

DOSIMETRÍA ESR EN ESMALTE DENTAL IRRADIADO CON RAYOS X

Fainstein C.*, Winkler E.*, Dubner D.†, Gisone P.†, Pérez M.R.†, Saraví M.‡, Álvarez P.‡, Dávila F.§.

* Instituto Balseiro(UNCuyo) y Centro Atómico Bariloche (CNEA),

† Autoridad Regulatoria Nuclear. Gerencia de Apoyo Científico,

‡ Centro Atómico Ezeiza (CNEA),

§ Ateneo Argentino de Odontología.

RESUMEN

Dosimetría Histórica, o la evaluación del efecto de radiaciones ionizantes en el tiempo, es de natural interés en actividades vinculadas a Medicina y a Arqueología. Un método dosimétrico de aplicación creciente, Dosimetría ESR (Retrospectiva), consiste en la medición del paramagnetismo permanente creado en el material por la irradiación. En este trabajo discutimos criterios generales para realizar mediciones de Dosimetría ESR, en esmalte dental de molares irradiados con fotones de 66keV, para el caso de Dosis $D \leq 1$ Gy. Comenzamos definiendo el proceso de preparación y los límites de calidad de la muestra-sensor, para luego definir las condiciones de irradiación, y finalmente la adquisición y procesamiento de los datos. El espectro EPR resulta bien descrito considerando dos tipos de defectos paramagnéticos: uno de momento magnético (en magnetones de Bohr) $g=2,0041$, y el otro con $g_1=2,0018$, $g_2=1,9972$. La primera señal espectral es asociada a proteínas residuales, y su amplitud pico-pico por mg (h_{pp}/mg), es relativamente independiente de la Dosis D (Gy). En cambio, los valores h_{pp}/mg de la segunda señal espectral, correlacionan linealmente con la dosis D , en el rango que hemos investigado: $0Gy < D < 1,2Gy$. Los resultados obtenidos de los espectros ESR ajustan bien ($R^2=0,996$) con la expresión lineal: $[h_{pp}/mg] = -0,2(0,4) + 14,9(0,5) \cdot D$ [Gy].

Estos resultados apoyan la confianza creciente en el uso de este material, y este procedimiento, como método para determinación de Dosis Histórica.

ESR DOSIMETRY BELOW 1 Gy, IN X-RAY IRRADIATED TOOTH ENAMEL.

Fainstein C.*, Winkler E.*, Dubner D.†, Gisone P.†, Pérez M.R.†, Saraví M.‡, Álvarez P.‡, Dávila F.§.

* Instituto Balseiro(UNCuyo) y Centro Atómico Bariloche (CNEA),

† Autoridad Regulatoria Nuclear. Gerencia de Apoyo Científico,

‡ Centro Atómico Ezeiza (CNEA),

§ Ateneo Argentino de Odontología.

ABSTRACT

Tooth enamel, extracted from molars, was irradiated with 66keV X-rays, with doses up to 1Gy. The preparation of the powder samples is described, as well as the protocol for the acquisition and processing of the spectra. The radiation induced paramagnetism is measured, at room temperature, by ESR Spectroscopy. The ESR spectra is well described considering two paramagnetic species, with magnetic moments (in units of Bohr magnetons) $g=2,0041$, and $g_1=2,0018$, $g_2=1,9972$.

The ESR data (peak-to-peak amplitude per mg, h_{pp}/mg , vs dose D), for doses $0Gy < D < 1,2Gy$, are well fitted ($R^2=0,996$) with the linear expression: $[h_{pp}/mg] = -0,2(0,4) + 14,9(0,5) \cdot D$ [Gy].

The result supports the growing confidence in the use of this material, and method, in Retrospective Dosimetry.

MOTIVACIÓN

La continua búsqueda de nuevos y confiables métodos de medición de Dosis de radiaciones ionizantes, es responsable de la incorporación de Espectrometría de Resonancia Paramagnética Electrónica (EPR) a esta actividad. La propiedad física que se utiliza es el paramagnetismo inducido en el material por la irradiación, que en algunos casos, es de carácter permanente. La intensidad de este paramagnetismo correlaciona con la dosis y es medible, en forma precisa y no destructiva, mediante EPR. Por lo tanto, materiales sólidos pueden ser utilizados como indicadores permanentes del tipo de partícula y dosis de irradiación recibida. Finalmente, la firmeza de la base científica de espectrometría EPR en materiales sólidos, deja abierta la posibilidad de implementar un Sistema Dosimétrico, reproducible y de valor legal, en actividades relacionadas con irradiación de materiales. Un ejemplo actual es el caso de Dosimetría ESR/Alanina, que utiliza al aminoácido L-Alanina como sensor dosimétrico, según las Normas ASTM E1607 (1996) ⁽¹⁾, e ISO/DIS 15566 (1998) ⁽²⁾.

En este trabajo discutiremos la utilización del material sólido *esmalte dental* como sensor de irradiación con fotones de 66keV; un caso de particular interés en Dosimetría Histórica ^(3,4) (Retrospectiva), por ser de aplicación en la evaluación correcta de dosis recibida por seres vivos, y necesario para el diseño del tratamiento médico específico.

PREPARACION DE LAS MUESTRAS

El material utilizado como sensor es esmalte dental, que fue extraído por método químico de ocho piezas dentales, todos molares en buen estado.

Las piezas dentales fueron colocadas en una solución saturada de NaOH ^(5, 6), en baño ultrasónico, durante 600min, y posteriormente lavadas con agua destilada (cuatro veces) por llenado, agitación y decantación. Un segundo tratamiento fué realizado, nuevamente con solución saturada de NaOH, en baño ultrasónico, durante 500min. El lavado final se realizó con agua destilada (cinco veces, 30min. cada vez), en baño ultrasónico, con recambio del agua cada vez. Finalmente las piezas dentales fueron secadas en desecador al vacío (~200mm Hg) durante una hora. Durante todo el proceso se mantuvo la temperatura debajo de 60°C.

Con este procedimiento el esmalte es fácilmente separado de la dentina, con fresa de carburo de tungsteno a baja velocidad. Los fragmentos de esmalte así obtenidos fueron molidos en mortero de porcelana, hasta obtener un polvo que pasa a través de un tamiz de 1000µm, y finalmente es vuelto a secar al vacío durante dos horas.

IRRADIACIÓN

El esmalte dental en polvo, colocado en tubos Eppendorf de 1,5 cm³, fue irradiado a valores de dosis, en aire, de 0,376(0,006)Gy, 0,580(0,009)Gy y 1,139(0,017)Gy. La irradiación se realizó en un haz de rayos X colimado (6cm de diámetro sobre la muestra), de energía efectiva 66 keV obtenido con equipo Siemens Stabilipan 300, en las siguientes condiciones: 140 kVp, filtro inherente 2mm de aluminio y filtros adicionales de 0,3mm de cobre y 1,02mm de aluminio. Las muestras fueron colocadas en el centro del campo, donde la tasa de dosis en aire fue determinada con cámara de ionización de grafito de 0,6cm³, resultando su valor de 0,0436(0,0004) Gy/min.

ESPECTROMETRÍA EPR

La medición de los espectros se realizó en la región de Banda X (frecuencia 9,76Ghz, $H(g=2)\approx 340\text{mT}$), con adquisición digital de los datos. Los espectros ESR fueron obtenidos a temperatura ambiente, y los parámetros del instrumento limitados a no alterar la forma de línea espectral.

Para su ubicación en el espectrómetro, el esmalte dental en forma de polvo es almacenado en tubos de cuarzo de pared delgada, de 4mm de diámetro interior, utilizándose aproximadamente 200mg de muestra en cada medición. Como control real de la estabilidad general del espectrómetro, durante todas las mediciones, hemos utilizado una señal de referencia, obtenida de un cristal de MgO conteniendo impurezas de Mn^{2+} , ver Figura 1.

La Figura 1 muestra el espectro correspondiente a la referencia Mn^{2+} y al esmalte dental no irradiado. La línea central corresponde al esmalte dental, y ambas laterales a Mn^{2+} . En Figura 2 mostramos los espectros de Figura 1 y los correspondientes al esmalte dental irradiado. Como medida de la intensidad de las líneas ESR de esmalte dental, tomamos al valor de la amplitud pico-pico, por mg de muestra, $[\text{h}_{\text{pp}}/\text{mg}]$, normalizando a un mismo valor de la amplitud pico-pico de la señal de referencia.

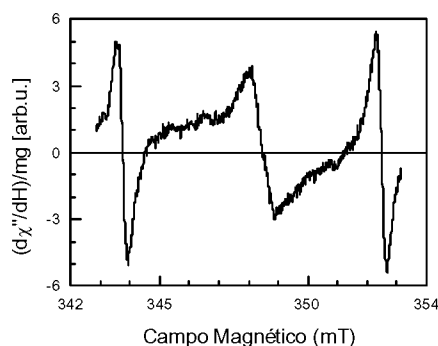
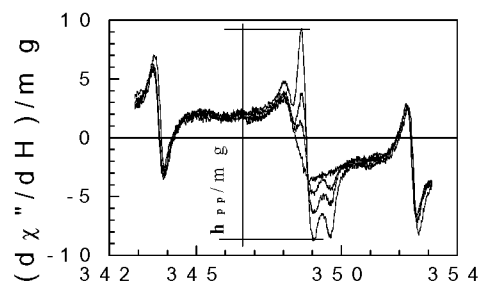


Figura 1. *Espectro EPR de esmalte dental no irradiado (línea central) y de las líneas de referencia ($\text{Mn}^{2+}:\text{MgO}$, líneas laterales).*

El espectro ESR de Figura 1 muestra una señal espectral caracterizada por un momento magnético efectivo $g=2,0041$, en magnetones de Bohr. La línea espectral es asimétrica [$A/B=(3,5/2,8)=1,25$], y su ancho pico-pico es $\Delta H_{\text{pp}}=0,9\text{mT}$. El origen de esta línea espectral es incierto, siendo usualmente atribuida a algún residuo orgánico ^(4, 6). El efecto de irradiación con fotones de 66keV sobre este material orgánico se manifiesta en el aumento de la intensidad de la línea, que hemos estimado en $1,4(0,2) [\text{h}_{\text{pp}}/\text{mg}]/\text{Gy}$.



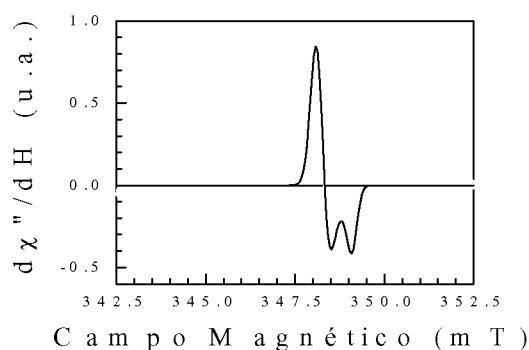
C a m p o M a g n é t i c o (m T)

Figura 2. Conjunto de los espectros ESR correspondientes a esmalte dental para valores de Dosis $0\text{Gy} < \mathbf{D} < 1,14\text{Gy}$. En la figura se indica el valor de la amplitud pico-pico por mg de muestra, $[h_{pp}/\text{mg}]$.

La Figura 2 muestra el espectro ESR de Figura 1 junto con los espectros de esmalte dental correspondientes al total de las muestras irradiadas. Se pueden observar las señales espectrales correspondientes a la señal de referencia, ubicadas en ambos extremos del espectro. Para todas estas mediciones, la variación en la amplitud pico-pico para la señal de referencia es de 1,2% (1σ).

En el centro del espectro, correspondiente a los valores de Dosis mencionados arriba, se observa la aparición de una nueva señal espectral, cuya amplitud crece con la Dosis. El origen de esta señal está asociado a la presencia de carbonatos en el esmalte dental, cuya concentración se estima entre 2% y 3,5%.

La línea espectral producto de la irradiación está caracterizada por los momentos magnéticos efectivos $g1=2,0018$ y $g2=1,9972$, en unidades de magnetones de Bohr ^(4, 6). Los valores $g1$ y $g2$ se obtienen a partir del ajuste de la línea espectral, que realizamos con el programa BRUKER EPR Versión 1,0 ⁽⁷⁾, y se muestran en la Figura 3.



1

Figura 3. Simulación de la línea espectral correspondiente a esmalte dental irradiado con rayos X de 66keV, Dosis=1,14(0,02)Gy. Se obtienen los momentos magnéticos, en unidades de μ_B , $g1=2,0018$ y $g2=1,9972$.

DISCUSIÓN DE RESULTADOS

Los espectros ESR indican que el material-sensor es sensible a irradiación, en este caso fotones de 66keV, y que la línea espectral crece monótonamente con la Dosis recibida. Por otra parte, los parámetros físicos que medimos para ambos tipos de defectos paramagnéticos coinciden con los obtenidos por otros autores, utilizando muestras locales, otros tipos de radiaciones ionizantes, y siguiendo protocolos similares al de este trabajo.

Para establecer la relación entre Dosis y línea espectral ESR resulta necesario hacer algunas consideraciones. El análisis detallado del fenómeno de Resonancias Magnéticas, utilizando el modelo de Bloch, conduce a concluir que la doble integral de la línea espectral es proporcional al número de defectos paramagnéticos. En nuestro caso, donde el defecto paramagnético es siempre el mismo, la amplitud pico-pico de la línea espectral resulta ser una buena aproximación al número de defectos. En este trabajo hemos tomado como representativo del número de defectos a la amplitud pico-pico por mg de muestra, $[h_{pp}/mg]$, en la forma que indicamos en la Figura 2.

Consideremos en primer lugar la línea correspondiente al residuo orgánico, de valor $g=2,0041$. Del conjunto de los espectros resulta posible realizar una estimación de los valores $[h_{pp}/mg]$ en función de la Dosis entregada. Para la dependencia de la amplitud pico-pico/mg vs Dosis, obtenemos el valor $[h_{pp}/mg]/Dosis=1,4(0,2)$ (u.arb.)/Gy.

Los datos referidos al defecto asociado al radical carbonato, se obtienen descontando el espectro del material no irradiado, ver Figura 4. Los datos ajustan bien ($R^2=0,996$) con una función lineal, de donde obtenemos la relación: $[h_{pp}/mg] = -0,2(0,4)+14,9(0,5) D$ [Gy], válida para el rango de dosis $0Gy < D < 1,14Gy$.

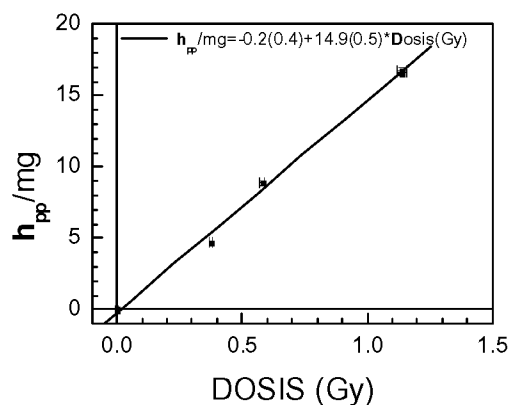


Figura 4. Variación de la amplitud $[h_{pp}/mg]$ de la línea ESR de esmalte dental en función de Dosis, para el rango $0Gy < D < 1,14Gy$.

CONCLUSIONES/EVALUACIÓN

El material "esmalte dental" es básicamente hidroxiapatita carbonatada (8, 9, 6), cuya fórmula química es $Ca_{10}(PO_4)_6CO_3H_2O$. Su estructura cristalina está caracterizada por arreglos de átomos en forma tubular, lo que favorece la inclusión de impurezas inorgánicas, e incluso moléculas orgánicas de cierto tamaño, como el aminoácido glicina. La señal ESR que hemos llamado residuo orgánico, puede entonces asociarse a material orgánico naturalmente presente en el esmalte dental. El hecho que diferentes autores,

utilizando piezas dentales provenientes de individuos de diferentes culturas, obtengan la misma señal ESR, desalienta ideas sobre diferencias basadas en características nacionales, o incluso raciales.

Con respecto a la señal utilizada como indicador de la dosis, los valores de los parámetros ESR, g_1 y g_2 , permiten asociar la presencia de carbonatos (radical $(CO_3)^{2-}$) con el defecto paramagnético. Se han propuesto diferentes modelos estables del defecto, por ejemplo, un electrón atrapado por el radical $((CO_3)^{3-})$, lo que da origen a una distorsión local en el arreglo planar carbono-oxígenos.

Por otra parte, la relación de intensidades entre ambas líneas ESR, resulta ser diferente para diferentes autores (X), lo cual influye naturalmente en sus conclusiones. El origen de estas diferencias no es claro en este momento, debido a la falta de un estudio organizado con criterio epidemiológico.

Este trabajo, resultado de una acción coordinada entre laboratorios de CNEA y ARN, demuestra la aplicabilidad de la EPR en esmalte dental para la detección de bajas dosis de radiación constituyendo una herramienta de importancia primaria en aplicaciones médicas, así como en Dosimetría Histórica y reconstrucción dosimétrica en situaciones de sobreexposición accidental.

REFERENCIAS

1. "Use of the Alanine-EPR DOSIMETRY System", ASTM E1607 (1996).
2. "Use of an alanine-electron paramagnetic resonance dosimetry system", ISO ISO/DIS 15566 (1998).
3. M.Ikeya, "Dating a Stalactite by electron paramagnetic resonance". *Nature* **255**, pp48-50, (1975).
4. H.Ishii, M.Ikeya and M.Okano, "ESR Dosimetry of Teeth of Residents Close to Chernobyl Reactor Accident", *J. Nuclear Science and Technology*, **27**(12), 1153-1155 (1990).
5. S.Egersdorfer, A.Wieser, A.Muller. *Appl Radiat .Isot*, **47**, pp 1299, (1996).
6. A.A Romanyukha, R.B.Hayes, E.H.Haskell, G:H.Kennert. "Geographic variations in the EPR spectrum of tooth enamel", *Rad. Prot. Dosim.*, **84**, pp445 (1999).
7. BRUKER EPR V1.0 (1997), Bruker Analytische Messtechnik GMBH. www.bruker.de
8. G.Montel, G.Monel, J-C.Trombe, J-C.Heughebaert, et C.Rey, "Progres dans le domaine de la chimie des composes phosphores solides a structure d'apatite. Application a la biologie et au traitement des minerais, *Pure & Appl. Chem.*, **52**, pp.973-987. Pergamon Press Ltd. (1980).
9. M.Ikeya. "Radiation Effects in Organic and Inorganics for ESR Dosimetry". *Appl.Radiat.Isot.*,**47**(11/12), pp.1479~1481, 1996.