

不同制备方法对牙髓样品 ESR 信号的影响

张文艺¹ 焦玲¹ 潘志红² 曾红雨² 张良安¹

¹ (中国医学科学院中国协和医科大学放射医学研究所 天津 300192)

² (广东江门市口腔医院 江门 529000)

摘要 研究了不同制备方法对牙髓样品电子自旋共振 (Electron spin resonance, ESR) 信号的影响。无放射线照射史成年人群的白齿分别用机械方法和机械方法加化学方法进行处理,制备牙髓样品和牙釉质样品。用 ^{60}Co γ 射线照射样品至不同剂量,测量其 ESR 信号。比较分析了单位质量样品对单位照射剂量的 ESR 信号响应灵敏度,以寻求能够有效降低牙髓样品本底信号对其剂量学信号的影响,提高牙髓样品 ESR 信号灵敏度的样品制备、处理方法。结果表明,不同方法制备的牙髓样品和牙釉质样品,其 ESR 信号对 ^{60}Co γ 射线的响应有十分明显的差异。在牙釉质样品缺乏的情况下,利用牙髓样品的 ESR 信号通过叠加剂量法对受照人员剂量进行重建是可行的。

关键词 电子自旋共振,牙髓,样品制备

中图分类号 R144.1, TL818.45

近年来,牙釉质电子自旋共振 (Electron spin resonance, ESR) 剂量学在回顾剂量学和事故剂量学领域受到了极为广泛的关注和应用^[1]。但每颗牙齿的牙釉质的质量较少,尤其在虫牙、病齿的情况下,要获得足够的牙釉质样品还存在着一定的困难,对有效估算受照剂量带来了十分不利的影响。相对而言,牙髓的所占比例大,一般情况下能够得到足够的样品量。牙髓和牙釉质的理化性质差异较大,牙髓的本底 ESR 信号强度大约是牙釉质的 10 倍^[1],但其 ESR 信号对辐射响应的灵敏度则只有牙釉质的 15%—40%^[1,2]。因此,在某些情况下,能否充分利用牙髓样品代替牙釉质进行剂量重建,尤其是较低剂量重建,就必须充分掌握牙髓 ESR 信号的重要特性。本工作研究了两种不同制备方法对牙髓样品 ESR 信号的影响,并同牙釉质样品进行了比较、分析。

1 材料和方法

1.1 样品制备

为减少个体差异对试验结果的影响,将无放射线照射史成年人群的 20 颗白齿随机分成两组,每组 10 颗。白齿的颊侧部分比其舌侧部分更多地受到阳光照射等影响^[3-6],故用机械方法将其颊侧部分切割分离^[1],仅使用白齿的舌侧部分。通过以下两种处

理方式制备牙髓样品和牙釉质样品。

(1) 机械方法 (M)。第一组 10 颗牙齿的舌侧部分,用机械方法分离牙釉质和牙髓,用研钵将牙髓或牙釉质轻轻粉碎,颗粒直径为 0.6—1.0 mm。将牙髓或牙釉质粉粒充分混合均匀,称量 100 mg 制备牙髓样品和牙釉质样品。

(2) 机械方法加化学方法 (MC)。第二组 10 颗牙齿的舌侧部分,用机械方法分离牙釉质和牙髓,再用 15% 的氢氧化钾 (KOH) 溶液浸泡 8 h,溶液温度 70℃。经蒸馏水充分清洗并充分干燥后,再用同上步骤制备牙髓样品和牙釉质样品。

1.2 放射源、照射条件及照射剂量

1.2.1 ^{60}Co γ 射线源 源活度为 1.11×10^{14} Bq。

1.2.2 照射条件 源与受照样品间的垂直距离为 0.8 m。为了达到电子平衡,受照样品置于两块 4 mm \times 300 mm \times 300 mm 的有机玻璃 (Lucite) 板之间。在室温条件下照射样品。

1.2.3 照射剂量 牙髓样品照射剂量为 0、0.5、1.0、2.0、3.0、5.0、10.0、15.0、20.0 Gy;牙釉质样品照射剂量为 0、0.1、0.2、0.3、0.5、1.0、2.0、3.0、5.0 Gy。

1.3 ESR 谱测定

1.3.1 测量仪器 JES-FA100 型 ESR 谱仪,日本电

第一作者:张文艺,男,1965年6月出生,2003年在日本广岛大学获博士学位,辐射剂量学,副研究员

收稿日期:初稿 2004-06-14,修回 2004-11-10

子株式会社 (JEOL)。

1.3.2 测量条件 室温,微波功率为 5 mW,调制磁场强度为 0.2 mT,磁场扫描宽度为 (336 ± 5) mT,扫描时间 1 min,时间常数 0.03 s。

1.3.3 测量 为提高样品 ESR 谱的信噪比,每一样品重复扫描 20 次,重复测量 4 次。测量样品 ESR 谱时,还测量 MgO 刻度标准的 Mn^{2+} ESR 谱。 Mn^{2+} 的 ESR 谱共有 6 个峰,其第 3、第 4 峰的 g 值分别为 $g_3 = 2.034$, $g_4 = 1.981$,牙髓和牙釉质样品的 ESR 谱的 g 值介于其间,通常把这两个峰作为 g 因子参考线,以确定牙髓和牙釉质样品 ESR 谱的剂量学峰位^[1,7]。所有牙髓样品和牙釉质样品受 ^{60}Co γ 射线照射前,先测量其本底 ESR 谱。

2 结果

图 1 为机械法制备和机械法加化学法制备的牙髓样品本底 ESR 谱,也即受 γ 射线照射前牙髓中“固有的”ESR 谱。从图 1 可见,不同方法制得牙髓样品的 ESR 谱的峰值差异十分明显:机械法加化学法制备的牙髓样品 ESR 谱峰值 (R_{MC}),约为机械法制备牙髓样品 ESR 谱峰值 (R_{M}) 的 66%。也即机械法加化学法制备牙髓样品的本底 ESR 信号强度明显减弱。

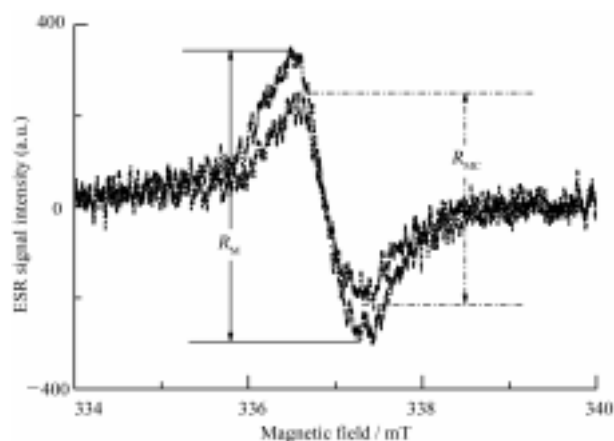


Fig.1 The native ESR signals of dentine samples prepared by mechanical, and mechanical and chemical methods. R_{M} is the peak-to-peak ESR signal of dentine sample prepared by mechanical method, and R_{MC} by mechanical and chemical method

图 2 为机械法制备牙髓样品受 γ 射线照射后的 ESR 谱。左图为未扣除本底的“原始”谱,自上至下依次是照射剂量为 20、15、10、5、3、2、1、0.5、0 Gy 的牙髓样品的 ESR 谱。右图为它们扣除该本底后的 ESR 谱。标有“Native”的是本底 ESR 信号^[1];而标有“Dosimetric”的部分则是牙髓中的无机物离子所引起的剂量学 ESR 信号的垂直部分 ($g = 2.0018$)^[1,7]。

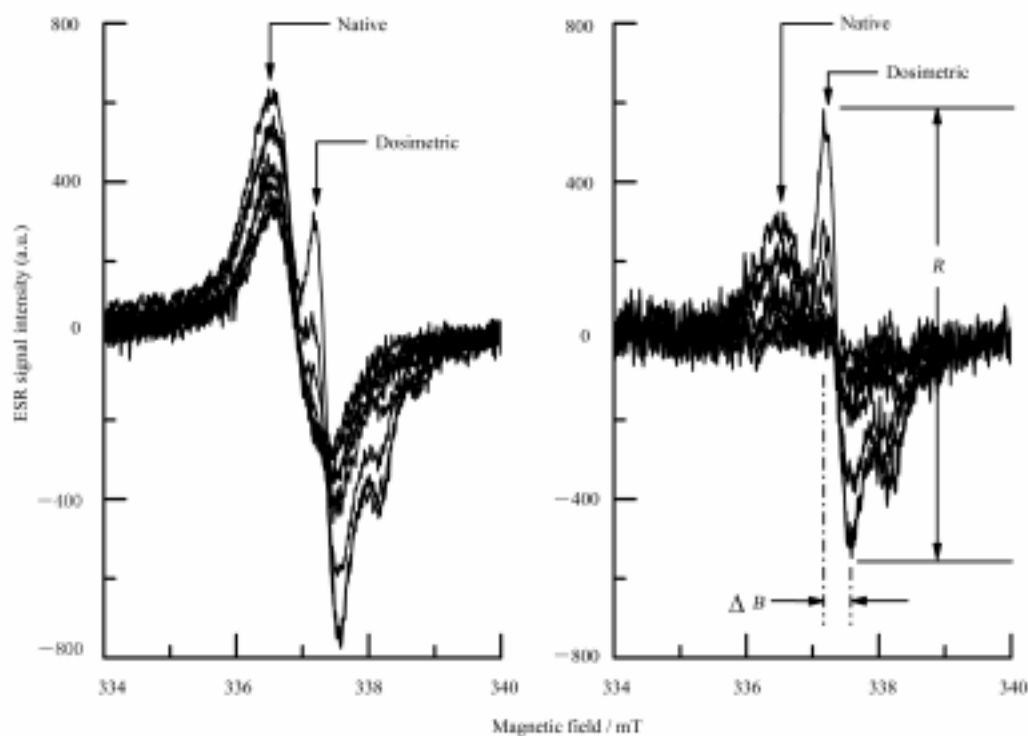


Fig.2 The ESR signals of dentine samples prepared by mechanical method and irradiated to different doses by ^{60}Co γ -rays. The left column: native ESR signals are included, the right column: native signals are subtracted

由图 2 可见,照射剂量低于 5.0Gy 时,不可能把剂量学 ESR 信号和本底 ESR 信号区分开来。这是因为,牙髓中无机物离子引起的剂量学信号的垂直部分 ($g = 2.0018$) 几乎完全被本底 ESR 谱遮盖^[1],此类本底 ESR 信号由牙髓中含量较高的有机物质引起,也称为噪声信号;同时,照射样品的相应的剂量学 ESR 信号的平行部分 ($g = 1.998$) 也很不明显。图 2 还表明,牙髓样品受较大剂量 γ 射线照射后,其本底 ESR 信号峰也有一定增幅。

牙髓 ESR 剂量学的累积剂量是通过叠加照射剂量法^[1],利用牙髓样品 ESR 剂量学峰的峰值 R 进行回归得到的^[1]。其峰宽 ΔB 约为常数 (0.4 mT)^[1],在 ESR 剂量学中用来确定峰值 R 。

图 3 为机械法加化学法制备牙髓样品受 γ 射线

照射后的 ESR 谱。左图为未扣除本底的“原始”谱,自上至下依次是照射剂量为 20、15、10、5、3、2、1、0.5、0 Gy 的牙髓样品 ESR 谱。右图为它们扣除该本底的 ESR 谱。比较图 2 与图 3,此法制备的牙髓样品 ESR 信号的相对强度,比机械法制备牙髓样品的 ESR 信号的相对强度大为提高,即便 0.5 Gy 照射的牙髓样品的 ESR 信号,也能十分清楚地与本底信号区分。

表 1 列出了两种不同方法制备的 100 mg 牙髓样品和牙釉质样品的单位照射剂量的相对 ESR 信号响应及其标准误差。机械法加化学法制备牙髓样品的单位照射剂量的相对 ESR 信号响应,差不多是机械法制备牙髓样品的单位照射剂量的相对 ESR 信号响应的 6 倍。

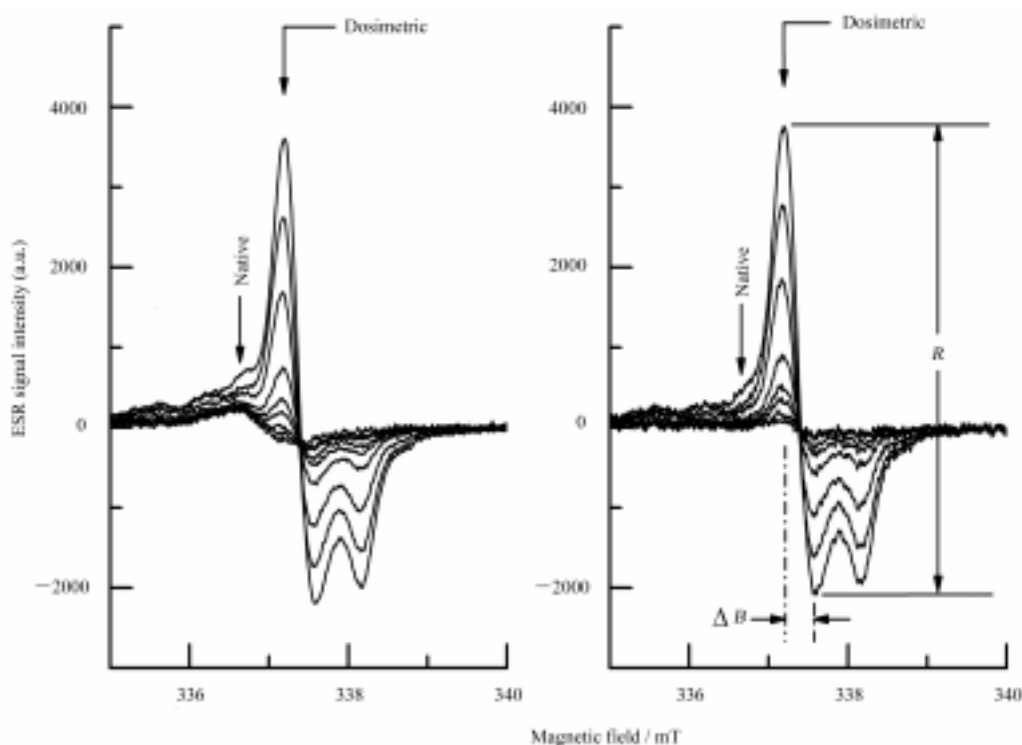


Fig.3 The ESR signals of dentine samples prepared by mechanical and chemical methods and irradiated to different doses by ^{60}Co γ -rays. The left column: native ESR signals are included, the right column: native signals are subtracted

Table 1 Comparison of relative ESR response to unit irradiation dose of 100mg dentine and enamel samples prepared by different methods

Sample	Relative ESR response ($\bar{x} \pm s$)		
	Mechanical (M)	Mechanical and Chemical (MC)	Ratio (MC/M)
Dentine (D)	50.1 \pm 1.1	287.3 \pm 1.6	5.73
Enamel (E)	452.5 \pm 6.5	523.1 \pm 3.6	1.16
Ratio (D/E) / %	11.1	54.9	

3 讨论

由于牙髓中的有机物含量较高,以及牙髓中的无机物晶体与牙釉质在物理、化学性质上的差异^[1],牙髓引起的 ESR 本底信号的强度较大。但是,这些信号对辐射响应的灵敏度却非常低。从表 1 可以看出,机械法制备的 100 mg 牙髓样品,其单位照射剂量(Gy^{-1})的 ESR 信号响应的灵敏度仅为相应牙釉质样品的 11%左右;但机械法加化学法制备的牙髓样品,其单位照射剂量的 ESR 信号响应的灵敏度就可达相应牙釉质样品的 55%左右。从另一角度考虑,选择适当的样品处理、制备方法,可在很大程度上减弱牙髓引起的 ESR 本底信号的强度,提高其单位照射剂量的 ESR 信号响应的灵敏度^[1],从而减少本底信号的影响,使得 ESR 剂量学的照射剂量探测阈值进一步降低。这对于应用牙髓样品的 ESR 信号进行较低剂量重建,是十分必要的。

目前,牙釉质样品制备方法主要有两种^[1]:一种是单纯使用牙科高速转头将牙髓和牙釉质剥离的机械方法;另一种为化学处理制备法,将牙髓和牙釉质样品浸泡在强碱溶液中,通过与强碱作用,软化后去除牙髓和牙釉质中影响其 ESR 剂量学信号的有机物质。从图 1 可以看出,机械法加化学法制备的牙髓样品,其 ESR 信号的相对强度(峰值 R_{MC})大约是机械法制备牙髓样品的 ESR 信号的相对强度的 66%。也就是说,通过化学处理,能够有效地去除牙髓中影响其 ESR 剂量学信号的有机物质,从而减少这些本底信号对剂量学信号的影响。由 100mg 牙髓和牙釉质样品对单位辐射剂量的 ESR 信号响应灵敏度(见表 1),更进一步证实了不同样品制备方法对牙髓样品和牙釉质样品 ESR 信号的影响:机械法加化学法制备的牙髓样品,其单位质量单位辐射剂量的 ESR 信号响应的灵敏度,约为机械法制备牙髓样品的 6 倍;机械法加化学法制备的牙釉质样品,其单位质量单位辐射剂量的 ESR 信号响应的灵敏度,约为机械法制备样品 1.2 倍。从图 2

和图 3 中也可看出,100 mg 机械法加化学法制备的牙髓样品,其 ESR 信号的相对强度大约是机械法制备的牙髓样品的 6 倍。

牙髓样品 ESR 信号的相对复杂性,受有机物含量的影响也较大,因而,在以往的 ESR 剂量学研究中,通常不用牙髓样品做照射剂量的估算研究;或则在牙釉质样品缺乏的前提下,仅仅用它们来做十分粗略的照射剂量估算^[1]。本研究应用机械法和机械法加化学处理法制备了牙髓样品和牙釉质样品。实验结果表明,机械法加化学法制备的牙髓样品,能较为理想地用于照射剂量估算。图 3 中,照射剂量低于 0.5 Gy 的牙髓样品的 ESR 剂量学信号,可与本底信号区分。表 1 中,机械法加化学法制备牙髓样品的响应灵敏度尚可与牙釉质样品比拟。牙髓样品的样品量较大,在牙釉质样品不足的情况下,机械法加化学法制备的牙髓样品可替代牙釉质样品,进行照射剂量的重建。即使是较低照射剂量的重建,这种牙髓样品也能胜任。

参考文献

- 1 International Atomic Energy Agency. IAEA-TECDOC-1331, 2002
- 2 Romanyukha A A, Regulla D F. Appl Radiat Isot, 1996, **47**(11-12): 1293-1297
- 3 Nakamura N, Katanic J F, Miyazawa C. J Radiat Res, 1998, **39**(3): 185-191
- 4 Bartoll J, Stöber R, Nofz M. Appl Radiat Isot, 2000, **52**(5): 1099-1105
- 5 Toyoda S, Voinchet P, Falguères C, *et al.* Appl Radiat Isot, 2000, **52**(5): 1357-1362
- 6 Nilsson J, Lund E, Lund A. Appl Radiat Isot, 2001, **54**(1):131-139
- 7 Ikeya M. New Applications of Electron Spin Resonance - Dating, Dosimetry and Microscopy. Singapore: World Scientific, 1993

Influences of sample preparations on dentine ESR signals

ZHANG Wenyi¹ JIAO Ling¹ PAN Zhihong² ZENG Hongyu² ZHANG Liangan¹

¹(Institute of Radiation Medicine, Chinese Academy of Medical Sciences and Peking Union Medical College, Tianjin 300192)

²(Stomatological Hospital of Jiangmen City, Jiangmen 529000)

ABSTRACT The work is to study influences of sample preparations on dentine ESR (electron spin resonance) signals, in order to use dentine samples for dose reconstruction, which has been performed with enamel samples. The dentine and enamel samples were collected from non-irradiated adult teeth and prepared by mechanical or mechanical plus chemical methods. The samples were scanned by an ESR spectrometer before and after their irradiation by ⁶⁰Co γ -rays. The sensitivities of ESR signals of dentine and enamel samples to irradiation dose differed significantly among different sample preparation methods. The results show that dentine samples mechanically and chemically prepared have good enough ESR response to low dose γ -ray irradiations, and it is possible to use the dentine samples for dose reconstruction, as a substitution to enamel samples when they are short of supply.

KEYWORDS Electron spin resonance, Dentine, Sample preparation

CLC R144.1, TL818.†5