

# Hochauflösende resonante Laserionisations-Massenspektrometrie zur Ultraspurenbestimmung von $^{41}\text{Ca}$ in biomedizinischen Untersuchungen

Ch. Geppert, P. Schumann, N. Trautmann\*, K. Wies und K. Wendt  
Institut für Physik, \*Institut für Kernchemie,  
Johannes Gutenberg-Universität Mainz

T. Walczyk, E. Denk  
Institut für Ernährungswissenschaften,  
ETH, Zürich

Zum Ultraspurenachweis seltener Isotope, die von kommerziellen Massenspektrometern nicht getrennt werden können, ist ein zusätzlicher selektiver Ionisationsschritt der Isotope notwendig. Ein Ansatz hierfür ist die selektive Anregung der Atome mittels resonanter Laserstrahlung, die Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS). Die hierbei mehrstufig angeregten Atome werden aus ihrem resultierenden energetisch hohen Zustand ionisiert und anschließend in einem Massenspektrometer nach ihrer Masse getrennt und nachgewiesen.

Dabei werden je nach verwendetem Lasersystem die unterschiedlichen Elementen einer zu messenden Probe oder sogar die unterschiedlichen Isotope eines einzelnen Elements aufgelöst. Letzteres wurde mit Hilfe von drei spektral schmalbandigen Diodenlasern in Kombination mit einem Quadrupol-Massenspektrometer in der Arbeitsgruppe LARISSA am Institut für Physik in Zusammenarbeit mit dem Institut für Kernchemie realisiert. Dieser Aufbau wird derzeit zu analytischen Messungen des Ultraspurenisotops  $^{41}\text{Ca}$  für biomedizinische Fragestellungen eingesetzt und zum Routineverfahren weiterentwickelt.

$^{41}\text{Ca}$  ist ein Ultraspurenisotop mit einer geringen relativen Häufigkeit von nur ca.  $10^{-15}$ . Es wird durch Einfang von Neutronen der Höhenstrahlung gebildet und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 104.000 Jahren hauptsächlich durch Elektroneinfang. Aufgrund der Zerfallsart und der langen Halbwertszeit ist eine radiometrische Ultraspurenanalyse des Radioisotops  $^{41}\text{Ca}$  nur schlecht möglich. Deshalb wird eine Detektionsmethode mit dem direkten Zählen der  $^{41}\text{Ca}$  Atome angewandt, wie es beispielsweise die Beschleuniger- oder Laser-Massenspektrometrie darstellen.

Durch anthropogene Produktion wird  $^{41}\text{Ca}$  auch künstlich, teilweise unbeabsichtigt, erzeugt, was zu Anreicherungen des Isotops bis in den Bereich von  $10^{-5}$  führt. Das Bestimmen dieser erhöhten  $^{41}\text{Ca}$  Konzentrationen ist beispielsweise bei kerntechnischen Anlagen wichtig. Von besonderem Interesse ist derzeit die Verwendung von  $^{41}\text{Ca}$  als Tracer für biomedizinische in-vivo Studien zur Osteoporose-Prävention und Behandlung. Für diese Studien bietet sich als Alternative zur aufwendigen Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) die hochauflösende RIMS an.

Im Rahmen des „Fifth European Framework Program“ Projekts werden die Einflussmöglichkeiten sowohl zur Prävention als auch zur Therapie der Knochenkrankheit Osteoporose über die Ernährung unter Verwendung von  $^{41}\text{Ca}$  als neuartigem untergrundfreien Tracer untersucht.

Nach einmaliger Verabreichung des Tracers wird bei verschiedenen Testpersonen in einem Zeitraum bis zu mehreren hundert Tagen die Migration des  $^{41}\text{Ca}$  im Körper über Ausscheidungsstudien verfolgt. Dazu wurden fünf  $^{41}\text{Ca}$  Abklingkurven mittels RIMS bestimmt, gemessen für fünf Patienten. Die hierzu

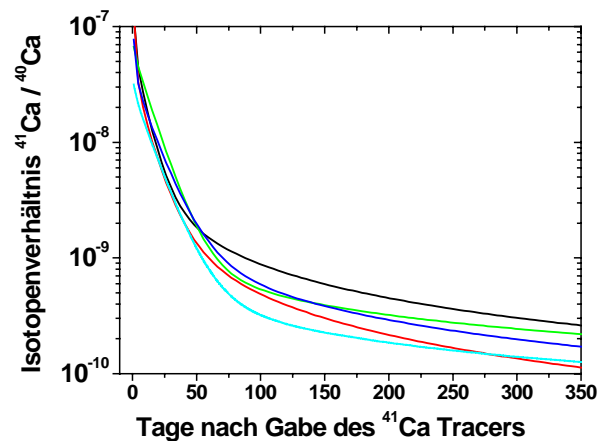


Abbildung 1: Abklingkurven des  $^{41}\text{Ca}$  Isotopenverhältnisses in Urinproben.

vermessenen Proben stammen aus einem Zeitfenster von direkt nach der Gabe des Tracers bis zu 300 Tagen. An die gemessenen Isotopenverhältnisse der einzelnen Proben wurde eine zweikomponentige Funktion der Form  $y = a \cdot x^b + c \cdot e^{dx}$  gefittet und damit die Abklingkurven verifiziert.

Zur Kalibration des Mainzer RIMS Aufbaus wurden Referenzproben des Institute for Reference Materials and Measurements, Geel, Belgien, zur Verfügung gestellt, welche die Linearität des Verfahrens demonstrieren.

Der RIMS Aufbau mit schmalbandigen Diodenlasern hat sich damit zu einem Routine-Meßverfahren entwickelt, das Messungen des relativen  $^{41}\text{Ca}$  Isotopenverhältnisses bis in einen Bereich von  $10^{-13}$  ermöglicht.