

# **$^{175}\text{Hf}$ 的半衰期测量**

张雄寓<sup>1,2,3</sup>, 丁有钱<sup>3</sup>, 王秀凤<sup>3</sup>, 张生栋<sup>3</sup>, 马 鹏<sup>3</sup>, 刘峙嵘<sup>1,2,\*</sup>

1. 东华理工大学 省部共建核资源与环境国家重点实验室培育基地, 江西 南昌 330013;
2. 东华理工大学 核科学与工程学院, 江西 南昌 330013;
3. 中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413

**摘要:**  $^{175}\text{Hf}$ 现有的半衰期数据偏少且分歧较大, 对核参数的准确使用不利。本实验通过加速器质子束流轰击 $^{175}\text{Lu}$ , 并使用HDEHP萃淋树脂进行离子交换, 得到无载体无 $^{181}\text{Hf}$ 干扰的高纯度 $^{175}\text{Hf}$ 液体测量源, 对其中的杂质 $^{65}\text{Zn}$ 与 $^{56}\text{Co}$ 的去污因子分别为 $5.2 \times 10^3$ 与 $2.3 \times 10^3$ ; 引入一固定位置的监督源 $^{137}\text{Cs}$ 与 $^{175}\text{Hf}$ 进行了40 d的连续测量, 对343 keV以及661 keV  $\gamma$ 射线计数率的比值关于测量时间进行线性拟合, 得到 $^{175}\text{Hf}$ 的半衰期为( $70.73 \pm 0.25$ ) d, 并对测量结果进行了相关检验。

**关键词:**  $^{175}\text{Hf}$ ; 半衰期; 无载体

**中图分类号:** TL816    **文献标志码:** A    **文章编号:** 0253-9950(2017)03-0218-05

**doi:** 10.7538/hhx.2017.39.03.0218

## **Half-Life Measurement of $^{175}\text{Hf}$**

ZHANG Xiong-yu<sup>1,2,3</sup>, DING You-qian<sup>3</sup>, WANG Xiu-feng<sup>3</sup>,  
ZHANG Sheng-dong<sup>3</sup>, MA Peng<sup>3</sup>, LIU Zhi-rong<sup>1,2,\*</sup>

1. State Key Laboratory Breeding Base of Nuclear Resources and Environment,  
East China University of Technology, Nanchang 330013, China;
2. Academy of Nuclear Science and Engineering, East China University of Technology, Nanchang 330013, China;
3. China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(126), Beijing 102413, China

**Abstract:** The existing data of  $^{175}\text{Hf}$  half-life are few and have large differences, which is unfavorable to use nuclear parameters accurately. In this experiment,  $^{175}\text{Lu}$  was bombarded by accelerator proton beam and purified by HDEHP extraction leaching resin. Then high purity  $^{175}\text{Hf}$  was obtained, which is free carrier and no interference of  $^{181}\text{Hf}$ . Decontamination factors for  $^{65}\text{Zn}$  and  $^{56}\text{Co}$  respectively are  $5.2 \times 10^3$  and  $2.3 \times 10^3$ .  $^{137}\text{Cs}$ , as a supervision source, was measured lasting 40 days with  $^{175}\text{Hf}$ . The half-life value of  $^{175}\text{Hf}$  is ( $70.73 \pm 0.25$ ) d obtained by fitting the relation between the ratio of 343 keV and 661 keV  $\gamma$ -ray counting rate and time.

**Key words:**  $^{175}\text{Hf}$ ; half-life; non-carrier

---

收稿日期:2017-01-05; 修订日期:2017-03-22

基金项目:国家自然科学基金资助项目(11375043); 江西省科技支撑计划资助项目(2015BBG70011)

作者简介:张雄寓(1991—),男,甘肃景泰人,硕士研究生,核科学与技术专业,E-mail:1768529453@qq.com

\*通信联系人:刘峙嵘(1969—),男,江西吉安人,博士,教授,核燃料循环与材料专业,E-mail: Zhrlu@ecit.cn

<sup>175</sup>Hf是电子俘获(EC)方式衰变核素( $Q_{ec}=685.8\text{ keV}$ ),其衰变至基态<sup>175</sup>Lu时共发射9条较低能量的 $\gamma$ 射线,其中发射强度最大的 $\gamma$ 射线能量为343.4 keV<sup>[1]</sup>。截至目前,公开发表的这一衰变过程的半衰期测量值仅有4个,各数据之间存在一定分歧。早在1949年,Wilkinson等<sup>[2]</sup>利用加速器首次制备出<sup>175</sup>Hf,并使用云母窗计数器对共沉淀法纯化后的<sup>175</sup>Hf首次进行了半衰期测量。限于分离效果与探测器,给出了一个含有较大不确定度的半衰期结果( $70\pm2$ )d。1963年Rao等<sup>[3]</sup>也进行过相关测量,但给出的结果并无本质的改变。Popov等<sup>[4]</sup>利用反应堆热中子辐照纯金属Hf制备出较大量的<sup>175</sup>Hf,使用HPGe进行130 d的测量后,给出了与之前结果不一致的半衰期结果( $71.85\pm1.31$ )d。2012年方开洪等<sup>[5]</sup>通过中子发生器产生的快中子辐照<sup>176</sup>Hf得到了较纯的<sup>175</sup>Hf,并对影响活度测量准确性的自吸收、符合相加等进行了修正,最终使用卡方检验(CHI-square test)的方法,确定出伴随有较小不确定度的半衰期结果( $70.65\pm0.19$ )d。目前多数数据库依然引用20世纪50年代的半衰期结果( $70\pm2$ )d作为推荐值,这一值较最新的半衰期发表值小9.2%,而较Popov等<sup>[4]</sup>的结果小2.6%。推荐值的不确定度较大,已不能满足核参数准确使用的要求。

在采用HPGe谱仪进行准确的半衰期测量时,需要对死时间造成的测量误差进行必要校正。这是由于死时间内不产生计数,而采用活时间表示的计数率在死时间较大时会由于较多的真时间的丢失而造成计数率偏小,并随着死时间变化而变化<sup>[6]</sup>。测量源中所包含的放射性杂质会影响到半衰期的准确得出<sup>[7]</sup>,而且当其中含有长寿命核素时,还需要关注其中存在的中低频波动引起的不确定度分量<sup>[8]</sup>,这需要在半衰期测量中予以考虑和表示,因而进行最大程度的杂质去除无疑是最佳的选择。本工作拟通过<sup>175</sup>Lu(p,n)制备无<sup>181</sup>Hf重峰干扰的<sup>175</sup>Hf放射源,对其进行必要的化学分离后选择一合适的长寿命监督源进行较准确地测量。

## 1 <sup>175</sup>Hf 半衰期测量原理及操作

为减小统计误差对结果的影响,测量选择在较高计数率下进行,这意味着较大的测量系统死时间,需要考虑死时间与脉冲堆积造成的计数率丢失

对准确测量的影响。这对于短寿命核素通常会引入一固定位置的长寿命监督源,通过两者计数率相比消除死时间与脉冲堆积带来的误差,其假设前提是监督源与待测源处于完全相同的测量环境,受相同的系统误差影响<sup>[9]</sup>。本实验采用固定位置的<sup>137</sup>Cs作为监督源与<sup>175</sup>Hf同时测量,通过两者全能峰计数率相比来实现对这一误差的消除或减小,该方法称为R值法。根据放射性衰减公式 $N_t=N_0e^{-\lambda t}$ ,R值法原理可表达为式(1)。

$$R_t = \frac{N_t}{N'_t} = \frac{N_0}{N'_0} e^{-(\lambda-\lambda')t} \quad (1)$$

式中: $R_t$ 为待测源和监督源在任意时刻t的计数率比值; $N_t$ 、 $N_0$ 分别为t时刻和初始时刻待测源计数率; $N'_t$ 、 $N'_0$ 分别为监督源t时刻和初始时刻的计数率; $\lambda$ 、 $\lambda'$ 分别为待测源和监督源的衰变常数。对一初始计数率为 $N''_0$ 的放射性核素,测量真时间 $\Delta t$ 内的平均计数率 $\bar{N}'$ 可表示为式(2)。

$$\begin{aligned} \bar{N}' &= N_{\text{tot}}/\Delta t = \int_t^{t+\Delta t} N''_0 e^{-\lambda t} dt / \Delta t \\ &= \frac{N''_0 e^{-\lambda t}}{\lambda \Delta t} (1 - e^{-\lambda \Delta t}) \end{aligned} \quad (2)$$

式中, $N_{\text{tot}}$ 为 $\Delta t$ 内总计数。将式(2)代入式(1),并在两边同时取对数,得

$$\ln R_t = -(\lambda - \lambda')t + (b_1 - b_2) \quad (3)$$

只需各次的测量真时间 $\Delta t$ 相同, $b_1$ 、 $b_2$ 均为常数,

$$b_1 = \ln N_0 + \ln [1 - e^{-\lambda \Delta t} / (\lambda \Delta t)] \quad (4)$$

$$b_2 = \ln N'_0 + \ln [1 - e^{-\lambda' \Delta t} / (\lambda' \Delta t)] \quad (5)$$

由于衰变常数 $\lambda$ 、 $\lambda'$ 为常数,式(3)为一线性式。对每一个 $\ln R_t$ 关于各自对应测量时刻t在同一坐标轴进行线性拟合,并从拟合结果中扣除监督源的衰变常量 $\lambda'$ ,通过 $T_{1/2}=\ln 2/\lambda$ 的转换即可得知放射性核素的半衰期值( $T_{1/2}$ )。

测量使用同轴HPGe以及Gamma Vision能谱获取及分析软件,采用自动解谱。为减小R值法造成的统计不确定度增大,并充分考虑到源的位置移动而造成的效率变化,长时间测量中的时间误差,实验中先调整参考源位置,使所关注<sup>137</sup>Cs的661 keV计数率在50 s<sup>-1</sup>左右,此时<sup>175</sup>Hf的343 keV全能峰计数率约为500 s<sup>-1</sup>,而后将测量源与监督源固定在同一测量架上,并对探头与测量架的相对位置进行标记。设置固定真时间的连续存谱,每个谱的测量时间为5 h,开始测量后每隔3 d对电脑显示时间根据网络时间进行校正。测量原始数据为<sup>175</sup>Hf的343 keV全能峰平

均计数率与固定位置的监督源<sup>137</sup>Cs 的 661 keV 全能峰平均计数率的比值。

## 2 实验部分

### 2.1 试剂与仪器

天然纯金属 Lu, 纯度大于 99%, 北京有色金属与稀土应用研究所生产制靶; HDEHP 树脂, 孔径 120~180 μm, 核工业北京化工冶金研究院;<sup>137</sup>Cs 标准溶液, 活度  $1.5 \times 10^4$  Bq, 中国原子能科学研究院生产; HNO<sub>3</sub>, 分析纯, 西陇化工股份有限公司; HCl, HF, 分析纯, 北京化工厂。

BEGE-3830 型(宽能) HPGe, 美国 CANBERRA 公司, 对<sup>60</sup>Co 的 1 332 keV γ 射线的半峰宽(FWHM)=1.8 keV; GEM-40P4 型(同轴) HPGe, 美国 ORTEC 公司, 对<sup>60</sup>Co 的 1 332 keV γ 射线的 FWHM=1.8 keV。

### 2.2 <sup>175</sup>Hf 放射源制备与纯化

**2.2.1 <sup>175</sup>Hf 生产** 采用离子溅射将纯金属 Lu 均匀镀在回旋加速器的专用 Cu 质衬底表面, 并在原子高科股份有限公司的束流强度为 50 nA 的回旋加速器产生的 15.6 MeV 质子束流中轰击 1 h。冷却一段时间后将靶取出, 置于宽能 HPGe 25 cm 位置处定性。

**2.2.2 分离操作** 使用刀片轻刮从加速器中取出的 Lu 靶的离子溅射面(为避免溶解过程中带入大量高能放射性杂质而采用机械分离), 将取下的灰色金属粉末收集在聚四氟乙烯烧杯中定量; 加入过量浓硝酸置于电炉上加热, 加速硝酸的蒸发, 溶液蒸发至微量时加入一定量的 8 mol/L HCl 转换溶解液的酸性环境并作为上柱液。取一定量的 HDEHP 树脂, 湿法装于直径为 6 mm、高 5.5 cm 的聚乙烯柱中, 至柱面不再下沉时加入 15 mL 左右的 8 mol/L HCl 预平衡。使用胶头滴管将上柱液转移至聚乙烯柱中。先使用 8 mol/L HCl 淋洗, 收集流出的淋洗液进行能谱测量。至流出液的放射性计数与本底水平一致时, 换用 1 mol/L HCl 和 0.2 mol/L HF 混合酸解吸, 将收集的解吸液蒸发浓缩, 并转移至 20 mL 液闪管中密封定量, 作为测量源使用。

## 3 结果和讨论

### 3.1 放化分离

使用宽能 HPGe 进行的定量计算表明, 加速器中取出的 Lu 靶中含有约  $2.5 \times 10^6$  Bq 的<sup>175</sup>Hf 以及

$1 \times 10^7$  Bq 左右的<sup>65</sup>Zn、<sup>56</sup>Co 与少量的<sup>48</sup>Sc、<sup>156</sup>Tb, 能谱中主要核素的能谱示于图 1。由图 1 可知,<sup>175</sup>Hf 的所有特征 γ 射线均集中在 500 keV 以下的低能区, 含有较高能量的杂质核素尤其是<sup>65</sup>Zn, 对低能区贡献了非常高的康普顿本底。

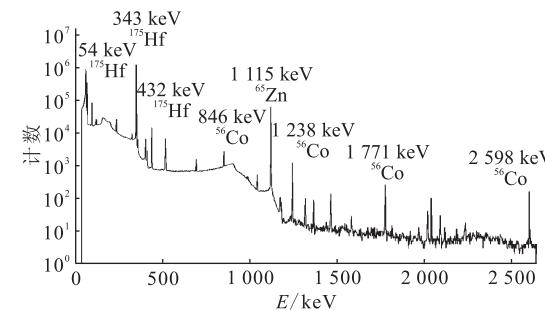
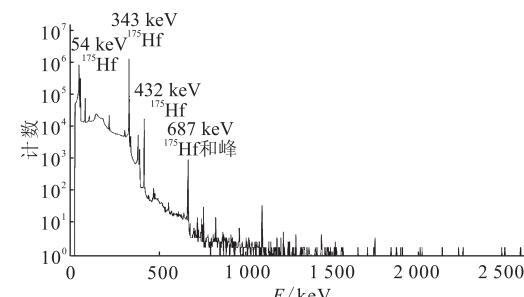


图 1 分离前放射源中主要核素及其能谱

Fig. 1 Main nuclides and peak information before separation

对使用 8 mol/L HCl 淋洗的解吸液进行能谱测量, 只见少量的<sup>175</sup>Hf 以及大量<sup>56</sup>Co、<sup>65</sup>Zn。分离结束后对收集的混合酸淋洗液进行 γ 能谱测量, 结果示于图 2。由图 2 可知: 能谱中 687 keV 以后的全能峰总计数以及康普顿本底计数都非常低, 而 1 116 keV 以后更无明显能峰存在。



1 mol/L HCl 和 0.2 mol/L HF 解吸

图 2 分离后放射源中主要核素及其能谱

Fig. 2 Main nuclides and peak information after separation

分离前、后样品的定量分析结果列入表 1。由表 1 可知, 对<sup>65</sup>Zn 与<sup>56</sup>Co 的去污因子分别为  $5.2 \times 10^3$  与  $2.3 \times 10^3$ , <sup>175</sup>Hf 的化学收率为 94%。比较分离前、后的能谱(图 1、2)可以看出, 使用 HDEHP 离子交换树脂在本实验中进行的<sup>175</sup>Hf 与<sup>65</sup>Zn、<sup>56</sup>Co 等放射性杂质的分离显示了良好的效果。收集到的放射源中几乎无可见的<sup>56</sup>Co, 完全无<sup>156</sup>Tb、<sup>48</sup>Sc, 只存在微量<sup>65</sup>Zn。该法

除去了<sup>175</sup>Hf中含有的高能量长寿命杂质核素,测量源中的放射性杂质活度与天然本底水平一致,实现了无载体纯<sup>175</sup>Hf的制备。

表1 分离前、后主要核素相关信息

Table 1 Main nuclides information before and after separation

核素	分离前活度/Bq	分离后活度/Bq
<sup>175</sup> Hf	(3.6~3.7)×10 <sup>5</sup>	3.5×10 <sup>5</sup>
<sup>65</sup> Zn	(1.1~1.2)×10 <sup>5</sup>	20
<sup>56</sup> Co	2.5×10 <sup>4</sup>	10
其他	约1×10 <sup>4</sup>	天然本底水平

### 3.2 线性拟合

选择<sup>175</sup>Hf的最大分支比的特征 $\gamma$ 射线343 keV的全能峰与<sup>137</sup>Cs的661 keV的特征 $\gamma$ 射线全能峰,并按照公式(3)所示将计数率进行相比得到原始数据,对原始数据的对数值关于测量时间t进行线性拟合,结果示于图3。

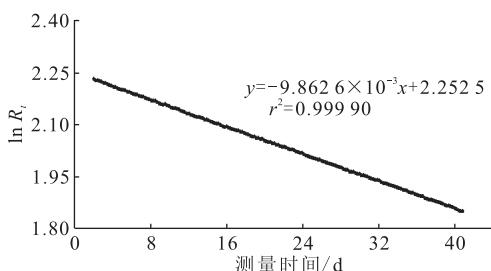
图3  $\ln R_t$  关于测量时间的线性拟合

Fig. 3 Linear fit of  $\ln R_t$  versus measurement time

通过拟合斜率值的转变,得到包含<sup>137</sup>Cs衰变信息的半衰期为70.28 d,按照式(3)的表示,从拟合结果中扣除<sup>137</sup>Cs( $T_{1/2}=(30.08\pm 0.09)$  a)的贡献后得到<sup>175</sup>Hf半衰期结果为70.73 d。由于比值法降低了测量点的统计性,拟合图像中存在较为明显的起伏波动,为了发现测量中存在的系统误差和异方差性,对测量值的残差关于时间作图示于图4。由图4可知,采用监督源进行测量拟合值的残差绝大部分集中于 $\pm 1.5\%$ 范围内,在时间轴上均匀分布,整体上不存在异方差性,使用线性最小二乘法进行实验数据处理可行。相比于直接对<sup>137</sup>Cs计数率进行的线性拟合,残差值明显偏大,这是由于<sup>137</sup>Cs计数率较低而具有较大的统计不确定度,通过R值法对这种不确定度进行了传递。在不考虑<sup>137</sup>Cs衰变的情况下,总测量时间

内,其661 keV全能峰平均计数率为 $50.44 \text{ s}^{-1}$ ,不确定度为 $1.1\%$ ,测量系统稳定性良好。

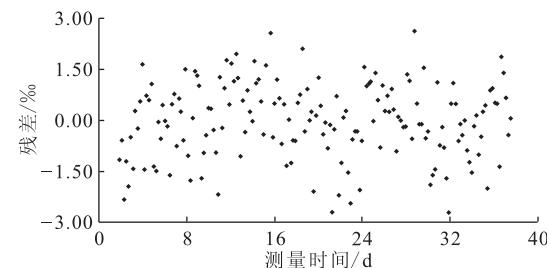
图4  $\ln R_t$  关于时间的线性拟合的残差值

Fig. 4 Residual of linear fit of  $\ln R_t$  versus time

### 3.3 不确定度分析

根据相对测量中活度A与计数率 $N_e$ 以及探测效率 $\eta$ 、分支比 $\epsilon_\gamma$ 的关系 $A=\frac{N_e}{\eta\epsilon_\gamma}$ 看出,活度与计数率存在一一对应。本次实验长达40 d的测量过程中,保持测量源和监督源相对于HPGe探头的位置不动,探测效率未发生改变,因而可以不进行效率刻度也无需考虑效率刻度的不确定度对<sup>175</sup>Hf活度修正的影响。

#### 1) 监督源半衰期引入的不确定度

考虑到<sup>175</sup>Hf半衰期较<sup>137</sup>Cs半衰期的差别不可忽略。采用式(3)处理时,需从拟合结果中扣除监督源衰变常数值的同时考虑引入的监督源半衰期值的不确定度对于准确测量的影响。

$$\frac{\sigma(\lambda)}{\lambda} = \frac{\sigma(T_{1/2})}{T_{1/2}} = \frac{T_{1/2}}{T'_{1/2}} \cdot \frac{\sigma(T'_{1/2})}{T'_{1/2}} \quad (6)$$

式中: $T_{1/2}$ 和 $T'_{1/2}$ 分别为<sup>175</sup>Hf和<sup>137</sup>Cs的半衰期; $\sigma(T'_{1/2})/T'_{1/2}$ 和 $\sigma(T_{1/2})/T_{1/2}$ 分别表示<sup>137</sup>Cs和<sup>175</sup>Hf半衰期的相对不确定度。

#### 2) 线性拟合

由<sup>175</sup>Hf的343 keV与<sup>137</sup>Cs的661 keV $\gamma$ 射线全能峰计数率相比,以及电压的不稳定造成的谱仪高压呈现高频率波动,进而引起的探测效率的小幅度高频率震荡变化的不确定度可由线性拟合的实验标准差(s)来表示,如式(7):

$$s(\lambda) = \left[ \frac{n \sum v_i^2}{(n-2)[n(\sum t_i^2) - (\sum t_i)^2]} \right]^{1/2} \quad (7)$$

式中: $v_i$ 表示线性拟合的残差值;n为测量点数量; $t_i$ 为每个谱的测量时间。

#### 3) 系统稳定性

<sup>175</sup>Hf的半衰期较长,且本工作进行了长时间

的连续测量,需要考虑引入的长寿命监督源<sup>137</sup>Cs的γ射线以及微量<sup>65</sup>Zn的γ射线康普顿散射本底对解谱的影响,导致拟合半衰期结果可能出现缓慢增大;以及潜在的影响仪器稳定性的环境温度的变化、液氮的消耗与补充等导致效率偏移,直接反映在残差在某一时间段内的整体趋势性涨落变化中(图4)。该项不确定度分量与总测量时间相关,长时间的测量有利于减小该种情况带来的不确定度影响,可表达为式(8):

$$\frac{\sigma(T_{1/2})}{T_{1/2}} \approx \left[ \frac{2}{\lambda t'} \sqrt{\frac{2}{a+1}} \right] \frac{\sigma(B)}{B} \quad (8)$$

式中: $t' = 3512173$  s,总跟踪测量时间; $a$ ,下降因子,由图4中的残差点的低频规律性波动决定,图4中上下各有3个左右的拐点,因而选择3; $B$ ,统计计数,本工作选择最小测量计数。将上述分析计算的三个不确定度项以及统计不确定度的具体数值、分析方法的类型列入表2。由表2可得合成相对不确定度为0.36%( $k=1$ ),计算得半衰期为( $70.73 \pm 0.25$ ) d。

表2 <sup>175</sup>Hf半衰期测量不确定度分析  
Table 2 Uncertainty analysis  
of <sup>175</sup>Hf half-life measurement

不确定度来源	相对不确定度/%	评定类型
监督源半衰期	<0.02	B
线性拟合	0.04	A
系统稳定性	0.16	B
统计	0.31	A
合成相对不确定度	0.36	

注: $k=1$

采用<sup>137</sup>Cs与待测源同时测量时,半衰期结果及不确定度必然受监督源的统计性影响,因而监督源的计数率不能太低,测量时间不宜太短;考虑到引入的监督源会增加测量系统的死时间而出现其他问题,并且当其中存在高能γ射线时,其康普顿散射本底势必对待测核素峰面积的准确计算产生影响,因而监督源的计数率不宜太大。不确定度主要来源于计数统计以及<sup>137</sup>Cs监督源的康普顿散射本底对准确解谱致半衰期值的影响。

如果能够制备纯的测量源完全可以使用电离室进行稳定的长期测量<sup>[10]</sup>,但从放射源的纯化难度来考虑,HPGe依然是不可取代的。因而对于纯的源,使用HPGe测量含杂质少的放射源,可以在同样的计数率下减小测量系统死时间或在同样的

死时间下减小测量的统计不确定度,并且能避免大量具有高能γ射线的杂质核素对于测量的影响。

## 4 结 论

本工作制得了无重峰干扰、足够大量的无载体<sup>175</sup>Hf放射源;对于特定能量的γ射线采用固定位置的跟踪测量,可以避免人为造成的效率偏移产生的测量误差以及采用绝对测量中的诸多修正项;而采用连续测量的方法,在很大程度上弥补了短的跟踪测量时间内的测量统计不够大的问题,因而有长时间的测量效果。

相较于前人的工作,本工作最大的优势在于制备了放化纯的<sup>175</sup>Hf放射源,并通过引入一长寿命<sup>137</sup>Cs监督源对死时间影响的计数率进行校正,提高了测量结果的准确度,最终得到半衰期结果为( $70.73 \pm 0.25$ ) d。

## 参考文献:

- [1] Firestone R B, Shirley R S, Baglin C M, et al. Table of isotopes[M]. 8th Edition. New York: John Wiley & Sons INC, 1996.
- [2] Wilkinson G, Hicks H G. <sup>175</sup>Hf, a new radioactivive isotope hafnium[J]. Phys Rev, 1949, 75(4): 696-698.
- [3] Rao C L, Yaffe L. Nuclear reactions induced in tantalum by protons of energy up to 84 MeV[J]. Can J Chem, 1963, 41(10): 2516-2532.
- [4] Popov Y S, Zakharova L V, Markushin M N, et al. Decay of <sup>175</sup>Hf and <sup>181</sup>Hf[J]. Radiochemistry, 2001, 43(6): 481-484.
- [5] Fang K H, Wang D W, Yang S B, et al. Half life of <sup>175</sup>Hf[J]. Appl Radiat Isot, 2012, 70: 2328-2331.
- [6] 周丰群,杨景康,拓飞,等. HPGe-γ谱仪死时间校正方法的实验研究[J]. 高能物理与核物理, 2005, 29(12): 1175-1178.
- [7] 秦建国,赖财锋,张信威,等. 高强度短寿命核素对其他峰计数率和半衰期影响的研究[J]. 核电子学与探测技术, 2013, 33(4): 442-446.
- [8] Pommé S. Problems with the uncertainty budget of half-life measurements[J]. ACS Symposium, 2007: 945.
- [9] 张小林,王世联,凡金龙,等. <sup>101</sup>Mo半衰期的测定[J]. 核电子学与探测技术, 2006, 26(6): 893-895.
- [10] Han J, Lee K B, Park T S, et al. <sup>18</sup>F half-life measurement using a high-purity germanium detector[J]. Appl Radiat Isot, 2012, 70(11): 2581-2585.