

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K09016

研究課題名(和文)三次元プリンターで造形する線量計材料製ファントムの開発

研究課題名(英文) Fabrication of radiophotoluminescence dosimeter with 3D-printing technology

研究代表者

佐藤 文信 (Sato, Fuminobu)

大阪大学・工学研究科・教授

研究者番号：40332746

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：3Dプリンターによって造形するラジオフォトルミネセンス(RPL)線量計を開発した。3Dプリンター印刷の原料となるフィラメントは、PCL樹脂と蛍光ガラス線量計材料の混合物で、十分なRPL特性を有しており、フィラメントの検出下限は30 mGyであった。3Dプリンター印刷試験では、耳の形状のCADデータを用意し、線量計を製作した。線量計の形状は、CADデータを十分に再現していた。線量計の中央部にエックス線を照射し、RPL撮影によりエックス線照射部を確認することが出来た。また、得られたRPL撮影画像をデジタル画像解析することによって、おおよその吸収線量分布の情報を得ることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

放射線治療の進歩は目覚ましく、さらなる先進放射線治療の高度化が望まれている。そこで、本研究課題では先進放射線治療品質保証のために3Dプリンターを利用した高性能ファントム製造技術を開発した。このファントムの材質は、放射線検出特性をもつラジオフォトルミネセンス(RPL)線量計材料で出来ているため、紫外線光源による蛍光観察により、ファントム全体の高分解能3次元の線量分布の情報を得ることが出来る。この技術は先進放射線治療品質保証の高上に貢献する。

研究成果の概要(英文)：Three-dimensional (3D) dosimeter with radiophotoluminescence (RPL) material was fabricated by fused-deposition modelling 3D-printing technology. A filament having RPL characteristics was the mixture of the PCL resin and RPL glass and made with a filament-manufacturing machine for 3D printer. The RPL intensity around 635 nm in wavelength was proportional to the absorbed dose from 0.030 to 10 Gy. In a preliminary example, a 3D object in the form of a human ear phantom was printed out, and irradiated with X-rays. By excitation of ultraviolet light, RPL was emitted from the X-ray irradiated parts. We confirmed the feasibility of the fabrication of 3D dosimeters with 3D printing technology.

研究分野：放射線計測学

キーワード：ラジオフォトルミネセンス 3Dプリンター ガラス線量計 物理ファントム

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

一般的な個人線量計は積算型放射線検出器で、サーベイメーターのように経時的情報を得る事は出来ないが、小さく、量産性が高く、放射線検出感度は高い、などの利点がある。そこで、個人線量計は放射線業務従事者の被ばく管理で利用されているだけでなく、先進放射線治療における吸収線量などを評価するために、人体ファントムの多数の箇所線量計を取り付けて測定するなどの利用も多くなされている。<sup>1,2)</sup> 線量計そのものは、電子回路を伴わずに測定可能であるため、電子回路が誤動作するような高線量場の測定や強電磁波環境場の測定にも適している。近年では、そのような線量計の利点を活かして、様々な応用に適した新しい線量計が開発されている。

近年、3D プリンターは広く利用されており、<sup>4,9)</sup> 最も一般的で低価格のものは、熱溶解積層法(fused deposition modeling, FDM)<sup>10)</sup>による印刷方式の3D プリンターである。熱可塑性樹脂製のフィラメントを造形ヘッド内のプリーで押し出し、ヒーターで加熱して溶かし、押し出された樹脂を押し付けるように積層を行う。非常にシンプルな原理であるが、熱可塑性樹脂により収縮率・線膨張率・溶解温度などの諸条件が異なるため、立体物を作成するには条件データのノウハウが重要である。さらに、3D プリンター用熱可塑性樹脂に添加物やフィラーなどを混ぜ込むことによって、フィラメントに付加特性を持たせる事も可能である。例えば、市販のフィラメントには、金属、石材の表面に類似させたもの、蛍光特性をもつものなどがある。

### 2. 研究の目的

本研究では、線量計特性を有するフィラーを熱可塑性樹脂に添加させることで、線量計特性を有する3D プリンター用のフィラメントを開発し、立体物の造形を行う。フィラーにもちいる線量計材料は蛍光ガラス線量計材料<sup>11,12)</sup>を選択する。蛍光ガラス線量計は、放射線照射によって形成された蛍光中心を紫外線励起によって測定し、<sup>13)</sup> その強度から積算線量を評価する。一旦、蛍光中心が形成されれば、繰り返し線量を読み取る事が出来て、フェーディング特性に優れている。<sup>14)</sup> 例えば、熱ルミネセンス線量材料をフィラーに用いた場合、線量を読み取る時の加熱によって、3Dプリンターで印刷された立体物の形状が維持できないなどの問題が生じる。

### 3. 研究の方法

蛍光ガラス線量計材料は、市販の化学薬品、メタリン酸ナトリウム(100 g)、メタリン酸アルミニウム(104 g)、塩化銀(4.4 g)を原料とし溶融法で調製した。<sup>14,16)</sup> 混合試薬をアルミナ製坩堝に入れて電気炉内にセットした。試薬を10時間かけて徐々に1200度まで加熱し、溶融ガラスの成分を均一化させるために5時間維持した。その後、10時間かけて室温まで冷却した。RPLガラスの化学組成の重量比は酸素(51%)、リン(32%)、ナトリウム(11%)、アルミニウム(6%)、塩素(<0.01%)、銀(0.2%)で、その密度は2.6 g/cm<sup>3</sup>であった。冷却されたRPLガラスロッドは、ダイヤモンドソーで切断した。さらに、ジェットミルを利用して、平均粒径5 μmのRPLガラス粉体を得た。蛍光ガラス線量計用の熱可塑性樹脂は市販されている3-Dプリンター用のPLA<sup>17)</sup>フィラメント原料(Pulverized 4043D, Filabot)とABSフィラメント原料(Pulverized ABS, Filabot)を使用した。共に、平均粒径は60 μmである。PLAとABSは一般的な3Dプリンター用のフィラメント原料である。それらに加えて使用したPCL樹脂<sup>18)</sup>(ポリカプロラクトン、化学組成は(C<sub>6</sub>H<sub>10</sub>O<sub>2</sub>)<sub>n</sub>)は、融点が57度とPLA、ABSに比べて低い熱可塑性樹脂である。PCLは室温状態で粉砕しようとしても、粉砕に伴う熱によって溶融してしまい細かく粉砕することが難しいため、凍結粉砕機(TPH-01、アズワン社製)を用いて粉砕し、液体窒素温度下で平均粒径60 μmの粒子を調製した。

樹脂とRPLガラス粒子を均一に混ぜ合わせた原料を3-Dプリンター用フィラメント製造機(Filabot EX2 Filament Extruder, Filabot)に投入した。樹脂に対するRPLガラス粉体の重量割合は7.5%である。PLA、ABSとの混合物は、フィラメント製造機内で170度で加熱し、適度な柔軟性が得られた状態で、引き出し口より押し出して製造した。RPLフィラメントの製造機の引き出し口の穴径は1.75 mmとなっている。フィラメントを取り出した直後は、十分に徐冷されておらずに軟らかく、切れ易いので注意して取り扱う必要がある。フィラメント製造機の試料投入口に、原料を追加し続けられれば、連続して製作する事が可能である。PCLを用いた場合は、70度で加熱して製造した。

RPLフィラメントの線量計特性を調べるための読み取り装置は、ファイバ型RPL線量計用に試作したもの<sup>19)</sup>で、主にステップモーター式の引き抜き器(SGSP-60YAW-0B、シグマ光機)、UV-LED(NCSU033A、日亜化学)、紫外線透過用光学フィルター(U-360、HOYA)、赤色透過用光学フィルター(LONGPASS 575NM、エドモントオプテックス)、フォトダイオード(S1226-8BK、浜松ホトニクス)、微小電流計(ADCMT8240、エーディーシー)で構成されている。ステップモーターと微小電流計は、GP-IBインターフェイス(GPIB-USB-HS+、ナショナルインスツルメンツ)を通じて、コンピュータで制御されている。ファイバ型RPL線量計の一部をRPL読み取りボックス中に内蔵されている波長365 nmのUV-LEDで励起させ、光学フィルターを通して、フォトダイオードでRPL光を検出する。フォトダイオードからの電流を微小電流計で測定した後、引き抜き器によってフィラメントの測定位置を変えて、別の位置のRPL光を検出する。この作業をコンピュータで繰り返し制御し、RPL強度と測定位置データを記憶することで、フィラメントの線量分布の情報が得られる。

線量計の立体形状は、3D-CAD(Tinker CAD, Autodesk, Inc.)で設計した。作成された3DデータはSTLファイルに変換する。用意されたSTLファイルより、市販の3Dプリンター(Reprap Prusa i3, Hictop)で線量計を造形した。ただし、低融点のRPLフィラメントにも対応できるように3Dプリンターの造形ヘッドの温度制御コントローラーを改造している。

タングステンターゲットの90kV-エックス線管(L9421-02, 浜松ホトニクス)を用いて、試料にエックス線を照射した。エックス線のターゲットスポットサイズは7 $\mu\text{m}$ で、最大電子ビーム電流は89 $\mu\text{A}$ である。試料位置での照射線量率は最大2.8 mGy/sである。

#### 4. 研究成果

図1はフィラメント製造機で作られたRPLフィラメント(PCLと蛍光ガラスが原料)<sup>3)</sup>の写真である。フィラメントの直径は1.75 mmで、密度は1.2g/cm<sup>3</sup>である。図2は、PLA, ABS, PCL樹脂条件を変えたときのRPL強度の比較である。<sup>3)</sup>それぞれの樹脂に対するRPLガラスの重量比は7.5%のフィラメントで、エックス線を30 Gyまで照射し、RPL読み取り装置で得られた結果である。RPL強度は、PLAの強度を1とすると、ABSが1.9で、PCLが5.3となっている。PCLがABS, PLAよりもRPL効率が優れている。しかしながら、その理由は十分にわかっていない。また、ABS, PLAによるRPLフィラメントでは安定した印刷が出来ず、フィラメントがヘッドで詰まるなど印刷が停止する事が多々あった。ABS, PLAのフィラメントの品質が良くない、つまり蛍光ガラス粒子の均一性が良くないことなどが考えられる。従って、3Dプリンター用のフィラメントとして、PCL材料を採用することにした。実効原子番号はMayneordの式<sup>21)</sup>を用いて算出し、7.1であった。また、吸収線量を変えた照射条件についても調べRPL強度は吸収線量30mGyから10Gyの範囲においてほぼ直線性を示していた。

図3は、3Dプリンターで印刷した人体耳の形状の線量計である。<sup>3)</sup>図3(a)は耳の3D-CADデータ(STLファイル形式)である。本研究では、人体頭部で耳の形状がもっとも複雑であるため、耳の形状のSTLファイルを試験印刷に利用した。そして、実際に3Dプリンターで印刷された線量計が図3(b)である。図3(a)のCADデータどおりに再現されていることがわかる。耳の中心部にエックス線を照射した。図3(c)は紫外線光によって発するRPL光を赤色のフィルターを通してデジタルカメラで撮影したものである。<sup>22)</sup>エックス線が照射された箇所よりオレンジ色の蛍光を発していることがわかる。図3(d)は、RPL撮影で得られた画像をデジタル処理することによって強度分布に変化したものである。耳の凹凸部分の吸収線量分布の正しさは紫外線励起の条件と蛍光撮影条件に依存するため、十分な評価は出来ていないが、中央部に高い吸収線量箇所があることがわかる。吸収線量評価の信頼性の向上については今後の課題となっている。

これらの結果により、任意形状のRPL線量計を製作するために3Dプリンター技術が有効であることが示された。

#### 参考文献

- 1) Ludlow, JB., Davies-Ludlow, LE., Brooks, SL., Howerto, WB., 2006. Dosimetry of 3 CBCT devices for oral and maxillofacial radiology: CB Mercuray, NewTom 3G and i-CAT. Dentomaxillofac Radiol. 35(4), 219-226.
- 2) Chung, J. P., Seong, Y. M., Kim, T. Y., Choi, Y., Kim, T. H., Choi, H. J., Min, C. H., Benmakhlof, H., Chun, K. J., Chung, H. T., 2018. Development of a PMMA phantom as a practical alternative for quality control of gamma knife® dosimetry. Radiat Oncol. 13(1), 176.



図1 3Dプリンター用RPLフィラメントの写真

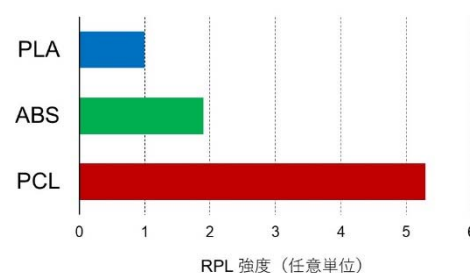


図2 異なる樹脂で製造されたフィラメントのRPL強度比較

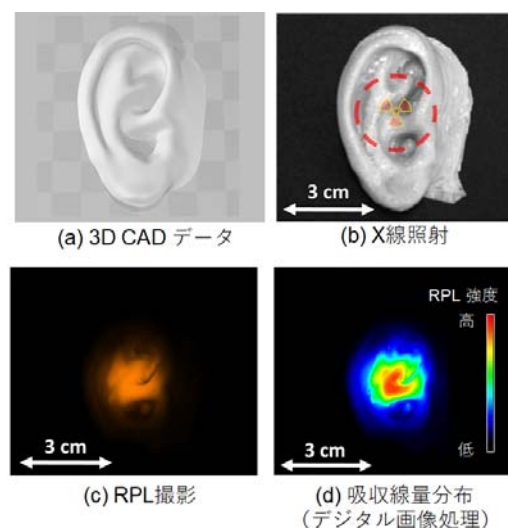


図3 3Dプリンターで印刷された人体耳形状の線量計

- 3) Hashimoto, T., Sato, F., Tamaki, S., Kusaka, S., Miyamaru, H., Murata, I., 2019. Fabrication of radiophotoluminescence dosimeter with 3D-printing technology. *Radiat. Meas.* 124, 141-145.
- 4) Sunil, S. C, Joshi., Sheikh. A. A., 2015. 3D printing in aerospace and its long-term sustainability. *Virtual and Physical Prototyping* 10 (4), 175-185.
- 5) Beyer, C., 2014. Strategic implications of current trends in additive manufacturing. *J. Manuf. Sci. Eng.* 136 (6), 064701.
- 6) Cesaretti, G., Dini, E., Kestelier, X. D., Colla, V., Pambaguian, L. 2014. Building components for an outpost on the Lunar soil by means of a novel 3D printing technology. *Acta Astronautica* 94, 430-450.
- 7) Gonzalez-Gomez, J., Valero-Gomez, A., Prieto-Moreno, A., Abderrahim, M., 2012. A new open source 3d-printable mobile robotic platform for education. *Advances in Autonomous Mini Robots.*, 49-62.
- 8) Kikuchi, R., Yoshikawa, S., Jayaraman, P. K., Zhemg, J., Maekawa, T., 2018. Embedding QR codes onto B-spline surfaces for 3D printing. *Computer-Aided Design* 102, 215-223.
- 9) Vanderploeg, A., Lee, S.-E., Mamp, M., 2017. The application of 3D printing technology in the fashion industry. *International Journal of Fashion Design, Technology and Education.* 10 (2), 170-179.
- 10) Tao, Y., Wang, H., Li, Z., Li, P., Shi, S. Q., 2017. Development and Application of Wood Flour-Filled Polylactic Acid Composite Filament for 3D Printing. *Materials* 10 (4), 339.
- 11) Yamamoto, T., Maki, D., Sato, F., Miyamoto, Y., Nanto, H., Iida, T., 2011. The recent investigations of radiophotoluminescence and its application. *Radiat. Meas.* 46, 1554-1559.
- 12) Assenmacher, F., Boschung, M., Hohmann, E., Mayer, S., 2017. Dosimetric properties of a personal dosimetry system based on radio-photoluminescence of silver doped phosphate glass. *Radiat. Meas.* 106, 235-241.
- 13) Piesch, E., Burgkhardt, B., Fischer, M., Röber, H. G., Ugi, S., 1986. Properties of radiophotoluminescent glass dosemeter systems using pulsed laser UV excitation. *Radiat. Prot. Dosim.* 17, 293-297.
- 14) Sato, F., Maekawa, T., Sakiyama, T., Zushi, N., Shimizu, K., Kato, Y., Murata, I., Iida, T., 2016. Development of human hand phantom containing radiophotoluminescence material. *Radiat. Meas.* 85, 18-25.
- 15) Tanaka, H., Fujimoto, Y., Saeki, K., Koshimizu, M., Yanagida, T., Asai, K., 2017. Radiophotoluminescence properties of Ag-doped mixed phosphate glasses. *Radiation Measurements* 106, 180-186.
- 16) Sato, F., Toyota, Y., Zushi, N., Shimizu, K., Miyamoto, Y., Yamamoto, T., Iida, T., Murata, I., 2018. Synthesis and characterization of spherical radiophotoluminescence glass detectors by melting method. *Radiat. Meas.* 113, 1-6.
- 17) Lim, L. T., Auras, R., Rubino, M., 2008. Processing technologies for poly (lactic acid), *Progress in Polymer Science* 33 (8), 820-852.
- 18) Zheng, S., Lü, H., Chen, C., Guo, Q., 2003. Epoxy resin/poly(ethylene oxide) (PEO) and poly(E-caprolactone) (PCL) blends cured with 1,3,5-trihydroxybenzene: Miscibility and intermolecular interactions. *Colloid and Polymer Science* 281 (11), 1015-1024.
- 19) Sato, F., Hashimoto, T., Tamaki, S., Kusaka, S., Miyamaru, H., Murata, I., 2018. Development of string-shaped radiophotoluminescence dosimeter for high radiation field, *Radiat. Meas.* 111, 1-5.
- 20) Human Ear, Makerbot. Thingiverse, <https://www.thingiverse.com/thing:304657>
- 21) Kaljevic, J., Stankovic, K., Stankovic, J., Ciraj-Bjelac, O., Arandjic, D., 2016. Hand dose evaluation of occupationally exposed staff in nuclear medicine. *Radiat. Prot. Dosim.* 170 (1-4), 292-296.
- 22) Sato, F., Zushi, N., Maekawa, T., Kato, Y., Murata, I., Shimizu, K., Yamamoto, T., Iida, T., 2014. Visualization of high radiation field by radiophotoluminescence photography. *Radiat. Meas.* 68, 23-30.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sato Fuminobu, Hashimoto Taichi, Tamaki Shingo, Kusaka Sachie, Miyamaru Hiroyuki, Murata Isao	4. 巻 111
2. 論文標題 Development of string-shaped radiophotoluminescence dosimeter for high-radiation field	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Radiation Measurements	6. 最初と最後の頁 1~5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2018.02.002">https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2018.02.002</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Sato Fuminobu, Hashimoto Taichi, Tamaki Shingo, Kusaka Sachie, Miyamaru Hiroyuki, Murata Isao	4. 巻 124
2. 論文標題 One-dimensional dose measurement with string-shaped photo-stimulated luminescence detector	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Radiation Measurements	6. 最初と最後の頁 137~140
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2019.04.013">https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2019.04.013</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hashimoto Taichi, Sato Fuminobu, Tamaki Shingo, Kusaka Sachie, Miyamaru Hiroyuki, Murata Isao	4. 巻 124
2. 論文標題 Fabrication of radiophotoluminescence dosimeter with 3D-printing technology	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Radiation Measurements	6. 最初と最後の頁 141~145
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2019.04.012">https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2019.04.012</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 前川 達郎、狩場 友治、山地 恒輔、日下 裕江、佐藤 文信、加藤 裕史、村田 勲	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 ゾル-ゲル法によって調整されたホウ素含有Al203線量計の特性評価	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 日本放射線安全管理学会誌	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 橋本泰一, 東海正暉, 日下祐江, 玉置真悟, 佐藤文信, 村田勲
2. 発表標題 3-Dプリンタを用いた任意形状の線量計造形技術の開発
3. 学会等名 日本放射線安全管理学会 第17回学術大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 橋本 泰一, 山地 恒輔, 佐藤 文信, 宮丸 広幸, 村田 勲
2. 発表標題 ラジオフォトルミネセンス線量計ファイバーの開発
3. 学会等名 日本放射線安全管理学会 第16回学術大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	杉本 久司  (Sugimoto Hisashi)  (40379144)	大阪大学・工学研究科・技術専門職員   (14401)	
研究分担者	伊達道 淳  (Datemichi Jun)  (50379145)	大阪大学・工学研究科・技術専門員   (14401)	