

STANOVENÍ ²³⁶U URYCHLOVAČOVOU HMOTNOSTNÍ SPEKTROMETRIÍ A JEHO VYUŽITÍ

Tomáš Prášek, Mojmír Němec a Kateřina Fenclová

Katedra jaderné chemie, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, ČVUT v Praze, Břehová 7, 115 19 Praha 1, Česká republika tomas.prasek@fifi.cvut.cz

iomas.prasek@jjji.cvui.cz

Došlo 27.10.22, přijato 24.11.22.

Vzhledem ke svým specifickým vlastnostem, zejména téměř výhradně antropogennímu původu a značně konzervativnímu chemickému chování v životním prostředí, je izotop uranu ²³⁶U mimořádně vhodným stopovačem jak lidské jaderné činnosti, tak i přírodních procesů. Jakožto analytický nástroj nalézá uplatnění zejména v oblastech jaderné bezpečnosti s přesahem do forenzních analýz a oceánografie, kde je využíván především k mapování hlubokomořského proudění. Tento článek poskytuje stručný souhrn vlastností ²³⁶U, jeho analytických aplikací a problematiky stanovení prostřednictvím urychlovačové hmotnostní spektrometrie, včetně postupu přípravy vzorků a vlivu výsledné chemické matrice na vlastní instrumentální stanovení.

Klíčová slova: urychlovačová hmotnostní spektrometrie, accelerator mass spectrometry, AMS, ²³⁶U, jaderná bezpečnost, oceánografie, terčové materiály

Obsah

- 1. Úvod
- 2. Vlastnosti 236U
- 3. Příprava vzorků pro AMS analýzu
- 4. Terčové matrice pro AMS stanovení 236U

1. Úvod

Urychlovačová hmotnostní spektrometrie (Accelerator Mass Spectrometry, AMS) je technikou dominantně využívanou ke stanovení 14C pro účely radiouhlíkového datování. Obecný popis a základní principy metody jsou blíže popsány v úvodním článku tohoto čísla²⁹ Významnou roli však hraje rovněž na poli jaderné bezpečnosti, záruk o nešíření jaderných zbraní a s nimi spojených forenzních analýz. K těmto účelům jsou perspektivní zejména stanovení specifických izotopů U, Pu, Am, případně dalších aktinoidů, jejichž izotopové poměry jsou charakteristické pro daný typ zdroje radioaktivní kontaminace a slouží jako tzv. izotopové otisky (isotopic fingerprints). Kromě sledování šíření radioaktivní kontaminace v daném prostředí na základě gradientu izotopových poměrů v důsledku migrace a izotopového zřeďování konkrétního nuklidu také umožňují poměrně přesně charakterizovat její zdroj. Analýzou zjištěného souboru izotopických poměrů lze rozlišit nejen radionuklidy z přírodních a antropogenních zdrojů, ale i jednotlivé antropogenní zdroje mezi sebou, především pak radioaktivní spad v důsledku atmosférických testů jaderných zbraní a civilní zdroje z oblasti jaderné energetiky, včetně jejich typového určení.

K analytickým účelům je mezi aktinoidy nejčastěji využíván izotop uranu ²³⁶U, jenž se v posledních letech stal vysoce užitečným izotopovým stopovačem1-5 nejen pro lidskou jadernou činnost, ale rovněž pro studium některých přírodních procesů, zejména v oblasti oceánografie. Uplatnění v tomto směru nalézá především při mapování mořských proudů a mísení vodních mas jako náhradní nebo komplementární indikátor ke standardně využívaným stopovačům ¹³⁷Cs či ¹²⁹I (cit.⁶⁻⁸). Výhoda jeho využití spočívá v chemicky značně konzervativním chování uranu jakožto prvku v prostředí mořské vody, kde se vyskytuje převážně v mobilní formě uranylového iontu $(UO_2)^{2+1}$ (cit.³) a jeho rozpustných komplexů s uhličitany a fosforečnany^{9,10}. Poměrně unikátní vlastností je rovněž zabudovávání uranu substitucí za vápník na úrovni 2-4 ppm do aragonitového skeletu korálů, jejichž každoroční přírůstky tak hrají roli spolehlivého geologického archivu koncentrace ²³⁶U v dané oblasti, podobně jako letokruhy stromů v případě ¹⁴C (cit.⁹). Charakteristickým aspektem jsou rovněž cesty, jimiž se ²³⁶U dostává do životního prostředí. Kromě dominantního globálního spadu v druhé polovině 20. století se v dnešní době jedná zejména o provozní emise ze závodů pro přepracování vyhořelého paliva, v rámci Evropy především o provozy v britském Sellafieldu či francouzském La Hague. Potenciální využití zahrnuje rovněž stanovení integrálních neutronových toků v dlouhodobých časových horizontech do 108 let v horninách pro

Chem. Listy 117, 122–127 (2023)

https://doi.org/10.54779/chl20230122

geofyzikální aplikace, například studium problematiky přírodních štěpných reaktorů¹¹.

2. Vlastnosti ²³⁶U

Z hlediska jaderně fyzikálních vlastností se jedná o zářič alfa bez významného doprovodného gama záření, s poměrně dlouhým poločasem přeměny $2,342 \cdot 10^7$ let. Pravděpodobnost spontánního štěpení dosahuje pouhých $9,4 \cdot 10^{-8}$ % (cit.¹²). Důvody, proč je tento radionuklid mimořádně vhodným analytickým nástrojem, se pak přímo odvíjí od způsobu jeho vzniku, kde dominantním reakčním kanálem je záchyt neutronu ²³⁵U(n, γ)²³⁶U s účinným průřezem pohybujícím se pro tepelné neutrony s energií 0,025 eV kolem 98,7 barn (10^{-28} m²), tedy na hodnotách přibližně šestkrát nižších, než odpovídá štěpné reakci ²³⁵U (n, f), 585 barn (cit.¹²). Podstatná je rovněž reakce ²³⁸U (n, 3n)²³⁶U s rychlými neutrony, jejíž účinný průřez činí 0,6-0,9 barn v rozmezí energií 15-20 MeV (cit.¹³). V menší míře přispívá k produkci ²³⁶U rovněž alfa rozpad mateřského jádra ²⁴⁰Pu.

Z uvedených reakcí je patrné, že se vznik 236U odvíjí převážně od dvou faktorů, jimiž jsou celkové množství, resp. koncentrace terčových izotopů uranu, včetně vzájem-ného poměru izotopů ²³⁵U a ²³⁸U, a hodnota neutronového toku v daném místě společně s jeho energetickým profilem. Jedná se téměř výhradně o antropogenní radionuklid, vznikající zejména při provozu jaderných štěpných reaktorů či testech jaderných zbraní. Pro ilustraci, v ozářeném jaderném palivu lehkovodních tlakových reaktorů (PWR) s 3% obohacením ²³⁵U činí zastoupení ²³⁶U po tříletém cyklu téměř 0,4 % (cit.¹⁴). Produkce přírodního ²³⁶U je v celkovém měřítku zanedbatelná a většinově se omezuje na ložiska uranových rud, přičemž zdrojem neutronů jsou v těchto případech reakce (α , n) na lehkých jádrech Be, Na, Mg společně se spontánním štěpením ²³⁸U a indukova-ným štěpením ²³⁵U a ve svrchních vrstvách rovněž reakce s kosmickým zářením. Odhad globálního množství přírodního 236U z roku 2008 činil přibližně 34 kg, naproti tomu množství 236U z umělé produkce přesahovalo 106 kg (cit.¹⁵). I nepatrné emise z antropogenních zdrojů do životního prostředí tak vedou k velmi významným změnám izotopového poměru ²³⁶U/²³⁸U. Vzhledem k výše uvedeným vlastnostem je k analytickým účelům až na výjimky využíván právě antropogenní ²³⁶U, a to buď individuálně, nebo v rámci multiizotopových analýz spočívajících ve stanovení dvou a více izotopových stopovačů v témže vzorku, přičemž k analytickým účelům jsou využívány jak individuální hodnoty koncentrace jednotlivých nuklidů, tak i jejich vzájemný poměr. Cílem těchto měření je zpravidla bližší identifikace zdroje emise, případně též stanovení koncentračních gradientů za účelem mapování jejího transportu, či v případě pevných vzorků eroze a transportu sedimentů. Dosavadní měření zahrnovala využití společně $s^{129}I_{(cit.^{16})}$, $^{233}U_{(cit.^{1})}$, $^{237}Np_{(cit.^{17})}$, $^{239,240,241}Pu$ (cit.^{5,18,19}), a to převážně ve vzorcích mořských vod.

3. Příprava vzorků pro AMS analýzu

Přes značnou citlivost metody AMS je pro většinu analýz přírodních vzorků, obzvláště blíží-li se koncentrace analytu hodnotám přírodního pozadí, třeba odebrat značné množství výchozího materiálu, z nějž je nutné analyt účinně separovat a zároveň jej zakoncentrovat. To platí obecně pro všechny typy vzorků, kritický je však tento požadavek především pro vzorky mořské vody, v nichž se vlivem značného zředění kombinuje zpravidla velmi nízká celková koncentrace uranu s nízkými hodnotami poměru ²³⁶U/²³⁸U, jež se typicky pohybují v řádech 10⁻⁹ až 10⁻¹⁴. Pro každé stanovení při využití současných standardních metod přípravy vzorků je nutné odebrat objem vody pohybující se zpravidla v rozmezí 10–40 litrů. Komplikace spojené s manipulací a zpracováním objemných vzorků



Obr. 1. Schéma postupu separace pro paralelní stanovení ²³⁶U, ²³⁷Np, ²³⁹Pu a ²⁴⁰Pu v mořské vodě prostřednictvím AMS, společně s přibližnou časovou osou, převzato a upraveno z cit.⁴

jsou důvodem k vývoji účinnějších postupů měření a přípravy vzorků, jež by umožnily tato množství redukovat. S dostupnou účinností měření pak souvisí rovněž dosažitelné hodnoty meze detekce, jež hrají významnou roli při analýze materiálů významně neovlivněných antropogenními emisemi, v nichž se hodnota izotopového poměru ²³⁶U/²³⁸U může pohybovat až v řádech 10⁻¹³ a nižších.

Pro účely stanovení ²³⁶U prostřednictvím AMS, vzhledem k principům, jichž tato analytická technika využívá a analogicky k ostatním stanovovaným stopovým nuklidům, je nutné jej převést z výchozího odebraného materiálu do podoby pevného vzorku o hmotnosti standardně několika miligramů, jenž je lisován do terčové katody. Nepříliš častými výjimkami jsou v tomto směru přímá měření odebraných materiálů v případech relativně vysokých koncentrací analytu, kombinovaných s dostatečně efektivním převedením do formy analyzovaných iontů. Tímto způsobem lze měřit kupříkladu vzorky bohatých uranových rud na bázi smolince. Metody separace a zkoncentrování uranu jsou často poměrně komplexní a mohou se podstatně lišit jak v závislosti na druhu vzorku, tak i aplikaci, pro niž je stanovení prováděno. Ilustrační schéma separačního postupu pro paralelní stanovení 236 U, 237 Np, 239 Pu a 240 Pu v mořské vodě je uvedeno na obr. 1. Většina metod v různých obměnách zahrnuje některé pro tento účel ověřené postupy, mezi něž se řadí zejména spolusrážení s neizotopickými nosiči a iontová nebo extrakční chromatografie. Ve všech případech je třeba brát ohled jak na požadované složení výsledné matrice, tak i na míru různých druhů kontaminace, jež do systému vnáší postup přípravy. Pro stanovení účinnosti použitých chemických separačních procesů se často využívají izotopové stopovače, v případě stanovení ²³⁶U zejména izotop ²³³U (cit.²³).

Výchozí kroky, obecně zahrnující mechanické úpravy

a případné převedení do roztoku, se liší zejména v závislosti na skupenství odebraného vzorku. V případě stanovení ²³⁶U v pevných látkách pak zahrnují oddělení analyzované části vzorku, např. sedimentu, od dalších materiálů (biota aj.). Následuje úprava zrnitosti a většinou kyselé loužení uranu do roztoku. Častěji analyzované vodné vzorky ze své podstaty obdobný proces nevyžadují. Prvotní operace se tak omezují na filtraci mechanických nečistot, jíž zpravidla předchází okyselení za účelem desorpce analytu z povrchů nádob a suspendovaných pevných částic a jeho převedení na rozpustné formy. Další kroky spočívají v zakoncentrování obsaženého uranu do menšího objemu, vzájemnou separaci od dalších stanovovaných či interferujících prvků a přípravu vlastního terčového materiálu. Pro vzorky o velmi velkém objemu (20 a více litrů) je zpravidla nutné před dalšími separačními kroky částečné odpaření.

Jednou z nejvíce využívaných metod zkoncentrování uranu z velkých objemů je jeho spolusrážení s hydroxidy železa. Tato technika spočívá v přidání rozpustné formy železa, nejčastěji chloridu železitého (FeCl₃) jako kyselého roztoku železitých iontů do předem upraveného vzorku v návaznosti na výše zmíněné kroky. Vodným roztokem amoniaku je následně upraveno pH z kyselé oblasti na hodnotu 8-10, při níž vzniká sraženina hydroxidu železitého, případně v redukčním prostředí hydroxidu železnatého. K efektivní separaci uranu z roztoku, s výtěžkem mezi 80-100 %, postačuje množství železa v řádu několika jednotek až desítek miligramů na litr roztoku. Po kontaktu s roztokem po dobu přibližně 3 hodin za současného míchání je vzniklá sraženina oddělena a následně rozpuštěna, nejčastěji v kyselině chlorovodíkové, pro další zpracování⁴. Analogický postup lze použít rovněž přímo k přípravě terčových matric. Kromě železa je možné ke zkoncentro-



Obr. 2. Závislost sorpce vybraných aktinoidů na koncentraci kyseliny dusičné a chlorovodíkové pro extrakčně chromatografické materiály TEVA[®] (vlevo) a UTEVA[®] (vpravo), rozpětí teplot 23–25 °C, převzato a upraveno z cit.^{21,22}

vání uranu z vodných roztoků využít též spolusrážení s oxidem titaničitým, vznikajícím hydrolýzou přidaných organo-titaničitých sloučenin, např. tetra-*n*-butylortho-titanátu²⁰.

V rámci chromatografických technik jsou při separaci uranu z roztoků, kromě standardní iontově výměnné chromatografie založené na sorpci iontů $(UO_2)^{2+}$ na měničích kationtů nebo např. chloridových komplexů [(UO₂)Cl_x]^{(x-2)-} na měničích aniontů, nejčastěji využívány sorbenty založené na vysoce selektivních extrakčních činidlech. Vzájemné rozdělení uranu a dalších aktinoidů za účelem individuálního nebo skupinového stanovení lze provést např. na materiálu TRU®-resin, obsahujícím oktylfenyl--N,N-di-isobutyl karbamoylfosfinoxid (CMPO) rozpuštěný v tri-n-butylfosfátu (TBP). V případě stanovení ²³⁶U jsou však nejčastěji k separaci uranu využívány sorbenty TEVA[®] (trialkylmethylammonium) a UTEVA[®] (diamylamylfosfonát - DAAP nebo dipentyl-pentylfosfonát -DPPP) v sériovém uspořádání. První zmíněný sorbent pak slouží především k sorpci plutonia, neptunia a thoria, druhý k separaci uranu. Principem dělení je v obou případech rozdílná extrakce chloridových či dusičnanových komplexů. Závislosti faktoru k', jenž je funkcí počtu volných objemů kolony nutných k vymytí jednotlivých prvků, jsou pro sorbenty TEVA® a UTEVA® na koncentraci kyseliny chlorovodíkové a dusičné jsou znázorněny na obr. 2.

Na separaci uranu z přírodních vodných vzorků jak spolusrážením, tak i chromatografickými metodami, může mít značný vliv řada faktorů souvisejících s jeho obsaženými chemickými formami. V tomto ohledu se významně projevuje např. přítomnost uhličitanů, tvořících s uranem vysoce rozpustné aniontové komplexy typu $UO_2(CO_3)_x^{2(x-1)-}$. Tyto formy, vznikající rozpouštěním atmosférického CO2, mohou významně negativně ovlivňovat celkový výtěžek separačního procesu i o více než 50 % (cit.24). Při zpracování roztoků je tak kromě výjimečných případů metod založených právě na rozpustnosti uhličitanů nutné významně omezit přítomnost jak uhličitanových iontů, tak i rozpuštěného oxidu uhličitého, jenž po úpravě pH do zásadité oblasti za účelem spolusrážení může způsobit opětovnou tvorbu uhličitanů uranylu. Toho lze dosáhnout dostatečným okyselením roztoku na hodnotu pH~1, případně kombinací méně výrazného okyselení s probubláváním roztoku inertním plynem, např. dusíkem nebo ohřevem roztoku do blízkosti bodu varu.

4. Terčové matrice pro AMS stanovení ²³⁶U

Jedním z nejdůležitějších aspektů ovlivňujících průběh a efektivitu stanovení ²³⁶U metodou AMS, jakožto i dosažitelné hodnoty meze detekce, je chemická matrice, z níž je uran v iontovém zdroji při měření odprašován, vzhledem ke způsobu ionizace označovaná jako terčová. Obecně vhodná matrice umožňuje účinně převést atomy prvku, jehož izotop stanovujeme, do formy negativně nabitých iontů, a současně dostatečně omezit vznik isobarických interferencí, které v případě nedostatečné fyzikální separace podél trasy mohou významně ovlivňovat hodnoty signálu jednotlivých detektorů, a tedy zkreslovat výsledek měření. Složení matrice může mít podstatný vliv rovněž na podíl "přeslechů" iontů s nízkým relativním rozdílem hmotnosti od stanovovaného iontu, jejichž část může vlivem energetické distribuce procházet jednotlivými separačními kroky až do detektoru, zejména v případech systémů disponujících pouze jedním magnetem ve vysokoenergetické části trasy. Významnými zdroji interferencí pro stanovení ²³⁶U s využitím v současnosti zavedených oxidických matric jsou pro nízkoenergetickou část trasy zejména ionty ²³⁵U¹⁷O⁻, ²³⁵U¹⁶OH⁻, komplikující analýzu vzorků s izotopovým poměrem ²³⁶U/²³⁸U 10⁻¹³ či nižším²⁵. Kromě ²³⁵U^{x+} pak v závislosti na podmínkách měření mohou do detektoru pronikat též ionty ²³⁵UH^{x+} či ²³⁸U^{x+}.

V současnosti jsou pro stanovení ²³⁶U nejčastěji využívány oxidické matrice, v nichž je uran ve formě oxidu zpravidla inkorporován v krystalické struktuře oxidů železa, jež plní úlohu neizotopického nosiče. Příprava oxidických matric je kromě výjimečných případů založena na výše uvedeném spolusrážení uranu s hydroxidem železitým z kyselých vodných roztoků, získaných z předchozích procesů separace a zkoncentrování. Sraženina je následně oddělena od matečného roztoku a žíhána při teplotě nad 600 °C (standardně 800 °C a více), což vede ke vzniku oxidů železa a uranu.

Za účelem zvýšení výtěžku ionizace, tedy frakce z celkového množství jader, jež je v průběhu procesu odprašování převedena do formy vybraných negativně nabitých iontů a úspěšně extrahována z iontového zdroje, bývají tyto materiály před vlastním odprašováním zpravidla míseny s dalšími látkami zlepšujícími elektrickou a tepelnou vodivost. V tomto ohledu je pro účely analýzy aktinoidů včetně izotopů uranu využíván především práškový niob v poměrech pohybujících se hmotnostně zpravidla od 1:1 do 1:3 (cit.^{4,23}). K vlastnímu stanovení jsou pak využívány ionty UO⁻, které dosahují obecně nejvyšších výtěžků ze všech uran obsahujících kyslíkatých iontů. Výhodou těchto matric je zejména relativní jednoduchost převedení uranu z mnoha výchozích forem do podoby chemicky čistého, pevného oxidu, vhodného pro použití v iontovém zdroji. Meze detekce, jichž umožňují oxidické matrice při použití pokročilých AMS systémů v optimalizovaném nastavení dosáhnout, se pro poměr ${}^{236}\overline{U}/{}^{238}U$ pohybují v řádu přibližně 10^{-13} a jsou tedy postačující pro většinu v současnosti analyzovaných vzorků (cit.^{23,26,27}) Často je však nutné pro analýzu odebrat značné množství výchozích materiálů. Krom již zmíněných isobarických interferencí pak zejména stanovení pozaďových vzorků může komplikovat také izotopová čistota vstupních chemikálií, především pak použitého železa, jež vlivem globálního spadu a vysoké afinity k uranu může do systému vnášet významné množství vnější kontaminace. V takových případech je optimálně nutné použít pro přípravu uranuprosté železo, zpracované před druhou světovou válkou.

Terčové matrice pro stanovení stopových izotopů uranu i dalších prvků jsou rovněž dlouhodobým předmětem výzkumu na Katedře jaderné chemie, FJFI ČVUT

v Praze, v jehož rámci byly vyvinuty nové metody přípravy vzorků na bázi oxidu titaničitého²⁰ a fluoridů lanthanidů²⁸, zaměřené především na zvýšení iontových výtěžků při zachování relativně jednoduché přípravy vzorků a dostatečné izotopové čistoty. Analýzy takto připravených materiálů, realizované ve spolupráci se zahraničními AMS pracovišti VERA, University of Vienna a Laboratory of Ion Beam Physics, ETH Zurich, prokázaly v případě TiO₂ možnost dosažení až čtyřnásobně vyšších iontových výtěžků ve srovnání s referenčními oxidy železa, za současného výrazného zjednodušení postupu přípravy. V případě materiálů založených na nosičích NdF₃ a PrF₃ ve směsi s PbF₂ bylo pak pro superhalogenidové ionty UF₅⁻ dosaženo i více než čtyřicetinásobných hodnot výtěžku odprašování v iontovém zdroji, a to při výrazně kratších dobách měření. Aplikace těchto matric by tak v případě stanovení ²³⁶U mohla vést jak k výraznému snížení nároku na výchozí objem odebíraného vzorku, tak i zkrácení času nezbytného pro jeho analýzu a při zachování dostatečné čistoty vstupních chemikálií rovněž k podstatnému zlepšení dosažiteľných mezí detekce. Zásadní význam by však mohla mít také pro stanovení 233U, poměrně nově využívaného v izotopových analýzách; jeho koncentrace ve vzorcích se typicky pohybuje ještě o dva řády níže než v případě ²³⁶U.

Vzhledem ke stále se rozšiřujícím možnostem aplikace stanovení ²³⁶U zejména v oceánografii, jaderné forenzní analýze a dalších oblastech výzkumu, i vzhledem k jeho podstatným, výše zmíněným výhodám oproti jiným izotopovým stopovačům lze očekávat, že množství analýz se stanovením tohoto nuklidu bude i nadále narůstat. Tomu přispívá rovněž přechod k dostupnějším a kompaktnějším multi-izotopovým AMS systémům, které jsou již sériově vyráběny. Mezi taková zařízení se řadí i systém MILEA od švýcarské firmy IonPlus, na němž je založena nově vybudovaná AMS laboratoř infrastruktury CANAM, ÚJF AV ČR v Řeži u Prahy. Významným aspektem je rovněž chemický výzkum a vývoj nových terčových matric nezbytných pro stanovení ultrastopových koncentrací ²³⁶U na úrovni přírodního pozadí, které by zároveň umožnily zvýšit efektivitu analýzy snížením doby měření a výchozího objemu vzorku, nezbytných k dostatečně přesnému stanovení.

Vypracováno s finanční podporou Ministerstva školství, mládeže a tělovýchovy České republiky, v projektu OP VVV č. CZ.02.1.01/0.0/0.0/16_019/0000728 – Výzkum ultrastopových izotopů a jejich využití v sociálních a environmentálních vědách urychlovačovou hmotnostní spektrometrií (RAMSES).

LITERATURA

- Hain K., Steier P., Froehlich M. B., Golser R., Hou X., Lachner J., Nomura T., Qiao J., Quinto F., Sakaguchi A.: Nat. Commun. 11, 1275 (2020).
- 2. Casacuberta N., Masqué P., Henderson G., Rutgers van-der-Loeff M., Bauch D., Vockenhuber C., Dara-

oui A., Walther C., Synal H.-A., Christl M.: Earth Planet. Sci. Lett. 440, 127 (2016).

- Sakaguchi A., Kawai K., Steier P., Quinto F., Mino K., Tomita J., Hoshi M., Whitehead N., Yamamoto M.: Sci. Total Environ. 407, 4238 (2009).
- 4. López-Lora M., Levy I., Chamizo E.: Talanta 200, 22 (2019).
- Srncik M., Tims S. G., De Cesare M., Fifield L. K.: J. Environ. Radioact. 132, 108 (2014).
- 6. Kutschera W.: Adv. Phys.- X 1, 570 (2016).
- Casacuberta N., Christl M., Vockenhuber C., Wefing A.-M., Wacker L., Masqué P., Synal H.-A., Rutgers van der Loeff M.: J. Geophys. Res.: Oceans *123*, 6909 (2018).
- Wefing A.-M., Casacuberta N., Christl M., Gruber N., Smith J. N.: Ocean Sci. 17, 111 (2021).
- Winkler S. R., Steier P., Carilli J.: Earth Planet. Sci. Lett. 359-360, 124 (2012).
- Djogić R., Sipos L., Branica M.: Limnol. Oceanogr. 31, 1122 (1986).
- Berkovits D., Feldstein H., Ghelberg S., Hershkowitz A., Navon E., Paul M.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B *172*, 372 (2000).
- NuDat 3.0 database National Nuclear Data Center (NNDC) at Brookheaven National Laboratory, https:// www.nndc.bnl.gov/nudat3/, staženo 20. 11. 2022.
- International Atomic Energy Agency (IAEA) Nuclear Data Services – Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR) and Evaluated Nuclear Data File (ENDF) database, https://www-nds.iaea.org/, staženo 20. 11. 2022.
- Benedict M., Pigford T. H., Levi H. W.: Nuclear Chemical Engineering, 2. vyd. McGraw-Hill, New York 1981.
- 15. Steier P. a 14 spoluautorů: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 266, 2246 (2008).
- 16. Qiao J. a 10 spoluautorů: Nat. Commun. 12, 823 (2021).
- López-Lora M., Chamizo E., Levy I., Christl M., Casacuberta N., Kenna T. C.: Sci. Total Environ. 765, 142741 (2021).
- Tims S. G., Froehlich M. B., Fifield L. K., Wallner A., De Cesare M.: J. Environ. Radioact. 151, 563 (2016).
- Chamizo E., Rääf C., Löpez-Lora M., García-Tenorio R., Holm E., Rabesiranana N., Pédehontaa-Hiaa G.: Sci. Total Environ. 740, 139993 (2020).
- Špendlíková I., Němec M., Steier P., Keçeli G.: J. Radioanal. Nucl. Chem. 311, 447 (2017).
- Eichrom Produktové informace k sorbentu TEVA[®] https://www.eichrom.com/eichrom/products/tevaresin/, staženo 20. 11. 2022.
- Eichrom Produktové informace k sorbentu UTE-VA[®] https://www.eichrom.com/eichrom/products/ uteva-resin/, staženo 20. 11. 2022.
- Christl M. a 10 spoluautorů: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 361, 510 (2015).
- 24. Qiao J., Hou X., Steier P., Nielsen S., Golser R.:

Anal. Chem. 87, 7411 (2015).

- Zhao X.-L., Litherland A. E., Kieser W. E., Cornett R. J.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 455, 224 (2019).
- De Cesare M. a 10 spoluautorů: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 294, 152 (2013).
- Winkler S. R., Steier P., Buchriegler J., Lachner J., Pitters J., Priller A., Golser R.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 361, 458 (2015).
- Prášek T., Němec M., Steier P., Kern M., Honda M., Hain K., Zhang X.: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 472, 64 (2020).
- 29. Němec M.: Chem. Listy 117, 86 (2023).

T. Prášek, M. Němec, and K. Fenclová (Department of Nuclear Chemistry, Czech Technical University in Prague, Prague, Czech Republic): Analysis of ²³⁶U by Accelerator Mass Spectrometry and Its Applications

Due to its specific properties, in particular its almost exclusively anthropogenic origin and highly conservative chemical behaviour in the environment, the uranium isotope ²³⁶U is an exceptionally suitable tracer of both human nuclear activities and natural processes. As an analytical tool, it is particularly useful in the fields of nuclear safety with an overlap into forensic analysis and oceanography, where it is mainly used for deep-sea current mapping. This paper provides a brief summary of ²³⁶U properties, its analytical applications and determination by accelerator mass spectrometry, including sample preparation procedure and influence of the resulting chemical matrix on the final instrumental determination.

Keywords: accelerator mass spectrometry, ²³⁶U, nuclear safeguards, oceanography, target materials

Acknowledgements

This work was supported by the Ministry of Education, Youth and Sports of the Czech Republic and the European Union (European Structural and Investment Funds – Operational Program Research, Development and Education) in the frames of the project "RAMSES – Ultratrace isotope research in social and environmental studies using accelerator mass spectrometry" (Reg. No. CZ.02.1.01/0.0/0.0/16 019/0000728).