

中华人民共和国卫生行业标准

WS/T 549—2017

尿中总铀和铀-235/铀-238 比值的分析方法 电感耦合 等离子体质谱法(ICP-MS)

Methods for analysis of total uranium and uranium-235/uranium-238 isotope ratio in urine—Inductively coupled plasma-mass spectrometry (ICP-MS)

2017-05-18 发布

2017-11-01 实施



中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会

发布

目 次

前言	I
1 范围	1
2 术语和定义	1
3 方法原理	1
4 试剂和材料	1
5 仪器	2
6 尿样的采集	2
7 分析步骤	2
8 结果计算与表示	3
附录 A (资料性附录) 电感耦合等离子体质谱仪的参考工作条件	5
附录 B (资料性附录) 测量不确定度的评定方法	6
参考文献	10

前 言

本标准按照 GB/T 1.1—2009 给出的规则起草。

本标准起草单位：中国疾病预防控制中心辐射防护与核安全医学所、中国计量科学研究院、中国原子能科学研究院、核工业北京地质研究院、西北核技术研究所。

本标准主要起草人：吉艳琴、田青、郭冬发、赵永刚、逯海、李志明、申宝鸣、邵宪章、尹亮亮。

尿中总铀和铀-235/铀-238 比值的分析方法 电感耦合 等离子体质谱法(ICP-MS)

1 范围

本标准规定了电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)分析尿中总铀和铀-235/铀-238($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$)比值的方法。

本标准适用于测量人尿中总铀和 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值,其他生物样品中总铀和 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值的分析可参照本标准。

2 术语和定义

下列术语和定义适用于本文件。

2.1

质量偏倚 mass bias

观察到的或测量到的同位素比值与真实比值的明显偏离,偏倚是两个同位素之间的质量差的一个函数。

2.2

质量歧视 mass discrimination

质谱仪中引起质量偏倚的过程。测量值可能会因为轻离子或重离子的损失而“偏离”真实值。

3 方法原理

3.1 尿中总铀分析:将尿样用 $\text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$ 消解后,定容,采用外标法用ICP-MS分析总铀含量。本标准测量尿中铀定量下限为16 ng/L。

3.2 尿中 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值测定:将尿样用 $\text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$ 消解后,通过磷酸三丁酯(TBP)萃取色层分离出铀,用ICP-MS分析 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值,质谱仪质量歧视采用铀同位素标准物质校正。

4 试剂和材料

4.1 实验用水均为超纯水(H_2O ,电阻率 $\geq 18.2\text{ M}\Omega/\text{cm}$)。

4.2 硝酸(HNO_3 ,密度1.42 g/mL):优级纯或高纯。

4.3 硝酸(HNO_3 ,浓度5 mol/L):用水(4.1)和硝酸(4.2)配制。

4.4 硝酸(HNO_3 ,体积分数2%):用水(4.1)和亚沸蒸馏纯化的硝酸(4.2)配制。

4.5 过氧化氢(H_2O_2 ,质量分数30%):分析纯。

4.6 碳酸钠(Na_2CO_3):分析纯。

4.7 碳酸钠溶液(Na_2CO_3 ,浓度50 g/L):用水(4.1)和碳酸钠(4.6)配制。

4.8 多元素混合标准溶液:包含Li、Be、Sc、Co、Y、In、Ba、Ce、Bi、U等10种元素的混合标准溶液,浓度

10 $\mu\text{g/L}$ 。

4.9 铀成分分析储备液:铀浓度 100 mg/L ,不确定度小于 2%。

4.10 总铀含量分析校准溶液:先将储备液(4.9)用 2%硝酸(4.4)稀释为铀浓度 100 $\mu\text{g/L}$,然后依次配制铀浓度分别为 10 $\mu\text{g/L}$ 、6 $\mu\text{g/L}$ 、2 $\mu\text{g/L}$ 、0.6 $\mu\text{g/L}$ 、0.2 $\mu\text{g/L}$ 、0.02 $\mu\text{g/L}$ 的校准溶液。

4.11 铀同位素标准溶液:总铀浓度 $\geq 0.1 \text{ mg/L}$, ^{235}U 丰度 0.2%~15%。

4.12 TBP 萃淋树脂(180 μm ~250 μm)。

4.13 TBP 萃取色层柱:规格为 $\phi 0.5 \text{ cm} \times 8 \text{ cm}$,洗净后烘干,检查是否漏水,将 TBP 萃淋树脂(4.12)用超纯水(4.1)浸泡过夜。湿法装柱,两端用聚四氟乙烯丝填充。

4.14 尿样采集容器:塑料桶或玻璃瓶,应保证清洁、无渗漏。

4.15 密闭消解罐:聚四氟乙烯或全氟烷氧基乙烯基醚共聚物(PFA),应保证清洁、无渗漏。

4.16 试管(15 mL):应保证清洁、无渗漏,容器和盖子无干扰物质附着,使用前称重,记录为 m_0 。

4.17 聚四氟乙烯烧杯(250 mL):保证清洁。

5 仪器

5.1 电感耦合等离子体质谱仪:能对 5 u ~254 u 质量范围内进行扫描,最小分辨率为在 5%峰高处 1 u 峰宽,使用的氦气纯度不低于 99.99%。

5.2 分析天平:感量 0.1 mg 。

5.3 温控式电热板:最高温度不低于 200 $^{\circ}\text{C}$ 。

6 尿样的采集

使用尿液采集容器(4.14)采集尿液。采集杯使用前用蒸馏水淋洗并烘干。采集 24 h 尿,或应急情况下采集计时尿,采集样品不少于 250 mL,收集后加盖拧紧,贴唯一性标签,4 $^{\circ}\text{C}$ 下保存。

7 分析步骤

7.1 总铀分析样品制备

7.1.1 取 5 mL 尿样(第 6 章),记录为 V_1 ,置于密闭消解罐(4.15)中,罐中加入 3 mL H_2O_2 (4.5),静置过夜。消解前加入 3 mL HNO_3 (4.2),盖紧盖子,在电热板上 150 $^{\circ}\text{C}$ 加热 10 h,之后冷却至室温,所有样品均变为澄清溶液。消解液转移至试管(4.16)中,称重,记录为 m_1 。

7.1.2 取 1 mL 消解液(7.1.1)至试管(4.16)中,称重,记录为 m_2 ,用超纯水(4.1)稀释,定容至 10 mL,记录为 V_2 。充分摇匀,待测。

7.1.3 按 7.1.1 和 7.1.2 流程制备空白样品溶液。

7.2 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值测定样品制备

7.2.1 尿样的预处理

准确量取 100 mL 尿样(第 6 章),置于聚四氟乙烯烧杯(4.17)中,加入 25 mL HNO_3 (4.2),电热板加热蒸至近干,静置冷却;再加入 10 mL H_2O_2 (4.5),边搅拌边用电热板继续加热至近干,冷却至室温后,加入 5 mol/L HNO_3 (4.3)溶解,定容到 5 mL,如盐分较大无法完全溶解时,可以适当增大溶液体积,保持酸度不低于 5 mol/L。

7.2.2 尿铀分离富集

7.2.2.1 TBP 萃取色层柱的准备

用 10 mL Na_2CO_3 溶液(4.7),洗涤 TBP 萃取色层柱(4.13),控制流速 1 mL/min~3 mL/min,洗涤两次以除去可能存在的磷酸一丁酯和磷酸二丁酯,再用超纯水(4.1)过柱,调节柱酸度至中性后,备用。

7.2.2.2 分离过程

用 15 mL 5 mol/L HNO_3 (4.3)淋洗 TBP 萃取色层柱(7.2.2.1)进行预平衡,控制流速 1 mL/min~1.5 mL/min。将预处理好的样品溶液(7.2.1)小心地加入色层柱,控制流速在 1.2 mL/min。用 20 mL 5 mol/L HNO_3 (4.3)淋洗干扰杂质,用 10 mL 超纯水(4.1)洗脱铀并收集于试管(4.16)中。

7.2.2.3 TBP 萃取色层柱的再生

用 20 mL 5 mol/L HNO_3 (4.3)淋洗 TBP 萃取色层柱,控制流速 1 mL/min~1.5 mL/min,平衡后可重复使用。

7.3 ICP-MS 仪器校准和条件优化

7.3.1 按照仪器的操作说明书及实验室操作程序进行 ICP-MS 及相关的计算机操作系统和外围设备的启动和优化,以高分辨电感耦合等离子体质谱为例的工作参数参见附录 A。

7.3.2 用多元素混合标准溶液(4.8)进行仪器参数的优化,确保质量校准、质量分辨率、灵敏度、铀离子氧化物($^{238}\text{U}^{16}\text{O}$)的生成率和基线均符合实验要求。

7.3.3 分析任何样品之前先确定仪器的稳定性。利用多元素混合标准溶液(4.8)测量 20 min,若 U 的测量结果的相对标准偏差小于 3%,则仪器稳定。

7.4 总铀含量测定

7.4.1 以体积分数 2%硝酸(4.4)为校准空白溶液,作为零点,一个或多个浓度水平的校准标准(4.10)建立校准曲线,校准数据采集至少 3 次,取其平均值。

7.4.2 测量空白样品溶液(7.1.3)中的铀浓度,记录为 ρ_0 。

7.4.3 测量样品溶液(7.1.2)中的铀浓度,记录为 ρ 。

7.4.4 样品测定中间用体积分数 2%硝酸溶液(4.4)清洗系统。

7.5 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值测定

7.5.1 用铀同位素标准溶液(4.11)配制与待测样品中铀的浓度相适应的铀同位素校准溶液。

7.5.2 测定 2%硝酸(4.4)空白溶液 ^{235}U 和 ^{238}U 的计数强度,分别记录为 I_{05} 和 I_{08} 。

7.5.3 测定铀同位素校准溶液(7.5.1),分别记录为 I_{55} 和 I_{88} 。

7.5.4 用 2%硝酸(4.4)空白溶液清洗系统,测定其 ^{235}U 和 ^{238}U 的计数强度,分别记录为 $I'_{0.5}$ 和 $I'_{0.8}$ 。

7.5.5 测定制备好的待测样品(7.2.2.2)中 ^{235}U 和 ^{238}U 的计数强度,分别记录为 I_5 和 I_8 。

7.5.6 重复 7.5.2~7.5.5 测定下一个样品。

8 结果计算与表示

8.1 尿中总铀质量浓度按式(1)计算,结果表达包括不确定度的评定,参见附录 B。

$$\omega = \frac{(\rho - \rho_0) \times V_2 \times m_2}{(m_1 - m_0) \times V_1} \dots\dots\dots(1)$$

式中:

- ω —— 尿样中总铀的质量浓度,单位为微克每升($\mu\text{g/L}$);
- ρ —— 尿样消解液(7.1.2)中总铀的质量浓度(由标准曲线查得),单位为微克每升($\mu\text{g/L}$);
- ρ_0 —— 空白样品溶液(7.1.3)中总铀的质量浓度(由标准曲线查得),单位为微克每升($\mu\text{g/L}$);
- V_2 —— 尿样稀释液体积(7.1.2),单位为毫升(mL);
- m_2 —— 尿样消解液(7.1.2)质量,单位为克(g);
- m_1 —— 尿样消解液(7.1.2)与塑料管(4.16)质量,单位为克(g);
- m_0 —— 塑料管(4.16)质量,单位为克(g);
- V_1 —— 尿样(7.1.1)的取样体积,单位为毫升(mL)。

式(1)适用于天然铀结果,若根据式(2)结果,尿样中 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值与天然丰度相差较大,则按式(2)进行修正。

8.2 尿中 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值按式(2)计算,结果表达包括不确定度的评定,参见附录 B。

$$R = \frac{(I_5 - I'_{05})}{(I_8 - I'_{08})} \times \frac{(I_{s8} - I_{08})}{(I_{s5} - I_{05})} \times R_s \dots\dots\dots (2)$$

式中:

- R —— 尿样中 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值;
- I_5 —— 待测样品 ^{235}U 的计数强度;
- I'_{05} —— 空白溶液 ^{235}U 的计数强度;
- I_8 —— 待测样品 ^{238}U 的计数强度;
- I'_{08} —— 空白溶液 ^{238}U 的计数强度;
- I_{s8} —— 铀同位素校准溶液 ^{238}U 的计数强度;
- I_{08} —— 空白溶液 ^{238}U 的计数强度;
- I_{s5} —— 铀同位素校准溶液 ^{235}U 的计数强度;
- I_{05} —— 空白溶液 ^{235}U 的计数强度;
- R_s —— 铀同位素标准溶液中 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值,由标准溶液证书给出。

附 录 A
(资料性附录)

电感耦合等离子体质谱仪的参考工作条件

以某高分辨电感耦合等离子体质谱仪为例的工作参数见表 A.1。

表 A.1 ICP-MS 仪器工作状态与操作参数

仪器参数	设置
反应器输出功率	1 225 W
反射功率	5 W
载气流速	0.78 L/min
冷却气流速	16 L/min
辅助气流速	0.78 L/min
样品提取速率	0.996 L/min
采集方式	扫描
停留时间	0.3 s
取样时间	0.01 s

附录 B
(资料性附录)
测量不确定度的评定方法

B.1 测量不确定度

B.1.1 评定方法

在给出检验结果时,应附有测量不确定度的评定。评定不确定度的方法应按下列类别给出:

- a) A类评定:通过对重复性条件测量所得量值的统计方法评定;
- b) B类评定:通过采用非统计分析方法评定。

B.1.2 A类评定不确定度 u_A

u_A 是一组观测值(x_1, x_2, \dots, x_n)的测量平均值的标准差 $\sigma(\bar{x})$ 。通过测量数据的标准偏差、测量次数及所要求的置信水平按统计学计算方法进行。理论上讲,测量样本量增加时,A类不确定度会减少。A类不确定度的典型来源是样品多次测量的标准偏差。

B.1.3 B类评定不确定度 u_B

u_B 不会因重复测量而减少。通常B类标准不确定度的主要来源是影响测量结果的各种影响因素,例如:

- a) 标准物质的不确定度;
- b) 样品处理过程引入的不确定度;
- c) 由标准曲线求得的分析结果;
- d) 各类样品定容引入的B类不确定度。

B.2 不确定度的A类评定

样品多次测量引入的不确定度 $u_{A,m}$:

对样品中待测元素含量测量结果 x_i 进行 n 次独立的等精度测量得到的测量值为: x_1, x_2, \dots, x_n , 其算术平均值 \bar{x} 计算见式(B.1)。

$$\bar{x} = \frac{\sum_{i=1}^n x_i}{n} \dots\dots\dots (B.1)$$

则单次测量结果的检验标准差见式(B.2)。

$$u_{A,m}(x_i) = s(x_i) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n - 1}} \dots\dots\dots (B.2)$$

用式(B.3)计算测量平均值的不确定度。

$$u_{A,m}(\bar{x}) = s(\bar{x}) = \frac{s(x_i)}{\sqrt{n}} \dots\dots\dots (B.3)$$

B.3 不确定度的 B 类评定

B.3.1 标准物质引入的不确定度 $u_{B,s}$

标准物质的不确定度包含了：标准物质的均匀性引起的不确定度，标准物质的稳定性引起的不确定度以及标准物质的定值过程带来的不确定度。其对测量结果合成不确定度的贡献可用式(B.4)计算：

$$u_{B,s} = \frac{\Delta_i}{\sqrt{3}} \dots\dots\dots (B.4)$$

式中：

Δ_i —— i 种标准物质由稳定性及定值过程引进的参考值标准差的半宽度。

B.3.2 样品处理过程引入的不确定度 $u_{B,t}$

总铀分析样品制备过程引入的不确定度。主要是由于样品、空白样和试剂定容引入的不确定度。其对测量结果合成不确定度的贡献一般可以通过估算给出。

B.3.3 标准曲线引入的不确定度 $u_{B,c}$

往往采用已知含量的标准物质配制系列标准曲线，再用线性拟合方式，获得一维线性方程。由实验测量的仪器信号响应，可以获得待测样品中待测元素的含量。由标准曲线求得的分析结果的不确定度评定可用式(B.5)计算：

$$u_{B,c} = \frac{s}{b} \sqrt{1 + \frac{1}{n} + \frac{(x - \bar{x})^2}{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}} \dots\dots\dots (B.5)$$

其中残余标准差 s 计算见式(B.6)：

$$s = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n [y_i - (b + ax_i)]^2}{n - 2}} \dots\dots\dots (B.6)$$

此处，假设拟合标准曲线为 $y = b + ax$ ，其中 b 为截距， a 为斜率。式中， s 为残余标准差（或称回归的标准偏差）， n 为测量次数， \bar{x} 为绘制标准曲线所用全部 x 值的平均值。

B.4 A 类和 B 类的合成标准不确定度的评定方法

合成标准不确定度可用式(B.7)计算：

$$u_c = \sqrt{u_A^2 + \sum_i u_{B,i}^2} \dots\dots\dots (B.7)$$

$u_{B,i}$ 是 i 种影响因素引入的不确定度。其扩展不确定度见式(B.8)。

$$U = ku_c = k \sqrt{u_A^2 + \sum_i u_{B,i}^2} \dots\dots\dots (B.8)$$

在其计算和结果表述中，均应清楚标明包含因子 k 的取值。通常，扩展不确定度的包含因子取 $k = 2$ 。

B.5 不确定度评定要求

依据本标准测量的尿中总铀分析结果相对扩展不确定度小于 30%；尿中 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值分析结果

的相对不确定度小于 0.8%。

B.6 不确定度评定举例——尿中总铀含量分析

某次对人尿中总铀含量平行测量了 6 次,其测量结果分别为 0.08 μg/L、0.08 μg/L、0.14 μg/L、0.11 μg/L、0.16 μg/L、0.09 μg/L,平均值为 0.11 μg/L。配制标准曲线采用的天然铀成分分析标准物质的不确定度为 1.4%。进行不确定度评定,其计算过程:

a) 不确定度 A 类评定计算

多次测量引入的不确定度 $u_{A,m}$:

$$\bar{x} = \frac{1}{6} \sum_{i=1}^6 x_i = 0.11 \text{ (}\mu\text{g/L)}$$

$$s = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^6 (x_i - \bar{x})^2}{(n-1)}} = 0.034 \text{ (}\mu\text{g/L)}$$

$$u_{A,m} = \frac{s}{\sqrt{n}} = \frac{0.034}{\sqrt{6}} \approx 0.014 \text{ (}\mu\text{g/L)}$$

即多次测量引入的相对不确定度为 $u_A = \frac{0.014}{0.11} \times 100\% = 12.7\%$ 。

b) 不确定度 B 类评定计算

标准物质证书给出的相对不确定度为 1.4%,包含因子 $k=2$,则 $u_{B,s} = (1.4\%/2) \approx 0.70\%$ 。

标准曲线配制时采用十万分之一电子天平称重,多次逐级稀释的称量不确定度估计为 $u_{B,w} = 0.0010$ 。

总铀分析样品制备过程引入的不确定度 $u_{B,t} = 0.0050$ 。

标准曲线引入的不确定度 $u_{B,c}$:

不确定度评定中,已经将多次测量结果的不确定度单独评定,由标准曲线引入的不确定度以单次测量结果的不确定度评定。

根据标准曲线的斜率、截距及测量结果,由标准曲线引入的不确定度为 $u_{B,c} = 0.50\%$ 。

则:

$$u_B = \sqrt{u_{B,s}^2 + u_{B,w}^2 + u_{B,t}^2 + u_{B,c}^2} = \sqrt{0.0070^2 + 0.0010^2 + 0.0050^2 + 0.0050^2} \approx 0.010$$

c) 合成不确定度计算

$$u_C = \sqrt{u_A^2 + u_B^2} = \sqrt{0.127^2 + 0.010^2} \approx 0.127$$

d) 相对扩展不确定度计算,取 $k=2$

$$U_{rel} = 2 \times 0.127 \approx 0.255$$

按绝对不确定度表示为:

$$U = 0.255 \times 0.11 \approx 0.028$$

e) 测量结果报告

通常应报告为:

$$(0.11 \pm 0.03) \mu\text{g/L} \quad k=2.$$

B.7 不确定度评定举例——尿中²³⁵U/²³⁸U 比值分析

某次对人尿中²³⁵U/²³⁸U 比值平行测量了 6 次,其校正结果分别为 0.007 211、0.007 224、0.007 229、0.007 208、0.007 211、0.007 213。

实验过程中,使用 IRMM184 铀同位素标准物质校正质谱仪的质量歧视,6 次测量结果分别为: 0.007 160、0.007 167、0.007 168、0.007 171、0.007 163、0.007 165。

进行不确定度评定,其计算过程:

a) 不确定度 A 类评定计算

尿中 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值多次测量引入的不确定度 $u_{A,m1}$:

$$\bar{x} = \frac{1}{6} \sum_{i=1}^6 x_i = 0.007\ 216$$

$$s = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^6 (x_i - \bar{x})^2}{(n-1)}} = 8.44 \times 10^{-6}$$

$$u_{A,m1} = \frac{s}{\sqrt{n}} = \frac{8.44 \times 10^{-6}}{\sqrt{6}} \approx 3.44 \times 10^{-6}$$

以相对不确定度表示为 $\frac{3.44 \times 10^{-6}}{0.007\ 216} \times 100\% = 0.048\%$ 。

铀同位素标准物质中 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比值多次测量引入的不确定度 $u_{A,m2}$:

$$\bar{x} = \frac{1}{6} \sum_{i=1}^6 x_i = 0.007\ 167$$

$$s = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^6 (x_i - \bar{x})^2}{(n-1)}} = 3.88 \times 10^{-6}$$

$$u_{A,m2} = \frac{s}{\sqrt{n}} = \frac{3.88 \times 10^{-6}}{\sqrt{6}} \approx 1.58 \times 10^{-6}$$

以相对标准不确定度表示为 $\frac{1.58 \times 10^{-6}}{0.007\ 167} \times 100\% = 0.022\%$ 。

则:

$$u_A = \sqrt{u_{A,m1}^2 + u_{A,m2}^2} = \sqrt{0.000\ 48^2 + 0.000\ 22^2} \approx 0.000\ 53$$

b) 不确定度 B 类评定计算

标准物质证书给出的相对不确定度为 0.03%, 包含因子 $k=2$, 则 $u_{B,s} = (0.03\%/2) \approx 0.000\ 15$

则:

总的 B 类不确定度, $u_B = u_{B,s} = 0.000\ 15$

c) 合成不确定度计算

$$u_C = \sqrt{u_A^2 + u_B^2} = \sqrt{0.000\ 53^2 + 0.000\ 15^2} \approx 0.000\ 55$$

d) 相对扩展不确定度计算, 取 $k=2$

$$U_{\text{rel}} = 2 \times 0.000\ 55 \approx 0.001\ 10$$

按绝对不确定度表示为:

$$U = 0.001\ 10 \times 0.007\ 216 = 0.000\ 01$$

e) 测量结果报告

通常应报告为:

$(0.007\ 22 \pm 0.000\ 01)k=2$ 。

参 考 文 献

- [1] GB/T 6041—2002 质谱分析方法通则
 - [2] ISO 17294-1:2004 Water quality—Application of inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS)—Part 1: General guidelines
 - [3] ISO 17294-2:2003 Water quality—Application of inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS)—Part 2: Determination of 62 elements
 - [4] ASTM C1379—2010 Standard test method for analysis of urine for uranium-235 and uranium-238 isotopes by inductively coupled plasma-mass spectrometry
 - [5] IAEA-TECDOC-1401—2004, Quantifying uncertainty in nuclear analytical measurements
 - [6] 贾维斯 K E, 格雷 A L, 霍克 R S. 电感耦合等离子体质谱手册[M]. 尹明, 李冰译. 北京: 原子能出版社, 1997
-