有機色素化合物を用いた3D色素ゲル線量計の開発 Development of the 3D Gel Dosimeters based on the Organic Dyes

太刀川達也*,藤田智哉,綱島大紀,山田琴美,飯嶋亮樹,小泉知恵 Tatsuya Tachikawa*, Tomoya Fujita, Daiki Tsunashima, Kotomi Yamada, Katsuki Iijima, and Chie Koizumi

Faculty of Engineering, Graduate School of Science and Engineering, Saitama University

Abstract

The color formers have been developed to visually detect radiation that is harmful to the human body but cannot be detected by the human senses. Gel dosimeters based on the color formers will be useful for the visually detection of the area irradiated with heavy particle beams, which are used for cancer treatment. This paper presents the color development characteristics of hydrogel dye dosimeters, including phenothiazine-type colorformers, and organogel dye dosimeters, containing the spiropyran analog color formers, by heavy ion beam irradiation.

Keyword: color former, dye dosimeter, hydrogel, organogel, hydrogelator, organogelator, phenothiazine, spiropyran

1. はじめに

1.1 研究背景

我々はγ線の照射を目視で確認するため、水溶液 や有機溶媒中で数 Gy の低線量で発色するカラーフ オーマーの開発研究を行ってきた。癌治療に用いら れる重粒子線の放射線量が 15 Gy 程度であることに 着目し、本研究室で開発されている脂溶性・水溶性 カラーフォーマーと、オルガノゲル・ヒドロゲル化 剤を組み合わせることでオルガノゲル・ヒドロゲル化 剤を組み合わせることでオルガノゲル・ヒドロゲル化 剤を組み合わせることでオルガノゲル・ヒドロゲル 色素線量計を作成し、発色能を評価することで、癌 治療における重粒子線の照射線量の空間分布を目視 により観測するための色素線量計を創製することが 本研究の目的である。

癌治療においては、重粒子線の線量と照射範囲を 決められた線量と患部の大きさに揃えるが、その修 正がきちんとされているか、患部の大きさを超える 範囲の空間を、狭い間隔で1点、1点 照射、計測 しておかなければならないため、長大な時間と照射 回数が必要となっている。色素ゲル線量計が開発さ れることにより、一度に全面で線量を観測すること ができ、照射準備にかかるサイクロトロンの使用時 間を大幅に短縮でき、より多くの患者に重粒子線を 照射できるようになると考える。癌治療に用いられ る放射線量の分布を一度に簡便に観測するための3 D 色素ゲル線量計の開発を目的とし、新しい水溶性 カラーフォーマーや低分子ヒドロゲル化剤の開発に 取り組む。

1.2 本年度の取り組み

今までの研究で、その溶液が y 線でよく発色し、 通常の環境下での経時安定性が比較的よいカラーフ オーマーを用いて色素ゲル線量計を作成し、常温、 常圧下で5価の炭素線の照射を行った。

本研究は研究室の修士課程の学生 6 名、卒研生 3 名との共同研究であるが、本報告書では、水溶性カ ラーフォーマーとして我々の研究室で開発されたフ ェノチアジン系カラーフォーマーを用い、水をゲル

*tachikaw@apc.saitama-u.ac.jp

化するゲル化剤として低分子ゲル化剤を用いて作成 された色素ゲル線量計、κ-カラギーナンやゼラチン を用いて作成された色素ゲル染料計、及び、界面活 性剤である TX-100 を用いて非水溶性カラーフォー マーをカラギーナンゲル、ゼラチンゲルに分散させ て作成された色素ゲル線量計について発色挙動を報 告する。

また、我々の研究室はボロン酸エステル部位が過酸化水素によりヒドロキシ基に変換されることを利用したカラーフォーマーの開発研究を行っている。 それらについて、ゼラチンゲル、κ-カラギーナンゲルでの重粒子線照射による発色を試みたのでそれらについて報告する。

さらに我々の研究室では、クロロホルムや四塩化 炭素に放射線が照射されることで生成した塩素ラジ カルが周囲の分子から水素を引き抜くことで塩化水 素が生成することに着目し、塩化水素で発色するカ ラーフォーマーの利用を検討してきた。四塩化炭素 や塩化メチレンをゲル化する低分子オルガノゲル化 剤を用いて作成したオルガノゲル線量計についても 重粒子線照射による発色能の評価を行ったので報告 する。

2. 水溶性フェノチアジン系カラーフォーマ ーと低分子ヒドロゲル化剤を用いた色素ヒ ドロゲル線量計

2.1 研究背景

当研究室では、放射線の照射により保護基部位が

外れることで発色するフ ェノチアジン、フェナジ ン系カラーフォーマーの 合成と機能評価を行って いる。保護基部位に水溶 性置換基を導入すること で水溶性が付与された フェノチアジン系カラ



Figure 1. Color former **1**.

ーフォーマー1 は 0.025mM の濃度の水溶液に 5 当量 の硫酸鉄(0.125mM)を加えることで10.Gy 以下のγ線 照射量を目視で発色を確認することができた。

そこで図2に示すような低分子ヒドロゲル化剤2 を用いた色素ゲル線量計を調整し、重粒子線に対す る発色能の評価を行った。



Figure 2. Low molecular weight hydrogelator 2.

2.2. 重粒子線照射実験

カラーフォーマー1 を 0.13 mM の濃度になるよう に水に溶解させ、ヒドロゲル化剤 2 を用いて蒸留水 ゲル線量計を作製した。220 MeV の炭素線 (¹²C⁵⁺) を 7.5 cm×7.5 cm の範囲でスキャンし、4nA で 30 秒と 60 秒、2nA で 120 秒照射した。4nA で 60 秒と 2nA で 120 秒は線量率の違いが発色に与える影響を調査 するため行った。4nA で 30 秒の照射は約 9 Gy、4nA で 60 秒、2 nA で 120 秒の照射は約 18 Gy に相当す る。それらの中で、ヒドロゲル化剤 10a を用いたカ ラーフォーマー16 の蒸留水ゲル 10a-16 ([6]0 = 54.9 mM, [16]0 = 0.13 mM, [Fe2+]0 = 0.65 mM) の色調変化 を図 3 に示す。9 Gy 相当の重粒子線による発色を目 視で確認することができた。



Figure 3. Image of **1** in **2** hydrogel after ${}^{12}C^{5+}$ beam irradiation ([**2**]₀ = 87.6 mM, [**1**]₀ = 0.13 mM, [Fe²⁺]₀ = 0.65 mM).

また、重粒子線照射後のゲルを水に溶解させた水 溶液の吸光度変化を図4に示す。溶液にした1の濃 度は32.5 μMである。650 nm 付近の吸収は発色体の 吸収である。4 nA で 30 秒照射後の吸光度と電流値 を2 nA に下げて照射時間を倍の60 秒にしたときの 吸光度はほぼ等しい値を示し、線量率による大きな 違いは見られなかった。また、ヒドロゲル線量計で は水溶液の場合と異なり、未照射の線量計でもある 程度の発色が見られた。



Figure 4. Spectral changes of **1** in **2** hydrogel after ${}^{12}C^{5+}$ beam irradiation ([**2**]₀ = 87.6 mM, [**1**]₀ = 0.13 mM, [Fe²⁺]₀ = 0.65 mM).

3. 水溶性フェノチアジン系カラーフォーマ ー+ゼラチン、κ-カラギーナンを用いた色 素ヒドロゲル線量計

3.1 研究背景

我々は化学修飾可能な低分子ヒドロゲル化剤に着 目した研究を行ってきたが、身の回りには水をゲル 化するゼラチンや寒天といった水溶性ゲル化剤が存 在している。本節では、図5に示す水溶性フェノチ アジン系カラーフォーマー3をゼラチンやκ-カラギ

ーナンをゲル化剤として用いて色素ゲル 線量計を作成し、γ 線や重粒子線に対す る発色能を評価した。重粒子線の照射 条件は前記の通りで ある。



Figure 5. Color former 3

3.2 重粒子線照射実験

カラーフォーマー3 を 0.13 mM、添加剤として 硫酸鉄七水和物を 0.125 mM の濃度になるように水 に溶解させ、ゲル化剤としてゼラチンを用いた色素 ゲル線量計の重粒子線照射前後の様子を図6に、そ のゲルに3倍量の水を加えて溶かし水溶液にして測 定した吸光度変化を図7に示す。また、カラーフォ ーマー3 と硫酸鉄七水和物を κ -カラギーナンをヒド ロゲル化剤として作成した色素ゲル線量計の重粒子 線照射前後の様子を図8に、そのゲルに3倍量の水 を加えて溶かし水溶液にして測定した吸光度変化を 図9に示す。重粒子線の照射は、前節と同じく 220 MeVの炭素線 ($^{12}C^{5+}$) を 7.5 cm×7.5 cm の範囲でス キャンさせ、4nA で 30 秒と 60 秒、2nA で 120 秒照 射することにより行った。

どちらの場合も重粒子線照射により発色すること が確認できた。どうように硫酸鉄の添加剤を加えな いで作成したゲルについても重粒子線照射を試みた がカラーフォーマーの発色は小さく、添加剤の増感 効果が認められた。



Figure 6. Image of **3** in gelatin hydrogel after ${}^{12}C^{5+}$ beam irradiation ([**3**]₀ = 0.13 mM, $[Fe^{2+}]_0 = 0.125$ mM).



Figure 7. Spectral change of **3** in gelatin hydrogel after ${}^{12}C^{5+}$ beam irradiation ([**3**]₀ = 0.13 mM, [Fe²⁺]₀ = 0.125 mM).

ゼラチンゲルにおいては水溶液と同じ位置に発色 体の吸収が得られたが、κ-カラギーナンゲルにおい ては 650 nm 付近に吸収は見られず、560 nm に新し い吸光度の増加が見られた。この吸収帯の移動につ いて詳細はまだよくわかっていないが、κ-カラギー ナンを用いた場合のみ得られることから、κ-カラギー ナンのスルホネートアニオン置換基と色素体との 相互作用によるものと考えられる。この吸収帯のシ フトは色素体であるメチレンブルーにκ-カラギー ナンを添加した溶液の吸光度測定においても見るこ とができた。



Figure 8. Image of **3** in κ -carrageenan hydrogel after ${}^{12}C^{5+}$ beam irradiation ([**3**]₀ = 0.13 mM, [Fe²⁺]₀ = 0.125 mM).



Figure 9. Spectral change of **3** in κ -carrageenan hydrogel after ¹²C⁵⁺ beam irradiation ([**3**]₀ = 0.13 mM, [Fe²⁺]₀ = 0.125 mM)

4. 非水溶性フェノチアジン系カラーフォー マーと界面活性剤 TX-100、ゼラチン、κ-カ ラギーナンを用いた色素ヒドロゲル線量計

4.1 研究背景

当研究室では、水溶性のフェノチアジン系カラー フォーマーの合成を行ってきたが、非水溶性のカラ ーフォーマーに界面活性剤を加えることで水中にカ ラーフォーマーを分散させる方法も用いている。前

年度の研究では非水 溶性カラーフォーマ ー4 と中性の界面形 て、その濃度がカラ ーフォーマーの分散やフ 線度がカラ ーフォーマーの水へ の分散やク線照射に 対する発色にて調査 に 、それらをヒドロ



Figure 10. Color former 4

ゲル線量計に応用し、重粒子線照射でどのように発 色するか検討を行うこととした。

4.2. y線、及び、重粒子線照射実験

カラーフォーマー4 及び増感剤である硫酸鉄七水 和物をそれぞれ 0.25 mM、1.25 mMの濃度になるよ うに量りとり、さらにカラーフォーマーを水に分散 させるための界面活性剤である TX-100 を 0.34 mM、 6.2 mM、12.0 mMの濃度になるように量りとり、そ れぞれ水溶液を調整した。それらの溶液 1 mL に対 し、ゼラチンゲルではゼラチン 120 mg、 κ -カラギー ナンゲルでは κ -カラギーナン 15 mg を加え、蒸留水 ゲル線量計をそれぞれ作製した。それぞれ作成した ゲル線量計に対し、220 MeV の炭素線 ($^{12}C^{5+}$)を 7.5 cm×7.5 cmの範囲にスキャンさせ、4 nA で 30 秒と 60 秒照射した。

増感剤としての硫酸鉄七水和物の添加をしなかっ た場合は、カラーフォーマーのよい発色は見られな かった。また、κ-カラギーナンでは重粒子線の照射 によりよく発色したが、ゼラチンゲルでは明瞭な発 色が得られなかったので、本報告ではκ-カラギーナ ンゲルでの結果についてのみ示す。

[TX-100]₀ = 0.34 mM, [**2c**]₀ = 0.25 mM, [Fe²⁺]₀ = 1.25 mM 用いて作成した κ -カラギーナンゲル線量計 に 100 Gy/h の線量率で 10, 40, 70 Gy の γ 線を照射 した結果を図 11、そのゲルを水で希釈して測定した 吸収スペクトルの結果を図 12 に示す。図 11 を見て わかるとおり、10 Gy の γ 線照射に対しても目視で 確認可能な良好な発色を示した。また、この線量計 においても生成した色素体の吸収極大である 650 nm 付近の 2 つの吸収は見られず、色素体と κ -カラギー ナンとの相互作用によるものと考えられる 560 nm への吸収極大の変化が見られた(図 12)。



Figure 11. Image of **4** κ -carrageenan hydrogel after γ ray irradiation of 0, 10, 40, 70 Gy ([TX-100]₀ = 0.34 mM, [**4**]₀ = 0.25 mM, [Fe²⁺]₀ = 1.25 mM).



Figure 12. Spectral change of **4** in κ -carrageenan hydrogel after γ -ray irradiation ([TX-100]₀ = 0.34 mM, [**4**]₀ = 0.25 mM, [Fe²⁺]₀ = 1.25 mM).

次にこの色素ゲル線量計への重粒子線照射後の様子とゲルを水で溶解し測定した吸収スペクトルの辺を図 13、図 14 に示す。



Figure 13. Image of κ -carrageenan gel of **4** after ${}^{12}C^{5+}$ beam irradiation of 0, 30, 60 s ([TX-100]₀ = 0.34 mM, [**4**]₀ = 0.25 mM, [Fe²⁺]₀ = 1.25 mM).



Figure 14. Spectral change of κ -carrageenan gel of **4** after ${}^{12}C^{5+}$ beam irradiation of 0, 30, 60 s ([TX-100]₀ = 0.34 mM, [**4**]₀ = 0.25 mM, [Fe²⁺]₀ = 1.25 mM).

ネジロ瓶の上からの照射になるため、ネジロ瓶の口 が細くなっている部分の影になる周辺部分には粒子 線が当たっておらず、中央のみが発色している様子 がはっきりと見て取れる。未照射の試料も含めて粒 子線が照射されていない部分も青く発色していたた め、ゲルの作成条件を検討した結果、TX-100の添加 量を多くすることで、未照射部分の発色が抑えられ ることがわかった。TX-100を6.2 mM使用した場合 のκ-カラギーナンゲル線量計の粒子線照射後の試 料の様子とスペクトル変化を図15、図16に示す。



0 30 60 s

Figure 15. Image of κ -carrageenan gel of **4** after ${}^{12}C^{5+}$ beam irradiation of 0, 30, 60 s ([TX-100]₀ = 6.2 mM, [**4**]₀ = 0.25 mM, [Fe²⁺]₀ = 1.25 mM).



Figure 16. Spectral change of κ -carrageenan gel of **4** after ¹²C⁵⁺ beam irradiation of 0, 30, 60 s ([TX-100]₀ = 6.2 mM, [**4**]₀ = 0.25 mM, [Fe²⁺]₀ = 1.25 mM).

未照射部分の発色が抑えられ、照射された部分とそうでない部分のコントラストが見やすくなっている。 また、吸収スペクトルにおいては吸光度に余り変化 が無く、TX-100の量がカラーフォーマーの発色に余 り影響を与えていないことがわかる。γ線の照射で はTX-100の濃度を増加させると吸光度の変化が大 きくなる傾向が見られたが、これはγ線照射ではγ 線の照射により媒体から生成するラジカル種の効果 で発色する間接効果なのに対し、粒子線では直接的 に発色しているからではないかと考える。

5. ボロン酸エステル部位をもつ水溶性カラ ーフォーマーとゼラチン、κ-カラギーナン を用いた色素ヒドロゲル線量計

5.1 研究背景

当研究室では、放射線の照射により水より過酸化 水素が発生することに着目し、過酸化水素で発色す るカラーフォーマーの開発研究を行っている。その 中にボロン酸エステル部位を有するカラーフォーマ ーがある。ボロン酸エステルは過酸化水素が作用す ることで水酸基に変化し、それにより置換基の電子 供与性が変化することで発色するが、水溶液の液性 が、水酸基がアニオンになる塩基性である方がカラ ーフォーマーの発色に望ましい。カラーフォーマー の置換基や溶媒の液性、リン酸やボロン酸緩衝液を 用いるなど種々の検討を行ったが、本報告では、重 粒子線照射実験を行ったカラーフォーマー5 の水酸 化ナトリウム水溶液を用いた κ-カラギーナンゲル 線量計を中心に報告する。このカラーフォーマーの 系でもゼラチンゲルでは生成した水酸ラジカルがゼ ラチンと



5.2. γ線、重粒子線照射実験

た。

ネジロ瓶に κ -カラギーナン 15 mg を測り取り、pH = 9.2 に調製した水酸化ナトリウム水溶液 0.25 mL を 加え、 κ -カラギーナンをを完全に溶解させた。さら に 0.26 mM のカラーフォーマー溶液を 0.25 mL 加え、 素早く撹拌させて十分に冷却し、 κ -カラギーナンゲ ル線量計を作製した。220 MeV の炭素線 ($^{12}C^{5+}$) を 7.5 cm×7.5 cm の範囲に 4 nA で 30 秒、2 nA で 60 秒 照射した。まず、 κ -カラギーナンゲル線量計への γ 線照射結果を図 18、吸収スペクトルの測定結果を図 19 に示す。ゲルの水溶液への希釈は pH=9.2 の水酸 化ナトリウム水溶液を用いて 4 倍に希釈した。



Figure 18. Image of κ -carrageenan gel of **5** after γ -ray irradiation of 0, 10, 40, 70 Gy ([**5**]₀ = 0.13 mM, pH = 9.2).



Figure 19. Spectral change of κ -carrageenan gel of **5** after γ -ray irradiation of 0, 10, 40, 70 Gy ([**5**]₀ = 0.13 mM, pH = 9.2).

カラーフォーマー5 水溶液は 400nm 付近に吸収を もちその液色は黄色だが、 y 線を照射することによ り 550 nm 付近に新たな吸収が見られ、溶液は赤色に 変化する。そのゲル線量計を用いて、重粒子線照射 を行った。照射、未照射の試料の様子と希釈した溶 液の吸収スペクトルの変化を図 20, 図 21 に示す。



0 60 (4nA) 120 (2nA) s

Figure 20. Image of κ -carrageenan gel of **5** after ¹²C⁵⁺ beam irradiation ([**5**]₀ = 0.13 mM, pH = 9.2).

重粒子線照射直後に画像を撮影したが、溶液中で の発色の多少の拡散が見られた。試料瓶はネジロ瓶 を用いており、60秒照射後の画像では重粒子線が当 たらない周辺までは拡散されてはいないものの画像 撮影条件で中心の色が反射され拡散されて見えるの かも知れない。2nA で120秒照射の方が発色も拡散 も大きいように画像では見られるが、吸光度で比較 してみるとほとんど同じである。

γ線照射による発色と重粒子線照射による発色を 比較する。同じ体積になるよう希釈して測定された 吸光度は、重粒子線の照射とγ線照射 70 Gy とで同 程度であった。今回の重粒子線の線量率は計算では おおよそ 15.6 Gy/s であり、60 秒間の照射ではおよ そ 936 Gy となりおよそ 13 倍であるが、照射された ゲルの体積は、 γ線照射では 0.5mL であったのに対 し、重粒子線照射ではネジロ瓶の縁の影響があり、 およそ直径 3 mm 深さ 2 mm の円柱の範囲と考えら れる。するとその体積は 0.014 mL となり、 γ線が照 射された体積のおよそ 30 分の 1 である。 γ線の過酸 化水素の G 値が 0.71 に対して粒子線(ポロニウム原 子の α線)の G 値は 1.45 と粒子線の過酸化水素生成 量は γ線よりも高いように、重粒子線では直接相互 作用していることなどから、 γ線より重粒子線の方 が効率よく発色体を生成させると考える。



Figure 21. Spectral change of κ -carrageenan gel of **5** after ${}^{12}C^{5+}$ beam irradiation ([**5**]₀ = 0.13 mM, pH = 9.2)..

6. スピロピラン類似カラーフォーマーと低 分子オルガノゲル化剤を用いた色素オルガ ノゲル線量計

6.1 研究背景

当研究室では、酸で発色するカラーフォーマーを ゲル線量計による γ 線検出に応用する研究も行って きた。クロロホルムや塩化メチレンのハロゲン系溶 媒では、放射線の照射により塩素ラジカルが生成さ れ、生じた塩素ラジカルは周囲から水素を引き抜い て塩化水素となる。四塩化炭素溶液では、発生した 塩素ラジカルが水素を引き抜くことができないため カラーフォーマーは発色しないが、四塩化炭素ゲル 線量計では、ゲル化剤が共存することで効率よく塩 化水素を発生し、カラーフォーマーを発色させるこ とができる。また、四塩化炭素は沸点の低い塩化メ チレンや光などに不安定なクロロホルムより色素ゲ ル線量計を作成するのに好都合である。本報告では、 酸により発色するスピロピラン類似カラーフォー 一6 と四塩化炭素ゲルを形成することができる低分 子オルガノゲル化剤7を用いて作成した四塩化炭素 ゲル線量計の重粒子線照射による発色の評価につい て報告する。



Figure 22. Color former 6 and organogelator 7

6.2. 重粒子線照射実験

カラーフォーマー6 と四塩化炭素をゲル化でき るオルガノゲル化剤7をそれぞれ0.13 mM、107 mMの 濃度になるように量りとり、四塩化炭素に加熱溶解し た後に冷却し、ゲル線量計をそれぞれ作製した。220 MeVの炭素線(12C5+)を7.5 cm×7.5 cmの範囲に4 nAで30秒と60秒、2 nAで120秒照射した。

照射後の試料の様子を図23に示す。重粒子線照射 によりカラーフォーマー6はよく発色し、重粒子線 が照射されなかった部分とされた部分のゲルの色の 違いが明瞭に見て取ることができた。

塩化メチレンゲルやクロロホルムゲルも作成し、 重粒子線の照射を行ったが、1日後に溶媒の揮発が 見られたり、発色体のゲル内での拡散により照射さ れない部分での発色が見られたりした。

Figure 23. Image of **6** after ${}^{12}C^{5+}$ beam irradiation in **7** dry tetrachloromethane gel ([**6**]₀ = 0.13 mM, [**7**]₀ = 107 mM).

【結論】水溶性、非水溶性カラーフォーマーを用 いて作成した色素ゲル線量計に5価の炭素線を照射 し、その発色を確認することができた。

γ線により発色する条件で作成されたカラーフォ ーマーが重粒子線でも全く同様に発色する訳ではな く、ゲル化剤の種類や濃度による拡散の抑制を行う 必要があることがわかった。

界面活性剤である TX-100 を用いてフェノチアジ ン系カラーフォーマーをκ-カラギーナンゲル中に 分散させることで照射の境界をはっきと見て取るこ とができた。それは水溶性カラーフォーマーを用い た系では生成した色素体がゲル中を動きやすいのに 対し、界面活性剤を用いた系では生成した色素体が 界面活性剤のミセル中に閉じ込められているため、 色素体より巨大なミセルがゲル中を移動しにくいこ とによると考える。

また、水溶液系では無色透明な線量計の作成が比

較的容易だったのと異なり、ゲル線量計では作成時 に多少の着色が見られる。今後は無色透明なゲルが できるような低分子ゲル化剤の合成を試みると共に 色素ゲル線量計の経時安定性や発色体の拡散につい て検討を加え、よりはっきりと発色をみることがで きる色素ゲル線量計の創製を目指す。

参考文献

- 太刀川達也,「放射線を視覚で検知するための機能性 色素材料」・放射線物質対策技術-除去、モニタリング・ 装置・システム開発-,株式会社エヌ・ディー・エス, pp. 249-257, 2015,太刀川達也 「放射線量を色で把 握」・Isotope News、731(3), PP.7-11, 2015.
 Tachikawa T., Sato Y. and Tokita S.,Synthesis and
- [2] Tachikawa T., Sato Y. and Tokita S., Synthesis and Radiation Sensitivity of Phenoxazine Type Color Formers Including Thiol Ester Protective Group, Mol. Cryst. Liq. Cryst., 431, pp. 461-466 (2005).太刀川達也,
- [3] 太刀川達也、「放射線検出のためのカラーフォーマーゲル化剤」、ゲルの安定化と機能性付与・次世代への応用開発,技術情報協会、pp.111-116、2013.,H. Itoi, Y. Sekine, M. Sekiguchi, and T. Tachikawa, "A Novel Color Former Organogel for Radiation Detection Systems", Chem. Lett., 38, 1002-1003, 2009.