

照射温度对丙氨酸/电子自旋共振剂量计灵敏度的影响

陈丽姝

(中国原子能科学研究院, 北京 102413)

橘宏行 春山保幸

(日本原子力研究所, 高崎辐射化学研究中心, 日本)

摘要 环境温度对辐射在丙氨酸/电子自旋共振 (alanine/ESR) 剂量计中感生的顺磁中心相对产额的影响, 是它用于量值传递时的一项重要修正因素。本工作在控制影响因素不变的条件下, 对它进行了系统研究。得到了当总剂量分别为 1.0×10^5 、 1.4×10^4 和 $1.4 \times 10^3 \text{ Gy}$ 时, 温度 $10-70^\circ\text{C}$ 范围内的灵敏度平均温度系数 $(\Delta S/S)/\Delta T$ 分别为 $0.252\%^\circ\text{C}^{-1}$ 、 $0.222\%^\circ\text{C}^{-1}$ 和 $0.237\%^\circ\text{C}^{-1}$ 。实验结果表明, 在剂量高于 10^3 Gy 范围内, 温度系数略依赖于总剂量和所处的照射温度。

关键词 丙氨酸, 电子自旋共振, 剂量计, 高剂量计, 传递剂量计, 温度系数

在辐射处理技术应用中, 实现剂量测量的标准化是在线控制和质量保证的重要措施^[1-3]。国际原子能机构 (IAEA) 多年来资助的一些科研合同得到的结论表明, 在现有的高剂量计中, Alanine/ESR 剂量计的许多一般特性和剂量学特性能满足参考标准的要求^[4-8]。但是作为传递剂量计还需要对传递过程中实际情况下的一些影响因素进行研究并加以修正^[9-11], 其中环境温度的变化和样品受照时温度的升高 (尤其是用电子束照射时) 都会对剂量的响应有影响。为此本工作对照射温度的影响进行了研究。

实验设备和方法

很多因素都影响辐射在丙氨酸中感生的自由基浓度。在研究温度效应时必须严格控制其它条件完全不变。本工作使用的设备和方法概述如下:

1. 辐射场

由 ^{60}Co 棒组成的板源 ($300 \text{ mm} \times 530 \text{ mm}$, 活度为 $2.5 \times 10^{15} \text{ Bq}$)。在离源平面 270 mm 处 $150 \text{ mm} \times 150 \text{ mm}$ 面积上辐射场的均匀性 (1σ) 小于 1% 。在离源较远距离处均匀性更好。源反复升降时位置的误差小于 $\pm 0.5 \text{ mm}$ 。

2. 温度、湿度自动控制系统

为了精确控制照射温度, 照射时把 alanine 剂量计放在一个尺寸为 $300 \text{ mm} \times 300 \text{ mm} \times 300 \text{ mm}$ 铝板制成的带空调的盒子内。自动调节的温度范围 $5-70^\circ\text{C} \pm 0.1^\circ\text{C}$ 。相对湿度 $30\%-90\% \pm 5\%$ 范围内长时间自动稳定控制。

3. γ 辐射剂量的刻度

用经国家基准刻度过的次级标准平行平板电离室^[13]测量了该 ^{60}Co 板源中心垂直轴上不同距

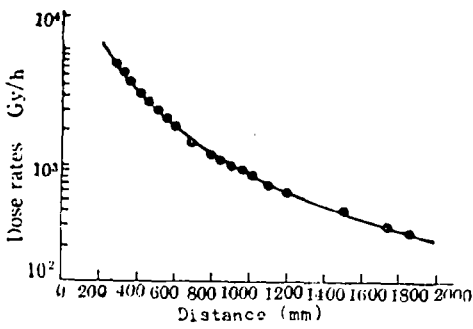


Fig 1. Dose rates at various distances of centre axis for the slab ⁶⁰Co source (300×530 mm²)

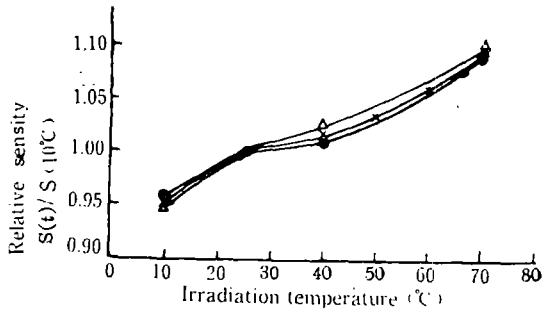


Fig 2. Relationship between relative sensity and irradiation temperature for Alanine/ESR dosimeter
dose(Gy) (○)1.4×10³ (×)1.4×10⁴
(△)1.4×10⁵

Tab 1. Temperature coefficients of α-alanine dosimeter

Dose (Gy)		1.0×10^5			1.4×10^4			1.4×10^3		
Irradiation temp. (°C)	Ref. value	Average val. Rel. sensity	corrected Temp. coeff. (% °C ⁻¹)	Ref. value	Average val. Rel. sensity	corrected Temp. coeff. (% °C ⁻¹)	Ref. value	Average val. Rel. sensity	corrected Temp. coeff. (% °C ⁻¹)	
70	3.0775	1.158	0.263	3.075	1.145	0.241	3.12	1.149	0.248	
60				3.045	1.103	0.209				
50				3.07	1.078	0.194				
40	3.09	1.085	0.285	3.025	1.054	0.179	3.07	1.064	0.214	
25	3.12	1.061	0.405	3.08	1.042	0.281	3.13	1.052	0.349	
10	3.20	1.000		3.085	1.000		3.113	1.000		
Linear regressive		0.00252 °C ⁻¹			0.00222 °C ⁻¹			0.00237 °C ⁻¹		
Temperature coefficients		r = 0.989, n = 4			r = 0.980, n = 6			r = 0.986, n = 4		

离处的照射量率值(见图 1)，然后转换成空气中的吸收剂量值。该电离室测量的准确度为 2%。

4. 测读系统

用一台简易 ESR 谱仪^[15]来测量辐射感生的自由基浓度。所用 DL-丙氨酸剂量计基质为 30% 的聚苯乙烯和 70% 的 DL-丙氨酸。剂量计长 20 mm，直径 3 mm，测读时处于磁场十分均匀的共振腔内。测量的重复性用相对标准偏差表示，小于 0.5%(n=10)，实验测定了 3 种剂量照射的样品在共振腔内不同位置时 ESR 谱仪得出的结果。

实验中相对湿度均控制在 35%±1%，以单独观察温度的影响。测定在照射总剂量为 1.0×10⁵、1.4×10⁴ 和 1.4×10³Gy 三种情况下，样品受照温度分别为 10、25、40、50、60 和 70℃ 时的响应值。实验时将样品放在温度湿度控制盒内、在所需的温度湿度下 2 h。待其与周围温度达到平衡(在自动记录仪上有显示)后，经 ⁶⁰Co 源照射 10 min，在恒温(22℃)室内测量 ESR 波谱

的峰-峰值。所有测量结果均相对于参考值进行了修正。每个温度下的响应(ESR波谱峰-峰值)是3批照射的平均值, 每批5个样品, 标准偏差约为0.5%。

结 果

辐射场剂量的测定、照射温度湿度的控制和ESR信号的测读等全由计算机完成。得到了总剂量分别为 $1.0 \times 10^5 \text{ Gy}$ 、 $1.4 \times 10^4 \text{ Gy}$ 和 $1.4 \times 10^3 \text{ Gy}$ 时, 这种剂量计在照射温度为 $10\text{--}70^\circ\text{C}$ 范围内的相对灵敏度 $S(T)/S(10)$ [$S(T)$ 定义为照射温度 T 时单位剂量产生的ESR信号的峰-峰值], 和线性回归的温度系数 $(\Delta S/S)/\Delta T$ (见表1)。为了与其他作者的结果进行比较(见表2), 图2表示了相对于 25°C 时的相对灵敏度 $S(25)$ 与照射温度 t 的关系。由图可见, 在 $10\text{--}70^\circ\text{C}$ 范围,

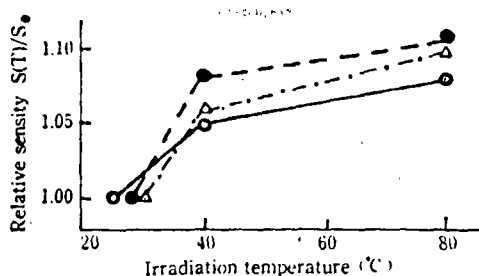


Fig 3. Relationship between relative sensity and irradiation temperature from Janovsky^[14] et al.
dose(kGy) (○)1 (●)10 (△)30

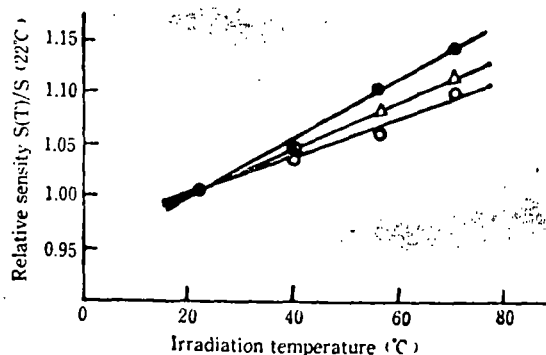


Fig 4. Relationship between relative sensity and irradiation temperature from Regulla^[8] et al.
dose (kGy) (●)1.71 (○)5.15 (△) 109

Tab 2. Comparisons on temperature coefficients from several authors

Reference	Bounding medium	Temp. range ($^\circ\text{C}$)	Dose range (Gy)	Temp. coeff. ($\Delta S/S)/\Delta T$, ($^\circ\text{C}^{-1}$)
[7.8]	paraffin	-10—90	$<10^4$	0.0018
		-10—90	10^5	0.0031
[14]	polyethene	25—80	$10^3\text{--}3 \times 10^4$	0.003—0.005
		25—40		0.0005—0.0007
		40—80		
[5]	paraffin coating on surface	20—47	200, 420 (10 Mev, E^-)	0.003
[15]	polystyrene	0—70	10^3	0.0029
[17]		0—80	$<10^4$	0.002
Chen Lishu et al.	polystyrene	10—70	10^3	0.00237
		10—70	10^4	0.00222
		10—70	10^5	0.00252
		10—70	$10^3\text{--}10^5$	0.00237
[10]	paraffin	-97—50	$<10^3$	0.00185

* $>10^3$ 时为 $S(22^\circ\text{C})/S(T) = 1 - (0.00185) + 1.05 \times 10^{-5} \times (D-1) \times Q(D-1) \times (T-22^\circ\text{C})$
 $Q(D-1)$ 为阶跃函数

总剂量高于 10^3Gy 时, 相对灵敏度随温度升高而加大。灵敏度的温度系数 $\Delta S/S \cdot \Delta T$ 随温度升高略有增大的趋势。拐点出现在测量温度附近。在 3 种不同剂量 (10^3 、 10^4 和 10^5Gy) 时在, 一级近似条件下, 在 $10-70^\circ\text{C}$ 范围内视为线性增长时的平均温度系数分别为 0.00237 , 0.00222 和 $0.00252^\circ\text{C}^{-1}$ 。这一结果与 Janovsky 等人的结果有相似的变化趋势(见图 3), 也与重粒子的情况相似。Henriksen⁽¹⁶⁾对重粒子的产额与照射温度的关系的研究表明, 120K 以下产额为常数。在 $120-360\text{K}$ 范围, 温度上升, 产额增高, 且温度系数 $(\Delta Y/Y)/\Delta T$ 随温度略有增大趋势⁽¹⁹⁾。尽管重粒子和 γ 及电子辐射的传能线密度(LET)不同。但是产生顺磁中心的机理有相同之处。Regulla 等人得到的完全是一种线性关系(见图 4), 其温度系数在 $20-70^\circ\text{C}$ 内是常数。但 Wieser⁽¹⁰⁾和 Regulla 后来的一篇文章中也发现相对灵敏度与照射温度和总剂量都有经验公式(对 $>1\text{kGy}$)。

结 论

本文研究了在高剂量范围($1 \times 10^3-1 \times 10^5\text{Gy}$)、照射温度在 $10-70^\circ\text{C}$ 时对灵敏度的影响, 结果表明相对灵敏度 $[S(T)/S(25^\circ\text{C})]$ 随照射温度而升高, 微分温度系数(见图 2 曲线的切线 $\Delta S/S(T) \cdot dT$)略有上弯的趋势。但在粗略使用时, 可以采用这一段温度的平均温度系数, 即在 $10-70^\circ\text{C}$, $1 \times 10^3-1 \times 10^5\text{Gy}$ 范围取 $0.00237^\circ\text{C}^{-1} \pm 0.00015^\circ\text{C}^{-1}$ 。在应用 alanine/ESR 剂量计的许多领域里, 当照射温度相差 10°C (或更大)时, 给结果带来的误差约为 2.4% 。采用修正系数后仅为 0.06% , 高于 10^5Gy 以后, 剂量-响应曲线由于自由基的生成和符合二种竞争过程而出现明显的饱和现象, 所以预计灵敏度的温度系数不会再增长。测量不同类型辐射时还要考虑灵敏度与传能线密度(LET)的关系。

参 考 文 献

- 1 McLaughlin W L. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 1989; 945
- 2 Mosse D C. Radiat. Phys. Chem., 1988, 31 (4-6): 413
- 3 Nam J W, Regulla D F. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 1989 40 (10): 953
- 4 Olsen K J, Hansen J W et al., Int. J. Appl. Radiat. Isot., 1989, 40 (10): 985
- 5 Schneider M K H et al., 1984, IAEA-SM-272/12
- 6 McLaughlin W L. 1984, IAEA-SM-272/44
- 7 Regulla D F, Deffner U. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 1982, 33: 1101
- 8 Regulla D F, Deffner U. 1984, IAEA-SM-272/39
- 9 Hansen J M, Olsen K J et al. Radiation Protection Dosimetry. 1987, 19(1): 43
- 10 Wieser A et al., Int. J. Appl. Radiat. Isot., 1989, 40(10): 957
- 11 Regulla D F et al., IAEA-SM-205
- 12 Prydz S et al., Acta Chemica Scandinavica 1961, 15: 791
- 13 Tanaka R et al., 1985, IAEA-SM-272/17
- 14 Janovsky I et al., Int. J. Appl. Radiat. Isot., 1988, 39 (7): 651
- 15 Kojima T et al., Int. J. Appl. Radiat. Isot., 1989, 40 (10-12): 851
- 16 Henriksen T. Radiation Research, 1966, 27: 694
- 17 Deffner U et al., Nuclear Instrument and methods, 1980, 175: 134
- 18 Bartalotta A et al., 1985, IAEA-SM-272/41
- 19 SincLair J W. et al., 1969, 71(1): 84

(稿件收到日期: 1991 年 7 月 23 日)

(下转第 219 页 See p 219)

POTENTIAL ROLE OF H_2CN RADICALS IN PREBIOTIC SYNTHESIS

Qi Shengchu Wang Demin Han Zongzhan Sun Piju

(Peking University, Beijing 100871)

ABSTRACT Using ab initio method, the minimum energy conformations and net charge distribution have been studied for H_2CN radical isomers formed by addition of a H atom (or an electron) to HCN (or HNC) molecule. Calculations show that there are three possible isomers, namely H_2CN (I), H_2CN (II) and H_2CN (III). The order of relative stability is (I) > (III) > (II). From quantum chemical study and the estimations in thermochemistry for the reactions (1) and (2), the possible role of H_2CN radicals in prebiotic organic synthesis has been discussed and it has been proposed that H_2CN (III) radical is an important intermediate to synthesize amino acids. The results show that HNC is also an important product in the evolution chain of biomolecules under some special conditions, such as the electric discharge for atmosphere.

KEYWORDS ab initio calculation, H_2CN radical, HCN, HNC, Amino acids
 α -aminoacetonitrile, Polyglycine

(上接第 206 页 Continued from p 206)

EFFECT OF IRRADIATION TEMPERATURE ON SENSITIVITY OF ALANINE/ESR DOSIMETRY

Chen Lishu

Tachibana H Haruyama Y

(Institute of Atomic Energy, Beijing 102413) (Atomic Energy Research Institute, Takasaki, Japan)

ABSTRACT The present work has dealt extensively and systematically with the effect of ambient temperature on the relative sensitivity of paramagnetic centres for DL-alanine dosimeter during irradiation under the conditions of some other affecting factors unchanged. The average temperature coefficients obtained are 0.00252, 0.00222 and $0.00237^\circ\text{C}^{-1}$ for the total doses of 10^5 , 10^4 , and 10^3Gy respectively. The data are instructive not only in practical use of alanine/ESR dosimetry as a transfer dosimeter but also in examining the mechanism on formation of paramagnetic centres.

KEYWORDS Alanine, Electron spin resonance, Dosimeter, Transfer dosimeter, Temperature coefficient