

ICP-MS 测定铅同位素比值及不同样品间铅同位素比值的比较

蔡洁燕^{1,2,3}, 龙传永⁴, 刘移民^{1,2}, 王雅琪^{1,2,3}, 麦剑平^{1,2}, 郭嘉明^{1,2}, 郭尧平^{1,2}, 陈纠^{1,2}, 梁嘉斌^{1,2}

1. 广州市职业病防治院评价检测中心, 广东 广州 510620
2. 广州市第十二人民医院评价检测中心, 广东 广州 510620
3. 暨南大学基础医学与公共卫生学院, 广东 广州 510632
4. 英德市慢性病防治医院(英德市职业病防治所)职业病科, 广东 英德 513000

摘要:

[背景] 不同来源的铅同位素比值(LIR)不同。国内外关于人血或尿 LIR 溯源的报道, 主要集中在对同一个体或不同个体间血样、尿样的比较, 较少进行生物样品与环境样品间的比较, 且主要 LIR($^{207/206}\text{Pb}$ 、 $^{208/206}\text{Pb}$)测定精密度(RSD)的波动较大, 在 0.3~1%之间。

[目的] 优化电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS), 以获得更好的 RSD, 并对人体血、尿及相关环境样品 LIR 进行测定和分析。

[方法] 优化 ICP-MS 的运行参数和采集参数, 主要根据 LIR 测定的灵敏度和 RSD 来进行参数的确定。以铅蓄电池厂 40 名工人和医院 2 名铅中毒儿童为研究对象, 收集班前接铅工人的血样 40 份、尿样 40 份, 同一天班前的工作场所降尘样品 4 份、工厂自来水水样 2 份, 铅中毒儿童入院时的血样 2 份、入院时的尿样 3 份及治疗后的尿样 4 份。对样品进行加热酸解处理, 应用优化的 ICP-MS 方法测定研究对象的生物样品和环境样品的主要 LIR($^{207/206}\text{Pb}$ 、 $^{208/206}\text{Pb}$), 并运用 t 检验、二维图形分析方法对测定结果进行分析。

[结果] 校准后的铅同位素标准溶液的 LIR($^{207/206}\text{Pb}$ 、 $^{208/206}\text{Pb}$)的 RSD 分别为 0.11%、0.08%, NIST-SRM-981 实测值为 0.91531 ± 0.00097 、 2.1670 ± 0.0017 。当总铅质量浓度大于 $5 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 各同位素比值的 RSD 逐渐稳定; 当总铅质量浓度在 $10 \sim 80 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 各同位素比值的 RSD 均小于 0.20%。接铅工人血、尿 LIR($^{207/206}\text{Pb}$ 、 $^{208/206}\text{Pb}$)分布的差异存在统计学意义($t=5.831$, $P<0.001$; $t=21.021$, $P<0.001$); 车间降尘与尿样之间的 LIR($^{207/206}\text{Pb}$ 、 $^{208/206}\text{Pb}$)分布的差异也存在统计学意义($t=-6.879$, $P=0.038$; $t=12.521$, $P<0.001$); 车间降尘与血样的 $^{207/206}\text{Pb}$ 分布的差异无统计学意义($t=-0.12$, $P=0.912$), 但 $^{208/206}\text{Pb}$ 分布的差异存在统计学意义($t=-10.46$, $P<0.001$)。铅中毒患者中, 同一个体血、尿样的 LIR 在二维模型中的投射点不在同一水平上, 驱铅治疗前后同一个体尿样 LIR 在二维模型中的分布也不在同一水平。

[结论] 本研究优化后的 ICP-MS 法可将主要 LIR($^{207/206}\text{Pb}$ 、 $^{208/206}\text{Pb}$)的 RSD 控制在 0.20% 以下。不同样品的 LIR 分布之间存在差异。

关键词: 铅; 电感耦合等离子体质谱法; 同位素比值; 血; 尿; 降尘; 自来水

Determination of lead isotope ratios by inductively coupled plasma mass spectrometry and comparison of lead isotope ratios among different samples CAI Jieyan^{1,2,3}, LONG Chuanyong⁴, LIU Yimin^{1,2}, WANG Yaqi^{1,2,3}, MAI Jianping^{1,2}, GUO Jiaming^{1,2}, GUO Yaoping^{1,2}, CHEN Jiu^{1,2}, LIANG Jiabin^{1,2} (1. The Center of Evaluation Testing, Guangzhou Occupational Disease Prevention and Treatment Hospital, Guangzhou, Guangdong 510620, China; 2. The Center of Evaluation Testing, Guangzhou Twelfth People's Hospital, Guangzhou, Guangdong 510620, China; 3. School of Basic Medical Sciences and Public Health, Jinan University, Guangdong, Guangzhou 510632, China; 4. The Department of Occupational Disease, Yingde Chronic Disease Prevention and Treatment Hospital (Yingde Occupational Disease Prevention and Treatment Institute), Yingde, Guangdong 513000, China)

Abstract:

[background] The lead isotope ratios (LIR) differ among different sourced samples. Previous domestic and overseas studies on source tracing by LIR in human blood or urine mainly focused on the comparison of blood or urine samples from the same or different individuals, while few



DOI 10.11836/JEOM22283

基金项目

广州市科技计划项目(202201010816); 广东省医学科学技术研究基金项目(A2019426)

作者简介

蔡洁燕(1994—), 女, 硕士生,
E-mail: 1063090559@qq.com

通信作者

梁嘉斌, E-mail: 13570942832@163.com

伦理审批 已获取

利益冲突 无申报

收稿日期 2022-07-09

录用日期 2022-07-25

文章编号 2095-9982(2022)08-0919-05

中图分类号 R115

文献标志码 A

►引用

蔡洁燕, 龙传永, 刘移民, 等. ICP-MS 测定铅同位素比值及不同样品间铅同位素比值的比较[J]. 环境与职业医学, 2022, 39(8): 919-923.

►本文链接

www.jeom.org/article/cn/10.11836/JEOM22283

Funding

This study was funded.

Correspondence to

LIANG Jiabin, E-mail: 13570942832@163.com

Ethics approval Obtained

Competing interests None declared

Received 2022-07-09

Accepted 2022-07-25

► To cite

CAI Jieyan, LONG Chuanyong, LIU Yimin, et al. Determination of lead isotope ratios by inductively coupled plasma mass spectrometry and comparison of lead isotope ratios among different samples[J]. Journal of Environmental and Occupational Medicine, 2022, 39(8): 919-923.

► Link to this article

www.jeom.org/article/en/10.11836/JEOM22283

comparisons between biological and environmental samples, and the reported relative standard deviations (RSDs) of the main LIR ($^{207/206}\text{Pb}$ and $^{208/206}\text{Pb}$) fluctuate widely from 0.3% to 1%.

[Objective] To optimize inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS), obtain a better RSD, and determine LIRs of human blood, urine, and related environmental samples.

[Methods] The ICP-MS was optimized for operating conditions and parameters according to the sensitivity and RSD of LIR. The study subjects were 40 lead-exposed workers in a lead-acid battery factory and 2 lead poisoned children in a hospital. The samples included 40 blood and 40 urine samples from the workers before shift, 4 dust samples and 2 water samples in the workplace on the same day before shift, 2 blood and 3 urine samples from the children before hospital admission due to lead-poisoning, and 4 urine samples after medical treatment. After heating and acid digestion, the LIR ($^{207/206}\text{Pb}$ and $^{208/206}\text{Pb}$) of biological and environmental samples were determined by the optimized ICP-MS method. *t*-test and two-dimensional traceability graphics were adopted to analyze the detection results.

[Results] The calibrated RSDs of the LIR ($^{207/206}\text{Pb}$ and $^{208/206}\text{Pb}$) of lead isotope standard solution were 0.11% and 0.08% respectively, and the NIST-SRM-981 actual values were $0.915\,31\pm0.000\,97$ and $2.167\,0\pm0.001\,7$, respectively. When the total concentration of lead was greater than $5\,\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, the RSD of each isotope ratio was stable gradually; when the total concentration of lead was between $10\text{--}80\,\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, the RSD was below 0.20%. There were statistically significant differences in the blood and urine LIR ($^{207/206}\text{Pb}$ and $^{208/206}\text{Pb}$) of the lead-exposed workers ($t=5.831$, $P<0.001$; $t=21.021$, $P<0.001$), the LIR ($^{207/206}\text{Pb}$ and $^{208/206}\text{Pb}$) between workplace dust samples and workers' urine samples ($t=-6.879$, $P=0.038$; $t=12.521$, $P<0.001$), and the $^{208/206}\text{Pb}$ between workplace dust samples and workers' blood samples ($t=-10.46$, $P<0.001$), except the $^{207/206}\text{Pb}$ between workplace dust samples and workers' blood samples ($t=-0.12$, $P=0.912$). In the patients afflicted with lead poisoning, the projection points of LIR of blood and urine samples from the same individual were not at the same level in the two-dimensional model, nor was the LIR of urine samples before and after medical treatment of the same individual.

[Conclusion] The optimized ICP-MS can control the RSD of main LIR ($^{207/206}\text{Pb}$ and $^{208/206}\text{Pb}$) below 0.20%. There are differences in the LIR distributions of different samples.

Keywords: lead; inductively coupled plasma mass spectrometry; isotope ratio; blood; urine; dust; water

铅(lead, Pb)及其化合物对人体各系统均有毒性。如何科学地评价人体内铅暴露水平,查明铅来源,是铅污染防治的根本任务^[1]。目前常用的人体铅暴露实验室指标主要是血铅、尿铅、血锌原卟啉、尿 δ -氨基- γ -酮戊酸等,但这些指标只能定量评估人体的铅负荷,难以对铅的来源进行定性评价。铅在自然界中存在4种稳定的同位素: ^{208}Pb 、 ^{207}Pb 、 ^{206}Pb 、 ^{204}Pb 。不同来源的铅同位素比值(lead isotope ratio, LIR)不同,可作为一种“指纹”技术定性地反映环境中铅的特性,为铅污染的防治提供参考^[2-4]。尽管目前国内外也有一些关于人血或尿LIR溯源的报道^[1-3],但主要集中在对同一个体或不同个体间血样、尿样的比较,较少进行生物样品与环境样品间的比较,且主要LIR($^{207/206}\text{Pb}$ 、 $^{208/206}\text{Pb}$)测定精密度(relative standard deviation, RSD)的波动较大,在0.3~1%之间^[1,5-6]。有研究表明,RSD在0.4%以下时,测定结果较为可靠^[7]。本研究在前人研究的基础上,优化电感耦合等离子体质谱法(inductively coupled plasma mass spectrometry, ICP-MS)以获得更好的RSD,并对人体血、尿及相关环境样品LIR进行测定和分析,为铅污染防治提供参考。

1 材料与方法

1.1 仪器和试剂

NEXION 1000G 电感耦合等离子体质谱仪(美国 PerkinElmer), DS-360 智能石墨消解仪(中国广州格丹

纳公司), Milli-Q Reference 超纯水机(美国 Millipore), YINGTAI TG20 离心机(中国长沙英泰公司)。Triton™ X-100(德国 Sigma-Aldrich), 硝酸(HNO_3 ; BV-III, 美国 Fisher Chemical), 铅同位素标准物质 GBW04426(中国核工业北京地质研究院)、NIST-SRM-981(美国国家标准局), 超纯水(电阻率 $>18.2\,\text{M}\Omega\cdot\text{cm}$)。

1.2 溶液配制

0.1% HNO_3 +0.1% Triton™ X-100 稀释液配制:取500 mL 超纯水,加入0.5 mL HNO_3 、0.5 mL 曲拉通摇匀后备用。

GBW04426 标准溶液配制:将5 mg 铅同位素标准物质 GBW04426 置于50 mL 容量瓶中,分次加少量 HNO_3 加热溶解,加超纯水至刻度,配制成 $100\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的标准溶液,待用时再取1.0 mL 该溶液置于容量瓶中加入适量2% HNO_3 进一步稀释成 $20\,\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 的标准溶液。

NIST-SRM-981 标准溶液配制:将1 g 铅同位素标准物质 NIST-SRM-981 置于500 mL 容量瓶中,分次加少量 HNO_3 加热溶解,加超纯水至刻度,配制成 $2\,000\,\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的标准溶液,待用时再取适量的溶液置于容量瓶中稀释成 $20\,\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 的标准溶液。

1.3 样品采集与处理

1.3.1 样品采集 血样和尿样来自广东省英德市某铅蓄电池厂40名接铅工作人员以及广州市第十二人民医院职业病科铅中毒住院儿童2名。采用0.2% HNO_3 和去离子水对班前接铅工人和入院时儿童的局部皮

肤进行消毒,用含肝素钠的真空采血管采集肘部静脉血 4 mL,共采集工人血样 40 份,儿童血样 2 份;用聚乙烯广口瓶采集尿样约 50 mL,共采集班前接铅工人尿样 40 份,儿童入院时的尿样 3 份及驱铅治疗后的晨尿 4 份;在采集工人血、尿样的当天班前用洁净的 50 mL PE 离心管和棉球采集铅蓄电池厂工人工作场所的降尘约 1.0 g,共采集降尘样品 4 份;用洁净的 50 mL PE 离心管采集工人饮用的自来水约 50 mL,共采集水样 2 份。本研究经广州市第十二人民医院医学伦理委员会 [第(2018001)号]。

1.3.2 样品处理 血、尿样:通过石墨炉原子吸收光谱法定量测定血、尿样的总铅质量浓度,根据铅质量浓度分别取 0.1~0.5 mL 血样、0.4~2 mL 尿样品于 5 mL 离心管中,使待测样品质量浓度保持在 $20 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右。血、尿样分别与浓 HNO_3 以 1:1、5:1 的比例混合消化过夜,24 h 后用石墨消解仪 130°C 充分消解,在消化液中加入 0.1% HNO_3 +0.1% Triton™ X-100 稀释液准确定容至 4 mL,离心机以 $7200 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 、离心半径 5.5 cm,离心 5 min 后转移至 10 mL 离心管中,待测。

水样:取 10 mL 水样,置于 15 mL 离心管中,加入 0.5 mL 浓 HNO_3 , $90\sim 95^\circ\text{C}$ 消解至 1 mL,再用超纯水定容至 10 mL,待测。

车间降尘:取擦拭地面表面降尘的棉球及降尘约 1.0 g 置于 50 mL 离心管中,加入 5 mL 浓 HNO_3 , 24 h 后以 125°C 加热消解 120 min 至 1 mL,用超纯水定容至 50 mL 待测。若消解不完全则重复适量加酸加热至完全消解,取出冷却至室温,用超纯水适当稀释。

1.3.3 空白溶液的制备 空白血、尿样:取 20 个总铅质量浓度低于 $7.0 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 的铅蓄电池厂工人的血样 3 mL 和尿样 3 mL 分别置于 50 mL 的试管中混匀,混匀后的血、尿样总铅质量浓度低于 $7.0 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $1.0 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$;按“1.3.2”对样品进行相同处理。

空白尘样:以与擦拭地面同一批次的棉球为空白样按“1.3.2”中车间降尘处理方法进行处理。

1.4 铅同位素分析方法优化

1.4.1 仪器参数的优化 应用调谐液优化电感耦合等离子体质谱仪的运行参数,以达到最佳运行状态;以灵敏度(用信号响应值表示, counts per second, CPS)和 RSD 为指标,优化仪器的通用池技术、死时间、扫描次数、停留时间和重复次数等条件。

1.4.2 质量控制 采用铅同位素标准物质 GBW04426 校正质量歧视效应和仪器漂移。标准溶液中的 LIR 比较稳定,但浓度可能会影响仪器的灵敏度,所以将标

准溶液的浓度配制成与待测溶液浓度相近,以 GBW04426 铅同位素标准溶液为标准,对 NIST-SRM-981 铅同位素标准溶液($20 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)进行测定,并根据预设的校正公式对质量歧视进行校正。

1.5 同位素测定

以 GBW04426 标准溶液为校准品, NIST-SRM-981 标准溶液为质量控制与样品一同测定,样品测定顺序为样品空白、空白加标溶液、实际样品(10 个)、空白加标溶液,同时根据不同样品类型,以水样、尿样、血样、降尘为顺序进行分类测定。测完一个类型的样品后,对仪器进行清洗,再度校正仪器后进行下一个类型的样品的测定。同位素扫描顺序为 ^{204}Pb 、 ^{206}Pb 、 ^{207}Pb 、 ^{206}Pb 、 ^{208}Pb 、 ^{206}Pb 。

1.6 统计学分析

本研究采用 Excel 2010 录入数据和制图,数据分析由 SPSS 22.0 实现。以 $^{207}/^{206}\text{Pb}$ 为 X 轴,以 $^{208}/^{206}\text{Pb}$ 为 Y 轴,建立二维模型。对铅蓄电池厂工人的血、尿、环境铅 LIR 进行 t 检验和二维图形分析,对铅中毒患者的血、尿样 LIR 进行二维图形分析。检验水准 $\alpha=0.05$ 。

2 结果

2.1 优化后的仪器参数

优化后 ICP-MS 的基本运行参数及采集参数见表 1。

表 1 ICP-MS 的运行条件和参数

Table 1 Operating conditions and parameters of ICP-MS

仪器参数	参考值
基本运行参数	
雾化器流量	$1.02 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$
AMS 气流量	$0.1 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$
辅助气流量	$1.2 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$
等离子体气流量	$15 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$
电感耦合等离子体射频功率	1600 W
模拟电压	-1675 V
脉冲电压	950 V
质量甄别参数	0.25
数据采集参数	
通用池技术	标准模式
质量扫描模式	跳峰
检测器模式	双检测器模式
检测器死时间	35 / 40 ns
停留时间	1ms
扫描次数	20
扫描读数	1000
重复次数	1

2.2 质量控制结果

利用 NIST-SRM-981 进行 LIR 的质控,其测定值与证

书中标示值的比较见表 2。^{204/206}Pb、^{207/206}Pb、^{208/206}Pb 测定值的 RSD 分别为 0.37%、0.11%、0.08%，如表 3 所示。

表 2 NIST-SRM-981 实测值与证书值的比较

Table 2 Comparison of NIST-SRM-981 determined value and certificate value

铅同位素	GBW04426 校正系数	NIST-SRM-981 证书值($\bar{x} \pm s$)	NIST-SRM-981 实测值($\bar{x} \pm s$)
^{204/206} Pb	1.000 573	0.059 042±0.000 037	0.058 884±0.000 215
^{207/206} Pb	1.016 075	0.914 64±0.000 33	0.915 31±0.000 97
^{208/206} Pb	1.073 699	2.168 1±0.000 8	2.167 0±0.001 7

表 3 NIST-SRM-981 铅同位素标准溶液中铅同位素比值的
精密度

Table 3 LIR RSDs of NIST-SRM-981 lead isotope standard solution

测定次数	同位素比值		
	^{204/206} Pb	^{207/206} Pb	^{208/206} Pb
NIST-SRM-981-1	0.059 12	0.917 14	2.167 10
NIST-SRM-981-2	0.058 86	0.914 17	2.166 03
NIST-SRM-981-3	0.059 01	0.914 59	2.167 13
NIST-SRM-981-4	0.058 95	0.915 03	2.164 53
NIST-SRM-981-5	0.058 92	0.916 32	2.169 90
NIST-SRM-981-6	0.058 39	0.914 70	2.165 61
NIST-SRM-981-7	0.058 94	0.915 24	2.168 86
均数	0.058 89	0.915 31	2.167 02
标准偏差	0.000 22	0.000 97	0.001 72
RSD/%	0.37	0.11	0.08

2.3 样品中总铅质量浓度对同位素测定 RSD 的影响

总铅质量浓度为 0.2~80 μg·L⁻¹ 的 GBW04426 铅同位素标准溶液的测量 RSD 如图 1 所示。当溶液质量浓度较低时,主要 LIR(^{204/206}Pb、^{207/206}Pb、^{208/206}Pb)的 RSD 均有随总铅质量浓度升高而降低的趋势,其中^{204/206}Pb 的 RSD 变化最为明显,由总铅质量浓度为 0.2 μg·L⁻¹ 时的 2.10%降低至 10 μg·L⁻¹ 时的 0.16%。当总铅质量浓度大于 5 μg·L⁻¹ 时,各同位素比值的 RSD 逐渐稳定,当总铅质量浓度在 10 ~80 μg·L⁻¹ 时,各同位素比值的 RSD 均小于 0.20%。

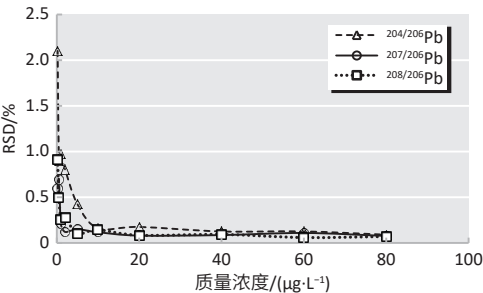


图 1 RSD 随总铅质量浓度变化曲线

Figure 1 Variation curves of RSD with total lead concentration

2.4 不同样品间 LIR

图 2 显示铅蓄电池厂接铅工人血、尿铅

LIR(^{207/206}Pb、^{208/206}Pb)分布的差异存在统计学意义($t=5.831, P<0.001$; $t=21.021, P<0.001$);车间降尘与尿样之间的 LIR(^{207/206}Pb、^{208/206}Pb)分布的差异也存在统计学意义($t=-6.879, P=0.038$; $t=12.521, P<0.001$);车间降尘与血样的^{207/206}Pb 分布的差异无统计学意义($t=-0.12, P=0.912$),但^{208/206}Pb 分布的差异存在统计学意义($t=-10.46, P<0.001$)。

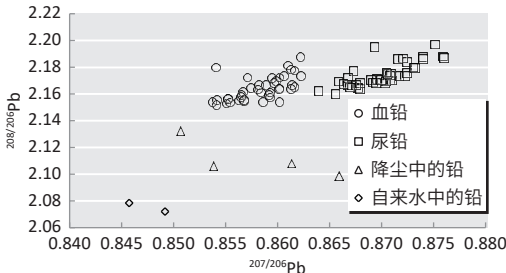


图 2 铅蓄电池厂接铅工人血、尿样与环境样品 LIR 分布

Figure 2 LIR distributions of blood and urine samples from workers and environmental samples from a lead-acid battery factory

图 3 显示,铅中毒患者中,同一个体血、尿样的 LIR 在二维模型中的投射点不在同一水平上,且驱铅治疗前后,同一个体尿样的 LIR 的分布在二维模型中也不在同一水平上;驱铅治疗前 A 患者的尿 LIR 在二维图中分布于左下角,治疗后该患者的尿 LIR(^{207/206}Pb、^{208/206}Pb)均变大,分布于右上角;B 患者在驱铅治疗后其尿 LIR(^{208/206}Pb)也变大。

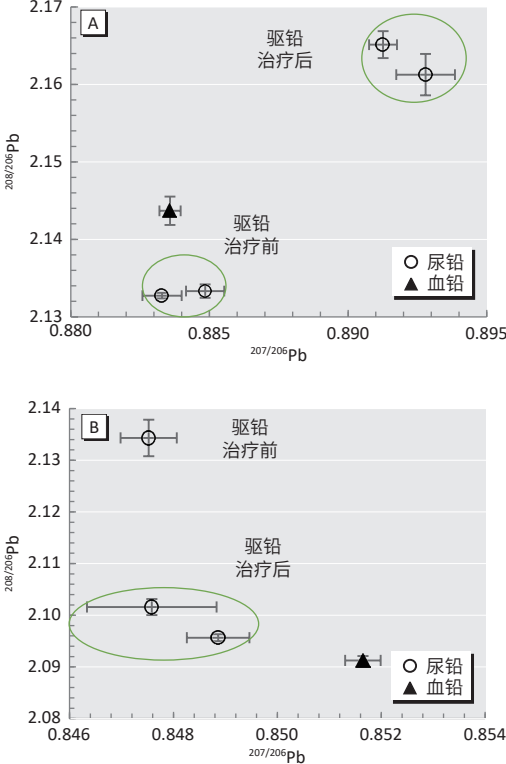


图 3 铅中毒患者 A(A)、患者 B(B)血、尿样 LIR 分布特征

Figure 3 LIR distributions of blood and urine samples of lead poisoned patient A (A) and patient B (B)

3 讨论

与传统的多接收器电感耦合等离子体质谱仪 (multi-receiver inductively coupled plasma mass spectrometry, MC-ICP-MS) 等能提供高 RSD 的同位素质谱技术相比, 进行参数优化后的 ICP-MS 拥有运行成本低、操作简单、检测效率高等优势。

本研究中, 当样品总铅质量浓度高于 $5 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 优化后的 ICP-MS 法测定铅同位素 RSD 为 $0.08\%\sim 0.37\%$, 优于传统 ICP-MS 法提供的 RSD ($< 0.5\%$)^[6, 8-9], 同时本研究通过比较该铅蓄电池厂接铅工人血、尿样及相关环境样品发现, 不同样品的 LIR 分布之间存在差异。理论上车间内的降尘、空气中的铅应与工人体内的铅来自同一污染源, 但本研究的结果却是接铅工人的血或者尿 LIR 分布均与车间降尘不同, 这可能是由于在环境采样前, 车间进行了冲洗, 冲走了沉积在地表的粉尘; 也有可能是工厂所使用的含铅原料不完全来自同一地区, 各原料中的 LIR 相互影响, 致使进入人体及沉积在地表的粉尘的 LIR 分布不同; 此外, 铅在进入人体后, 其同位素的比例可能由于机体的消化、代谢等而发生变化。

本研究发现, 同一个体的血、尿 LIR 之间存在差异。铅进入人体后, 进入血液循环, 大约有 90% 与血红细胞稳定结合, 从而在机体中呈现一种比较稳定的状态, 而尿铅仅是机体中铅排出的途径之一^[10]。这在铅中毒患者中也很好地体现出来, 铅中毒患者的 LIR 差异不仅体现在血铅、尿铅上, 而且同一个体在治疗前后, 其尿铅的 LIR 分布也存在差异。曾静等^[1]、Nakata 等^[11]分别在对大鼠、山羊的实验中, 观察到不同脏器组织、毛发以及血液之间的 LIR 分布存在差异, 并指出造成同一个体不同生物样品之间 LIR 分布不同的原因可能是铅在进入机体后产生了同位素分馏效应。

综上, 本研究优化后的 ICP-MS 法可将主要 LIR($^{207/206}\text{Pb}$ 、 $^{208/206}\text{Pb}$) 的 RSD 控制在 0.20% 以下。不同样品的 LIR 分布之间存在差异。

参考文献

[1] 曾静, 闫赖, 欧阳荔, 等. 电感耦合等离子体质谱法分析大鼠血、毛发

及脏器中铅浓度及同位素比值[J]. 分析化学, 2011, 39(8): 1176-1180.

ZENG J, YAN LL, OUYANG L, et al. Determination of lead concentration and isotopic ratios of blood, hair and tissues in rats by inductively coupled plasma mass spectrometry[J]. Chin J Anal Chem, 2011, 39(8): 1176-1180.

[2] PATEL MM, ADRIANNE H, JONES R, et al. Use of lead isotope ratios to identify sources of lead exposure in Alaska Natives[J]. Int J Circumpolar Health, 2008, 67(2/3): 261-268.

[3] OULHOTE Y, LE BOT B, POUPON J, et al. Identification of sources of lead exposure in French children by lead isotope analysis: a cross-sectional study[J]. Environ Health, 2011, 10(1): 75.

[4] FILLION M, BLAIS JM, YUMVIHOZE E, et al. Identification of environmental sources of lead exposure in Nunavut (Canada) using stable isotope analyses[J]. Environ Int, 2014, 71: 63-73.

[5] 吴智威. ICP-QMS同位素分析及其在农产品产地溯源中的应用[D]. 武汉: 中国地质大学, 2019.

WU Z W. Isotope ratios analysis by ICP-QMS and its application for tracing geographical origins of agriculture products[D]. Wuhan: China University of Geosciences, 2019.

[6] 李惠玲, 周博, 张宏顺, 等. 血铅浓度和铅同位素比值同时测定的电感耦合等离子体质谱法[J]. 中华劳动卫生职业病杂志, 2013, 31(11): 871-873.

LI HL, ZHOU B, ZHANG HS, et al. Determination of lead and isotope ratios in whole blood by inductively coupled plasma mass spectrometry[J]. Chin J Ind Hyg Occup Dis, 2013, 31(11): 871-873.

[7] GWIAZDA R, CAMPBELL C, SMITH D. A noninvasive isotopic approach to estimate the bone lead contribution to blood in children: implications for assessing the efficacy of lead abatement[J]. Environ Health Perspect, 2005, 113(1): 104-110.

[8] 方亚敏, 朱圆圆, 张慧敏, 等. 铅同位素比值法对污染源性的研究[J]. 中国卫生检验杂志, 2013, 23(11): 2413-2416.

FANG YM, ZHU YY, ZHANG HM, et al. Determination of lead isotope ratios in soil by inductively coupled plasma mass spectrometry and source identification[J]. Chin J Health Lab Technol, 2013, 23(11): 2413-2416.

[9] 陈锦芳, 郑金玲, 叶龙翔, 等. ICP-MS测定PM_{2.5}中痕量重金属及铅同位素[J]. 分析试验室, 2014, 33(4): 399-403.

CHEN JF, ZHENG JL, YE LX, et al. Determination of trace heavy metals and lead isotopes in PM_{2.5} by inductively coupled plasma mass spectrometry[J]. Chin J Anal Lab, 2014, 33(4): 399-403.

[10] 彭荣飞, 周宏伟, 黄聪, 等. 应用铅同位素比值研究广州市儿童铅负荷的来源[J]. 中国卫生检验杂志, 2014, 24(9): 1331-1333.

PENG RF, ZHOU HW, HUANG C, et al. Study on children lead load source in Guangzhou by lead isotope ratio[J]. Chin J Health Lab Technol, 2014, 24(9): 1331-1333.

[11] NAKATA H, NAKAYAMA SM, YABE J, et al. Reliability of stable Pb isotopes to identify Pb sources and verifying biological fractionation of Pb isotopes in goats and chickens[J]. Environ Pollut, 2016, 208: 395-403.

(英文编辑: 汪源; 责任编辑: 汪源)