

ЕФЕКТИВНИЙ ПЕРЕРІЗ ІОНІЗАЦІЇ МОЛЕКУЛ ТИМІНУ ЕЛЕКТРОННИМ УДАРОМ

М.І. Шафраньош

Ужгородський державний університет, 294000, Ужгород, вул.Волошина, 54

Проведено експериментальне дослідження процесу іонізації молекул основи нуклеїнової кислоти тиміну в умовах пучків електронів і молекул, що перетинаються. Визначено абсолютну величину та енергетичну залежність перерізу утворення позитивних іонів молекул тиміну під дією повільних електронів. Показано, що максимальних значень повний переріз утворення позитивних іонів тиміну досягає при енергії електронів 95 еВ, а його абсолютна величина становить $1.4 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$. Розглянуті можливі зміни в біоструктурах при їх опроміненні повільними електронами.

ВСТУП

Інтерес до експериментального вивчення процесів непружного розсіяння електронів біомолекулами зумовлений, в першу чергу, важливістю проблеми внутріклітинного опромінення біоструктур вторинними електронами, які утворюються у значній кількості в речовині при дії випромінювання різних видів. Більшість вторинних електронів є низькоенергетичними (повільними) з енергіями від долей до десятків еВ. Саме з повільними електронами пов'язують, на сьогодні, основну частину деструктивних змін на молекулярному рівні біоструктур. При цьому головною мішенню стають генетичні макромолекули. У попередніх експериментах [1-4], проведених з гетероциклічними компонентами цих молекул, було показано, що при умові електронного удару мають місце різні фізичні процеси: збудження, іонізація, дисоціативне збудження та дисоціативна іонізація молекул. Новоутворені частинки дають початок новому каскаду фізико-хімічних реакцій. Фізичне моделювання цих процесів та оцінка радіобіологічних наслідків вимагають знань їхніх основних характеристик – абсолютних перерізів іонізації. У зв'язку з цим стає актуальним фізичне моделювання клітинних іонізаційних процесів умовами фізичного експерименту.

Завданням даної роботи є експериментальне дослідження іонізації нуклео-

тидної основи тиміну та вимірювання абсолютних значень перерізів утворення позитивних іонів молекул тиміну при різних енергіях налітаючих електронів.

ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНА УСТАНОВКА ТА МЕТОДИКА ДОСЛІДЖЕНЬ

Основою експерименту є методика пучків електронів та молекул, що перетинаються, яка була успішно застосована раніше [5]. Пучок молекул тиміну (див. рис. 1) отримується за допомогою термічного ефузійного джерела багатоканального типу та системи колімуючих щілин. Складовими частинами ефузійного джерела є наступні: мідний контейнер з препаратом тиміну, резистивний нагрівник контейнера, прокалібрований термопарний (хромель-алюмель) датчик температури контейнера, теплові екрани. Сам контейнер був виконаний у вигляді порожнистого циліндра, на одному з кінців якого монтувався елемент із ефузійними каналами (100 каналів на площі $1.5 \times 1.5 \text{ мм}^2$), а на протилежному – герметична закривка. На ній розміщався препарат тиміну (фірма Sigma-Aldrich, чистота 99%) та датчик температури. Конструкція нагрівника була такою, що температура елемента з мікроканалами була на 10^0 вище температури закривки. Таким чином не допускалось залипання мікроканалів під час експерименту. Молекули проходили через

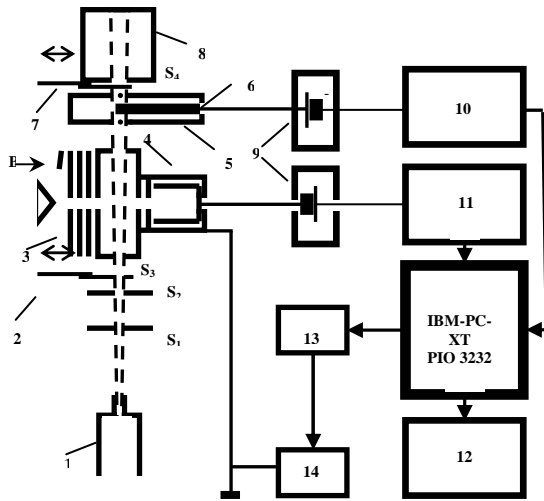


Рис.1. Блок-схема експерименту: 1- тигель; $S_1 - S_4$ - колімуючі щілини; 2,7 - засувки молекулярного пучка; 3 - електронна гармата; 4 - колектор електронів; 5 - колектор іонів; 6 - зонд; 8 - колектор молекул; 9 - гальванічні джерела потенціалів; 10 - електрометр; 11 - перетворювач струм - частота; 12 - друкуючий пристрій; 13 - цифро - аналоговий перетворювач; 14 - підсилювач напруги.

область взаємодії з електронним пучком і в кінці свого шляху осідали на дні колектора, утворюючи з часом помітний слід – конденсат. Сам колектор представляв собою мідну камеру циліндричної форми із входною щілиною S_4 та плоским дном і мав температуру рідкого азоту. Вимірювання маси конденсату і часу його утворення давали змогу визначити інтенсивність молекулярного пучка, а відповідно, і його концентрацію. Геометричні розміри конденсату разом із його відстанню до ефузійного джерела використовувалися для встановлення параметрів пучка – перерізу області зіткнень та кутової апертури.

Джерелом електронів служила п'ятиелектродна гармата із катодом, виготовленим із торованого вольфраму. Температура електронної гармати була на рівні 400 К, що забезпечувало стабільність параметрів гармати при роботі. Перший електрод гармати знаходився при невеликому негативному потенціалі [6], який затримував низькоенергетичну частину потоку електронів із катоду. Електрони пучка, що пройшли область зіткнень, уловлювалися циліндром Фарадея, який зна-

ходився під додатнім потенціалом. Виміри проводилися при силі струму пучка електронів $1 \cdot 10^{-7} \text{ A} - 1 \cdot 10^{-6} \text{ A}$ і енергетичній неоднорідності електронів на піввисоті їх енергетичного розподілу $\Delta E_{1/2} \sim 0,3 \text{ eV}$. Електронна гармата розміщала у поздовжньому полі індукцією $B = 1,2 \cdot 10^2 \text{ Тл}$. Калібрування енергетичної шкали електронів здійснювалося за резонансним піком утворення іонів SF_6^- , енергетичне положення якого визначало нуль шкали.

Для повного збору іонів, що утворилися в області перетину електронного та молекулярного пучків, на шляху молекулярного пучка встановлюється прохідний колектор, всередині якого міститься осьовий електрод (зонд). Повнота збору іонів забезпечується потенціалом зонду – 25 В, полярність якого визначається знаком заряду іонів, що рееструвалися. Магнітне поле унеможливило попадання на зонд електронів, розсіяних на молекулах цитозину та поверхнях електродів.

Система реєстрації та керування процесом вимірів складалася із таких пристроїв: електрометричного підсилювача іонного струму, перетворювача “струм – частота” пучка електронів, блоків ступінчатої розгортки прискорюючого потенціалу електронного пучка (13, 14), персонального комп'ютера (ІМ-РС-АТ) з інтерфейсною картою паралельного вводу/виводу, друкуючого пристрою. Описана система працювала в режимі вимірювань струмів іонів та електронів при фіксованій енергії електронного пучка (при визначенні абсолютної величини перерізу іонізації), або у режимі вимірювань відношень струму іонів до струму електронів при ступінчатому скануванні енергії пучка електронів (при визначенні енергетичної залежності перерізу іонізації). Експерименти проводилися при вакуумі $\sim 1 \cdot 10^{-5} \text{ Па}$.

Експериментальні виміри здійснювалися в три етапи.

На першому етапі проводилась апробація методики досліджень та контрольні досліди. З цією метою камера зіткнень за допомогою прецизійної системи напуску наповнювалася газом SF_6 до тиску $1,3 \cdot 10^{-3} \text{ Па}$. Потім вводилась в дію еле-

ктронна гармата, і реєструвався резонанс для процесу утворення негативних іонів – SF₆. Енергетичне положення резонансу використовується для калібрування енергетичної шкали електронів, а його ширина на напіввисоті – для визначення величини $\Delta E_{1/2}$ електронного пучка. Потім камера відпомповувалася і наповнювалася газом N₂ до тиску $1,3 \cdot 10^{-3}$ Па і вимірювалася енергетична залежність повного перерізу утворення іонів N₂. Співставлення отриманих нами даних із літературними вказує на їх задовільну узгодженість.

На другому етапі камера відпомповується до тиску $1 \cdot 10^{-5}$ Па, і вводиться в дію джерело молекулярного пучка (засувка 2- відкрита, засувка 7 – закрита). Вимірюється енергетична залежність перерізу утворення позитивних іонів тиміну (проводиться вимірювання відношення струму іонів до струму електронів при ступінчатому скануванні енергії пучка бомбардуючих електронів).

На третьому етапі визначаються абсолютні величини повних перерізів утворення позитивних іонів тиміну. Для цього використовується співвідношення:

$$\sigma = i / i_e n l, \quad (1)$$

де σ – повний переріз утворення іонів; i – сила струму іонів відповідного знаку; i_e – сила струму електронного пучка; n – концентрація молекул тиміну в області перетину пучків; l – шлях електронів у молекулярному пучку. Абсолютний переріз іонізації визначався при енергії 100 еВ.

Видно, що у формулу (1) входять експериментальні параметри, прецизійне вимірювання яких є нелегким завданням. Особливо це стосується визначення концентрації молекул безпосередньо в області взаємодії з електронами. Відмітимо, що струми i та i_e вимірюються при відкритих засувках 2 і 7 (див. рис.1). Температура контейнера з тиміном піднімалась до 394К і стабілізувалася. Час утворення конденсату у п'яти дослідах змінювався у межах $(1 \div 3) \cdot 10^3$ с. По закінченні експерименту конденсат розчинявся у дистильованій воді і вимірювалася оптична густина

отриманого розчину в ультрафіолетовій області ($\lambda \sim 260$ нм). За знайденою оптичною густиною визначалася маса конденсату. З іншого боку, маса конденсату M залежить від параметрів експерименту наступним чином:

$$M = n S m v t, \quad (2),$$

де n – шукана концентрація молекул в області перетину пучків; S – переріз області перетину; m – маса молекули; v – швидкість молекул у пучку; t – час наплення конденсату. Величини S та l визначаються із геометрії молекулярного пучка.

Зауважимо, що в присутності поздовжнього магнітного поля електрони пучка будуть рухатися по трохоїдальних траєкторіях, довжини яких у загальному випадку є більші від геометричної величини l . Розрахунки показують, що внаслідок цього ефекту в умовах нашого експерименту (індукція магнітного поля $1.2 \cdot 10^2$ Тл, діаметр діафрагм електронної гармати 1мм) максимальна довжина шляху окремих електронів при їх енергії 100 еВ збільшується в 1.01 раз, а при енергії 5 еВ – в 1.25 раз. Відносна похибка у визначенні величини n не перевищує 17%. Експерименти проводили при $n \sim 8 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-3}$. При цьому внесок від процесу іонізації залишкових газів у камері не перевищував 2%. Відносні похибки експериментальних вимірів становили: 9% - для енергетичних залежностей перерізів іонізації; 21% - для абсолютних величин перерізів іонізації.

РЕЗУЛЬТАТИ ДОСЛІДЖЕНЬ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

В проведених експериментах були вперше отримані дані про абсолютні величини повного ефективного перерізу утворення позитивних іонів молекул тиміну в області енергій електронів від порогу до 200еВ.

Результати експериментів показані на рис.2, де по осі ординат відкладено переріз іонізації в см^2 , а по осі абсцис – енергія іонізуючих електронів в електронвольтах (еВ). Як видно із рис. 2, поріг

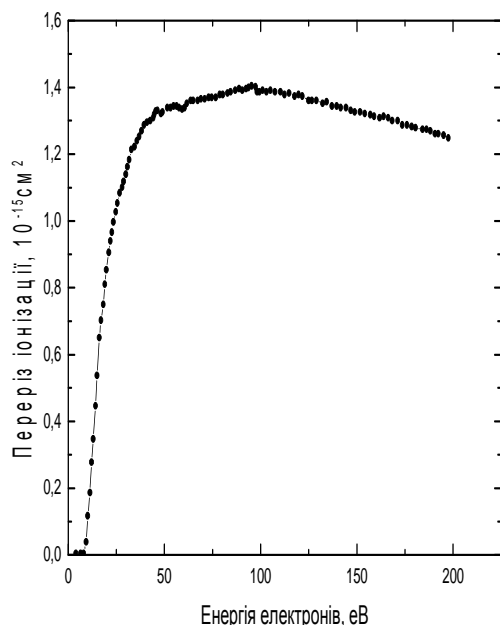


Рис.2.

утворення позитивних іонів рівний $9,4 \pm 0,2$ еВ. В цілому, крива іонізації є пологою із слабо вираженими особливостями та максимумом при енергії 95 еВ. При цій енергії переріз іонізації рівний $1,4 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$. Отриманий у даній роботі переріз утворення позитивних іонів має зміст повного перерізу, тобто включає в себе перерізи утворення іонів як цілої молекули,

Література

1. М.И. Суховия, И.И. Шафраньш, В кн.: Элементарные процессы при столкновениях атомных и молекулярных частиц, Чебоксары. 121 (1987).
2. М.И. Суховия, В.Н. Славик, И.И. Шафраньш, Л.Л. Шимон, Биополимеры и клетка. **7**, 77 (1991).
3. M.I. Sukhoviya, M.I. Shafranyosh, I.I. Shafranyosh, In: Spectroscopy of Biological Molecules: New Directions.-

так і її фрагментів (так звані парціальні перерізи).

Визначення абсолютних значень перерізів утворення позитивних іонів, дозволяє провести якісні оцінки процесів, які мають місце у біомолекулах. Зокрема, переріз іонізації біомолекул за величиною майже на порядок більший від перерізу іонізації молекул води H_2O ($1,5 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$, згідно [7]), на долю яких припадає $\sim 70\%$ маси живих клітин. Звідси випливає, що протекуючі властивості молекул води щодо азотистих основ за іонізаційним критерієм в умовах клітини будуть виражені не досить істотно. Іонізація нуклеотидних основ, а особливо дисоціативна іонізація, під впливом вторинних низькоенергетичних електронів, у свою чергу, приводитимуть до структурних і функціональних зрушень у живих клітинах. Насамперед слід очікувати порушень стабільності системи водневих зв'язків між комплементарними парами основ, генотоксичних і мутагенних змін. Не виключений вплив на енергетику клітини, на протонні транспортні системи. Для глибшого розуміння механізмів слід отримати дані про перебіг процесів та абсолютні перерізи іонізації і для інших нуклеотидних основ.

Kluwer Acad. Publ.-Dordrecht /Boston /London, 281 (1999).

4. М.И. Суховия, И.И. Шафраньш, Л.Л. Шимон Вестн.ХГУ.№434. Био-физ.вестн. 3, 39 (1999).
5. I.I. Shafranyosh, M.O. Margitich, J.Phys.B: At.Mol.Opt.Phys. **33**, 90. (2000).
6. R.E. Fox, Rev.Sci.Instr. **26**, 1101 (1955).
7. G. Viktor, M.V. Kurepa, Fizika. **8**, 134 (1991).

EFFECTIVE CROSS SECTIONS FOR THE ELECTRON-IMPACT IONIZATION OF THYMINE MOLECULE

M.I. Shafranyosh

Uzhgorod State University, 88000, Uzhgorod, Voloshin st., 54

The absolute cross sections for positive ions formations of the thymine nucleic acid base were found for the first time using the modern technique of normally crossed molecular and electron beams. The ionization cross section had maximum at 95 eV of the electron energy and was $1.4 \cdot 10^{-15} \text{cm}^2$. Biophysical consequences of the obtained results are discussed.