

Радчук В.В.

Институт телекоммуникаций и глобального информационного пространства НАН Украины

ОСОБЕННОСТИ РЕТРОСПЕКТИВНОЙ ДОЗИМЕТРИИ ЭМАЛИ ЗУБОВ И КВАРЦА НА ОСНОВЕ ЭЛЕКТРОННОГО ПАРАМАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА

В статье рассматриваются научные основы новых методик реконструкции дозовых нагрузок, особенности процесса накопления радиационных центров в материале дозиметра, а также вопросы, связанные с радиационным выходом ионизирующего излучения, что в комплексе с другими методиками позволяет расширить возможности ретроспективной ЭПР дозиметрии и повысить достоверность результатов, связанных с реконструкцией доз.

Введение

Для реконструкции дозовых нагрузок, которые человек получил в прошлом, используются различные методы и подходы [1]. Один из наиболее эффективных подходов в инструментальной ретроспективной дозиметрии связан с электронным парамагнитным резонансом (ЭПР), с помощью которого определяют количество радиационных дефектов в эмали зубов, костях, кварце, сахаре и в других материалах [2, 3]. Несмотря на большое количество исследований, посвященных ретроспективной ЭПР дозиметрии, многие важные вопросы в этой области знаний остаются не выясненными, что затрудняет решение различных прикладных задач, в том числе задач, связанных с изучением радиоэкологических последствий аварии на Чернобыльской атомной станции.

Актуальность исследований, связанных с ретроспективной дозиметрией, кроме изучения последствий аварии на ЧАЭС, обусловлена также тем, что в настоящее время увеличивается вероятность различных ситуаций, при которых население может быть подвержено радиоактивному облучению и значительные территории могут быть загрязнены радионуклидами. Увеличение вероятности указанных ситуаций обусловлено возрастающей ролью атомных электростанций в энергетике, все более широким применением радиоактивных элементов для решения научных и технических задач, а также возрастающей вероятностью несанкционированного использования радиоактивных элементов, в том числе террористических актов с использованием радиоактивных изотопов.

Основные идеи и принципы ретроспективной ЭПР дозиметрии были разработаны в связи с решением проблем, обусловленных атомными бомбардировками Хиросимы и Нагасаки [2], а также аварией на ЧАЭС [1-3]. К настоящему времени выполнено много международных программ, связанных с ретроспективной ЭПР дозиметрией, проведено несколько специализированных международных конференций, посвященных ретроспективной ЭПР дозиметрии, а также выполнен проект МАГАТЭ, связанный с методикой реконструкции доз с помощью ЭПР эмали зубов. Хотя в области ретроспективной ЭПР дозиметрии получено большое количество экспериментальной и теоретической информации, для многих ситуаций вопросы о достоверности получаемой информации требуют дальнейших обоснований. Кроме того, в ряде случаев необходимо повышение чувствительности экспериментальных методов, а также расширение круга ситуаций, для которых оказывается возможной реконструкция доз. Следует отметить, что традиционные методы и подходы в ретроспективной ЭПР дозиметрии в значительной степени исчерпали свои возможности, поэтому для дальнейшего прогресса в этой области требуется разработка новых подходов, основанных на новых идеях и принципах.

Объекты и методы исследования

Для повышения достоверности ретроспективной дозиметрии, основанной на ЭПР эмали зубов, необходима детальная информация о структуре и свойствах этого биоминерала, информация о местах локализации и механизмах формирования радиационно-стимулированных парамагнитных центров, о стабильности радиационных центров,

а также о влиянии процессов метаболизма и заболеваний зубов на эту стабильность [4-7]. Известно [7], что эмаль зубов представляет собой минерально-органическую нано-ассоциированную (МОА) систему, в которой нанокристаллы гидроксилатапата погружены в органическую матрицу. Иерархия внутреннего строения эмали зубов, кроме нанокристаллов и наноразмерных органических прослоек, разделяющих эти нанокристаллы, включает эмалевые призмы, в которых нанокристаллы имеют фиксированную ориентацию в пространстве, а также ассоциации эмалевых призм [7]. Информацию об иерархии внутреннего строения эмали необходимо учитывать при интерпретации данных, полученных методом электронного парамагнитного резонанса.

Результаты и их обсуждение

Радиационно-стимулированные парамагнитные центры, с помощью которых производят реконструкцию дозовых нагрузок, могут быть локализованы как в минеральной, так и в органической компоненте эмали зубов, а также на поверхности, разделяющей эти компоненты. При реконструкции дозовых нагрузок с помощью эмали зубов наиболее существенную роль играют так называемые нативные радикалы и радикалы CO_2^- . Сигналы ЭПР этих двух типов радикалов представлены на рис. 1 и 2 соответственно. Цифрами 1 и 2 на этих рисунках обозначены линии эталонного образца ($\text{MgO} : \text{Mn}^{2+}$).

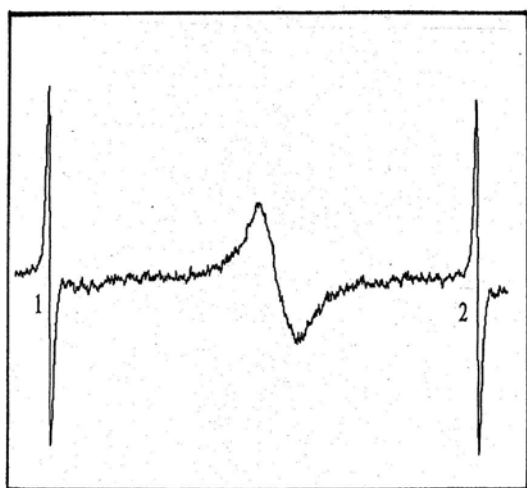


Рис 1. Спектр ЭПР нативных радикалов

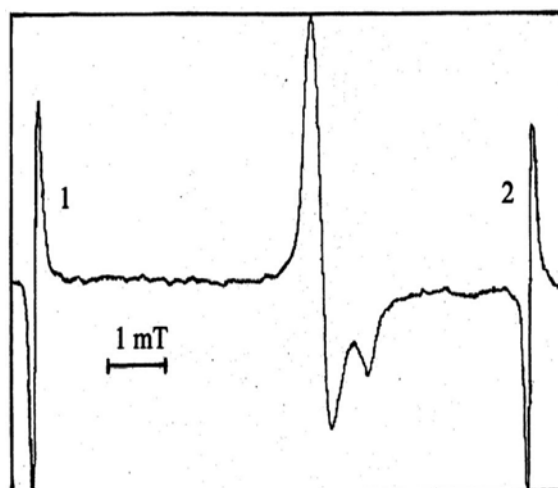


Рис 2. Спектр ЭПР радикалов CO_2^-

Природа нативных радикалов, изображенных на рис. 1, связана с оборванными химическими связями в органической матрице эмали, а количество этих радикалов существенно увеличивается при заболеваниях зубов. Фактор спектроскопического расщепления для нативных радикалов (g – фактор) равен $2,0045 \pm 0,005$. Вопрос о зависимости количества нативных радикалов от облучения эмали (гамма лучи, ультрафиолет) остается дискуссионным. Однако во всех случаях сигналы ЭПР, обусловленные нативными радикалами, вычитают из суммарного сигнала с помощью компьютерного моделирования. Поскольку нативные радикалы препятствуют снижению порога чувствительности ЭПР дозиметрии, то необходимо разрабатывать способы подавления интенсивности сигналов ЭПР, обусловленных этими радикалами. Наиболее перспективные способы подавления нативных радикалов в эмали зубов связаны с химической обработкой, которая переводит нативные радикалы в непарамагнитное состояние, а также способы удаления органического вещества из исследуемых проб. Важно подчеркнуть, что для корректной реконструкции доз указанные технологические процедуры не должны влиять на количество парамагнитных CO радикалов, с помощью которых производится реконструкция дозовых нагрузок.

В работах [6, 7] показано, что существует несколько типов CO_2^- радикалов, которые локализованы в различных подсистемах эмали зубов. Свойства радикалов, в том числе стабильность CO_2^- , локализованных в различных подсистемах эмали зубов, существенно различаются. Влияние метаболизма и заболеваний зубов на разные типы CO_2^- радикалов

также различается. Важно отметить, что CO_2^- радикалы могут быть продуцированы в эмали зубов не только рентгеновскими и гамма лучами, но и ультрафиолетовым излучением. Перечисленные выше факторы существенно влияют на результаты ретроспективной дозиметрии. Для повышения достоверности результатов ретроспективной дозиметрии необходима детальная информация о свойствах и местах локализации разных групп CO_2^- радикалов в эмали зубов.

На основании данных, полученных методами электронного парамагнитного резонанса, ядерного магнитного резонанса и двойного электронно-ядерного резонанса нами описаны свойства различных групп CO_2^- радикалов, локализованных в различных подсистемах эмали зубов. В работе [7] описаны эффекты анизотропии эмали зубов, которые проявляются в изменении сигналов ЭПР при вращении пластинки эмали зубов в магнитном поле ЭПР спектрометра. Полученная нами информация о свойствах CO_2^- радикалов в эмали зубов позволяет разрабатывать новые подходы, которые существенно увеличивают достоверность результатов ретроспективной ЭПР дозиметрии, а также расширяют круг ситуаций, для которых возможна реконструкция доз [6, 7]. Эти подходы основаны на разделении вкладов в суммарный сигнал от разных групп CO_2^- радикалов. Разделение вклада в суммарный сигнал ЭПР от радикалов разного типа можно достичь за счет различия анизотропии сигналов, обусловленных CO_2^- радикалами разного типа, а также за счет разной температурной стабильности этих радикалов.

Влияние заболеваний зубов на количество CO_2^- радикалов и, соответственно, на результаты, связанные с реконструкцией доз, продемонстрировано в работе [6]. В этой работе показано, что при заболеваниях зубов интенсивность сигналов ЭПР и доза облучения, которую человек получил в прошлом, не являются пропорциональными величинами. Вместе с тем, использование эффектов анизотропии, а также различной температурной стабильности парамагнитных центров, локализованных в разных подсистемах эмали, существенно увеличивает надежность процедуры реконструкции доз. Разделение вклада CO_2^- радикалов, созданных ультрафиолетом и гамма лучами, также может быть произведено с учетом разной анизотропии этих центров. Вопросы, связанные с учетом метаболизма на стабильность парамагнитных CO_2^- радикалов, в настоящее время разработаны недостаточно. Наиболее перспективными в этом направлении являются опыты с животными, а затем проведение экстраполяции результатов, полученных с помощью животных, на человека. При этом должны быть подвергнуты ионизирующему облучению как живые животные, так и зубы, извлеченные из организма животных. Кроме того, должны быть исследованы изменения во времени количества CO_2^- радикалов в зубах живых животных и в зубах, извлеченных из организма животных до процедуры облучения. Предварительные результаты подобного рода исследований опубликованы в нашей работе [6].

Для расширения возможностей ретроспективной ЭПР дозиметрии представляет также интерес развитие так называемых кинетических подходов при реконструкции доз. Эти подходы основаны на информации о процессах распада радиационно-индуцированных парамагнитных центров в материале дозиметра. Данные о времени полураспада парамагнитных центров в материале дозиметра позволяет использовать для реконструкции доз не только стабильные радиационные центры, но и центры, время жизни которых соизмеримо со временем, прошедшим после облучения материала дозиметра. Кинетические подходы позволяют существенно расширить круг материалов, которые могут быть использованы для реконструкции доз (текстиль, волос, пластмасса, дерево и другие материалы). Развитие кинетических подходов в ретроспективной ЭПР дозиметрии может оказаться наиболее существенным для минимизации негативных последствий после совершения террористических актов с использованием так называемых «грязных бомб» и различных устройств с радиоактивными изотопами.

При решении задач ретроспективной дозиметрии очень важной является информация об особенностях процесса накопления радиационных центров в материале дозиметра, а также вопросы, связанные с радиационным выходом ионизирующего излучения. Радиационный выход материала дозиметра существенно влияет на величину пороговой дозы, т.е. минимальной дозы, которая может быть реконструирована с помощью

ретроспективной дозиметрии. Среди биоминералов и минералов наиболее высоким радиационным выходом обладают эмаль зубов и кварц соответственно [4, 5]. Исследование причин, обуславливающих уникально высокую радиационную чувствительность указанных двух объектов, является важным для разработки новых подходов к реконструкции дозовых нагрузок с помощью этих материалов.

Нами проведены экспериментальные исследования радиационного выхода разных образцов эмали зубов, а также разных образцов кварца. Радиационный выход эмали зубов определялся по CO_2^- радикалам, а радиационный выход кварца по $\text{Al} - \text{O}^-$ центрам. Нами установлено, что для указанных двух групп материалов существует интервал доз, в пределах которого интенсивности соответствующих сигналов ЭПР не изменяются от образца к образцу для каждой из указанных двух групп образцов. Таким образом, при определенных условиях, как кварц, так и эмаль зубов можно рассматривать в качестве универсальных дозиметров, радиационный отклик которых не зависит от количества предцентров (примесей или других локальных особенностей структуры, которые при облучении переходят в парамагнитное состояние), а определяется только дозой внешнего облучения.

В рамках зонной модели твердых тел нами теоретически изучены условия, при которых радиационный отклик материала дозиметра зависит только от дозы внешнего излучения и не зависит от количества предцентров содержащихся в этом материале. С помощью кинетических уравнений, описывающих процессы появления и распада парамагнитных центров, найдены критерии, определяющие необходимые и достаточные условия, при которых исследуемые материалы могут быть рассмотрены как универсальные дозиметры.

Выводы

Таким образом, полученные нами экспериментальные и теоретические данные о свойствах радиационно-индуцированных парамагнитных центров в различных материалах позволяют разрабатывать новые подходы в ретроспективной ЭПР дозиметрии и, соответственно, повышать эффективность радиоэкологических исследований, в том числе исследований, связанных с изучением последствий Чернобыльской аварии.

1. Ильичев С.В., Кочетков О.А., Крючков В.П. Ретроспективная дозиметрия. — Киев: Сета Стил, 1996. — 234 с.
2. Ikeya M. New Application of Electron Spin Resonance: Dating, Dosimetry and Microscopy. — Singapore: World Scientific, 1993. — 500 с.
3. Брик А.Б., Радчук В.В. Ретроспективная инструментальная дозиметрия // Природа, — 1994, — № 2, — с. 3 — 11.
4. Brik A.B., Radchuk V.V., Scherbina O.I. Metamorphic modifications and EPR dosimetry in tooth enamel // Applied Radiation and Isotopes. — 1996, — v.47, No 11/12, p. 1317 — 1319.
5. Brik A.B., Degoda V.Ya., Marazuev Yu.A., Radchuk V.V. Dose reconstruction of quartz from Chernobyl area // Journal of Applied Spectroscopy. — 1996, — v.63, No 1, p. 158 — 160.
6. Brik A., Baraboy V., Shevchenko Yu. Metabolism in tooth enamel and reliability of retrospective dosimetry // Applied Radiation and Isotopes. — 2000, — v.52, No 11/12, p. 1305 — 1310.
7. Brik A., Haskell E., Brik V., Sherbina O. Anisotropy effects of EPR signals and mechanisms of mass transfer in tooth enamel and bones // Applied Radiation and Isotopes. — 2000, — v.52, No 11/12, p. 1077 — 1083.

Радчук В.В. ОСОБЛИВОСТІ РЕТРОСПЕКТИВНОЇ ДОЗИМЕТРІЇ ЕМАЛІ ЗУБІВ І КВАРЦУ НА ОСНОВІ ЕЛЕКТРОННОГО ПАРАМАГНІТНОГО РЕЗОНАНСУ

У статті розглядаються наукові основи нових методик, особливості процесу накопичення радіаційних центрів у матеріалі дозиметра, а також питання, пов'язані з радіаційним виходом іонізуючого випромінювання, що в комплексі з іншими методиками дозволяє розширити можливості ретроспективної ЕПР дозиметрії та підвищити достовірність результатів, пов'язаних з реконструкцією доз.

Radchuk V.V. FEATURES RETROSPECTIVE DOSIMETRY OF TOOTH ENAMEL AND QUARTZ BASED ON ELECTRON PARAMAGNETIC RESONANCE

The article deals with the scientific basis for new methodologies, features of accumulation of radiation centers in the dosimeter's material as well as issues associated with the radiation output of ionizing radiation. Together with other techniques it allows to widen abilities of the retrospective EPR dosimetry and to increase reliability of dose reconstruction results.