalení topné desky alobalem, podložení topné desky alobalem, vytvoření prostoru pro manipulaci se vzorkem z alobalu.
3. Zkontroluje se funkčnost membránové vývěvy a přívodu inertního plynu.

Příprava zobrazovacího zařízení – tabletu (probíhá na laboratorním stole dedikované laboratoře):

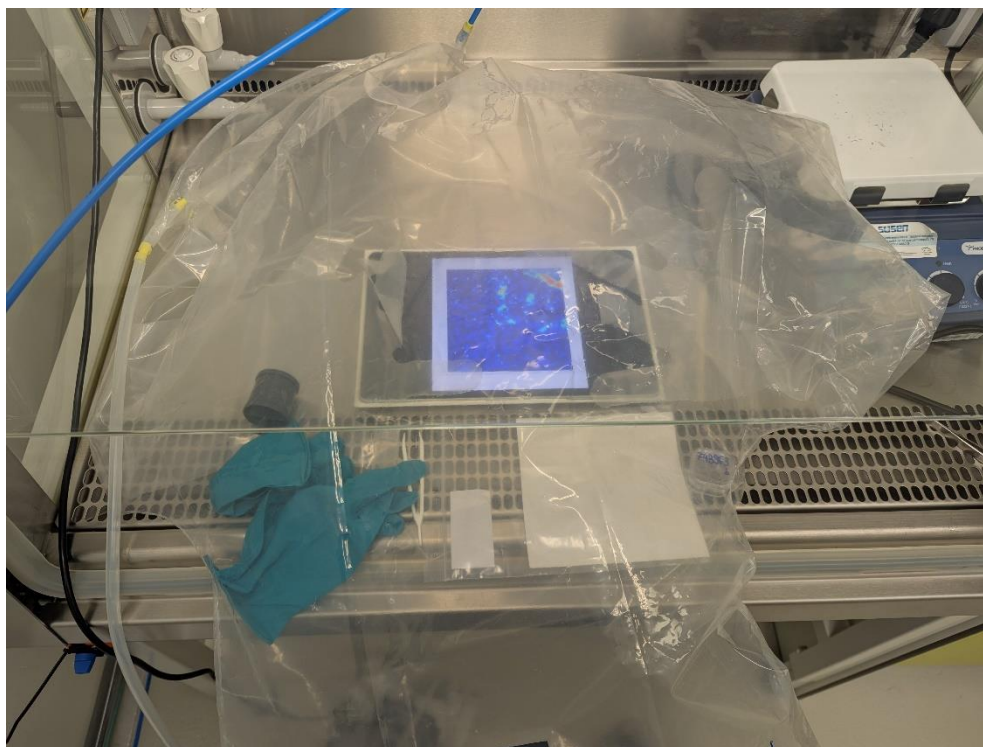
1. Zapnutí a přihlášení se do tabletu určeného pro extrakci částic.
2. Stažení mapy z dohodnuté emailové adresy.
3. Otevření XRF-mapy v program QuickPic Gallery (nachází se v “Home Screen”) nebo programu s podobnými možnostmi (přeškálování velikosti mapy na 320 pix x 320 pix zajišťuje velikost na obrazovce tabletu 10 cm x 10 cm), nastavení jasu na 100 %, deaktivace odezvy obrazovky na dotek.

Příprava planžety – podložky z křemíku pro nanesení částic (probíhá v laminárním boxu):

1. Čistá planžeta se umístí do malé plastové krabičky popsané kódem vzorku.
2. Pomocí pipety se na její povrch nakápně 8-10  $\mu\text{l}$  roztoku vazelíny v *n*-heptanu.
3. Pohybem krabičkou se roztok nechá roztéct po celém povrchu planžety, čímž se na planžetě vytvoří lepivá vrstva pro zachycení nasávaných částic ze stěru.
4. Po odpaření rozpouštědla se krabička uzavře.

Příprava rukavicového boxu a dalších pomůcek (probíhá v laminárním boxu):

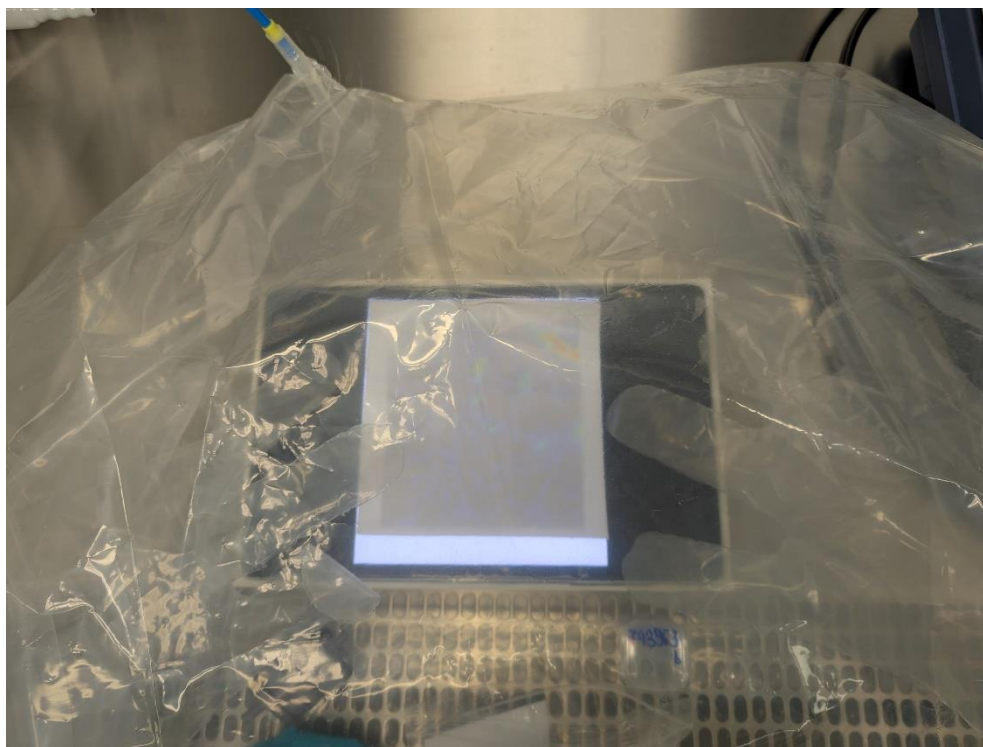
1. Do laminárního boxu se položí jednorázový plastový rukavicový box, do kterého se umístí krátké silikonové hadičky, vakuový impaktor, planžeta v krabičce, plastová pinzeta a jeden pár rukavic do čistých prostor.
2. V k tomu určených místech rukavicového boxu se vystřihnou otvory tak, aby jimi bylo možné prostrčit silikonové hadičky. Po prostrčení hadiček se tyto přilepí k boxu parafilmem tak, aby byly hadičky utěsněné. Vnější konce hadiček se napojí na přírodní hadici inertního plynu argonu nebo dusíku a na hadici nasávající do vývěvy. Spoje se utěsní vrstvou parafilmu.
3. Vloží se vzorek, tj. stěr v uzavíratelném plastovém sáčku.
4. Rukavicový box se uzavře.
5. Zvnějšku se rukavicový box popíše kódem stěru.
6. Pod rukavicový box se vloží tablet se zobrazenou XRF-mapou uranu a na dotek deaktivovanou obrazovkou, viz. Obr. 7.



Obr. 7. Jednorázový plastový rukavicový box položený na tablet, na jehož obrazovce je XRF-mapa rozložení uranu ve zvětšení odpovídající reálné velikosti stěru, resp. oblasti na stěru snímané XRF. Uvnitř rukavicového boxu jsou pomůcky připravené k extrakci částic. Tablet s rukavicovým boxem leží na kovové desce uvnitř laminárního boxu. Vpravo nahoře je topná deska pro odpaření těkavých složek vazelíny a *n*-hexanu nanesených na křemíkovou planžetu.

### Extrakce částic (probíhá uvnitř rukavicového boxu):

1. Pracovník provádějící extrakci částic vloží ruce v rukavicích do rukávů boxu.
2. Rukavicový box se napustí inertním plynem tak, aby bylo možné v něm pohodlně pracovat.
3. Přes rukavice na koncích rukávů boxu se nasadí třetí rukavice (určené do čistých prostor) připravené uvnitř boxu. Je to z důvodu, že rukavice na rukávech boxu jsou mnohem větší než průměrná lidská ruka a tím dochází k jejich přehýbání přes konce prstů a ztížení manipulace s předměty.
4. Odšroubuje se spodní část vakuového impaktoru a na uvnitř umístěné O-kroužky se plastovou pinzetou opatrně umístí předpřipravená planžeta.
5. Zkontroluje se její umístění a vakuový impaktor se uzavře lehkým zašroubováním. Vakuový impaktor nesmí být zašroubován velkou silou, jinak by mohlo dojít k poškození či zlomení křehké planžety.
6. Větší otvor vakuového impaktoru se napojí na nasávací hadičku napojenou na membránovou vývěvu.
7. Pomocí plastové pinzety se vzorek stěru vyjme ze sáčku a umístí na dno rukavicového boxu tak, aby se překrýval s obrázkem XRF-mapy uranu a zároveň měl správnou orientaci, viz. Obr. 8.



Obr. 8. Stěr uvnitř rukavicového boxu sesouhlasený s orientací a polohou XRF-mapy uranu. Rozložení uranu je skrz stěr viditelné i přes intenzivní světelné pozadí, které lze upravit dle potřeby.

8. Po zapnutí vývěvy (nožním spínačem) se vakuovým impaktorem nasají částice ze vzorku z míst, které odhalila XRF-mapa uranu, přičemž je nutné se vyhnout místům s koncentrací uranu větší než přibližně  $5 \text{ ng/mm}^2$ , viz. XRF mapa na Obr. 5. Pro extrakci částic vybereme několik (dle zkušenosti operátora) míst s koncentrací přibližně  $2 - 5 \text{ ng/mm}^2$ . Pokud jsou koncentrace po celé ploše stěru pod přibližně  $2 \text{ ng/mm}^2$ , odsává se celý vzorek.

Pozn.: Pokud by docházelo k příliš rychlému odsávání inertního plynu z rukavicového boxu, je možné nechat mírně otevřený přívod inertního plynu v průběhu nasávání částic.

9. Po vypnutí membránové vývěvy se vzorek plastovou pinzetou vloží zpět do původního sáčku.
10. Vakuový impaktor se odpojí od nasávací hadičky a opatrně se otevře jeho spodní část, kde je umístěná křemíková podložka. Podložka s částicemi se plastovou pinzetou uloží do popsané plastové krabičky.
11. Tato krabička se následně vyjme z rukavicového boxu a ihned pečlivě otře utěrkou PROSAT.
12. Jednorázový rukavicový box se umístí na stranu, aby nedocházelo ke kontaktu s topnou deskou.
13. Topná deska se zapne a nastaví teplota 400 °C. Po dosažení této teploty se kovovou pinzetou umístí planžeta na topnou desku na 10-20 sekund. Před umístěním zpět do krabičky je třeba nechat planžetu vychladnout.
14. Vzniklá planžeta se zaregistruje a vloží do plastové krabičky pro další kroky.

## 2.5. Identifikace zájmových částic JM pomocí APM-SIMS

### 2.5.1. Příprava SIMS

Metodika je určena pro přístroj SIMS typové řady IMS Nf, modelu IMS 7f, kde N znamená číslo modelu, které odpovídá generaci přístroje nebo pro přístroj SIMS o podobných technických parametrech. Podrobná technická specifikace IMS 7f viz. [6]. Následující postup vychází ze schválené metodiky APM-SIMS [1].

1. V závislosti na stavu přístroje IMS 7f je potřeba nejdříve provést obecné nastavení iontového zdroje a sekundární iontové optiky. K tomu je použita kalibrační mřížka typu MIREAS (2.2.2.), režim iontového mikroskopu a postup popsaný v Uživatelském manuálu [7]. Výsledkem je konfigurační soubor měření ISF (Instrument Status File) a nastavený přístroj s optimální stopou primárního iontového svazku na povrchu vzorku (řádově mikrometry pro nejmenší proudy) a s optimální transmisí sekundárních iontů při daném hmotnostním rozlišení. Hlavní experimentální parametry a proudové předvolby jsou uvedeny v tabulce 2.
2. Potom je provedeno měření pozadí, měření výtěžku a optimalizace nastavení elektronového násobiče EM (Electron Multiplier) pro detekci sekundárních iontů, které budou využity pro fázi 2.6. - izotopová analýza.

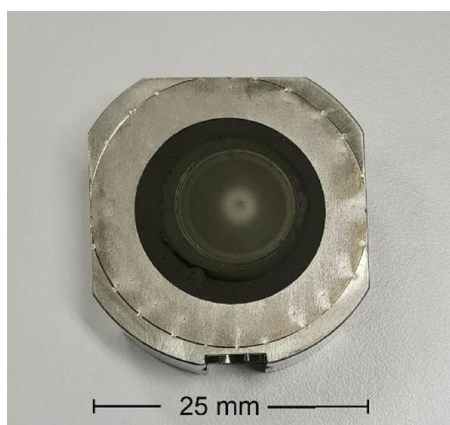
Tabulka 2. Parametry a předvolby nastavení SIMS.

Typ primárního iontu	O <sub>2</sub> <sup>+</sup>
Urychlovací napětí primárních iontů	+15 kV
Extrakční napětí sekundárních iontů	+5 kV
Energie dopadu primárních iontů	10 keV
Vymezení obrazového pole pro sekundární iontovou optiku při aktivovaném dynamickém přenosovém optickém členu (DTOS)	150 μm
Kontrastní clona	400 μm
Polní clona	1800 μm
Nominální hmotnostní rozlišení (50 % výšky píku)	1200*
Energetické okno pro sekundární ionty	50 eV
Proudové předvolby	300nA, 100nA, 25nA, 10nA, 5nA, 1nA, 500pA, 300pA

\*V případě, že XRF analýza objevila ve stěru prvky, které mohou způsobit hmotnostní interference s izotopy uranu, je nutné hmotnostní rozlišení navýšit

### 2.5.2. Vložení vzorku

V laminárním boxu v laboratoři SIMS se planžeta s nanesenými částicemi vyjme z plastové krabičky a vloží do 1-okénkového držáku při dodržování postupu v Uživatelském manuálu [7]. Takto připravený vzorek v držáku (Obr. 9) se vloží do vakuové propusti SIMS a poté do analytické komory SIMS podle postupu v [7].



Obr. 9. Čtvercová planžeta s nanesenými prachovými částicemi v 1-okénkovém držáku pro SIMS [8]. Světlejší místa na tmavém pozadí křemíku odpovídají místům nanesení částic.

### 2.5.3. Hledání zájmových částic JM

Software APM integrovaný s řídicím softwarem SIMS umožňuje provádět dvojrozměrné skenování planžety o průměru 25 mm v relativně krátké době 4 – 6 hodin a získávat iontové obrazy částic obsahujících vybrané izotopy, v případě požadavku pouze na analýzu uranu je to  $^{235}\text{U}$  a  $^{238}\text{U}$ , v případě požadavku na analýzu plutonia nebo plutonia a uranu zároveň je to  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  a ( $^{239}\text{Pu}+^{238}\text{UH}$ ). Vzhledem k tomu, že maximální oblast rastrování iontového svazku je  $500\ \mu\text{m} \times 500\ \mu\text{m}$ , rozdělí APM software analyzovanou oblast planžety na čtvercová pole o velikosti  $500\ \mu\text{m} \times 500\ \mu\text{m}$  nebo menší a přesun mezi těmito poli je realizován motorizovaným mechanickým posunem stolku. APM software obsahuje pokročilé funkce počítačového zpracování obrazu, které umožňují rozlišit v automatickém nebo interaktivním režimu jednotlivé částice od pozadí obrazu. Výsledkem APM analýzy jsou iontové obrazy polí na planžetě a seznam částic s jejich souřadnicemi, intenzitami  $^{235}\text{U}$  a  $^{238}\text{U}$ , velikostmi a dalšími předvolenými parametry. Tato data následně slouží pro výběr jednotlivých mikročástic uranu pro jejich přesnou izotopovou analýzu (viz. kapitola 2.6.). Kritériem pro výběr částic jsou ve většině případů poměr izotopů  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  a intenzita těchto izotopů. V případě požadavku na analýzu plutonia je navíc zkoumán poměr ( $^{239}\text{Pu}+^{238}\text{UH}$ ) /  $^{238}\text{U}$  a pokud je větší než  $\sim 0,1$ , je předpokládána jeho přítomnost.

Kroky APM analýzy:

1. Nastavení softwarového modulu APM a provedení hmotnostní kalibrace s využitím standardu uranových částic podle postupu popsaném v Uživatelském manuálu [7]. Experimentální parametry APM jsou v tabulce 3.

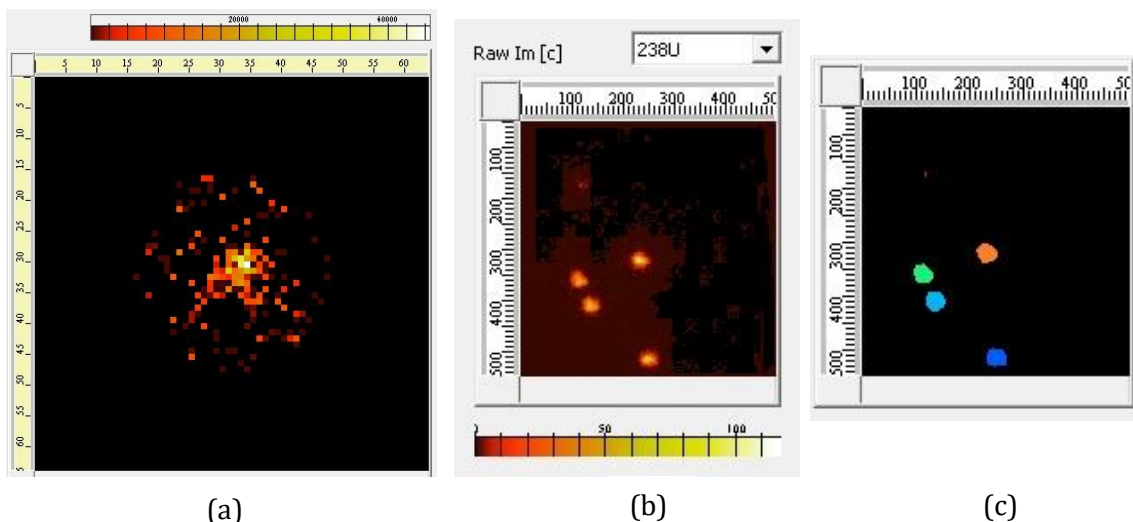
Tabulka 3. Parametry nastavení APM pro hledání uranových částic.

Izotopy v pořadí, v jakém budou měřeny	$^{235}\text{U}^+$ , $^{238}\text{U}^+$ , případně ( $^{239}\text{Pu}^+$ + $^{238}\text{U}^+$ )
Velikost rastru (jednoho pole)	500 $\mu\text{m}$ x 500 $\mu\text{m}$
Primární proud (předvolba)	100nA
Vymezení obrazového pole pro sekundární iontovou optiku při aktivovaném dynamickém přenosovém optickém členu (DTOS)	150 $\mu\text{m}$
Čas záznamu obrazu jednoho pole pro $^{235}\text{U}^+$ , $^{238}\text{U}^+$	12 s, 2 s
Příprava povrchu odprašováním (pre-sputtering)	300 nA, 5 s
Střed analyzované oblasti vůči počátku souřadnic 1-držáku vzorku	[0,0]
Velikost analyzované oblasti: poloměr	8500 $\mu\text{m}$
Krok stolku	500 $\mu\text{m}$
Počet polí	~1100

2. Hledání a identifikace uranových částic na planžetě připravené z environmentálního stěru, který je předmětem analýzy, pomocí softwaru APM. Spuštění modulu APM je popsáno v Uživatelském Manuálu [7]. Výsledkem tohoto kroku je APM-soubor s obrazovými daty z Obr. 10 a,b, která obsahují informaci o intenzitě signálů  $^{235}\text{U}^+$ ,  $^{238}\text{U}^+$  a polohách zatím neidentifikovaných částic.
3. Obrazová analýza iontových obrazů polí spočívající v nalezení hranic částic a jejich odlišení od pozadí, očíslování částic, určení souřadnic středů částic, velikosti částic a prvního odhadu obohacení částic. Pro segmentaci obrazů je použit algoritmus „Auto-threshold“ vyvinutý firmou Cameca, který je součástí modulu APM. Odlišení částic od pozadí je v tomto algoritmu založeno na lokálních maximech obrazu (viz. Obr. 10 b), což ve výsledku znamená, že každé částici a jejímu blízkému okolí jsou iteračním postupem přiřazeny jiné prahy pro segmentaci [9]. Parametry použité v popisované metodice jsou v tabulce 4. Na obrázku 10 c je obraz pole z obrázku 10 b po provedené segmentaci a identifikaci.

Tabulka 4. Parametry pro zpracování obrazových dat APM.

Zvolený typ iontového obrazu pro aplikaci „Auto-threshold“ algoritmu	sumární obraz $^{235}\text{U}^+$ + $^{238}\text{U}^+$
Velikost filtru na vyhlazení obrazu před prahováním	3 x 3
Počet pulzů na jeden pixel definující pozadí	vyšší hodnota ze 7 pixelů nebo 5 % maxima v daném obraze
Minimální počet přilehlých pixelů definující částici	20



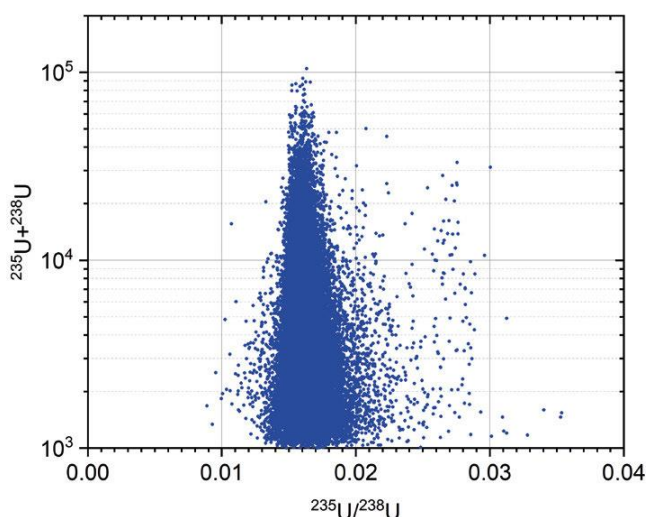
Obr. 10. a) Rozložení  $^{238}\text{U}$  v kruhové analyzované oblasti o poloměru  $8500\ \mu\text{m}$ . Čtvercové body odpovídají jednotlivým polím  $500\ \mu\text{m} \times 500\ \mu\text{m}$  a jejich barevný odstín množství U v daném poli (b) Iontový obraz  $^{238}\text{U}$ + jednoho z polí z (a). (c) Obraz (b) po segmentaci a identifikaci částic [2].

- Sestavení tabulky se seznamem nalezených uranových částic a jejich charakteristik ve formátu Excel® (viz. Tab. 5).

Tabulka 5. Seznam částic a jejich charakteristik.

Číslo částice	Velikost pixel	Indexy pole		Souřadnice pixel		Souřadnice $\mu\text{m}$		Intenzita pulzy/s			Chyba %	Poměr intenzit	Chyba %
		#X	#Y	X	Y	X	Y	$^{235}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}+^{238}\text{U}$			
1	450	12	3	117	90	-1400	5000	1,38E1	3,50E2	3,64E2	1,72	$3,94\text{E}-2$	4,83
2													

- Sestavení rozptylového diagramu obohacení  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  a sumárních intenzit  $^{235}\text{U}+^{238}\text{U}$  částic. Příklad diagramu je na obrázku 11.



Obr. 11. Semilogaritmický rozptylový diagram obohacení a naměřených intenzit signálu izotopů uranu ze stěru uranové palivové pelety. Každý bod reprezentuje jednu částici. Z tohoto diagramu lze usuzovat na přítomnost dvou hlavních populací částic s poměry  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  okolo 0,016 a 0,027 [2].

6. Výběr částic pro přesnou izotopovou analýzu se provede podle obrázku 11. Kritériem výběru je poměr  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  a zároveň intenzita  $^{235}\text{U}$  a  $^{238}\text{U}$
- Pokud je z grafu patrné, že obsahuje populaci částic pouze s jedním obohacením, vyberou se přednostně částice s vyšší intenzitou  $^{235}\text{U}$  a  $^{238}\text{U}$ .
  - Pokud je z grafu podezření na směs více populací s různým obohacením (např. na Obr. 11 je patrná početná populace s obohacením 0,16 % a méně početná s obohacením 0,26 %) vyberou se částice s nejvyšší intenzitou  $^{235}\text{U}$  a  $^{238}\text{U}$  z každé populace.
  - Typický počet částic, který bývá dostatečný pro charakterizaci stíraného vzorku je 10 – 20.

## 2.6. Izotopová analýza vybraného souboru jednotlivých částic JM pomocí SIMS

### 2.6.1. Přesná izotopová analýza jednotlivých částic

Proces měření přesných izotopových poměrů u uranových částic spočívá v zaznamenání signálů izotopů jako funkce doby odprašování. V režimu měření jednotlivých částic se používá primární iontový svazek o proudu řádově 100 pA při rastrování oblasti  $10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$  okolo vybrané částice. Izotopy jsou měřeny sekvenčně v pořadí od nejlehčího izotopu k nejtěžšímu. Proces sekvenčního měření jedné hodnoty pro každý z nastavených izotopů definuje jeden měřicí cyklus. Pro akumulaci dostatečného množství pulzů pro požadovanou nebo přijatelnou přesnost je potřeba 10 – 30 cyklů.

Součástí procesu měření izotopových poměrů u jednotlivých částic je nastavení přístroje SIMS na kalibračním standardu a změření izotopových poměrů u vybrané částice identickým způsobem, jaký je použit pro měření částic ze stěrů o neznámém složení. Data z tohoto měření jsou použita pro opravu na hmotnostní frakcionaci [10], pro kterou se použije standard uranových částic CRM 129-A nebo CRM 030A nebo CRM 010 nebo jejich kombinace nanosená na jedné planžetě. Toto kalibrační měření je nutné provádět ve stejný den před měřením izotopových poměrů jednotlivých částic.

Kroky izotopové analýzy jednotlivých částic:

- Provedení hmotnostní kalibrace s využitím certifikovaného standardu uranových částic, který může být totožný jako u měření APM ve 2.5.3., podle postupu popsáném v Uživatelském manuálu [7] a s nastavením s proudovou předvolbou a rastrem číslo 1 podle tabulky 6.
- Měření kalibračního standardu pro opravu na hmotnostní frakcionaci, které spočívá ve výběru referenční částice ze seznamu příslušného APM-souboru, redukci proudu primárních iontů na 300 pA a zároveň s tím rastru na  $10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ , provedení měření částice v režimu 3D hloubkového profilování. Redukce proudu a rastru je prováděna v 6 krocích podle tabulky 6 s cílem udržet částici ve středu zorného pole a zároveň při tom minimalizovat její odprašování před vlastním měřením. V závislosti na kvalitě obrazu lze některou z předvoleb přeskočit. Postup provedení těchto operací je popsán v Uživatelském manuálu [7].
- Měření vybraných částic stěru se provede identickým postupem jako měření kalibračního standardu z bodu 2.

Tabulka 6. Nastavení SIMS pro přesné měření izotopových poměrů uranu v jednotlivých částicích.

Počet částic pro opravu na hmotnostní frakcionaci	3 - 5
Počet částic pro přesné měření izotopů uranu	10 - 30
Izotopy v pořadí, v jakém budou měřeny a časy snímání dat	$^{234}\text{U}^+$ - 5 s, $^{234}\text{U}^+$ - 2 s, $^{236}\text{U}^+$ - 4 s, $^{238}\text{U}^+$ - 2 s, $^{238}\text{U}^1\text{H}^+$ - 4 s
Posloupnost přepínání proudových předvoleb a velikostí rastru	1. 25 nA, 500 $\mu\text{m}$ x 500 $\mu\text{m}$ 2. 10 nA, 350 $\mu\text{m}$ x 350 $\mu\text{m}$ 3. 5 nA, 100 $\mu\text{m}$ x 100 $\mu\text{m}$ 4. 1 nA, 50 $\mu\text{m}$ x 50 $\mu\text{m}$ 5. 500 pA, 15 $\mu\text{m}$ x 15 $\mu\text{m}$ 6. 300 pA, 10 $\mu\text{m}$ x 10 $\mu\text{m}$
Kondicionování povrchu odprašováním (pre-sputtering)	300 nA, 5 s
Typ, urychlovací napětí energie primárních iontů, extrakční napětí sekundárních iontů, DTOS, clony, energetické okno, hmotnostní rozlišení	viz. tabulka 2

### 2.6.2. Zpracování experimentálních dat

Pro každou částici z bodu 2.6.1. jsou provedeny následující kroky zpracování dat v uvedeném pořadí:

1. Převod 3D profilů na 1D profily pomocí programů WinCurve ® a WinImage ® (Cameca, SAS), přičemž jako oblast 1D profilů je vybrán vnitřek hranice částice, která je vzata v polovině maxima signálu. Výsledkem tohoto kroku je pro každou částici tabulka se sloupci: čas od začátku odprašování, intenzity  $N(^{234}\text{U}^+)$ ,  $N(^{235}\text{U}^+)$ ,  $N(^{236}\text{U}^+)$ ,  $N(^{238}\text{U}^+)$ ,  $N(^{238}\text{U}^1\text{H}^+)$
2. Oprava intenzit na mrtvou dobu  $\tau$ , pozadí EM  $N_{\text{pozadí}}$  a výtěžek EM  $Y_{EM}$  podle vzorce

$$N' = \frac{1}{Y_{EM}} \cdot \frac{(N_{\text{měřeno}} - N_{\text{pozadí}})}{1 - (N_{\text{měřeno}} - N_{\text{pozadí}}) \cdot \tau}$$

kde  $N'$  je opravená intenzita,  $\tau = 27$  ns je nominální hodnota pro instalovaný EM a  $N_{\text{pozadí}}$  a  $Y_{EM}$  byly získané z měření v části 2.5.

3. Oprava intenzit na časový posun detekce izotopů v rámci jednoho cyklu, přičemž jako referenční čas se bere střední hodnota času cyklu a metodou opravy je lineární interpolace pro tři sousední cykly.
4. Oprava intenzity  $N(^{236}\text{U}^+)$  na hmotnostní interferenci s hydridem  $^{235}\text{U}^1\text{H}$  podle vzorce

$$N'(^{236}\text{U}) = N(^{236}\text{U})_{\text{měřeno}} - N(^{235}\text{U}) \cdot \frac{N(^{238}\text{U}^1\text{H})}{N(^{238}\text{U})}$$

5. Vytvoření poměrů intenzit izotopů  $N(^{234}\text{U})/N(^{238}\text{U})$ ,  $N(^{235}\text{U})/N(^{238}\text{U})$ ,  $N(^{236}\text{U})/N(^{238}\text{U})$
6. Výpočet koeficientů hmotnostní frakcionace  $^{234}\alpha$ ,  $^{235}\alpha$ ,  $^{236}\alpha$  z naměřených dat pro 5 částic kalibračního standardu podle vzorců

$$\begin{aligned} \text{a. } ^{234}\alpha &= \frac{N(^{234}\text{U})/N(^{238}\text{U})_{\text{měřeno}}}{N(^{234}\text{U})/N(^{238}\text{U})_{\text{skutečné}}} \\ \text{b. } ^{235}\alpha &= \frac{N(^{235}\text{U})/N(^{238}\text{U})_{\text{měřeno}}}{N(^{235}\text{U})/N(^{238}\text{U})_{\text{skutečné}}} \\ \text{c. } ^{236}\alpha &= \frac{N(^{236}\text{U})/N(^{238}\text{U})_{\text{měřeno}}}{N(^{236}\text{U})/N(^{238}\text{U})_{\text{skutečné}}} \end{aligned}$$

kde v čitateli jsou střední hodnoty poměrů izotopů pro 5 částic změřených v kroku 2.6.1./2 a ve jmenovateli jsou certifikované hodnoty poměrů izotopů.

7. Oprava izotopových poměrů na hmotnostní frakcionaci podle vzorců

- $[N(^{234}\text{U})/N(^{238}\text{U})]^\prime = N(^{234}\text{U})/N(^{238}\text{U})_{\text{měřeno}} \cdot 234\alpha$
- $[N(^{235}\text{U})/N(^{238}\text{U})]^\prime = N(^{235}\text{U})/N(^{238}\text{U})_{\text{měřeno}} \cdot 235\alpha$
- $[N(^{236}\text{U})/N(^{238}\text{U})]^\prime = N(^{236}\text{U})/N(^{238}\text{U})_{\text{měřeno}} \cdot 236\alpha$

8. Pro každou vybranou částici výpočet průměrné hodnoty  $\bar{x}$ , směrodatné odchylky  $\sigma$

$$\bar{x} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i, \quad \sigma = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2},$$

kde  $x_i$  je poměr izotopů v  $i$ -tém cyklu po všech opravách,  $N$  je počet cyklů.

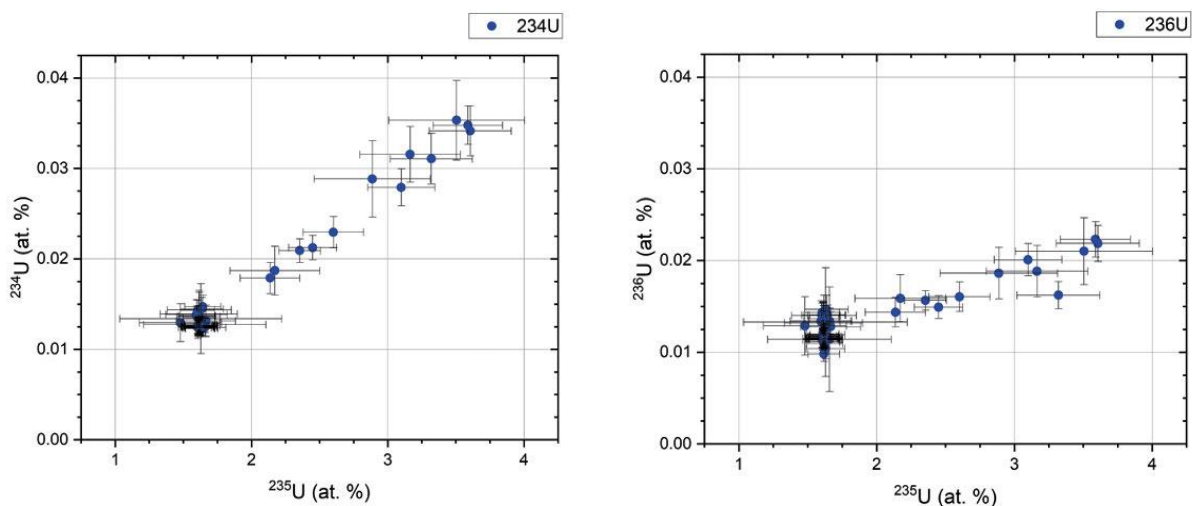
### 2.6.3. Sestavení výsledné tabulky výsledků pro analyzovaný stěr

Pro analyzovaný stěr jsou vytvořeny výsledná tabulka 7 a obrázek 12:

Tabulka 7. Výsledné izotopové poměry.

Datum	Kód stěru/ vzorku	Číslo částice	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ $\bar{x}$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ $\sigma$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ $\bar{x}$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ $\sigma$	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ $\bar{x}$	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ $\sigma$
16-08-2024	24-STER-003	141	0,00034083	0,00000019	0,033902	0,000012	0,00003021	0,00000012

Provede se kontrola, zda jsou v tabulce 7 zastoupeny částice ze všech identifikovaných populací částic z obrázku 11, a zda jsou v obrázku 12 vidět body ležící výrazně mimo hlavní trend. Pokud není seznam částic v tabulce 7 dostatečně reprezentativní pro celou planžetu, připraví se další planžeta ze stejného stěru, provede se nová analýza a tabulka 7 se doplní o další částice. Podobně, v případě bodů ležících mimo hlavní trend, se vyhodnotí na základě dodatečných informací nebo podle předchozích zkušeností s podobnými vzorky, zda se může jednat o indikaci skutečné přítomnosti částice mimo hlavní populace anebo o odchylku způsobenou měřením. V prvním případě se zopakuje měření s novou planžetou.



Obr. 12. Rozptylové diagramy obohacení jaderného materiálu přítomného ve stěru. Body s chybovými úsečkami reprezentují měření jednotlivých částic [2].

## 2.7. Řízení kvality

Pro dodržování systému kvality jsou prováděny následující opatření:

- Před měřením množství uranu ve stěru pomocí XRF je nejdříve změřen referenční stěr pro XRF.
- V případě metody SIMS je před měřením analyzováno 5-6 částic referenčního materiálu. Pokud průměrný výsledek těchto měření je v mezích nejistoty odpovídající certifikované hodnotě daného materiálu, přistoupí se k měření částic stěru. V opačném případě je provedena oprava postupu a měření referenčního materiálu opakováno, dokud postup a jeho provedení nesplňuje požadované parametry. Výsledky měření referenčního materiálu jsou zaznamenány v časovém kontrolním diagramu.
- Jednou za tři měsíce se provede čištění iontového zdroje DUO a elektrody imerzní čočky, která je nejvíce vystavená kontaminaci z předchozích měření.
- Před každou sérií vzorků je analyzován slepý vzorek, který je tvořen čistou planžetou, která projde totožnou procedurou jako vzorky. Jestliže jsou na slepém vzorku nalezeny částice obsahující uran (nebo jiné s měřením interferující prvky), je provedeno čištění analytické komory přístroje a dalších použitých pomůcek či laboratorních prostor, kde probíhala příprava planžet. Následně je analyzován nový slepý vzorek.
- Pro zamezení křížové kontaminace mezi jednotlivými vzorky či standardy, jsou tyto udržovány jednotlivě zabaleny v popsaných plastových krabičkách. Mezi jednotlivými vzorky jsou vždy vyčištěny používané pomůcky a pracovní prostory. Kritická operace extrakce částic ze stěru probíhá v jednorázových rukavicových boxech.

## 3. Novost postupů

V národním měřítku je popisovaná metodika nová v propojení metod XRF a APM-SIMS do jedné měřicí trasy o názvu XRF-APM-SIMS pro laboratorní analýzy stíraných vzorků pro jaderně-zárukové účely. Oproti doposud používané metodice APM-SIMS [1] je nová metoda rychlejší a efektivnější. Její zrychlení spočívá v tom, že znalost rozložení uranu ve stěru získaná pomocí XRF umožňuje provést krok extrakce a hledání částic uranu na první pokus. U doposud používané metodiky (bez XRF) musela být extrakce a hledání částic uranu opakovány v případech, kdy stěr obsahoval vysokou koncentraci uranových částic anebo naopak velmi nízkou koncentraci uranu silně nehomogenně rozloženého po ploše stěru. Jedno opakování extrakce a hledání částic uranu trvá 2 – 3 dny. Pokud předpokládáme dobu trvání kroku XRF 1 den, je časová úspora získaná vůči dřívější metodě 1 – 2 dny na jeden „problémový“ stěr. Zvýšení efektivnosti spočívá ve zvýšení pravděpodobnosti nalezení uranových částic v různých kategoriích obohacení, zejména v kategoriích LEU, HALEU, HEU, které jsou primárním cílem jaderně zárukových inspekcí.

V mezinárodním měřítku spočívá novost metodiky v efektivnějším způsobu využití informace z XRF měření o rozložení uranu ve stěru pro další návazné kroky měřicí trasy. V popisované metodice je XRF mapa uranu promítána pomocí tabletu skrz průsvitnou stěnu rukavicového boxu a skrz vlastní stěr tak, že umožňuje provést extrakci částic s velkou prostorovou přesností. Běžný způsob v zahraničí je vytisknutí XRF mapy na papír, položení této papírové předlohy vedle rukavicového boxu, což vede k méně přesné extrakci než v popisované metodice.

## 4. Uplatnění metodiky

Výše uvedená metodika je určena pro podporu:

- orgánů státní správy v oblasti inspekční a kontrolní činnosti, zejména pro monitorování smlouvy o nešíření jaderných zbraní,
- orgánů činných v jaderně-forenzním vyšetřování,
- státních nebo soukromých organizací pro kontrolu kontaminace jadernými materiály, a to jak z pohledu zatížení životního prostředí, tak z pohledu monitorování pracovního prostředí,
- státních nebo soukromých organizací pro verifikaci deklarovaných parametrů dodávek obsahujících jaderné materiály.

## 5. Provozování metodiky

- Metodika (XRF-APM-SIMS) je určena pro pracoviště vybavené přístroji, vybavením a materiálem specifikovanými v podkapitole 2.2. nebo přístroji, vybavením a materiálem s obdobnými technickými parametry.
- Pracoviště musí splňovat legislativní požadavky dle zákona č. 263/2016 Sb. (atomový zákon).

## 6. Seznam použité související literatury

[1] J. Lorinčík, K. Sihelská, K. Řezanková, I. Elantjev, „Stanovení izotopů uranu v environmentálních stěrech pomocí metody APM SIMS“, 2020, schválená metodika SÚJB.

[2] J. Lorinčík, K. Sihelská, K. Řezanková, I. Elantjev, Analýza mikroskopických částic obsahujících uran nebo plutonium pro posílení inspekční činnosti a systému mezinárodních záruk, jaderná energie, 1(66) 2020, 55 – 61.

[3] K.T. Han , H.J. Jeong , J.H. Yoon, J.Y. Choi , H. Seo, and G.H. Ahn, Screening Uranium Swipe Samples using the MMXRF, Transaction of the Korean Nuclear Society Virtual Spring Meeting, Jeju, Korea, May 7-8, 2015, pp.1-2.

[4] P. Peres, P. M. L. Hedberg, S. Walton, N. Montgomery, J. B. Cliff, F. Rabemananjara, M. Schuhmacher, Surface and Interface Analysis, 2012, 45(1), 561–565.

[5] T. Trojek, T. Čechák, P. Novotý, J. Lorinčík, K. Sihelská, D. Veselá, H. Paterová, I. Elantjev, J. Gut, TAČR BETA2. Projekt TITSSUJB315. Výsledek O - Měřicí setup pro zobrazovací XRF analýzu v kombinaci s APM-SIMS u stíraných vzorků jaderných materiálů.

[6] IMS 7f, Product Brochure (Cameca SAS, Francie).

[7] Cameca IMS 7f software users guide (Cameca SAS, Francie).

[8] J. Lorincik, K. Sihelska., D. Vesela. *et al.* Participation of Czech laboratories in isotopic, structural, and elemental characterization of uranium nuclear forensic samples within the 7th collaborative material exercise. *J Radioanal Nucl Chem* **333**, 3675–3684 (2024).

[9] P. Peres, P. M. L. Hedberg, F. Rabemananjara, J. B. Cliff, S. Littmann, N. Albert, C. Vincent, Proceedings of the European safeguards research and development association, 2011.

[10] Hmotnostní frakcionace je odchýlení původního poměru izotopů ve vzorku v důsledku měřicího procesu. Jev odprašování a ionizace, který je fyzikálním principem metody SIMS, vede k ovlivnění izotopových poměrů, kdy iont lehčího izotopu je emitován ze vzorku s mírně odlišnou pravděpodobností než iont těžšího izotopu. Další narušení původního poměru izotopů ve vzorku může dojít i při dopadu sekundárního iontu na detektor, kdy lehčí izotop je detegován s jinou účinností než těžší izotop. Pro přesnou izotopovou analýzu, která je pro uranové částice požadována, je nutné naměřená data na hmotnostní frakcionaci opravit.

## **7. Seznam publikací, které předcházely metodice**

Dokument [1] z předchozí kapitoly a publikace v něm uvedené.

## **8. Dedikace**

Vývoj metodiky byl podpořen projektem č. TITSSUJB315 programu TAČR BETA2.

Některé výsledky v rámci vývoji metodiky byly získány s využitím infrastruktury CICRR, která je finančně podporována MŠMT – projekt LM2023041.

[poslední strana]