

文章编号: 1001-098X(2004)03-0128-05

# 牙釉质 EPR 剂量测定方法的主要影响因素分析

周莉

**摘要** EPR (电子顺磁共振) 剂量测定方法是回顾性测定个人辐射剂量的主要方法, 它能够准确估算出很久以前发生的辐射照射事件的吸收剂量值, 其理论基础是: 在牙釉质中, 辐射所致自由基水平随着辐射剂量的增加而增加。目前, 将 EPR 方法用于低剂量测定还存在一些困难, 为了降低测量阈值, 减小误差, 优化方法, 需要进一步研究该方法的影响因素。本文重点分析了影响牙釉质 EPR 剂量方法测量阈值和测量结果不确定度的主要因素, 并对解决这些问题的修正方法进行了讨论。

**关键词** 牙釉质; 电子顺磁共振; 辐射剂量; 辐射监测

中图分类号 R144.1 文献标识码 A

## An analysis of major effect factors in enamel EPR dosimetry

ZHOU Li

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

**Abstract** Effective dose assessment can be given even long after the irradiation exposure event by the method of EPR (electron paramagnetic resonance) dosimetry, which has been developed into a leading method for retrospective dosimetry of individual radiation exposure. The principle of EPR dosimetry is based on the fact that the concentration of radiation-induced radicals increases with irradiation dose. There is still some difficulty in the measurement of low dose at present, so further investigation on the effect factors of the method is required in order to lower measure threshold, decrease error and optimize the method. Several major effect factors of measurement threshold and result uncertainty in EPR dosimetry have been analyzed and the corresponding correction methods for the factors were proposed.

**Key words** enamel; electron paramagnetic resonance; radiation dose; radiation monitoring

电子顺磁共振 (electron paramagnetic resonance, EPR) 剂量学方法是目前事故剂量重建和辐射流行病学研究中的新技术, 它是使用人类组织或服饰物品的生物物理剂量学方法<sup>[1]</sup>。牙釉质 EPR 剂量测定方法在辐射事故、核事故和核恐怖事件的剂量重建中占有极其重要的地位, 但是其影响因素较多, 若处理不好这些技术问题, 不但会影响这种方法测量结果的不确定度, 而且可能造成测量的阈值太高。为了解决这个问题, 分析影响牙釉质 EPR 剂量方法结果的主要影响因素及其修正方法就十分重要。本文重点分析 EPR 剂量结果的主要误差来源以及解决这些问题的方法。

## 1 EPR 信号的构成分析

作者单位: 300192 天津, 中国医学科学院中国协和医科大学放射医学研究所保健物理室

电离辐射在牙釉质中产生的顺磁中心非常稳定, 牙釉质相当于一个剂量积分器。一般而言, 用 EPR 测得的信号可以计为两项之和, 即:

$$D_{\text{EPR}} = D_{\text{RIS}} + D_{\text{BGS}} \quad (1)$$

式中:  $D_{\text{EPR}}$  是用 EPR 方法测得的累积剂量;  $D_{\text{BGS}}$  是与辐射无关的本底剂量;  $D_{\text{RIS}}$  是与辐射有关的剂量, 它可由下式求得:

$$D_{\text{RIS}} = D_{\text{acc}} + D_{\text{nat}} + D_{\text{med}} \quad (2)$$

式中:  $D_{\text{acc}}$  是事故照射的剂量;  $D_{\text{nat}}$  是天然本底照射的剂量;  $D_{\text{med}}$  是医疗照射的剂量<sup>[2]</sup>。

## 2 非事故的辐射信号的扣除

### 2.1 $D_{\text{med}}$ 信号

用个人剂量计只能得到 X 射线进入身体表面的剂量,难以确定真正的  $D_{\text{med}}$ 。例如:在牙科医疗照射的情况下测定  $D_{\text{med}}$  信号时,需要对牙齿面向颊面、唇面、舌面分别进行测量,还需要知道受检牙齿受到的牙科诊断照射的数量和类型<sup>[2]</sup>,从而确定出  $D_{\text{med}}$ 。只有准确测出  $D_{\text{med}}$  后,我们才可以方便地扣除这一影响。 $D_{\text{med}}$  的理论和实际测量方法在国内外已较成熟,本文不再赘述。

## 2.2 $D_{\text{nat}}$ 的干扰

欲求得事故的有用剂量信息,还需要从测到的总剂量信号中扣除牙齿从开始形成到测量时的累积天然本底辐射成分。天然本底的平均剂量大约是每年 1~2mGy<sup>[2]</sup>。在一个群体中,由于性别和种族的不同,导致生活习惯、饮食、代谢的差异,继而引起本底剂量变化。地理因素也会影响天然放射性的年剂量率、放射性气体和放射性微尘(全球的和局部的),在长期低剂量辐射的危险度估算模型中应当考虑这些因素<sup>[3]</sup>。 $D_{\text{nat}}$  还与样品受照时间、受照人的年龄和牙齿在口腔中的位置有关<sup>[4]</sup>。有人给出了 RIS(辐射所致信号)值随牙齿年龄的变化曲线,表明吸收剂量随着牙齿年龄的增加而增加,这是天然环境放射性造成的。

## 3 非辐射信号的分析 and 扣除方法

### 3.1 BGS(与辐射无关的本底信号)的干扰

由公式(1)可知,减低或扣除 BGS 在 EPR 测量中至关重要。BGS 主要是 NBS(牙釉质中有机成分产生的本底信号)和 MIS(处理样本时机械作用产生的信号)。其中, BGS 的信号幅度相当于样品受到了 1Gy 照射的信号。因此,它大大妨碍了低剂量的测定<sup>[6]</sup>,使本方法的测量阈值也难以做到较低。

### 3.2 去除 BGS 的方法

#### 3.2.1 模拟谱扣除方法

在低剂量范围, BGS 基本上覆盖了牙釉质中的 RIS。为了有效测量 RIS,通常从总的 EPR 谱中扣除模拟的 BGS 谱<sup>[5]</sup>,而扣除模拟的 BGS 谱时主要问题是缺少样品受照前的固有谱形状。在低本底地区群体牙釉质 EPR 信号与年龄相关性的研究结果表明:扣除参考的 BGS 谱后,还会残留一些潜伏的固有信号。这个信号与辐射无关,是由 BGS 谱的形状改变引起的。这个信号叠加在 RIS 上,引起估算剂量变化的标准误大约为 30mGy。在区分

RIS 和 BGS 过程中,主要由于 BGS 形状改变,产生的这些误差可以看作是 EPR 剂量方法误差的主要来源。在低剂量范围,在扣除 BGS 时,即使是一个小误差都会导致测定 RIS 的不可靠,这相应地限制了剂量重建的准确性<sup>[5]</sup>。

#### 3.2.2 降低 BGS 的化学方法

用化学方法彻底破坏形成 BGS 的顺磁中心来彻底扣除 BGS<sup>[5]</sup>是目前最有效的途径。

##### (1) 用强还原剂对致密骨进行脱蛋白

常用的强还原剂是胍,它有很强的还原作用和穿透能力。为了减少 BGS,先用胍处理牙釉质粉末,继而用酒精水溶液洗净。此法将减少 NBS 和 MIS 信号。用颗粒大小不同的牙釉质粉末测试胍处理的效率,结果表明:粉末大小在 100~200  $\mu\text{m}$  时,可以得到最佳的结果;在用胍处理后,牙釉质中辐射所致 RIS 是不变的<sup>[5]</sup>。

##### (2) 紫外线处理

为了进行低剂量水平的测量,将牙釉质放在 KOH 中,高温下用紫外线处理,基本上可以彻底除去谱的非辐射成分。同时,研究人员采用了新设计的 EPR 仪器的关键部件,使它的灵敏度提高了一个数量级<sup>[3]</sup>。

##### (3) 化学侵蚀

此方法的主要步骤是使用长波紫外线来鉴别牙釉质样品上附着的牙质,再用磷酸进行化学侵蚀来除去表面顺磁中心。用样品质量损失和本底信号幅度减小的关系作为特征量对酸的质量分数值和侵蚀时间进行了优化选择。结果表明:最佳的酸质量分数为 42%。该质量分数的酸,不仅仅能除去表面层的顺磁中心(主要是 MIS 和紫外线处理时产生的不稳定信号),还能渗入样品表面,除去大量的天然顺磁中心。通过这种方法,可以消除样品表面产生的本底 EPR 信号成分,并将单位质量样品的 BGS 幅度减小 30%<sup>[6]</sup>。

减少 BGS 的效率与有机成分有关,随着牙釉质颗粒变小而增加;然而,即使采用高度研磨的粉末也不能满足需要,因为粉末太小,将导致大量样品流失,还会进一步减少 RIS 的幅度。用胍处理线度为 100~200  $\mu\text{m}$  的牙釉质粉末,在 55℃下搁置一天, BGS 就可以消失。经过这样的处理,不会改变 RIS。这是用特定大小的粉末来优化处理的特殊条件<sup>[5]</sup>。通过优化样品处理方式来改进样品制备方

法,能够进一步排除 EPR 牙釉质谱固有的非辐射信号。

### 3.2.3 制备好的样品搁置一段时间再进行测量

为了尽可能消除 MIS 和使用紫外线过程中产生的不稳定信号,可以在进行 EPR 测量以前将样品搁置一段时间。如果没有采用前面提到的化学侵蚀方法,则建议搁置一周的时间。如果采用了化学侵蚀方法,则搁置 24h 就足以将不稳定信号减小到可以忽略不计的强度。此外,在附加剂量法中,进行附加剂量照射产生的暂时性信号也会随着时间推移而消退。

除了上述几种方法,在低剂量范围的测量中,还可以应用微波功率饱和技术<sup>[7]</sup>和增加微波功率两种方法来降低有机信号的影响。但是,用微波功率饱和技术不能提高准确度,因为 BGS 的形状会受饱和影响而失真<sup>[5]</sup>。有人在牙釉质 EPR 剂量测定方法时用到了增加微波功率的方法,发现在 5mW 时得到的主要是有机信号,而在功率高于 50mW 水平时有机信号最小<sup>[8]</sup>。

MIS 是牙釉质受到了强烈机械作用的结果,比如在样品制备过程中用牙钻去除牙质,或是将牙釉质研磨成粉<sup>[5]</sup>。

## 4 影响 EPR 测量结果的其他因素

### 4.1 牙釉质的辐射响应与能量关系

在中低能量时,牙釉质的辐射响应与  $\gamma$  光子的能量显著相关,牙釉质的 EPR 响应在光子能量较高时几乎为恒量,在能量低于 200 keV 时的响应比高能时增加了 8 倍,在能量为 40 keV 时达到最大值。在环境辐射场中,光子的能谱范围很宽,包括低能量成分,因此,估计环境辐射剂量时要考虑个人受照的光子能谱。为此,应该引入一个修正因子作为牙齿分析得到的剂量与真实剂量的比值。这个因子的值与刻度牙釉质灵敏度的条件有关。

### 4.2 太阳光中紫外线照射的影响

太阳光的紫外线可以在前部牙齿中产生顺磁中心。太阳光在前部牙齿的牙釉质中产生的 EPR 信号与辐射所致信号 RIS 有相同的参数。太阳光所致顺磁中心的指数分布厚度约为 300 $\mu$ m,用表面侵蚀方法不能除去这么厚的牙釉质层。Ivannikov AI 等人<sup>[4]</sup>的研究表明:与后部牙齿相比,前部牙齿的内侧牙釉质中没有附加的 RIS,而在前部牙齿的外

侧牙釉质中附加 RIS 是很明显的。因此,在剂量测定中,仅采用前部牙齿的内侧牙釉质和后部牙齿的牙釉质。

在过去的一些事故剂量重建中,有人采用贝壳或珊瑚样品进行 EPR 剂量测定,但是这两种样品很可能直接受到了阳光照射<sup>[9]</sup>。

### 4.3 代谢过程的影响

在 EPR 测量中,顺磁中心是通过  $\text{CO}_2^-$  自由基的测量来实现的。 $\text{CO}_2^-$  自由基在活体器官中的稳定性较低,很容易受代谢影响而发生改变。在活鼠牙齿与死鼠牙齿中,辐射所致  $\text{CO}_2^-$  自由基的生成率的差别相当大<sup>[10]</sup>。

当回顾性剂量测定的主要目的是为了揭示辐射暴露的事实而不是要准确测定吸收剂量时,采用在受照后较短时间内的健全牙齿可以忽略代谢的不利影响。但是,在重建切尔诺贝利事故中的个人剂量中,分析代谢的影响是非常重要的,因为照射发生在 10 多年前,EPR 剂量测定者能得到的牙齿通常是因龋齿而损坏了的。牙齿受龋齿影响的部分与牙齿健康部分相比,特点是本底信号更加强烈。当不得不使用龋齿时,可以在超声浴中用氢氧化钠处理来减小本底信号。EPR 剂量学不仅包括处理样品和记录谱的标准化技术,还必须包括代谢和牙疾对重建剂量影响的估算方法<sup>[10]</sup>。

### 4.4 各向异性现象的干扰和应用

在牙釉质中, $\text{CO}_2^-$  自由基的 EPR 信号有不寻常的角度相关性<sup>[11]</sup>。这是因为:在生物无机物中,EPR 信号的各向异性效应与有机基质的结构、生物晶体取向附生现象有关。由于存在各向异性效应,摆放样品的角度变化将影响 EPR 信号的强度。通过将盛于试管中的样品摇动均匀、提高牙釉质的纯度、或是在扫描过程中用角度计来旋转粉末样品等都可减小各向异性,提高测量结果的重复性<sup>[12]</sup>。牙疾改变了生物无机物中的无机成分和有机成分,也就改变了各向异性效应。因为疾病引起的生物无机物特性的改变将导致辐射缺陷体系改变<sup>[13]</sup>。用 EPR 方法研究生物无机物中的各向异性效应也许能够了解到:生物无机物内部结构状态和机构因疾病原因而发生的改变。

### 4.5 不同牙齿及牙齿不同部位取样对结果的影响

不同牙齿的咀嚼表面形状不同,产生剂量测定的  $\text{CO}_2^-$  信号的碳酸盐质量分数不同,辐射灵敏度的

亦不同<sup>[14]</sup>。所测牙齿通常是因为牙疾而拔下, 这样的牙齿大都被严重破坏, 只能获取很少的一部分牙釉质供 EPR 测量。如果分别测量牙齿的前面和后面, 将进一步减少样品的质量。因此, 为了使牙釉质的质量尽可能的大, 报道的剂量值通常是牙齿前面和后面(向颊面和向舌面)的平均吸收剂量。这种方法的弊端是估算结果与牙齿厚度有关, 因为牙齿本身就存在放射衰减<sup>[2]</sup>。有人指出: 无论是实验值还是计算值, 都不能仅用指数衰减规律来解释牙齿从前至后的剂量减少, 因为在总的剂量值中, 散射辐射吸收也起了很大的作用。他们发现在不同厚度的牙齿从前至后的衰减范围为 0.3~0.6, 相应的整颗牙齿体积的平均剂量变化约 15%。也有人得到的从前至后衰减结果和他们一致。牙釉质质量越大, 灵敏度越高, 灵敏度还与牙齿的相对健康情况有关<sup>[15]</sup>。

#### 4.6 温度的影响

有人对 CO<sub>2</sub><sup>-</sup>自由基的 <sup>13</sup>C 超精细牙釉质 EPR 谱进行研究时, 将受  $\gamma$  照射的牙釉质样品粉末在不同的温度下退火 40min, 温度在 250℃以下, 发现谱线的形状和分裂峰取决于退火的温度。这是因为, 在受照牙釉质中存在两种 CO<sub>2</sub><sup>-</sup>自由基: 一种 CO<sub>2</sub><sup>-</sup>自由基绕它的 O-O 轴快速旋转, 这些自由基形成了轴对称的顺磁中心, 产生了轴对称 EPR 谱; 另一种 CO<sub>2</sub><sup>-</sup>自由基受羟基磷灰石晶格缺陷制动而停止旋转, 这些自由基形成正交对称的顺磁中心, 产生了正交 EPR 谱。这两种 CO<sub>2</sub><sup>-</sup>自由基和其他碳的自由基对 EPR 谱都有贡献。而在未加热的或是轻微加热的牙釉质样品的羟基磷灰石中有大量的晶格缺陷。因此, 这些样品中的正交中心要比轴对称中心多得多。随着退火温度上升, 晶体结构得以改善, 使正交中心向轴向中心转化。在 EPR 谱中可以观察到: 随着样品退火, 谱线变窄。这种现象就可以用缺陷的数量减少来解释<sup>[16]</sup>。

## 5 结语

用 EPR 方法能够可靠地估算剂量水平在 15~20mGy 的群体平均剂量<sup>[4]</sup>, 但是对于个体剂量测定, 在相同的不确定度下, 能测量到 50mGy 就十分困难了。

在所有的测量中, 应该以确定的修正因子的形式来考虑系统误差, 在这样的不确定度水平上, 方

法上的任何细节改变(如制备样品, 测量谱的参数)将导致修正因子的显著变化。所以, 为了得到比较统计处理的一系列结果, 需要研究人员采用相同的方法和修正参数<sup>[4]</sup>。

人们已经认识到影响 EPR 结果的若干因素, 并采取了各种方法来提高测定结果的准确性和可重复性, 为 EPR 剂量测定方法的日益完善和广泛应用奠定了基础。但是, 我们还应该看到, 要将 EPR 技术用到低剂量测量, 特别是 15mGy 以下的剂量测量, 还需要做更多的研究工作。

#### 参 考 文 献

- [1] Regulla D. From dating to biophysics-20 years of progress in applied ESR spectroscopy[J]. *Appl Radiat Isot*, 2000, 52(5): 1023-1030.
- [2] Aragno D, Fattibene P, Onori S. Dental radiography: tooth enamel EPR dose assessment from Rando phantom measurements [J]. *Phys Med Biol*, 2000, 45(9): 2671-2683.
- [3] Romanyukha AA, Nagy V, Slepchonok O, et al. Individual biodosimetry at the natural radiation background level[J]. *Health Phys*, 2001, 80(1): 71-73.
- [4] Ivannikov AI, Skvortsov VG, Stepanenko VF, et al. Tooth enamel EPR dosimetry: sources of errors and their correction [J]. *Appl Radiat Isot*, 2000, 52(5): 1291-1296.
- [5] Ivannikov AI, Tikunov DD, Skvortsov VG, et al. Elimination of the background signal in tooth enamel samples for EPR-dosimetry by means of physical-chemical treatment[J]. *Appl Radiat Isot*, 2001, 55(5): 701-705.
- [6] Fattibene P, Aragno D, Onori S. Effectiveness of chemical etching for background electron paramagnetic resonance signal reduction in tooth enamel[J]. *Health Phys*, 1998, 75(5): 500-505.
- [7] Ignatiev EA, Romanyukha AA, Koshta AA, et al. Selective saturation method for EPR dosimetry with tooth enamel[J]. *Appl Radiat Isot*, 1996, 47(3): 333-337.
- [8] Haskell EH, Kenner GH, Hayes RB. Electron paramagnetic resonance dosimetry of dentine following removal of organic material [J]. *Health Phys*, 1995, 68(4): 579-584.
- [9] Bartoll J, Stosser R, Nofz M. Generation and conversion of electronic defects in calcium carbonates by UV/Vis light [J]. *Appl Radiat Isot*, 2000, 52(5): 1099-1105.
- [10] Brik A, Baraboy V, Atamanenko O, et al. Metabolism in tooth enamel and reliability of retrospective dosimetry[J]. *Appl Radiat Isot*, 2000, 52(5): 1305-1310.
- [11] Scherbina OI, Brik AB. Temperature stability of carbonate groups in tooth enamel[J]. *Appl Radiat Isot*, 2000, 52(5): 1071-1075.
- [12] IAEA. Use of electron paramagnetic resonance dosimetry



with tooth enamel for retrospective dose assessment [M]. Austria: IAEA, 2002. 25-26.

[13] Brik A, Haskell E, Brik V, et al. Anisotropy effects of EPR signals and mechanisms of mass transfer in tooth enamel and bones[J]. Appl Radiat Isot, 2000, 52(5): 1077-1083.

[14] Zdravkova M, Crockart N, Trompier F, et al. Retrospective dosimetry after criticality accidents using low-frequency EPR: a study of whole human teeth irradiated in a mixed neutron and gamma-radiation field [J]. Radiat Res, 2003, 160(2): 168-173.

[15] Haskell EH, Hayes RB, Romanyukha AA, et al. Preliminary report on the development of a virtually nondestructive additive dose technique for EPR dosimetry [J]. Appl Radiat Isot, 2000, 52(5): 1065-1070.

[16] Ishchenko SS, Vorona IP, Okulov SM, et al.  $^{13}\text{C}$  hyperfine interactions of  $\text{CO}_2^-$  in irradiated tooth enamel as studied by EPR [J]. Appl Radiat Isot, 2002, 56(6): 815-819.

(收稿日期: 2004-03-09)

文章编号: 1001-098X(2004)03-0132-04

## 介入放射学诊疗过程患者受照剂量及防护措施

徐国千

**摘要** 介入放射学在过去 20 多年来得到迅速的发展, 新的技术和影像监视手段也获得不断的进步, 其在临床上的应用日益广泛, 给患者带来了巨大的利益。与此同时, 介入放射学对患者的高辐射剂量也引起了许多国家放射学界的密切关注, 开展了很多对患者的辐射剂量测量以及防护措施的研究, 并提出了很多有价值的建议。

**关键词** 介入放射学; 患者剂量; 辐射防护

中图分类号 R144.1 文献标识码 A

### Radiation doses received by patient and prevention methods in interventional radiology procedures

XU Guo-qian

(Institute of Radiation Medicine and Public Health, Suzhou University, Suzhou 215007, China)

**Abstract** With the rapid development of interventional radiology over the last 20 years, the new techniques and image guidance tools have also acquired a continuous advance. A growing number of patients have benefited from their increasing application in clinic. Meanwhile, a close concern has been growing for high patient doses in the interventional radiology circle in many countries. Studies have been conducted on dosimetry and protection methods with multiple valuable suggestions.

**Key words** interventional radiology; patient doses; radiation protection

#### 1 一般介绍

介入放射学(interventional radiology, IR)是以影像诊断为基础, 在医学影像诊断设备的引导下, 利用穿刺针、导管及其他介入器材, 对疾病进行诊断或治疗。从上个世纪 30 年代前后, IR 就已经开始在临床上应用, 尤其是在过去的 20 多年里, 随着

医学影像技术和设备的发展, IR 的临床应用范围不断扩大, 影像监视手段也从早期使用的直接 X 线透视到 DSA (数字减影血管造影)、超声、CT 透视, 以及近年来出现的开放型 MRI。上个世纪 90 年代中期, 作为一种较小侵入性的引导工具, 计算机体层摄影荧光透视检查<sup>[1]</sup>已被用于各种类型的经皮介入操作, 如精确的穿刺针放置、活组织检查、导管插入和引流术等, 它能实时地重建和显示 CT 图像, 并且克服了超声波成像和传统的荧光透视检