

^{173}Lu 和 ^{174}Lu 的 LRIMS 同位素稀释法定量

李志明, 任向军, 邓 虎, 徐 江, 翟利华, 王长海, 张子斌, 朱凤蓉

(西北核技术研究所, 陕西 西安 710024)

Determination of ^{173}Lu and ^{174}Lu by Isotope Dilution-LRIMS

LI Zhi-ming, REN Xiang-jun, DENG Hu, XU Jiang, ZHAI Li-hua,

WANG Chang-hai, ZHANG Zi-bin, ZHU Feng-rong

(Northwest Insitute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China)

Abstract : Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry (LRIMS) is developed and applied as a versatile tool for elemental trace analysis. In this paper, for measuring lutetium isotopes, the analytical technique of LRIMS was established which can reduce the interference of isobar. Using these techniques, even if isobar ^{173}Yb and ^{174}Yb was in the analytical solution, the concentrations of ^{173}Lu and ^{174}Lu could be determined by isotope dilution-LRIMS with the spike ^{176}Lu . The relative standard uncertainty is 1%.

Key words : laser resonance ionization mass spetrometry; isotope ratio; lutetium

中图分类号: O657.63 文献标识码: A 文章编号: 1004-2997 (2007) 增刊-90-02

^{173}Lu 和 ^{174}Lu 是放射性核素, 通常用伽玛谱仪测量其放射性强度。伽玛绝对强度的不确定度是定量不确定度的主要来源之一。为准确测定镧同位素 ^{173}Lu 和 ^{174}Lu 的伽玛绝对强度, 需准确定量 ^{174}Lu 和 ^{173}Lu 的放射性源。中国原子能科学研究院用高纯镱靶在串列加速器上制备 ^{173}Lu 和 ^{174}Lu 同位素, 反应道为 $^{173}\text{Yb}(p, n)^{173}\text{Lu}$ 、 $^{174}\text{Yb}(p, n)^{174}\text{Lu}$ 。由于辐照生产的样品经化学分离后依然存在大量的天然核素 ^{173}Yb 和 ^{174}Yb , 其含量比样品 ^{173}Lu 和 ^{174}Lu 含量高 2~3 个量级, 为消除同量异位素的干扰, 本工作利用已建立的 LRIMS 准确测定镧同位素丰度比技术和方法^[1], 采用 ^{176}Lu 作同位素稀释剂, 定量测定样品中 ^{173}Lu 和 ^{174}Lu 的绝对量。

1 方法和原理

激光共振电离质谱计 (LRIMS) 是利用激光共振电离的光谱选择性原理, 有选择性地电离所需探测的元素或同位素原子, 而干扰元素的原子不被电离, 以达到热电离、电子轰击电离和等离子体电离等其它电离方式所不具有的核素选择性, 从原理上消除了质谱同位素分析中同量异位素干扰。

2 实验部分

2.1 ^{176}Lu 同位素稀释剂标定

采用从 SPEX CertiPrep 公司购买的天然镧的浓度标样, 利用热电离质谱计, 采用同位素稀释法定 ^{176}Lu 同位素 (美国 ISOFLEX 公司)。测得 ^{176}Lu 和 ^{175}Lu 的丰度比为 0.561 87, 实验标准不确定度为 0.04%; ^{176}Lu 稀释剂溶液的浓度为 $0.499\ 84\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, 合成标准不确定度为 0.37%。

作者简介: 李志明(1973~), 男(汉族), 湖北浠水人, 副研究员, 从事激光光谱、无机和同位素质谱分析研究。E-mail: zhiming_li218@sina.com
通讯作者: 朱凤蓉(1942~), 女(汉族), 上海人, 研究员, 核技术应用专业。E-mail: fengrongzhu@yahoo.com.cn

2.2 LRIMS 样品源的制备

样品用十万分之一天平称重,定量分成5份样品,在每份样品中分别加入适量的 ^{176}Lu 稀释剂,加热蒸干混合样品,然后加硝酸溶解,反复几次,使镧同位素交换均匀,最后每个样品液被浓缩至数微升,以供样品装载用。

2.3 LRIMS 测量

合理控制第一、第二和第三步激光的激光功率、带宽和中心波长等参数。调节合束装置,使三束激光合束,并引入到离子源中的样品带和原子化带之间,优化离子透镜拉出系统参数和合束光束的合束位置和状态,使热离子背景最小,而光致电离离子最大。

质谱计的磁场分别设置在 ^{173}Lu 、 ^{174}Lu 、 ^{175}Lu 和 ^{176}Lu 的峰中心,以跳磁场方法选定个镧同位素后,固定第一、第三步激光波长,第二步激光在642.418~642.618 nm范围内以每步0.003 nm进行波长扫描,用电子倍增器纪录离子信号。在每个正式样品测量前,均先测天然镧样品的 $R_{5/6}^m$,以确定质谱计、激光器和合束系统状态良好。

3 测量结果

加同位素稀释剂后样品中的 ^{173}Lu 、 ^{174}Lu 和 ^{176}Lu 与 ^{175}Lu 同位素比值由下式给出:

$$R_{i/5} = R_{i/5}^m / (1 + \delta_{i/5}) \quad (1)$$

其中, $R_{i/5}^m$ ($i=173,174,176$)为LRIMS实测比值; $R_{i/5}$ 为校正后的值; $\delta_{i/5}$ 为校正因子, $\delta_{3/5}$ 和 $\delta_{4/5}$ 分别为0.28%和0.48%。表1给出了测得的样品中 ^{173}Lu 和 ^{174}Lu 的量(校正到同一零时刻)及平均值的实验标准不确定度。测得 ^{173}Lu 和 ^{174}Lu 的量与发展的在大量同质异位素干扰下TIMS分析技术得到的结果在不确定度范围内符合较好^[2]。

表1 归一到同一时刻,测得的各混合样品中 ^{173}Lu 和 ^{174}Lu 的浓度

Table1 The concentration of ^{173}Lu and ^{174}Lu in the analytical samples at the same time

样品号	$^{173}\text{Lu}/\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	$^{174}\text{Lu}/\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	样品号	$^{173}\text{Lu}/\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	$^{174}\text{Lu}/\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$
LRIMS-1	1.3301×10^2	3.1803	LRIMS-5	$1.2847 \times 10^{2*}$	3.1133
LRIMS-2	1.3215×10^2	3.1122	平均值	1.328×10^2	3.133
LRIMS-3	1.3249×10^{21}	3.1250	u	0.19%	0.46%
LRIMS-4	1.3342×10^2	2.9605*			

注:标有“*”的值为DIXON和T检验剔除的数,并未参与平均值计算。

4 结论

应用建立的镧同位素LRIMS同位素分析技术,在样品中存在大量 ^{173}Yb 和 ^{174}Yb 的条件下,采用 ^{176}Lu 作同位素稀释剂,测定了溶液样品中放射性核素 ^{173}Lu 和 ^{174}Lu 的浓度。综合考虑 ^{176}Lu 稀释剂标定的不确定度、天然镧丰度比的不确定度、LRIMS同位素分析的实验标准不确定度及理论计算修正量的不确定度, ^{173}Lu 和 ^{174}Lu LRIMS同位素稀释法定量的相对标准不确定度为 $\pm 1\%$,达到目前国际上LRIMS同位素定量分析水平。

参考文献:

- [1] 李志明,朱凤蓉,张子斌,等.镧的激光共振电离质谱同位素分析技术[J].质谱学报,2005,26:45-46.
- [2] 徐江,朱凤蓉,李志明,等.在大量同质异位素干扰下的同位素稀释法测定 ^{173}Lu 和 ^{174}Lu [J].核化学与放射化学,2007,29(1):27-31.