

Određivanje dozimetrijskih svojstava sintetičkih dentalnih koštanih nadomjestaka spektroskopijom elektronske paramagnetske rezonancije

Zgurić, Ivana

Master's thesis / Diplomski rad

2020

Degree Grantor / Ustanova koja je dodijelila akademski / stručni stupanj: **University of Zagreb, Faculty of Science / Sveučilište u Zagrebu, Prirodoslovno-matematički fakultet**

Permanent link / Trajna poveznica: <https://um.nsk.hr/um:nbn:hr:217:708541>

Rights / Prava: [In copyright](#)/[Zaštićeno autorskim pravom.](#)

Download date / Datum preuzimanja: **2024-11-22**



Repository / Repozitorij:

[Repository of the Faculty of Science - University of Zagreb](#)



SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
PRIRODOSLOVNO-MATEMATIČKI FAKULTET
FIZIČKI ODSJEK

Ivana Zgurić

ODREĐIVANJE DOZIMETRIJSKIH
SVOJSTAVA SINTETIČKIH DENTALNIH
KOŠTANIH NADOMJESTAKA
SPEKTROSKOPIJOM ELEKTRONSKE
PARAMAGNETSKE REZONANCIJE

Diplomski rad

Zagreb, 2020.

SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
PRIRODOSLOVNO-MATEMATIČKI FAKULTET
FIZIČKI ODSJEK

INTEGRIRANI PREDDIPLOMSKI I DIPLOMSKI SVEUČILIŠNI STUDIJ
FIZIKA; SMJER: NASTAVNIČKI

Ivana Zgurić

Diplomski rad

**ODREĐIVANJE DOZIMETRIJSKIH
SVOJSTAVA SINTETIČKIH
DENTALNIH KOŠTANIH
NADOMJESTAKA
SPEKTROSKOPIJOM ELEKTRONSKE
PARAMAGNETSKE REZONANCIJE**

Voditelj diplomskog rada: dr. sc. Nadica Maltar Strmečki

Ocjena diplomskog rada: _____

Povjerenstvo: 1. _____

2. _____

3. _____

Datum polaganja: _____

Zagreb, 2020.

Zahvala

„Čovječe, pazi da ne ideš malen ispod zvijezda!“

A. B. Šimić

Veliku zahvalu dugujem svojoj mentorici dr. sc. Nadici Maltar Strmečki na nevjerojatno velikom strpljenju, pristupačnosti, pomoći i vodstvu pri izradi diplomskog rada.

Zahvaljujem i prof. dr. sc. Miroslavu Požeku i doc. dr. sc. Maji Planinić na sugestijama i pomoći oko izrade diplomskog rada.

Zahvaljujem i svim profesorima koji su godinama poticali moju znanstvenu i kritičku sposobnost zaključivanja.

Veliku zahvalu želim iskazati i svojim kolegama i prijateljima, koji su uvijek bili uz mene, u teškim i u lijepim trenucima.

Najveću zahvalu želim iskazati osobi koja je uvijek bila moja stijena i moja najveća podrška. Osobi zbog koje sam danas to što jesam, svojoj mami Miri Zgurić.

Ovaj Diplomski rad izrađen je u Laboratoriju za magnetske rezonancije Zavoda za fizičku kemiju Instituta Ruđer Bošković pod mentorstvom dr. sc. Nadice Maltar Strmečki i prof. dr. sc. Miroslava Požeka s Fizičkog odsjeka, Prirodoslovno-matematičkog fakulteta, Sveučilišta u Zagrebu. Diplomski rad izrađen je u okviru projekta Hrvatske zaklade za znanost pod nazivom "Mehanizmi nastajanja kalcijevih fosfata na anorganskim nanomaterijalima. Biomimetski put pripreme multifunkcionalnih nanokompozita za regeneraciju čvrstih tkiva" IP-2018-01-1493.

Sažetak

U slučaju nekontroliranih radioloških ili nuklearnih nesreća potrebno je u što kraćem roku rekonstruirati nepoznate apsorbirane doze kod žrtava u svrhu određivanja odgovarajućih medicinskih protokola. Istraživanja su pokazala da je spektroskopija elektronske paramagnetske rezonancije (EPR) brza i osjetljiva metoda retrospektivne dozimetrije, te omogućuje brzu procjenu doze velikog broja pojedinaca u kratkom vremenskom periodu. Dozimetrija spektroskopijom elektronske paramagnetske rezonancije temelji se na detekciji nastalih radikala pri izlaganju ionizirajućem zračenju, mjerenja se vrše na radikalima nastalim u materijalima pronađenim blizu ili na samoj žrtvi zračenja. Kao prirodni dozimetar koristi se zubna caklina, no zbog čestih bolesti zuba ili nadogradnji izvađenih, sastav zuba se zamjenjuje s dentalnim koštanim nadomjestcima koji su uglavnom izrađeni od sintetičkih kompozita na bazi kalcijevog fosfata. Cilj ovog istraživanja bila je usporedba svojstava dozimetrijskih signala za tri komercijalno dostupna kompozitna materijala. Uz usporedbu više načina rekonstrukcije doze, te pomoću postojećih kalibracijskih modela određene su granice detekcije zubne cakline i tri različita kompozita. U sklopu diplomskog rada istražena je i stabilnost EPR signala navedenih uzoraka u vremenu.

Ključne riječi: zubna caklina, dozimetrija, EPR spektroskopija

Study of dosimetric properties of synthetic dental bone substitutes by electron paramagnetic resonance spectroscopy

Abstract

In the case of uncontrolled radiological or nuclear accidents, it is necessary to reconstruct the unknown absorbed dose as soon as possible for determination of the appropriate medical protocols. Studies have shown that electron paramagnetic resonance (EPR) spectroscopy is a fast and sensitive method of retrospective dosimetry and allows for rapid dose assessment of many individuals in a short period of time. Dosimetry by electron paramagnetic resonance spectroscopy is based on the detection of formed radicals during exposure to ionizing radiation, measurements are performed on radicals formed in materials found near or on the radiation victim itself. Tooth enamel is used as a natural dosimeter, but due to frequent tooth diseases, restorations of lost ones or restoration with dental bone grafts that are mainly made of synthetic composites based on calcium phosphate. The aim of the study was to compare the properties of dosimetry signals for three commercially available composite materials. With the comparison of several methods of dose reconstruction, and with the help of existing calibration models, the limits of detection of tooth enamel and three different composites were determined. As part of the thesis, the stability of EPR signals over time of above samples were investigated.

Keywords: tooth enamel, dosimetry, EPR spectroscopy

SADRŽAJ:

1 UVOD	1
2 IONIZIRAJUĆE ZRAČENJE	3
3 OSNOVE DOZIMETRIJE	5
3.1 Radiometrijske veličine	5
3.2 Dozimetrijske veličine	6
4 ELEKTRONSKA PARAMAGNETSKA REZONANCIJA (EPR)	10
4.1 Osnove elektrosnke paramagnetske rezonancije.....	10
4.2 EPR spektrometar	13
4.3 EPR dozimetrija.....	16
4.3.1 Obrada signala	16
5. MATERIJALI I METODE	18
5.1 Uzorci	18
5.2 Priprema uzoraka	18
5.3 Dentalni koštani nadomjesci.....	19
6 EKSPERIMENTALNI REZULTATI I DISKUSIJA	21
7. ZAKLJUČAK	29
8. METODIČKI DIO	30
8.1. Zakon radioaktivnog raspada u nastavi fizike.....	30
8.2. Nastavna priprema: Zakon radioaktivnog raspada.....	33
8.2.1. Tijek nastavnog sata	34
9. LITERATURA	42

1 UVOD

Retrospektivna dozimetrija grana je dozimetrije s ciljem određivanja doze zračenja apsorbirane u nekom trenutku u prošlosti. Ovisno o vremenskom intervalu u prošlosti razlikujemo: nedavnu izloženost zračenju (prije par sati ili tjedana), povijesnu izloženost zračenju (nekad u prošlosti) ili kroničnu izloženost zračenju (kroz duži niz godina). Ovisno o vrsti izloženosti i broju ispitanika retrospektivna dozimetrija koristi se različitim tehnikama te se dijeli na fizikalnu i biološku retrospektivnu dozimetriju. Za biološku dozimetriju koristi se pet validiranih tehnika: 1) fluorescencija *in situ* (FISH), 2) test dicentrika (DCA) kao "zlatni standard", 3) test PCC (*eng.* premature chromosome condensation), 4) mikronukleus test sa citohalasinom B (CBMN) i 5) tehnika prebrojavanja γ -H2AX žarišta koji se formiraju na mjestu dvostrukih lanaca. U fizikalnu retrospektivnu dozimetriju uz spektroskopiju elektronskom paramagnetskom rezonancijom (EPR) ubrajaju se luminiscencijske metode (optički ili termički stimulirane) [1]

Nepredviđeni radiološki i nuklearni (R/N) akcidenti zahtijevaju brzu i točnu procjenu doze kod velikog broja ljudi. Izloženost prevelikim dozama ionizirajućeg zračenja može za posljedicu imati mučninu, gubitak kose, opekotine, bolest i smrt [2]. Kako bi se u što kraćem vremenskom periodu retrospektivno odredila apsorbirana doza, te na taj način omogućilo adekvatno medicinsko liječenje, potrebno je primijeniti brzu i efikasnu metodu određivanja apsorbirane doze. U takvim situacijama koriste se metode fizikalne retrospektivne dozimetrije [1], a metoda koja se pokazala kao efikasna u takvim slučajevima je dozimetrija pomoću EPR spektroskopije (EPR dozimetrija), u kojoj se kao dozimetar, tj. uzorak, koristi zubna caklina [3]. Metoda se pokazala adekvatnom za određivanje apsorbirane doze u rasponu od 1-10 Gy koji je iznimno važan za određivanje vrste medicinske pomoći unesrećenima. Prema izvještaju IAEA [2] simptomi akutnog radijacijskog sindroma, ARS, pojavljuju se već nakon apsorbirane doze od 1 Gy, dok je doza od 8 Gy smrtna doza. Korištena je retrospektivno na uzorcima žrtava atomskih bomba u Hirošimi i Nagasakiju bačenih 6. i 9. kolovoza 1945. godine. Procjenjuje se da je od direktne eksplozije ali i posljedica zračenja preminulo je između 140 000 ljudi u Hiroshimi i 74 000 ljudi u Nagasakiju. EPR spektroskopija koristila se i kao retrospektivna dozimetrija za žrtve stradale u eksploziji jednog od reaktora u Černobilu, 26. travnja 1986. godine. Nakon te eksplozije čestice radioaktivne prašine počele su se širiti zrakom. U eksploziji je poginula 31 osoba, a

nedugo nakon i 29 vatrogasaca koji su bili izravno izloženi radioaktivnoj prašini. U narednim godinama procjenjuje se da je više od 4000 ljudi umrlo od raka koji je bio direktna posljedica izloženosti radioaktivnim česticama. Nakon nuklearnih katastrofa u Hiroshimi, Nagasakiju i Černobilu potaknuta je rasprava o razvijanju dozimetrijske metode za opću populaciju u iznimnim situacijama. Radiološki i nuklearni akcidenti, (R/N), te moderan način ratovanja zahtijevaju brzu detekciju apsorbiranog zračenja, a kako bi se ono moglo detektirati treba pronaći sveopće raširene, pouzdane i osjetljive uzorke [4,5].

Svrha ovog diplomskog rada bila je usporediti točnost određivanja apsorbirane doze na tri različita načina pomoću signala izmjenog metodom EPR spektroskopije na zubnoj caklini, te zatim odrediti dozimetarska svojstva sintetičkih komercijalno dostupnih dentalnih koštanih nadomjestaka koji su u vremenu u kojem živimo sve češća zamjena za izgubljeni zubni volumen. Cilj rada je bio odrediti utjecaj sintetičkih dentalnih koštanih nadomjestaka na očitavanja apsorbirane doze u rasponu od 1 do 10 Gy u odnosu na prirodne uzorke zuba, odnosno zubne cakline.

2 IONIZIRAJUĆE ZRAČENJE

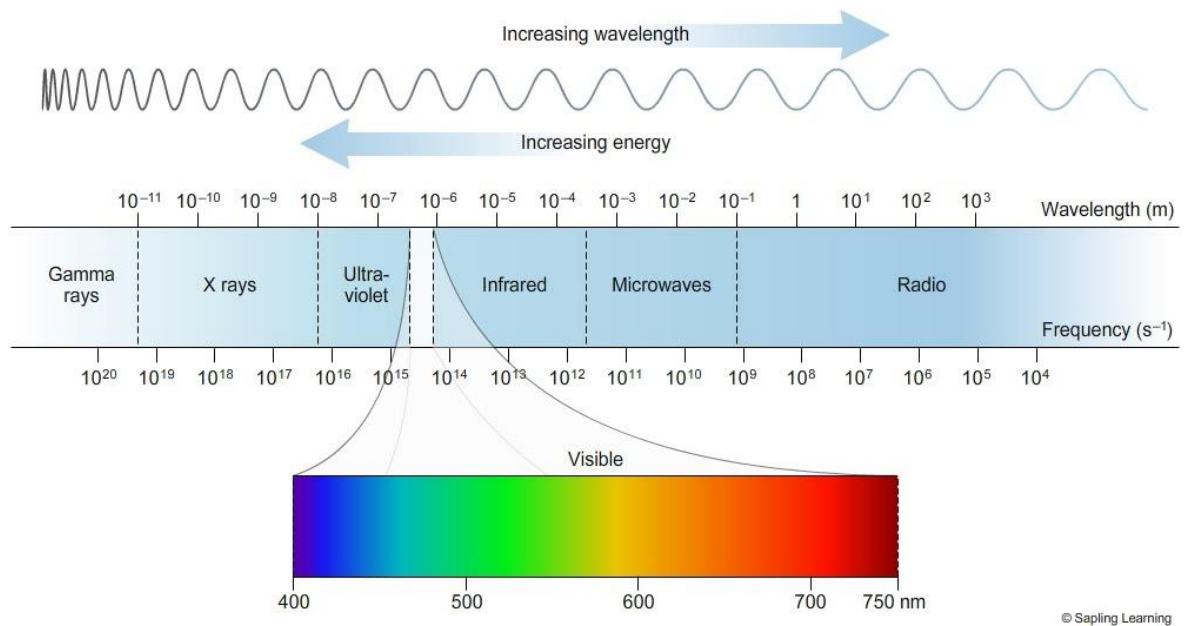
Ionizirajuće zračenje je pojava prijenosa energije u obliku fotona ili masenih čestica, ono posjeduje dovoljno energije da u procesu interakcije s materijom, neutralnom atomu ili molekuli izbije jedan ili više elektrona te na taj način ionizira materiju. S obzirom na uzrok ionizacije razlikujemo više vrsta ionizirajućeg zračenja.

- Elektromagnetsko zračenje – uz uvjet dovoljno visoke frekvencije, tu ubrajamo rendgensko i γ zračenje. Fotoni su neutralne čestice no pri visokim frekvencijama mogu ionizirati atom fotoelektričnim i Comptonovim efektom, rezultat je izbijanje elektrona neutralnom atomu relativističkim brzinama.
- Nabijene čestice – α čestice i β čestice. α čestice sastoje se od dva protona i dva neutrona (jezgra atoma helija). Zbog svoje masivnosti i naboja imaju kratak doseg, međutim α čestice su izrazito ionizirajuće. β čestice su elektroni ili pozitroni velike brzine emitirani iz radioaktivnih izvora.
- Neutralne čestice – neutroni, indirektno ionizirajuće zračenje čije posljedica nije direktna ionizacija. Neutroni reagiraju na s protonima u vodiku, prilikom interakcije dolazi do raspršenja protona tj. direktne ionizacije vodika, proton izlijeće iz vodika velikom brzinom i kao takav je ionizirajući. Protoni dalje reagiraju s elektronima u materiji, te na taj način ioniziraju materiju.

Ljudi su kontinuirano izloženi eksternom ionizirajućem zračenju iz prirodnih izvora, Dva glavna doprinosa izloženosti prirodnom zračenju su: visokoenergetske kozmičke zrake čestica (protoni, neutroni i γ zračenje) i radioaktivni nuklidi nastali u Zemljinoj kori koji su rasprostranjeni u vodi, zemlji, ali i u čovjeku (raspadaju se α β i γ zračenjem). U antropogene radioaktivne izvore tj. oni koji nisu prirodnog podrijetla ubrajamo električne uređaje koji proizvode ionizirajuće zračenje i radioaktivne izvore.

Ionizirajuće zračenje posjeduje dovoljno energije da u procesu interakcije s materijom, neutralnom atomu ili molekuli izbije jedan ili više elektrona te na taj način ionizira materiju. Bitno je napomenuti da prilikom sudara s drugim česticama nosioci ionizirajućeg zračenja predaju dio svoje energije materiji s kojom reagiraju, pri tome materija ne postaje radioaktivna već zbog izbijanja jednog ili više elektrona od neutralnog atoma nastaje električni nabijeni ion, taj proces naziva se ionizacija.

Ionizacija se odvija samo kada je energija upadnih čestica dovoljna da izbije elektron neutralnom atomu, tj. ionizirajuće zračenje karakterizirano je visokim energijama. Korelacija između energije i frekvencije dana je relacijom $E = h\nu$ vidimo da zračenje s visokom energijom ima i visoku frekvenciju (10^{16} Hz i više). Sukladno tome prema relaciji $E = \frac{hc}{\lambda}$ uviđamo da su valne duljine ionizirajućeg zračenja male (10^{-8} m i niže) [6].



© Sapling Learning

Slika 1.1. Spektar elektromagnetskog zračenja [7]

3 OSNOVE DOZIMETRIJE

3.1 Radiometrijske veličine

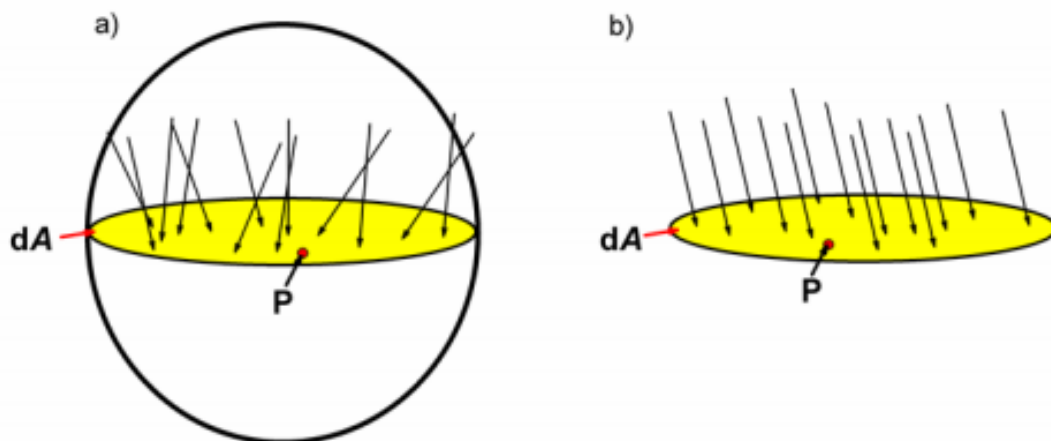
U ovom poglavlju korištena je literatura: [8,9]

Prilikom interakcije ionizirajućeg zračenja i materije dolazi do kemijskih i bioloških promjena uzrokovanih apsorpcijom energije. Kako bi opisali proces apsorpcije energije definiramo nove veličine, one mogu biti radiometrijske i dozimetrijske. Za opis svojstava zračenja koristit ćemo radiometrijske veličine, a interakciju zračenja s materijom, samim time predanu ili apsorbiranu energiju, opisujemo dozimetrijskim veličinama.

Radiometrijska veličina *tok čestica* ϕ opisuje polje zračenja tj. omjer broja čestica koje upadaju na jediničnu površinu i te površine:

$$\phi = \frac{dN}{dA} \quad (3.1.1)$$

gdje je dN je broj upadnih čestica na element poprječnog presjeka dA . Ovisno o tome govorimo li o paralelnom snopu ili o snopu koji nije paralelan, dA može biti element poprječnog presjeka kružnog oblika (paralelan snop čestica, slika 2.1.1. b) ili element poprječnog presjeka kugle (snop koji nije paralelan, slika 2.1.1. a).



Slika 3.1.1. a) Tok polja čestica nasumičnog smjera gibanja u točki P b) tok polja paralelnog snopa čestica u točki P [9]

Druga bitna veličina je *tok energije* ψ . Računa se prema izrazu

$$\psi = \phi \cdot E \quad (3.1.2)$$

gdje je E energija monoenergetskih fotona.

3.2 Dozimetrijske veličine

Kako bismo proučili utjecaj zračenja na materiju, točnije na ljudsko tkivo, potrebno je objasniti nekoliko veličina koje u obzir uzimaju i vrstu zračenja. Promjene u tkivu uzrokuje samo onaj dio energije zračenja koji neko tkivo apsorbira.

Energija ionizirajućeg zračenja apsorbirana po jedinici mase u materiji koja stvara efekte koji se prepisuju zračenju naziva se apsorbirana doza, D . Označimo s dE energiju predanu materiji mase dm , tada izraz za dozu izgleda:

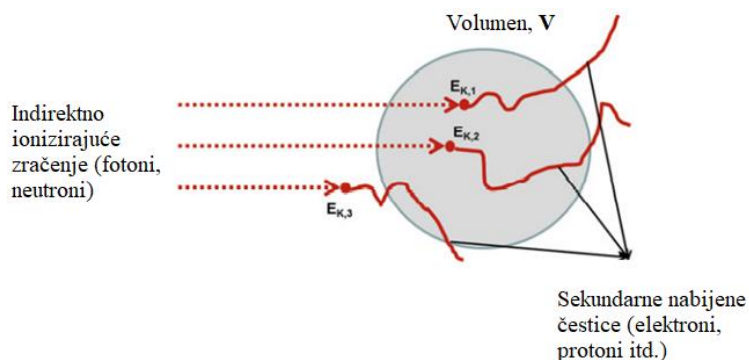
$$D = \frac{dE}{dm} \quad (3.2.1)$$

Dimenzijskom analizom dolazimo do zaključka da je mjerna jedinica doze J kg^{-1} , u dozimetriji se koristi SI mjerna jedinica gray (Gy) pri čemu je $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J kg}^{-1}$. Druga bitna jedinica je brzina apsorbirane doze, tj. povećanje deponirane energije u promatranom volumenu mase m (apsorbirana doza) u vremenskom intervalu dt .

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} \quad (3.2.2)$$

Brzinu apsorbirane doze iskazujemo u $\text{Jkg}^{-1}\text{s}^{-1}$ ili u dozimetriji Gy s^{-1} .

Srednju energiju koja je predana od indirektno ionizirajućih čestica (fotona i neutrona) unutar volumena od interesa V , na ionizirajuće čestice (elektrone, protone, alfa čestice i teške ione) isključujući prijelaz energije od jedne nabijene čestice na drugu, nazivamo kerma K po skraćenici engleskog naziva „Kinetic Energy Released per unit Mass“. Definiramo je kao sumu početnih kinetičkih energija svih nabijenih ionizirajućih čestica dE_k prenesenih putem nenabijenih čestica (fotona, neutrona), u jediničnu masu materije dm kao što je prikazano na slici 3.2.1.



Slika 3.2.1. Shematski prikaz kerme. [8]

Indirektno ionizirajuće zračenje predaje energiju sekundarnim nabijenim česticama. Prijelazi fotona kinetičke energije $E_{K,1}$ i $E_{K,2}$ događaju se unutar volumena od interesa V , te kao takvi ulaze u račun kerme. Foton kinetičke energije $E_{K,3}$ predaje energiju sekundarnoj čestici izvan promatranog volumena te kao takav ne doprinosi kermi.

$$E_{tr} = E_{K,1} + E_{K,2} \quad (3.2.3)$$

E_{tr} je ukupna oslobođena energija s indirektno ionizirajućeg zračenja na nabijene čestice unutar volumena od interesa, za N čestica vrijedi $\overline{dE_{tr}}$.

Sada možemo napisati izraz za kermu, kinetička energija oslobođena po jedinici mase u volumenu od interesa V čija je mjerna jedinica *Gray* $\left[\frac{J}{kg} = Gy\right]$:

$$K = \frac{\overline{dE_{tr}}}{dm} \quad (3.2.4)$$

Kinetička energija koja se pretvara u čestice može se potrošiti na dva različita načina.

U prvom načinu dolazi do lokalne disipacije energije u vidu ionizacije i pobuđenja u blizini ili duž traga elektrona, radi Coulombova međudjelovanja s elektronima atoma apsorbirajućeg materijala. To su međudjelovanja nastala sudarima a nazivaju se kolizijske interakcije. Kolizijske interakcije stvaraju kolizijsku kermu (eng. Collision KERMA, K_{col}).

U drugome načinu energija se gubi u međudjelovanjima s poljem jezgre atoma apsorbensa pri kojim se emitiraju fotoni zbog zakročnog zračenja pri usporavanju elektrona. Ti fotoni odnose dio energije relativno daleko od traga nabijene čestice (elektrona). To su radijacijski gubici koji čine radijacijsku kermu (eng. Radiative KERMA, K_{rad}). Pod radijacijskim gubicima podrazumijevamo konverziju kinetičke energije nabijenih čestica u energiju fotona, procesima zakročnog zračenja ili anihilacijom pozitrona nastalih u volumenu.

Ukupnu kermu dobivamo zbrajanjem oba doprinosa:

$$K = K_{col} + K_{rad} \quad (3.2.5)$$

Kolizijsku kerma možemo povezati i sa spektrom energetskega toka ψ pomoću izraza:

$$K_{col} = \psi \cdot \frac{\mu_{en}}{\rho} \quad (3.2.6)$$

gdje je $\frac{\mu_{en}}{\rho}$ maseni koeficijent apsorpcije energije za monoenergetske fotone u mediju.

Brzina kerme definira se se kao povećanje kerme dK u vremenskom intervalu dt :

$$\dot{K} = \frac{dK}{dt} \quad (3.2.7)$$

U specijalnim uvjetima ravnoteže nabijenih čestica CPE (engl. *Charged particle equilibrium*), u kojoj je ukupna energija upadnih čestica jednaka ukupnoj energiji čestica koje napuštaju volumen od interesa tj. u kojima za svaku nabijenu česticu koja izlazi iz promatranog volumena postoji istovjetna takva koja ulazi u volumen, možemo govoriti o izjednačenju doze i kerme. Prilikom interakcije fotona s energijama koje ne prelaze 3 MeV, u materijalima s niskim vrijednostima Z_{eff} , iznos radijacijske kerme ne prelazi 1% ukupne kerme, te je kao takav zanemariv, te možemo izjednačiti ukupnu kerma s kolizijskom, tj.

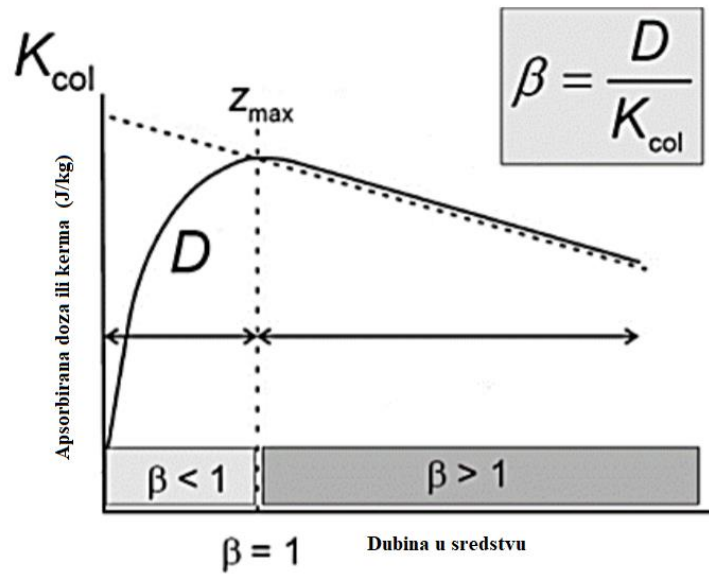
$$K = K_{col}. \quad (3.2.8)$$

Slučaj u kojem je radijacijski doprinos kerme K_{rad} zanemariv prikazan je na slici 3.2.3. Odnos između apsorbirane doze i kolizijske kerme, K_{col} , prikazan je preko korelacijskog faktora β prema izrazu:

$$\beta = \frac{D}{K_{col}} = 1. \quad (3.2.9)$$

Omjer je jednak jedinici samo u uvjetima CPE-a.

Kerma opada linearno s dubinom budući da se dubinom smanjuje i tok fotona. Apsorbirana doza raste od površine prema dubini jer se povećava broj izbijenih elektrona. Maksimum se postiže u točki koja je približno jednaka doze većine izbačenih elektrona u materiji tj. točki gdje postoji elektronska ravnoteža (Slika 2.2.3.). Na većim dubinama apsorbirana doza opada linearno kao i kerma. Područje gdje apsorbirana doza raste ($\beta < 1$) se zove područje porasta doze (eng. Build-up region). Nakon toga uspostavlja se elektronska ravnoteža te se kolizijska kerma i doza mogu izjednačiti.



Slika 3.2.3. Relacija između kerme i apsorbirane doze, D , za slučajeve u kojima je radijacijski udio kerme, K_{rad} , zanemariv [9]

4 ELEKTRONSKA PARAMAGNETSKA REZONANCIJA (EPR)

Elektronska paramagnetska rezonancija (EPR), elektronska magnetska rezonancija (EMR) ili elektronska spinska rezonancija (ESR), je spektroskopska metoda koja omogućuje detektiranje spinskih magnetskih momenata nesparenih elektrona i omogućuje informacije o međudjelovanjima paramagnetskih vrsta. Osim toga jedina metoda za detekciju i direktnu kvantifikaciju broja nesparenih elektrona. EPR metodu otkrio je ruski fizičar Zavoisky 1945. godine, kroz naredno desetljeće metodu proširuju fizičari s Oxforda, posebice fizičari Abragam i Bleane [10]. Pomoću EPR metode identificiraju se slobodni radikali, nastali međudjelovanjem ionizacijskog zračenja i tvari, te prijelazni metalni ioni u krutinama, tekućinama, plinovima, a u novije vrijeme razvijaju se i metode detekcije *in vivo*. Duljina mjerenja ovisi o uzorku, te može trajati između par minuta i nekoliko sati. Očitavanje mjerenja je nedestruktivno, te se mjerenje može više puta ponoviti na istom uzorku. Nedostatak EPR spektroskopije je što rezultati mjerenja mogu ovisiti o prirodnom, tzv. pozadinskom signalu koji ometa očitavanje signala izazvanog ionizirajućim zračenjem. [9]

4.1 OSNOVE ELEKTRONSKE PARAMAGNETSKE REZONANCIJE

U ovom poglavlju korištena je literatura: [9, 10, 11]

Paramagnetski sustav ima nespareni elektron. Elektron karakterizira operator spina S te njegov magnetski moment, koji su povezani preko izraza:

$$\vec{\mu}_e = -\gamma_e \hbar \vec{S} = -g_e \beta_e \vec{S} \quad (4.1)$$

gdje je $\gamma_e = 1.76 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1} \text{ T}^{-1}$ giromagnetski omjer elektrona, $\beta_e = 9.27 \cdot 10^{-24} \text{ JT}^{-1}$ je Bohrov magnetron za elektron, a g_e bezdimenzionalna konstanta koju nazivamo *Landeov ili g-faktor* za slobodni elektron, g_e iznosi 2.0023.

Ako na sustav djelujemo statičkim magnetskim poljem \vec{B}_0 dolazi do interakcije magnetskog momenta $\vec{\mu}_e$ s magnetskim poljem \vec{B}_0 , odziv sustava može se usporediti s magnetskom iglom u magnetskom polju.

Interakciju magnetskog momenta elektrona i magnetskog polja možemo opisati hamiltonijanom:

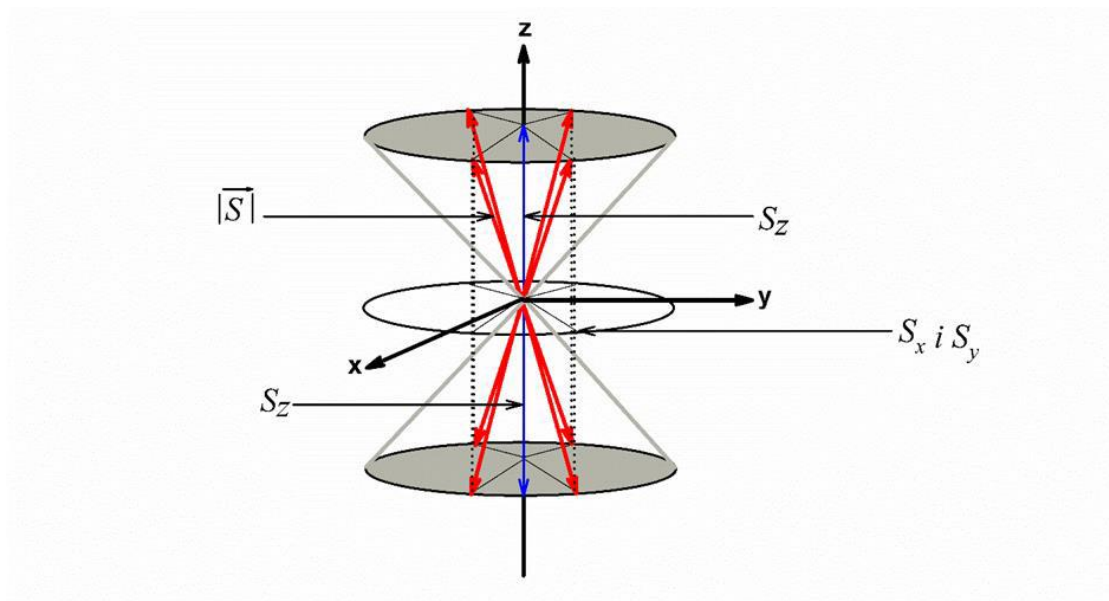
$$\mathcal{H}_0 = -\vec{\mu}_e \cdot \vec{B}_0 \quad (4.2)$$

Kako bismo dobili Hamiltonijan u kvantnomehantičkom pristupu magnetski moment elektrona opisan jednađbom (4.1) uvrštavamo u izraz za hamiltonijan klasičnog pristupa (4.2)

$$\mathcal{H}_0 = g_e \beta_e \vec{S} \cdot \vec{B}_0 \quad (4.3)$$

U kvantnomehantičkom pristupu, magnetskim moment neće se poravnati s magnetskim poljem, ali će zatvarati konačni kut sa smjerom vektora magnetskog polja (z) i precesirati oko njega (Slika 4.1.). Izaberemo smjer magnetskog polja B u pozitivnom smjeru z osi, tada jednađba (4.3.) dobiva oblik:

$$\mathcal{H}_0 = g_e \beta_e S_z \cdot \vec{B}_0 \quad (4.4)$$



Slika 4.1. Magnetski moment u kvantnomehantičkom pristupu vrši precesiju u smjeru magnetskog polja, z smjer. [9]

Za sustav s jednim nesparenim elektronom projekcija magnetskog momenta na z os kvantizirana je i može imati samo dvije različite vrijednosti, one odgovaraju klasičnom pristupu tj. paralelnom i antiparalelnom stanju. Svojevite vrijednosti spina označavamo sa S , paralelno s α ($m_s = +\frac{1}{2}$) i antiparalelno s β ($m_s = -\frac{1}{2}$). Degenerirana stanja energije iznose:

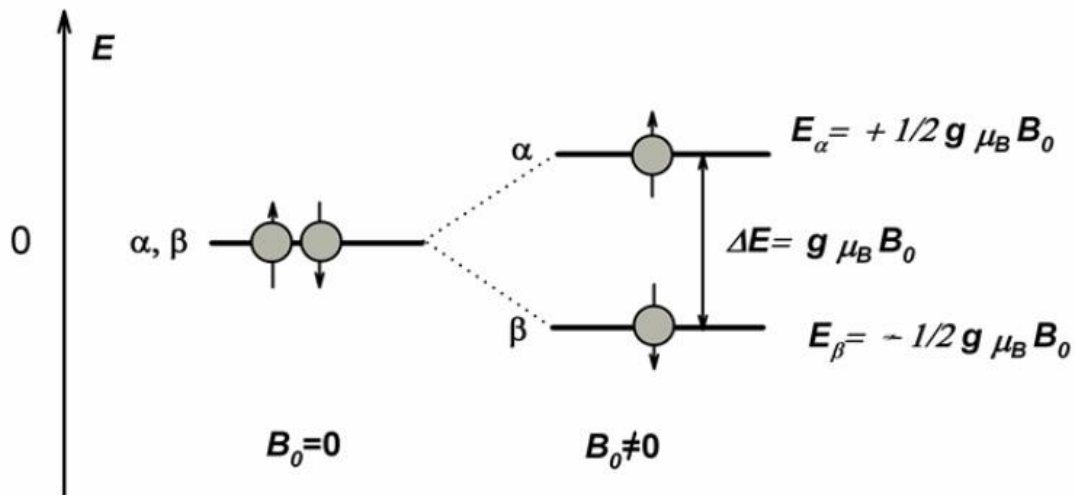
$$E_{\alpha} = +\frac{1}{2}g_e\beta_e B_0 \quad (4.5.a)$$

$$E_{\beta} = -\frac{1}{2}g_e\beta_e B_0 \quad (4.5.b)$$

Njihova razlika iznosi:

$$\Delta E = g_e\beta_e B_0 \quad (4.6)$$

Kada u jednadžbu (3.6) uvrstimo g -faktor za elektron $g_e \approx 2$ dobivamo razliku $2\beta_e B_0$. (Slika 4.2). Kad elektronski spin postavimo u vanjsko magnetsko polje B energetske nivoe se razdvajaju se, tj. cijepaju. To cijepanje naziva se Zeemanovo cijepanje, a interakciju magnetskog momenta i vanjskog magnetskog polja zovemo Zeemanova interakcija.



Slika 4.2. Zeemanov efekt – razdvjanje energetske nivoe paramagnetskog sustava u vanjskom magnetskom polju [9]

Rezultat Zeemanovog cijepanja je razlika u energiji ΔE između stanja više i niže energije. Razlika u energiji daje uvid u mikroskopsku strukturu i dinamiku sustava kojeg promatramo. Moguće ju je mjeriti zbog kvantnomehaničkog principa koji nam govori da će elektromagnetsko zračenje biti apsorbirano ako je vrijedi:

$$\Delta E = h\nu \quad (4.7)$$

Gdje je h Planckova konstanta, a ν frekvencija upadnog elektromagnetskog zračenja. Umnožak Planckove konstante i frekvencije upadnog zračenja, $h\nu$ je energija upadnog

mikrovalnog zračenja. Prilikom apsorpcije elektromagnetskog zračenja sustav prelazi iz stanja niže energije u stanje više energije. Kako bismo postigli rezonanciju elektromagnetski valovi moraju imati frekvenciju takvu da jednadžba (4.6.) bude zadovoljena. Uvrštavanjem (4.6.) u (4.7.) dobivamo jednakost:

$$h\nu = \hbar\omega = g_e\beta_e B_0 \quad (4.8)$$

U teoriji rezonanciju je moguće postići na dva načina, mijenjanjem kutne brzine ili mijenjanjem gustoće magnetskog toka, ali u praksi se rezonancija uvijek postiže promjenom gustoće magnetskog toka B_0 dok se ω drži fiksnim. Na ovaj način dobiva se apsorpcijski EPR spektar. Kada se jednadžba (4.8.) zadovolji pojavljuju se apsorpcijski signali.

Općenito, u realnom slučaju, g -faktor je tenzor karakterističan za paramagnetski sustav i određen je s dva čimbenika. Prvenstveno s centralnim atomom ili molekulom koja sadrži nespareni elektron. Osim toga, na njega utječe najbliža okolina, rešetka u kojoj se nalazi nespareni elektron te njezine nečistoće i defekti.

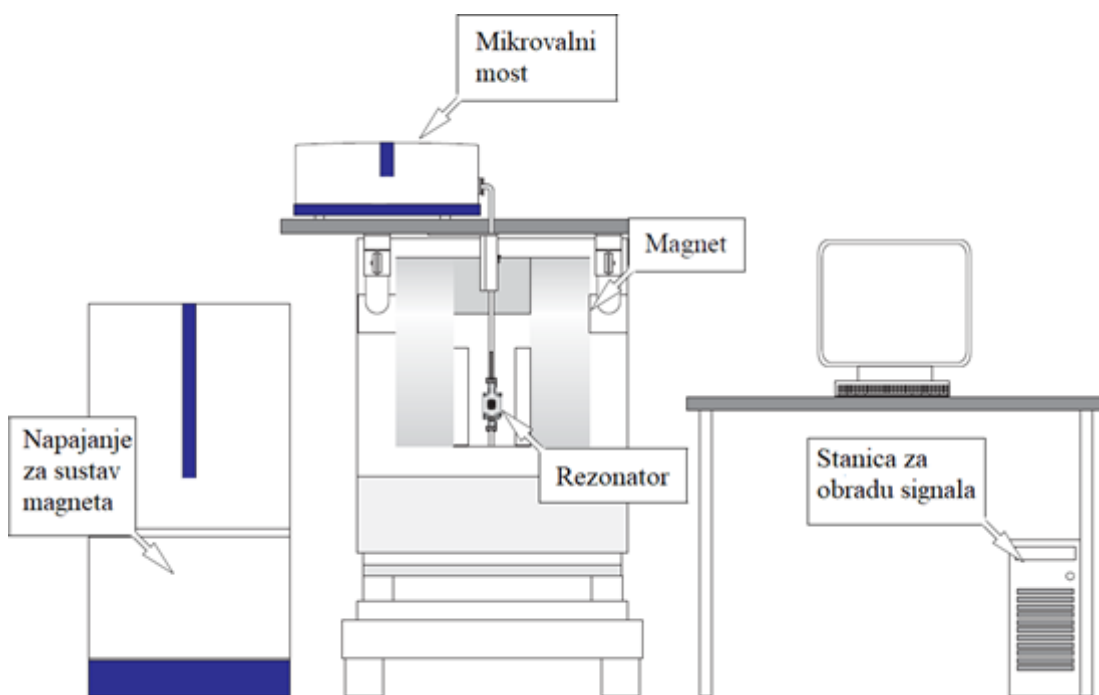
4.2 EPR SPEKTROMETAR

Glavni dijelovi EPR spektrometra su: mikrovalni most, elektromagnet i rezonantna šupljina slika 4.2.1.

Elektromagnet stvara homogeno i stabilno polje, između njihovih polova smještena je rezonantna šupljina s uzorkom. U elektromagnet ugrađena je Hallova proba za mjerenje i kontrolu magnetskog polje. Pridružena kontrolna elektronika očitava napon na Hallovoj probi te vraća ovu informaciju napajanju kako bi se pokrenulo posmicanje (engl. sweep) magnetskog polja ili stabiliziralo polje na određenoj vrijednosti. Raspon magnetskog polja je određen frekvencijom mikrovalova te svojstvima uzorka. Hlađenje magneta bazirano je na dotoku vode, pa je prije samog korištenja uređaja potrebno provjeriti da su ventili za vodu otvoreni. Uzorak se postavlja u središte rezonantne šupljine na mjesto gdje je magnetsko polje maksimalno, a električno iščezava.

Mikrovalni most ujedno je i izvor mikrovalova i detektor EPR signala. U sebi sadrži klistron, koji je izvor mikrovalnog zračenja ($\lambda \sim \text{cm}$) i detektorsku diodu. Mikrovalovi prolaze kroz prigušivač koji propuštanjem mikrovalne snage u samo jednom smjeru štiti klistron od

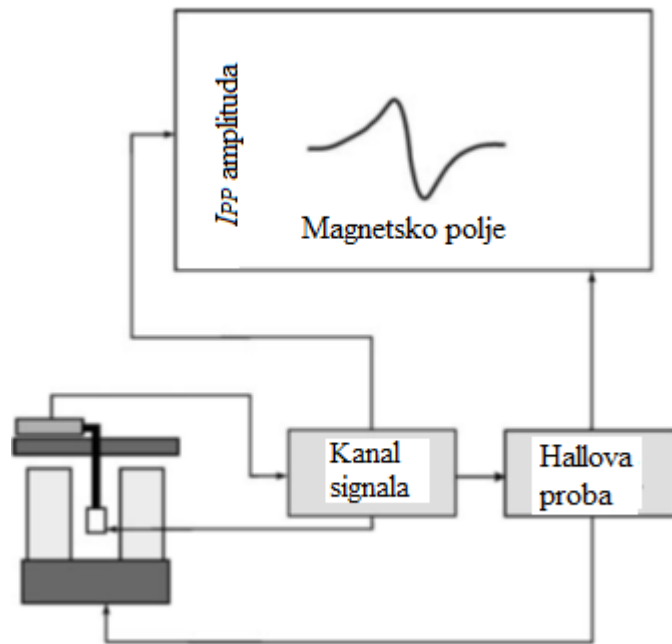
eventualno reflektirane snage iz šupljine i kontrolira intenzitet mikrovalnog zračenja tako da nema refleksije mikrovalova iz rezonantne šupljine, već transmisija pomoću koje se opaža EPR signal kad se zadovolji uvjet rezonancije.



Slika 4.2.1. Dijelovi EPR spektrometra [9]

Generirani mikrovalovi imaju frekvenciju od 8.8-9.6 GHz i mogućnost za postizanje maksimalne mikrovalne snage od 200 mW. Osjetljivost detekcije povećava se moduliranjem magnetskog polja frekvencijom od 100 kHz. Kada magnetsko polje i frekvencija zadovoljavaju uvjet rezonancije, induciraju se prijelazi spinova u viši energetski nivo te sustav bilježi EPR signal.

Snimanje EPR spektra zahtjeva istovremeno posmak/pomicanje (engl. sweep) magnetskog polja i detekciju EPR odziva uzorka. Magnetski pomak sinkronizira se s x -pomakom na računalu (Slika 4.2.2.). Pomoću mikrovalnog mosta skuplja se signal, odnosno odziv uzorka pri jednoj vrijednosti polja, te se aktivira Hallova proba da poprими sljedeću vrijednost polja. Nakon toga postupak se ponavlja.



Slika 4.2.2. Shematski prikaz EPR signala. Kanal snima signal te aktivira Hallovu probu zbog kontrole magnetskog polja. [9]

4.3 EPR DOZIMETRIJA

U sljedećem poglavlju korištena je literatura: [11]

Elektronska paramagnetska rezonancija jedan je od najzastupljenijih načina ispitivanja efekata zračenja u raznim vrstama čvrstih materijala. Kvantitativno mjerljiv efekt ionizacijskog zračenja je stvaranje slobodnih radikala u organskim tvarima tijekom ionizacije. Slobodni radikali karakterizirani su prisustvom jednog ili više nesparenih elektrona te pogodni za detekciju EPR metodom [11]. EPR metoda primjenjuje se za retrospektivnu dozimetriju, tj rekonstrukciju doza primljenih u iznenadnim nuklearnim nesrećama, radioterapiji, ozračivanju hrane i u mnogim drugim područjima.

EPR metoda primjenjiva je na raznim organskim tvarima, u našem slučaju koristimo kao model zubnu caklinu, te dentalne koštane nadomjeske. Zubna caklina je pogodan uzorak za EPR dozimetriju jer je koncentracija radikala, induciranih zračenjem, stabilna u vremenu [3]. Zbog prisutva nesparenih elektrona uzorci imaju svojstva paramagnetskog sustava te se prisutni radikali mogu detektirati EPR spektroskopijom.

4.3.1 OBRADA SIGNALA

U EPR dozimetriji, izlazni signal sastoji se od pozadinskog šuma samog instrumenta, prirodnog ili intrinzičnog signala uzorka i signala od radikala koji je izazvan pod utjecajem ionizacijskog zračenja, tzv. radijacijskog signala. Kako bi se pozadinski šum minimalizirao u što većoj mjeri, te odvojio prirodni signal uzorka potrebno je osim EPR odziva ozračenih uzorka, izmjeriti i EPR odziv neozračenog uzorka.

U dosadašnjim radovima u tu svrhu korištene su sljedeće metode [1,9,10]:

1) metoda supstrakcije pomoću intenziteta – cilj je oduzeti od ukupnog spektra ozračene zubne cakline izmjereni prirodni spektar te iz dobivenog izračunati koncentraciju radikala induciranih zračenjem, a time i dozu zračenja, pomoću mjerenja vrh-*vrh* amplitude odnosno mjerenja od minimuma do maksimuma EPR spektra, tzv. I_{pp} amplitude;

2) metoda supstrakcije pomoću površine – nakon oduzimanja prirodnog spektra zubne cakline od ukupnog, pomoću određivanja površine ispod krivulje dvostrukom integracijom određuje se koncentraciju radikala induciranih zračenjem, a time i doza zračenja;

3) metoda pomaka g -faktora-za male doze zračenja doprinos prirodnog signala uzorka usporediv je ili veći s doprinosom radijacijskog signala stoga se ukupni signal razlikuje od čistog radijacijskog, te se g -faktor pomiče s porastom doze dok doprinos radijacijskog signala ne prevlada doprinos prirodnog signala.

5. MATERIJALI I METODE

5.1 Uzorci

Odrasla osoba ima ukupno 32 zuba, koje možemo razvrstati u četiri grupe: sjekutići, očnjaci, pretkutnjaci i kutnjaci. Razlike između grupa očituju se u obliku, debljini sloja zubne cakline, poziciji u ustima, vremenu rasta, samim time postoje razlike u geometriji i vremenu ozračivanja. U obzir treba uzeti i činjenicu da su sjekutići i očnjaci kronično izloženi ultraljubičastom zračenju sa Sunca, što bi moglo utjecati na EPR signal. Iz navedenih razloga nisu svi zubi podobni za retrospektivnu EPR dozimetriju [12]. Dodatni problem predstavljaju i materijali koji se koriste za popravke ili zamjenu zubnog volumena.

5.2 Priprema uzoraka

Zubi se prvo steriliziraju u pet postotnoj vodenoj otopini natrijevog hipoklorita (NaClO) dva sata. Kruna se odvaja od korijena pomoću zubarske pile, te se razdvaja na lingualni i labijalni dio. Sljedeći korak je priprema otopine 5 M NaOH koja se sastoji od 50 g natrijevog hidroksida (NaOH) u koju se dodaje voda do volumena od 250 ml, kako bi se otopina bolje povezala potrebno ju je dobro protresti. U tu otopinu se stave pripremljeni dijelovi krune te ostave u plastičnoj bočici koja se uranja u ultrazvučnu kupku koja je do $\frac{3}{4}$ njezinog volumena ispunjena vodom. Ultrazvučna kupka zagrije se na temperaturu od 60-70°C, te radi mehaničkog odvajanja kosti od proteina uzorak ostaje u njoj ukupno 32 h. Na polovici vremenskog intervala, potrebno je zamijeniti otopinu NaOH. Uzorak se vadi iz kupke i otopine, ispire se destiliranom vodom zubarskom bušilicom otklanja se rezidualni dentin, te se postavi pod 365 nm UV svjetlost, kao rezultat pojavljuju se razlike u boji između dentina i zubne cakline te ju je na taj način lakše odvojiti. U svrhu istraživanja koristi se zubna caklina koja se nakon što se izolira stavlja se u zagrijanu pećnicu na 45 °C na otprilike 30 minuta. Na poslijetku, zubna caklina se samelje i pusti kroz sito kako bi dobili uzorak u rasponu od 0.1 do 0.5 mm. Dobiveni prah dva puta se ispire u destiliranoj vodi te se suši u pećnici zagrijanoj na 45°C u trajanju od 30 minuta [13].

5.3 Dentalni koštani nadomjesci

Zbog sve učestalijih stomatoloških popravaka, kako bi mjerenja bila što realnija, pozornost treba obratiti i na dentalne koštane nadomjestke, tj. kompozitne ispune i njihov sastav. Kompoziti su preuzeti u obliku u kojem su proizvedeni [14].

Kompozitni ispuni prolaze radijacijsku sterilizaciju u kojoj se primjenjuje doza od 25 kGy prije unosa u ljudski organizam, što je dovoljno za kontrolu gljivica (2-10 kGy) te uništavanje insekata u svim razvojnim fazama (0.5 kGy) i najvažnije virusa i bakterija (25 kGy) [15].

Ionizirajuće zračenje koje je potrebno odrediti u nadolazećim mjerenjima je četiri reda veličine manje od onog potrebnog za sterilizaciju kompozita, samim time određivanje efekata zračenja je otežano.

Naziv	Proizvođač	Sastav	Veličina granula (μm)
Poresorb-TCP	LASAK Ltd. Češka Republika	β -TCP	600–1000
Bioresorb Classic	Sybron Implant Solutions Njemačka	β -TCP	500-1000
Bioresorb Macro pore	Innova-Oraltronics, Njemačka	β -TCP	500–1000

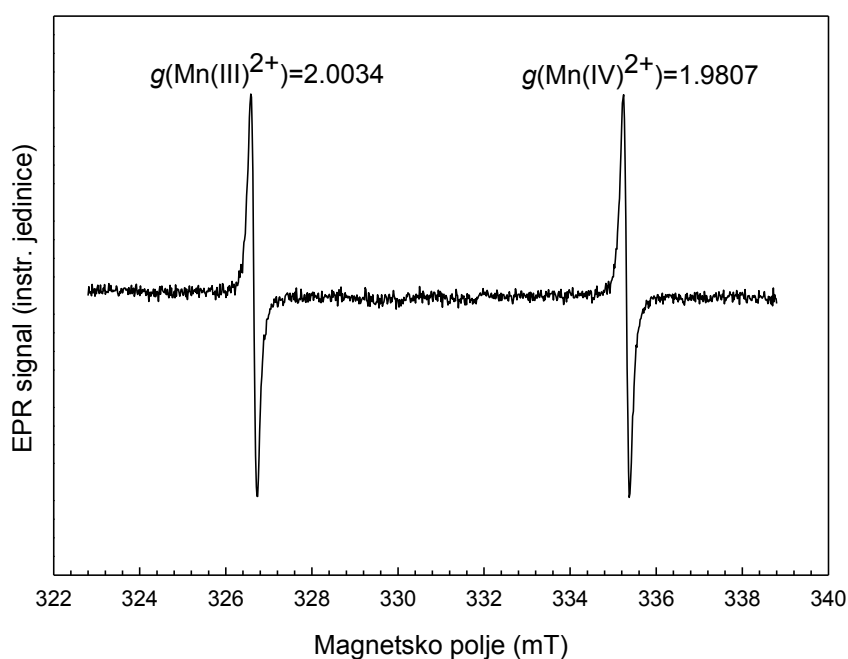
Tablica 1. Svojstva istraživanih dentalnih koštanih nadomjestaka prema specifikaciji proizvođača



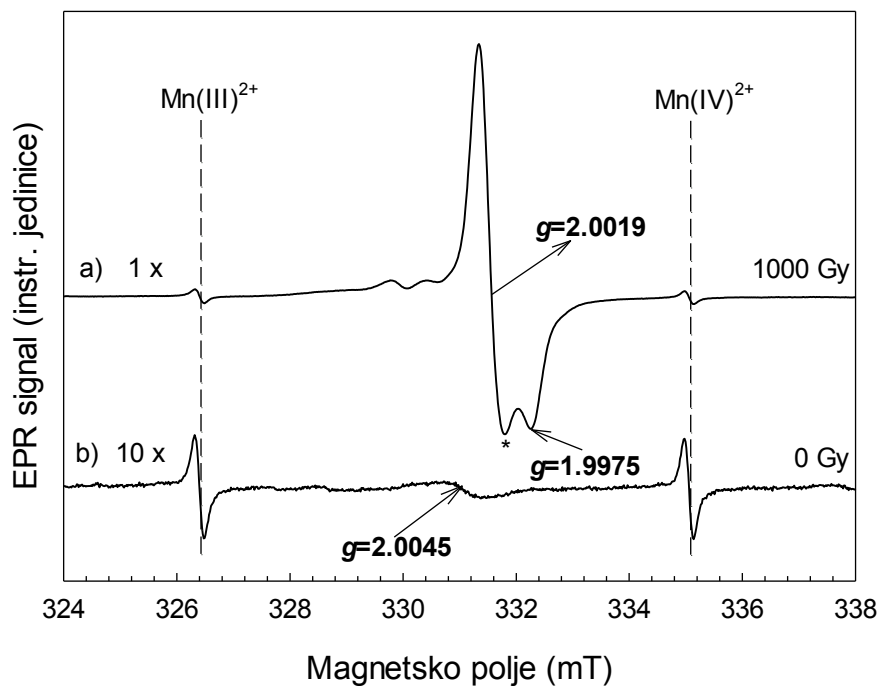
Slika 5.3.1. Komercijalni dentalni koštani nadomjesci redom PORESORB – TCP, i Bioresorb Classic (Sybron Implant Solutions) i Bioresorb Macro pore (Innova-Oraltronics)

6 EKSPERIMENTALNI REZULTATI I DISKUSIJA

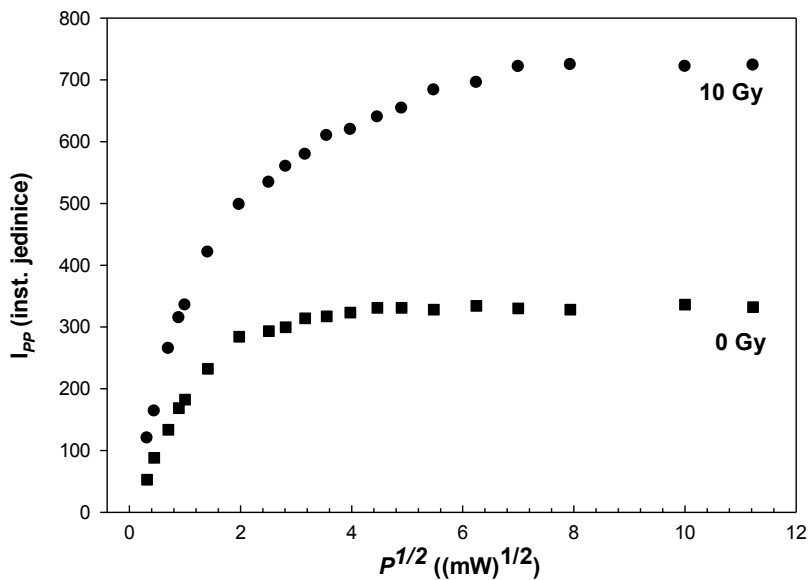
EPR mjerenja provedena su na ELEXSYS E580 EPR X-band spektrometru (Bruker BioSpin, Rheinstetten, Njemačka). Za kontrolu magnetskog polja i precizno određivanje g vrijednosti u mjerenjima je korišten standard $\text{MgO}/\text{Mn}^{2+}$, te su vrijednosti izračunate u odnosu na treću i četvrtu liniju standarda, $g(\text{Mn}_{IV}^{2+}) = 1.9807$ i $g(\text{Mn}_{III}^{2+}) = 2.0034$. Na slici 6.1. prikazan je EPR spektar samog standarda.



Slika 6.1. EPR spektar standarda $\text{MgO}/\text{Mn}^{2+}$ korištenog za kontrolu magnetskog polja i precizno određivanje g -vrijednosti.



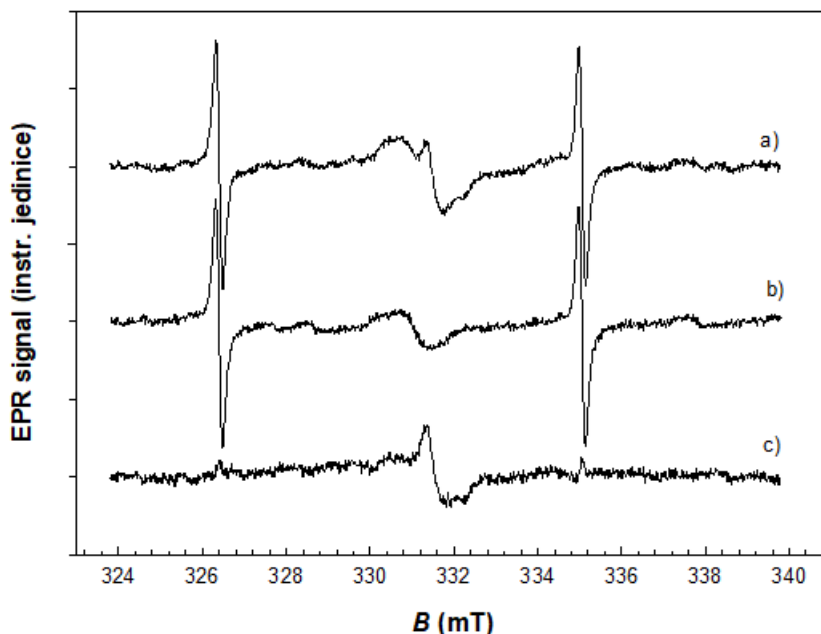
Slika 6.2. Prirodni EPR signal neozračenog uzorka zubne cakline (a) i EPR signal ozračenog uzorka zubne cakline u kojem prevladava radijacijski signal (b). Razlike u pojačanjima pri snimanju su označene na slici.



Slika 6.3. Ovisnost I_{pp} amplitude u ovisnosti o korijenu snage za promatrane uzorke.

Budući da su za primjenu važne doze ispod 10 Gy u kojima je značajan udio prirodnog pozadinskog EPR signala, u svrhu pronalaženja optimalnih uvjeta snimanja, mjerili smo ovisnost intenziteta signala o snazi mikrovalova za neozračen uzorak zubne cakline i uzorak

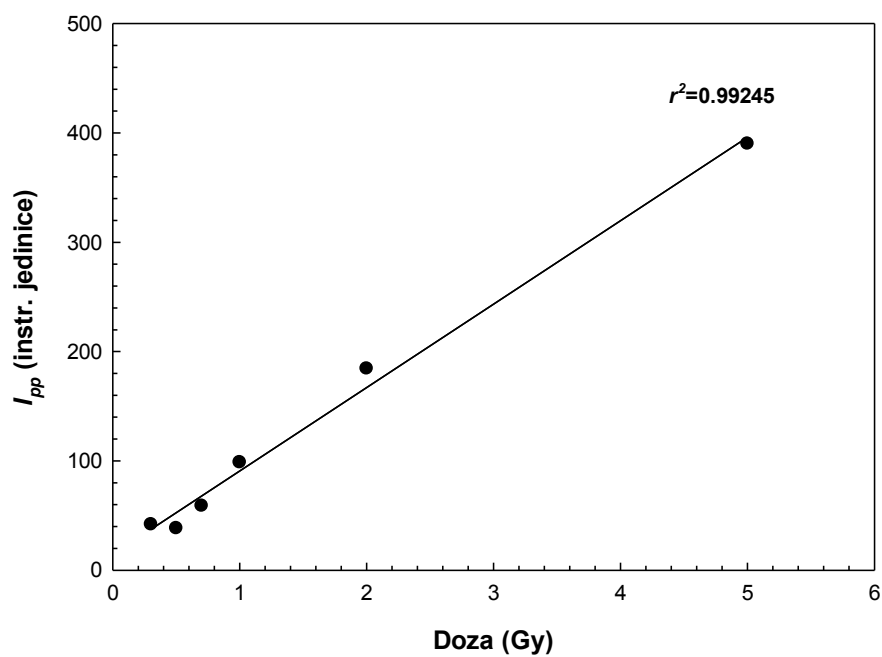
ozračen s 10 Gy. Slika 6.3. prikazuje I_{pp} amplitude u ovisnosti o koriјenu snage za promatrane uzorke. Kao optimalna snaga izabran je iznos od 6.3 mW. Pri toj snazi radijacijski signal je dovoljno veći u odnosu na prirodni signal zubne cakline, a ujedno ta snaga ne utječe značajno pojačanje šuma samog instrumenta.



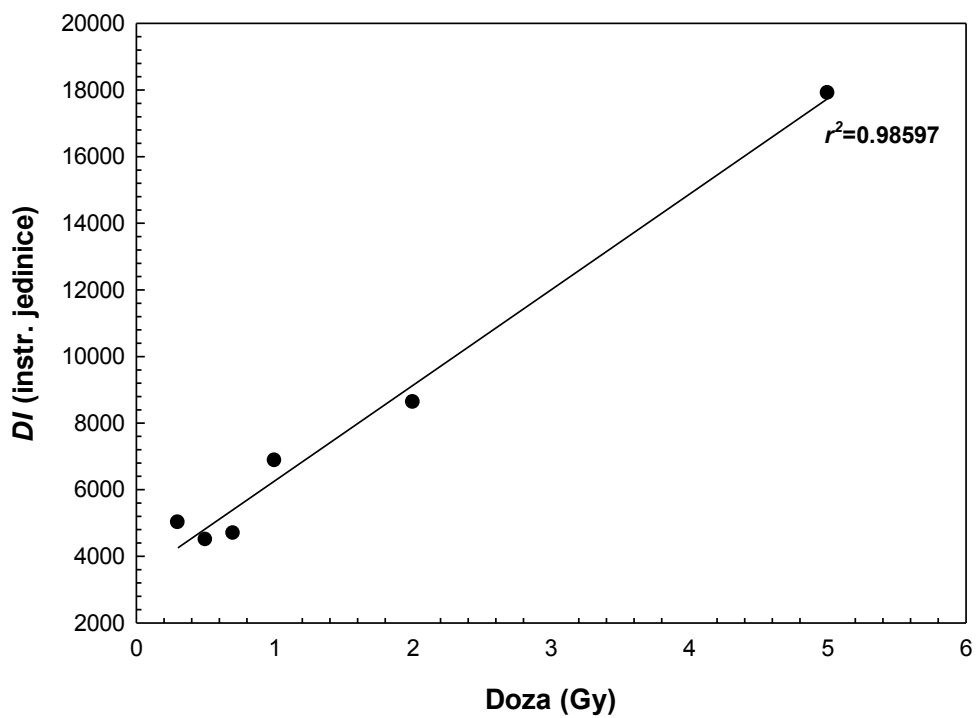
Slika 6.4. Obrada EPR spektra uzorka ozračenog s 2 Gy metodom supstrakcije.

Na slici 6.4. prikazana je metoda supstrakcije na uzorku ozračenom s 2 Gy. Ukupan EPR signal uzorka prikazan je spektrom a), prirodni spektar s b), dok je razlika ta dva spektra, odnosno zračenjem inducirani signal prikazan pod c). Pomoću standarda kontrolirano je magnetsko polje, time i g -vrijednost, te pojačanje. Svi mjereni spektri normirani su na masu uzorka.

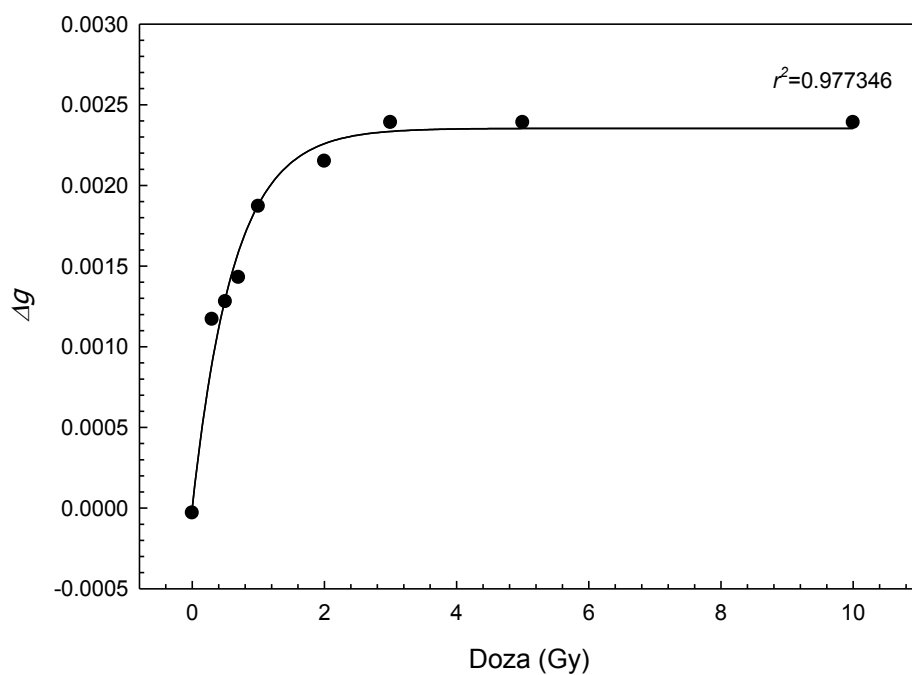
Slika 6.5. prikazuje ovisnost EPR odziva o dozi koja je dobivena metodom supstrakcije uz određivanje I_{pp} intenziteta, a slika 6.6. ovisnost EPR doziva o dozi kad je uz metodu supstrakcije korištena dvostruka integracija. Vidi se da metoda određivanja metoda pomoću I_{pp} intenziteta daje bolje rezultate od dvostruke integracije posebno za doze ispod 1 Gy. Do razlike dolazi uslijed greške koju unosi šum EPR spektra prilikom dvostruke integracije.



Slika 6.5. Kalibracijska krivulja dobiven metodom substrakcije određivanjem I_{pp} intenziteta



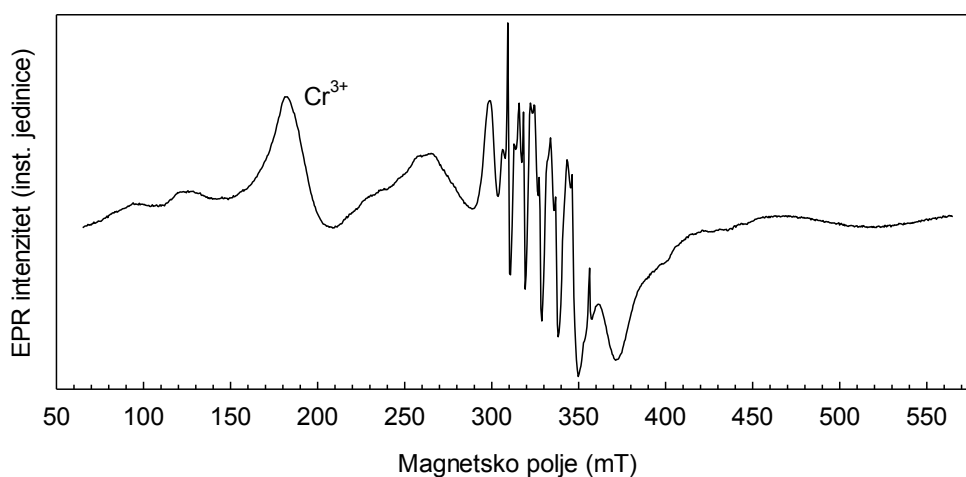
Slika 6.6. Kalibracijska krivulja dobivena metodom substrakcije pomoću dvostruke integracije EPR spektra



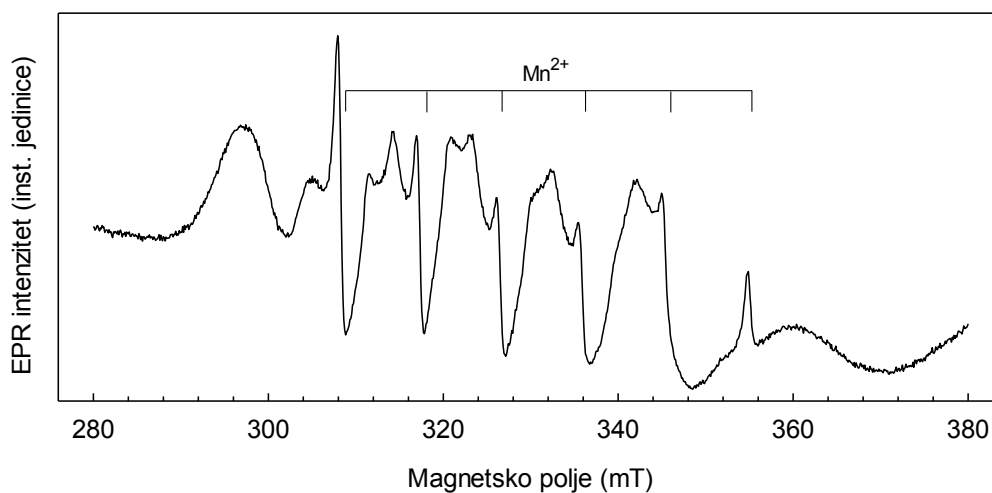
Slika 6.7. Kalibracijska krivulja dobivena metodom pomaka g-vrijednosti

Ovisnost g-pomak o dozi prikazan je na slici 6.7. Promatran je pomak prvog minimuma EPR signala označenog s * na slici 6.2. Za kalibraciju krivulju korišten je eksponencijalna krivulja $y = a(1 - e^{-bx})$, s parametrima $a = 0.23535 \pm 0.00007$ i $b = 1.6 \pm 0.2$. Vidi se da krivulja vrijedi za područje niskih ispod 2 Gy, za veće doze ova metoda nije primjenjiva jer počinje prevladavati zračenjem induciran doprinos u ukupnom EPR signalu. .

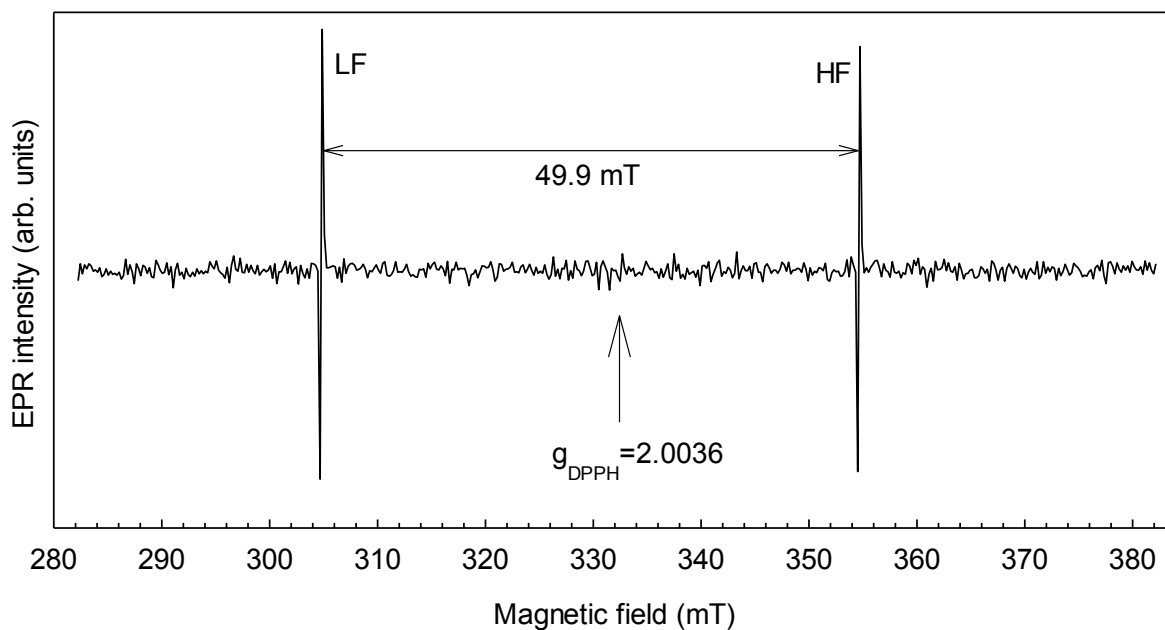
Na slici 6.8. prikazan je EPR spektar Poresorb-TCP kompozita. Na slici 6.8. a) vidi se da je u tom kompozitu detektirana prisutnost Mn^{2+} i Cr^{3+} iona. Na slici 6.8. b) detaljnije je prikazan signal koji dolazi od Mn^{2+} iona koji ima 6 glavnih linija jer mu je spin jezgre $5/2$. EPR spektri su i nakon 6 mjeseci pokazali isti oblik, te je time potvrđena stabilnost u vremenu. Zbog prisutnosti tih iona koji su posljedica sinteze, radijacijski signal nije moguće odvojiti i detektirati za promatrane doze zračenja.



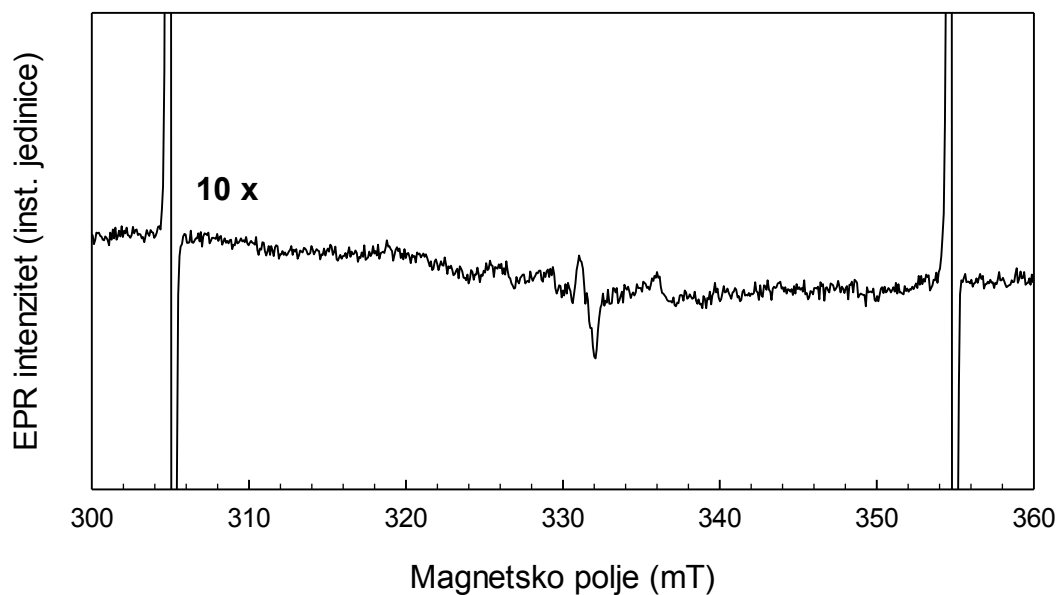
Slika 6.8. a) EPR spektar Poresorb-TCP kompozita.



Slika 6.8. b) EPR spektar Poresorb-TCP kompozita u centralnom području.



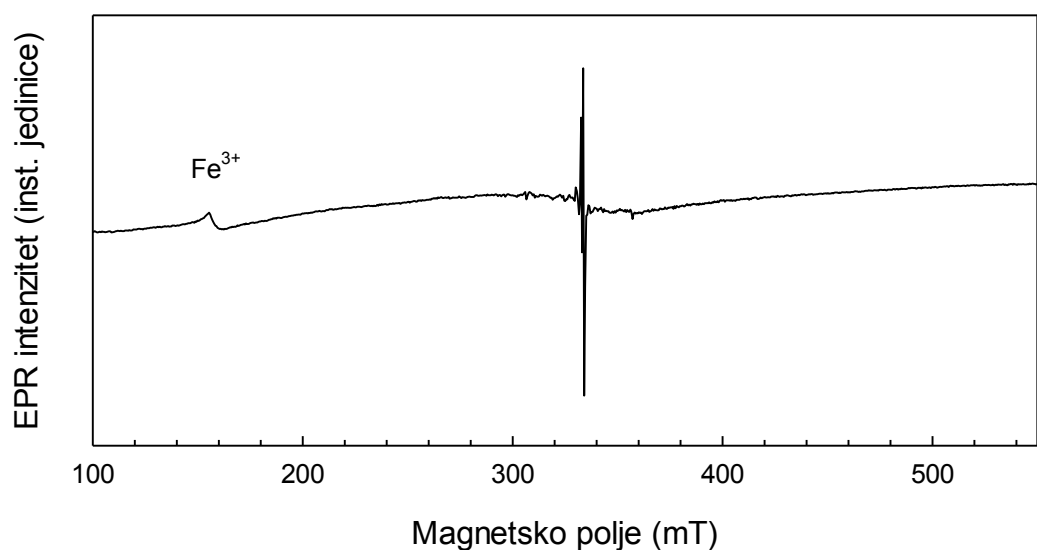
Slika 6.9. a) EPR spektar Bioresorb Classic (Sybron Implant Solutions) kompozita.



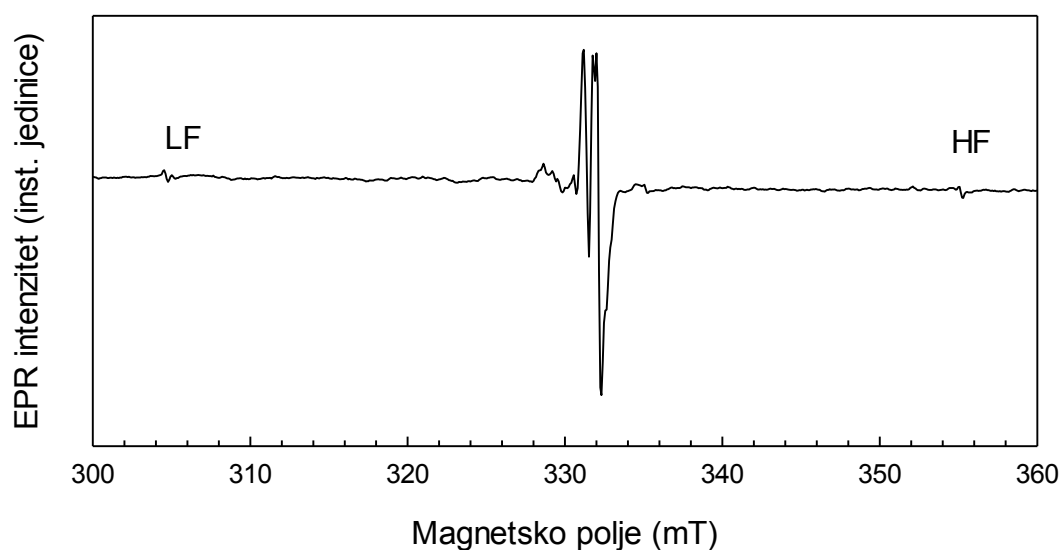
Slika 6.9. b) EPR spektar Bioresorb Classic (Sybron Implant Solutions) kompozita uvećan 10 puta.

Na EPR spektru Bioresorb Classic (Sybron Implant Solutions) kompozita, slika 6.9. a) vidi se prisustvu slobodnog vodika, H^\bullet , koji ima proton spina $1/2$ stoga se cijepa u dvije linije. Taj je signal posljedica sterilizacije ionizirajućim zračenjem, ali se grijanjem na 40°C može rekombinirati nakon 6 sati [16]. Na slici 6.9. b) se pri povećanju od 10 puta vidi radijacijski

signal, no za dozu od 25 kGy koji je stabilan i nije se promijenio ni nakon 6 mjeseci. Za doze promatrane u ovom radu nije bilo moguće odvojiti signal doza manjih od 10 Gy. Na slici 6.10. a) vidi se EPR spektar Bioresorb Macro pore (Innova-Oraltronics) u kojem je detektirano prisustvo iona Fe^{3+} , te radijacijski signal koji se sastoji od dvije linije koje pripadaju spektru H^\bullet i u sredini signal koji pripada karbonatnim radikalima CO_2^- i CO_3^- (slika 6.10. b). Signal od iona Fe^{3+} te karbonatnih radikala stabilan je u vremenu i nije se promijenili nakon 6 mjeseci.



Slika 6.10. a) EPR spektar Bioresorb Macro pore (Innova-Oraltronics)



Slika 6.10. b) Centralni dio EPR spektra Bioresorb Macro pore (Innova-Oraltronics)

7. ZAKLJUČAK

U ovom radu pokazano je na modelu zubne cakline da se pomoću EPR dozimetrije mogu detektirati doze do 0.3 Gy važne u retrospektivnoj dozimetriji. U svrhu kalibracijske krivulje najtočnijom se pokazala metoda supstrakcije i određivanja I_{pp} intenziteta. Za razliku od zubne cakline, komercijalni dentalni koštani nadomjesci su sterilizirani tijekom proizvodnje radi zaštite pacijenta prije unosa u usnu šupljinu od mogućih virusnih ili bakterijskih infekcija. Sterilizacijska doza iznosi 25 kGy [16], stoga je pokazano da svi komercijalni koštani nadomjesci već imaju EPR signale. Dio signali dolazi od prisutnosti iona, tzv. nečistoća prilikom sinteze (Fe^{3+} , Mn^{2+} , Cr^{3+}), a dio od radikala izazvani sterilizacijom ionizacijskim zračenjem. Od proizvođača do proizvođača se signali razlikuju iako im je deklariran isti sastav. Ovisni su o sastavu te čistoći prilikom procesa proizvodnje što se slaže s rezultatima objavljenim u radu [16]. Stoga, nije bilo moguće očitati retrospektivno doze manje od 10 Gy koje mogu bit primljene usred R/N akcidenata.

Daljnja istraživanja utjecaja stabilnosti sterilizacijom izazvanih radikala nakon ugradnje te utjecaj tjelesnih tekućina i procesa biomineralizacije su neophodna da bi se protokoli retrospektivne dozimetrije mogli popraviti ili upotrijebiti.

8. METODIČKI DIO

8.1. *Zakon radioaktivnog raspada u nastavi fizike*

Radioaktivni raspad je spontano pretvaranje jedne atomske jezgre u drugu uz emitiranje alfa, beta i gama čestica iz kemijske tvari. Radioaktivnost i radioaktivni raspad prisutni su u svakodnevnom životu i mogu biti zanimljiva tema učenicima. Zbog radioaktivnih raspada koji su uslijedili nakon eksplozije u Černobilu 26. travnja 1986. godine u samoj eksploziji poginula je 31 osoba, a nedugo nakon i 29 vatrogasaca koji su bili izravno izloženi radioaktivnoj prašini. U narednim godinama zbog posljedica ozračivanja od raka preminulo je više od 4000 ljudi [17]. S druge strane radioaktivni raspad imaju široku primjenu u medicini, a služe i kao metoda određivanja starosti fosila, kroz radioaktivno datiranje ugljikom C-14.

Ključni koncepti koje želimo razviti u nastavnoj jedinici Zakon radioaktivnog raspada su vrijeme poluraspada, konstanta radioaktivnog raspada i koncept aktivnosti. Nastavna priprema za ovu temu je pisana za 4. razred Gimnazije, a za njenu obradu predviđen je jedan školski sat. Fizika se kao znanost svakodnevno razvija te se tradicionalni odgojno-obrazovni pristup u kojem profesor preuzima ulogu predavača dok su učenici pasivni slušatelji i u kojem je naglasak stavljen na reprodukciju činjenica pokazao neadekvatnim za nastavu Fizike. Iz tog razloga nastava se transformira u smjeru interaktivne istraživački usmjerene nastave Fizike. [18]

Istraživački usmjerena nastava fizike ima za cilj razvijanje razumijevanja fizičkih koncepata, modela i zakonitosti kao i sposobnosti znanstvenog i kritičkog zaključivanja učenika. Ključan aspekt razvijanja znanstvenog zaključivanja učenika je postavljanje i testiranje hipoteza, formuliranje opažanja, opisivanje i skiciranje pokusa te donošenje zaključaka. Nastava ima strukturu prema kojoj nastavna jedinica započinje uvodnim problemom, a to može biti pitanje ili pokus koji se koristi kao motivacija za poticanje zainteresiranosti kod učenika. Učenici iznose svoje ideje i promišljanja o uvodnom problemu, dok se pokusom omogućava stjecanje direktnog iskustva o novoj fizikalnoj pojavi, na taj način dajemo im polazište u razvijanju ideja i priliku za povezivanje sadržaja sa svakodnevnom životom. Demonstriranjem i upoznavanjem nove pojave dajemo motivaciju za uvođenje novog koncepta.

Središnji dio sata započinje istraživačkim pitanjem, koje se odnosi na ono što nas zanima o novoj pojavi ili konceptu. Na istraživačko pitanje odgovaramo eksperimentom. Učenici postavljaju hipoteze, osmišljavaju pokuse, potom kroz pokus testiraju postavljene hipoteze i donose zaključke. Nastavnik pomoću interaktivnih metoda vodi učenike u zaključivanju. Cilj interaktivnosti u nastavi je poticanje aktivnog učenja kod učenika, u kojem učenici promišljaju o fizikalnim pojavama i samostalno donose zaključke. Ključ ostvarivanja interaktivne nastave je kvalitetna interakcija između profesora i učenika. Metode koje se primjenjuju s ciljem ostvarivanja kvalitetne interaktivne nastave su [18]:

- Razredna rasprava - u kojoj sudjeluju i surađuju profesor i učenici; profesor pred učenike stavlja problem, potiče razrednu raspravu, te kroz nju prikuplja njihove ideje
- Konceptualna pitanja –Kako bi se dobio odgovor od svih učenika mogu se koristiti i kartice s odgovorima, kao način odgovora na postavljeno pitanje. Nakon podizanja kartica (svi istovremeno) pokreće se razredna rasprava o odgovorima.
- Kooperativno rješavanje zadataka u malim grupama – odstupanje od klasičnih metoda „svatko za sebe“, zadaci se rješavaju u malim grupama, na taj način potičemo interakciju među učenicima i razvijanje pristupa zadacima. Zadaci se rješavaju u četiri koraka, a to su:
 - vizualizacija situacije i prepoznavanje relevantne fizikalne veličine („skiciraj i označi“)
 - modeliranje problema („modeliraj i prikaži“)
 - matematički opis problema („matematički opiši“)
 - rješavanje matematičke jednadžbe i evaluacija rezultata („riješi i promisli“)
- Interaktivno izvođenje pokusa – učenici se uključuju u tijek pokusa sa svrhom razvijanja znanstvenog zaključivanja. Razlikujemo tri vrste pokusa:
 - Opservacijski – svrha je opažanje i upoznavanje nove pojave, koristi se u uvodnom dijelu sata kao temelj za uvođenje nove pojave.
 - Istraživački – nakon postavljanja hipoteze istu treba i provjeriti, istraživačkim pokusom testira se dana hipoteza
 - Aplikacijski – primjena već postojećih znanja prilikom rješavanja novih problema

Istraživački usmjerena nastava fizike stavlja nove izazove pred učenike, te potiče njihovu znanstvenu i kritičku sposobnost zaključivanja. Učenici usvajaju nova znanja na samom satu, a kroz niz pokusa mogu uočiti primjenu fizikalnih koncepata u stvarnom životu. U svrhu ostvarivanja istraživački usmjerene nastave pratim osnovnu strukturu sata u svojoj nastavnoj pripremi: tijekom nastavnog sata započinje uvodnim problemom tj. nizom pitanja kojima ću povezati i približiti temu s učeničkim iskustvima i na taj način ih uvesti u sat. U središnjem dijelu sata provodimo istraživanje, radimo konstrukciju modela i odgovaramo na istraživačko pitanje. U ovom dijelu odlučila sam se na dva pokusa, jedan učenički i jedan frontalni, koristeći simulaciju zakona radioaktivnog raspada. Završni dio je primjena modela radioaktivnog raspada, učenici će koristiti novostečeno znanje koje ću provjeravati pomoću pitanja s karticama.

8.2. Nastavna priprema: Zakon radioaktivnog raspada

Ishodi učenja jasno definiraju što će učenici biti u mogućnosti napraviti kao rezultat učenja. Ishodi pomažu nastavnicima u sastavljanju nastavne pripreme i učenicima u razumijevanju i shvaćanju onog što se od njih očekuje na kraju nastavne jedinice. Naveden je ishod iz kurikulumu fizike [19], koji pokriva danu temu, a potom njegova razrada za konkretni predviđeni sat.

FIZ SŠ B 4.6. Analizira radioaktivne raspade i opisuje učinke ionizirajućeg zračenja na žive organizme.

- Analizira i primjenjuje zakon radioaktivnog raspada – Ovim ishodom bavimo se u središnjem dijelu sata, učenici konstruiraju i analiziraju zakon radioaktivnog zračenja pomoću pokusa (učenički i demonstracijski). Primjena se provjerava u završnom dijelu nastavne jedinice konceptualnim pitanjima s karticama.
- Definira i tumači vrijeme poluraspada – u učeničkom pokusu uvodimo koncept vremena poluraspada i njegovu definiciju, vrijeme poluraspada kasnije se primjenjuje kao temelj za definiciju konstante radioaktivnosti
- Definira i interpretira konstantu radioaktivnosti i aktivnost - kroz simulaciju na primjeru različitih jezgara uvodimo konstantu radioaktivnosti
- Grafički opisuje zakon radioaktivnog raspada

Pretpostavka je da učenici na nastavnu jedinicu dolaze s predznanjem o građi atoma, kvantnomehaničkom modelu atoma, radioaktivnim izotopima, te alfa, beta i gama radioaktivnim raspadima.

8.2.1. *Tijek nastavnog sata*

Uvodni dio (otvaranje problema, prikupljanje ideja, upoznavanje pojave)

UVODNI PROBLEM: Kako možemo odrediti starost fosila?

Uvodni dio započinje postavljanjem uvodnog problema, kako bismo učenicima dali motivaciju i orijentaciju o čemu se radi i zašto nam je ova nastavna cjelina važna. Učenicima je iz svakodnevnog života poznat pojam datiranja fosila, te im na taj način možemo približiti temu. U živim bićima uspostavljena je ravnoteža omjera stabilnog ugljikovog izotopa C12 i radioaktivnog izotopa ugljika C14, zbog radioaktivnog raspada i nadoknađivanja iz atmosfere. *Što se događa nakon smrti organizma? Ima li izmjene tvari između organizma i atmosfere? Dolazi li do smanjenja koncentracije radioaktivnog izotopa?*

Što su to radioaktivni raspadi i koje raspade poznajete?

Učenici se prisjećaju alfa, beta i gama raspada i daju neke primjere.. Pogledajmo primjer raspada nekog uzorka radioaktivnih jezgara (simulacija kao opservacijski pokus). *Što opažate?*

Pokus 1: Simulacija α raspad [20]

Simulacija prikazuje alfa raspad nestabilnog atoma Polonijuma-211 u stabilni atom Olova-207.

Što se događa s nestabilnim atomom Polonija-211? Kako se promijenio broj nukleona nakon raspada? Koji je raspad prikazan na simulaciji?

Učenici opažaju. Radioaktivni atom Polonija-211 raspada se u stabilni atom Olova-207, maseni broj promijenio se za 4, što ukazuje na α raspad.

Zanima nas možemo li predvidjeti koliko će jezgara ostati neraspadnuto nakon nekog vremena. Današnja tema je proučiti zakon prema kojem se jezgre raspadaju.

Na kraju uvodnog dijela uvodimo naslov Zakon radioaktivnog raspada

Središnji dio: istraživanje pojave, konstrukcija modela

ISTRAŽIVAČKO PITANJE: Po kojem se pravilu jezgre raspadaju?

Središnji dio započinjemo učeničkim pokusom, „kutija s bombonima“.

Pokus 2: Kutija s bombonima [21]

Bomboni u ovom pokusu predstavljaju radioaktivne jezgre. Učenike podijelimo u grupe, njih 4 do 5, i podijelimo im kutije s 20 bombona, koji na jednoj strani imaju oznaku. Bombone stavimo u kutiju i tresemo ju, nakon što istresemo bombone na papir, one kojima je natpis okrenut prema gore tretiramo kao „raspadnute jezgre“ i maknemo sa strane.

Koliko „jezgara“ se raspalo?

Otprilike pola.

Ponovimo postupak, koliko se sada „jezgara“ raspalo?

Otprilike pola od preostalog broja.

Jesmo li u našem pokusu s bombonima znali koji će se točno bombon „raspasti“?

Nismo.

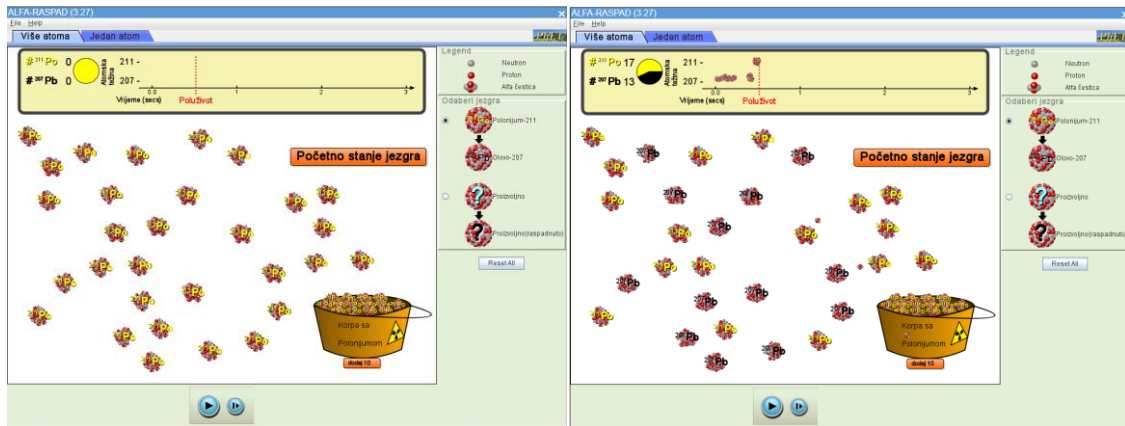
Nakon svakog protresanja kutije, što se dogodilo s brojem neraspadnutih jezgara?

Broj neraspadnutih jezgara smanjio se u svakom protresanju na pola.

Svako protresanje predstavlja u analogiji s radioaktivnim raspadom jednako vrijeme u kojem se raspalo pola jezgara. To vrijeme nazivamo vremenom poluraspada. Istražimo to još detaljnije simulacijom.

Pokus 2: Simulacija: Vrijeme poluraspada [20]

Simulacija prikazuje alfa raspad nestabilnog atoma Polonijuma-211 u stabilni atom Olova-207. Na simulaciji je prikazana vremenska os s periodom od 10 sekundi, na osi je dodatno crvenom crtom označeno vrijeme poluraspada. Polonijum-211 se nalazi u „torbi“, a pritiskom na tipku dodaj 10 dodajemo 10 atoma Polonija-211 koji će se krenuti raspadati, kako se pojedini atom raspadne tako promijeni boju, a njegov raspad zabilježi se na vremenskoj osi.



(a)

(b)

Slika 6.2.1.1. Simulacija vremena poluraspada, slika (a) prikazuje početni broj jezgara, slika (b) pokazuje broj jezgara nakon vremena poluraspada T [20]

Broj mjerenja	0	1	2	3	1*	2*	3*
Početni broj jezgara N_0							
Broj raspadnutih jezgara							
Broj jezgara koji je ostao N							
N/N_0							

S N_0 označit ćemo početni broj jezgara, s N broj preostalih jezgara.

$$N = N_0 - \text{br. raspadnutih jezgara}$$

Kakav je omjer broja neraspadnutih jezgara i početnog broja jezgara nakon vremena poluraspada T ?

Omjer je jedna polovina, znači da se početni broj jezgara nakon tog vremena smanjio dva puta.

Što će se dogoditi ako prođe još jedan takav period T ?

Broj jezgara smanjit će se opet dva puta, preživjela je jedna četvrtina početnog broja radioaktivnih jezgara N_0 . Provjeru vršimo za (1^* , 2^* i 3^*)

Ako bi sada prošao još jedan takav period?

Broj jezgara bi se opet smanjio na pola, u ovom slučaju preživjela je jedna osmina radioaktivnih jezgara N_0 .

Kako to matematički zapisati pomoću potencija broja 2?

t/T	0	1	2	3
N	$N_0 = N_0 * 2^0$	$\frac{N_0}{2} = N_0 * 2^{-1}$	$\frac{N_0}{4} = N_0 * 2^{-2}$	$\frac{N_0}{8} = N_0 * 2^{-3}$

Kako biste općenito zapisali ovu zakonitost?

$$N = N_0 * 2^{\frac{-t}{T}} \quad (6.2.1.1)$$

Ovu relaciju nazivamo zakonom radioaktivnog raspada. S N označimo broj neraspadnutih jezgara, a s N_0 početni broj jezgri koje promatramo, t je vrijeme koje prošlo od trenutka promatranja, a T vrijeme poluraspada.

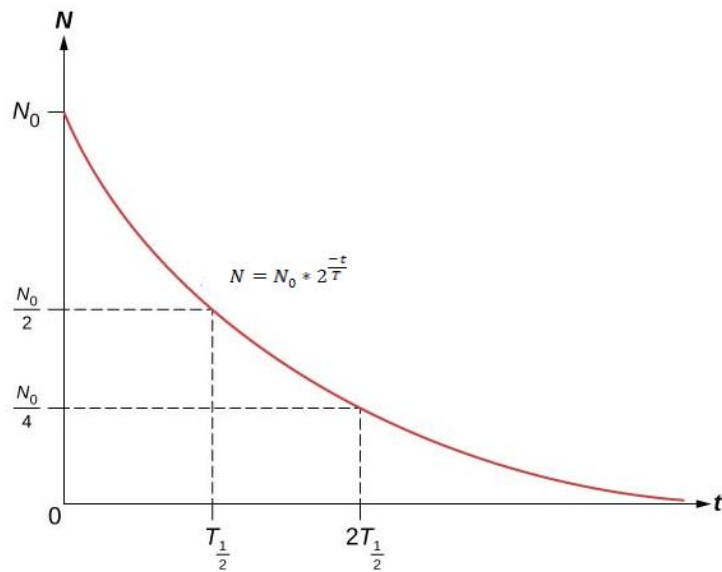
Bitno je s učenicima diskutirati značenje zakonitosti, kako bismo se uvjerali da su svi dobro razumjeli.

O čemu ovaj zakon govori?

Zakon radioaktivnog raspada govori o broju preostalih, neraspadnutih jezgara, nakon vremena t . Taj se broj s vremenom eksponencijalno smanjuje.

Nacrtajte graf $N-t$.

Učenike aktiviramo u sudjelovanju prilikom crtanja grafa, a profesor prilikom prolaska razredom prati jesu li učenici dobro shvatili zadatak. Kako bi se utvrdilo da svi u bilježnici imaju ispravan graf profesor proziva nekog od učenika na ploču da nacрта graf iz bilježnice.



Slika 6.2.1.1. Grafički prikaz zakona radioaktivnog raspada

Čemu je proporcionalan broj jezgara (ΔN) nekog izotopa koje će se raspasti u kratkom vremenskom intervalu (Δt) ?

Proporcionalan je početnom broju jezgara N i vremenskom intervalu.

Možemo zapisati tu vezu na sljedeći način:

$$\Delta N = -\lambda N \Delta t \quad (6.2.1.2)$$

Konstanta proporcionalnosti λ je konstanta radioaktivnog raspada i ima karakterističnu vrijednost za svaki nuklid, a mjerna jedinica joj je s^{-1} .

Ona ne ovisi o tlaku, temperaturi, količini tvari ili bilo kojem vanjskom kemijskom ili fizičkom utjecaju.

Zbog čega smo u jednadžbi napisali negativan predznak? Kad se poveća broj raspadnutih jezgara što se događa s brojem preostalih jezgara?

Smanjuje se, pa to označavamo negativnim predznakom.

Zakon radioaktivnog raspada može se napisati i pomoću konstante radioaktivnog raspada:

$$N = N_0 * e^{-\lambda t} \quad (6.2.1.3)$$

Koja je veza između ove dvije jednadžbe (6.2.1.2.) i (6.2.1.3.) ?

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T} \quad (6.2.1.4)$$

Ovo je veza između konstante radioaktivnog raspada i vremena poluraspada.

Aktivnost radioaktivnog izvora (A) je broj raspada u jedinici vremena.

$$A = \left| \frac{\Delta N}{\Delta t} \right| \quad (6.2.1.5)$$

Aktivnost iskazujemo u bequerelima ($\text{Bq} = \text{s}^{-1}$). Usporedimo to sad s jednadžbom (6.2.1.2.) čemu je sada jednaka aktivnost?

$$A = \lambda N \quad (6.2.1.6)$$

Sada izraz za aktivnost uvrstite u zakon radioaktivnog raspada (6.1.2.3.) i umnožak λN_0 označite kao početnu aktivnost A_0 . Koji izraz dobivamo?

$$A = A_0 * e^{-\lambda t} \quad (6.2.1.7)$$

Kako možemo na kraju odgovoriti na istraživačko pitanje?

Jezgre se raspadaju po zakonu radioaktivnog raspada $N = N_0 * 2^{\frac{-t}{T}}$, početni broj jezgara smanjuje se za pola nakon svakog vremena poluraspada. Zakon se može napisati i u obliku: $N = N_0 * e^{-\lambda t}$, gdje je λ konstanta radioaktivnosti.

[22, 23]

Završni dio (primjena modela - korištenje novostečenog znanja u novim situacijama, provjera ostvarenosti obrazovnih ishoda)

Vratimo se sada na uvodni problem i metodu određivanja starosti fosila. Određivanje starosti vrši se metodom radioaktivnog izotopa ugljika C14. U živim bićima uspostavljena je ravnoteža omjera stabilnog ugljikovog izotopa C12 i radioaktivnog izotopa ugljika C14, zbog radioaktivnog raspada i nadoknađivanja iz atmosfere, stoga je njihov omjer konstantan. Nakon smrti organizma prekida se proces izmjene tvari s atmosferom, međutim radioaktivni raspad ugljika C14 se nastavlja te se njegova koncentracija smanjuje, a vrijeme poluraspada ugljika C14 je 5730 godina. Mjerenjem koncentracije C14 u organizmu može se odrediti starost uzorka. Što je stariji uzorak to je koncentracija ugljika C14 manja. Uzmimo za primjer komad drvenog ugljena. Ako je izmjerena koncentracija ugljika C14 npr. upola manja od koncentracije pronađene u živom stablu, zaključujemo da je uzorak drvenog ugljena star oko 5730 godina. Metoda datiranja pomoću ugljika C14 pouzdana je za utvrđivanje starosti do 60 000 godina. [24]

U svrhu primjene modela i korištenja novostečenog znanja primijenit ću metodu konceptualnih pitanja s karticama.

1. Vrijeme poluraspada je:
 - a) Vrijeme za koje se raspadne pola volumena uzorka
 - b) Vrijeme nakon kojeg se raspadne pola početnih radioaktivnih jezgara
 - c) Vrijeme nakon kojeg se masa uzorka smanji na pola
 - d) Vrijeme u kojem se svaka jezgra raspadne na dva dijela

Točan odgovor: b) Vrijeme nakon kojeg se raspadne pola početnih radioaktivnih jezgara

Učenici često imaju miskoncepciju o tome da nakon vremena poluraspada nestane pola mase ili volumena radioaktivne materije, na ovaj način možemo provjeriti zaključuju li učenici dobro, a ako je potrebno diskutirati odgovore.

2. Vrijeme poluraspada radioaktivnog elementa ovisno je o:
- a) Temperaturi uzorka
 - b) Količini radioaktivnog uzorka
 - c) Starosti uzorka
 - d) Konstanti raspada radioaktivnog elementa

Točan odgovor: d) Konstanti raspada radioaktivnog elementa

Konstanta radioaktivnog raspada ima karakterističnu vrijednost za svaki nuklid, a mjerna jedinica joj je s^{-1} . Ona ne ovisi o tlaku, temperaturi, količini tvari ili bilo kojem vanjskom kemijskom ili fizičkom utjecaju. Vrijeme poluraspada i konstanta radioaktivnosti povezani su relacijom $\lambda = \frac{\ln 2}{T}$ [25]

9. LITERATURA

- [1] Ainsbury, E. A. et al., "Review of retrospective dosimetry techniques for external ionising radiation exposures," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 147, no. 4, pp. 573–592, 2011,
- [2] IAEA, "Medical management of radiation injuries"; "Safety reports series No. 101" Iaea, Vienna : IAEA, 2020 pp. 3-64
- [3] Fattibene, P.; Callens, F., "EPR dosimetry with tooth enamel: A review," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 68, no. 11, pp. 2041–2144, 2010,
- [4] Trompier, F.; Bassinet, C.; Clairand, I.; "Radiation accident dosimetry on plastics by epr spectrometry," *Health Phys.*, vol. 98, no. 2, pp. 388–394, 2010,
- [5] Fattibene, P.; Duckworth, T. L.; and Desrosiers, M. F.; "Critical evaluation of the sugar-EPR dosimetry system," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 47, no. 11–12, pp. 1375–1379, 1996
- [6] Dresto-Alač B.; "Radioaktivnost," *Radioaktivnost. Primjena u medicini.* pp. 1–38, [https://www.fzsri.uniri.hr/files/FAKULTET/KATEDRE/Katedra_temeljne/Microsoft Word - Radioaktivnost_Primjena u medicini_povjerenstvo_Z.pdf](https://www.fzsri.uniri.hr/files/FAKULTET/KATEDRE/Katedra_temeljne/Microsoft%20Word%20-%20Radioaktivnost_Primjena%20u%20medicini_povjerenstvo_Z.pdf).
- [7] "Electromagnetic Spectrum," <http://hlconsulting.com.au/Revision.htm>,
- [8] Muhammad,W.; Hussain, A.; and Maqbool, M.; *Basic Concepts in Radiation Dosimetry*, pp. 9-41, Springer International Publishing AG 2017
- [9] Vojnić, M.; Doktorski rad, "Osjetljivost lijevanoga natrijeva kalcijeva silikatnoga stakla na male doze ionizirajućega zračenja u retrospektivnoj dozimetriji primjenom spektroskopije elektronske spinske rezonancije," pp. 41–57, 2019.
- [10] Lund, A.; Shiotani, M.; and Shimada, S.; *Principles and applications of ESR spectroscopy*, pp. 3-27; Springer Dordrecht Heidelberg London New York; 2011.
- [11] Maltar-Strmečki, N.; Doktorski rad, "Dinamika metalnih skupina u okolini stabilnog paramagnetskog centra u L-alaninu" pp. 7–47, 2002.
- [12] Ivannikov, A. I.; et al., "Wide-scale EPR retrospective dosimetry: Results and problems," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 71, no. 3, pp. 175–180, 1997,

- [13] "Sample preparation procedure used at ISS for in vitro EPR measurement of tooth enamel."
- [14] Štefanac, I.; "Kompozitni materijali u stomatologiji," Fakultet kemijskog inženjerstva i tehnologije, Sveučilište u Zagrebu
- [15] Katušin Ražem B.; Jagić R., "Radijacijska metoda u spašavanju predmeta kulturne baštine u slučajevima ugroženosti širih razmjera"; Hrvatski Restaur. zavod, Zagreb pp. 77–83.
- [16] Matković, I.; Maltar-Strmečki, N.; Babić-Ivančić, V.; Dutour-Sikirić, M.; and Noethig-Laslo, V.; "Characterisation of β -tricalcium phosphate-based bone substitute materials by electron paramagnetic resonance spectroscopy," Radiat. Phys. Chem., vol. 81, no. 10, pp. 1621–1628, 2012, doi: 10.1016/j.radphyschem.2012.04.012.
- [17] Dubrova Y. E.; Nesterov V. N. Krouchinsky N. G: et al. „Human minisatellite mutation rate after the Chernobyl accident“ Reearch Institute for Radiation Medicine, Mogliev 2004, Bjelorusija
- [18] Planinić M. "Predavanja iz Metodike nastave fizike 1", objavljeno na platformi Claroline
- [19] Ministarstvo znanosti i obrazovanja „Kurikulum nastavnog predmeta Fizika za osnovne škole i gimnazije“
- [20] <https://phet.colorado.edu/sims/cheerpj/nuclear-physics/latest/nuclear-physics.html?simulation=alpha-decay&locale=bs>
- [21] <http://nuclearconnect.org/in-the-classroom/for-teachers/half-life-of-paper-mms-pennies-or-puzzle-pieces>
- [22] Labor J. "Fizika 4", udžbenik za 4. razred gimnazije; Alfa, Zagreb 2008
- [23] Paar V. "Fizika 4", udžbenik za 4. razred gimnazije; Školska knjiga, Zagreb 2006
- [24] Krajcar Bronić I.; Horvatinčić N; Obelić B. "Određivanje starosti metodom ^{14}C "; Labaratorij za mjerenje niskih aktivnosti, Institut Ruđer Bošković
- [25] Brković N.; Pećina P.; „Fizika u 24 lekcije“, Element, Zagreb 2010.