

フェムト秒レーザーを用いた多光子吸収過程における生物由来エアロゾルの蛍光特性

## Fluorescence characteristics of biological aerosol in multi-photon absorption process using a fs laser

<sup>1</sup>伊澤 淳、<sup>2</sup>横澤 剛、<sup>1</sup>倉田孝男、<sup>1</sup>三代 周、<sup>1</sup>松永 易、<sup>3</sup>染川智弘、<sup>4</sup>眞子直弘、<sup>4</sup>久世宏明

J. Izawa, T. Yokozawa, T. Kurata, A. Mishiro, Y. Matsunaga, T. Somekawa, N. Manago, and H. Kuze

<sup>1</sup>(株)IHI、<sup>2</sup>(株)INC エンジニアリング、

<sup>3</sup>(公財)レーザー技術総合研究所、<sup>4</sup>千葉大学環境リモートセンシング研究センター

<sup>1</sup>IHI Corporation, <sup>2</sup>INC Engineering Co., Ltd.

<sup>3</sup>Institute for Laser Technology

<sup>4</sup>Center for Environmental Remote Sensing (CEReS), Chiba University

### Abstract :

Multi-photon absorption process based on a fs laser can be applied for the stand-off detection of aerosol particles in the atmosphere. Recently, we have observed fluorescence of biological aerosol (riboflavin, etc.) by two-photon absorption process using a fs laser. Here we report characteristics of the fluorescence in riboflavin aerosol. Pulse width of the fs laser, delay time from incident of the fs laser, and concentration of aerosol were changed as the experimental parameters. Fluorescence intensity was improved by several ten times with optimization of experimental parameters.

### 1. はじめに

物質の光吸収に起因する蛍光スペクトルは、対象物質の分子構造を反映するため、生物由来物質のような構成元素が類似の有機物の識別に有効である。さらに、フェムト秒レーザーなどの高いピーク強度のレーザー照射時に見られる多光子吸収-蛍光過程 (nPEF) を用いることにより、照射するレーザー光よりも短い波長の蛍光を得ることも可能であり、過程を適切に選定することによりレーザー装置、大気伝搬特性、蛍光特性のそれぞれに有効な波長を選定することができる<sup>1)</sup>。我々は近赤外フェムト秒レーザーを用いた多光子吸収過程に基づく蛍光ライダーによるエアロゾルのスタンドオフ計測システムを検討している<sup>2)</sup>。我々は過去に高出力フェムト秒レーザーを用いた2光子吸収-蛍光過程による生物由来エアロゾル(リボフラビン、トリプトファン、NAD)の蛍光計測を報告した<sup>3)</sup>。今回はそのうちリボフラビンに対象を絞り、そのエアロゾルの蛍光特性を詳細に明らかにしたので報告する。

### 2. 実験概要

図1に実験装置の概要を示す。光源として、チャープパルス増幅方式のfs-Ti:sapphireレーザー(中心波長800nm、最小パルス幅100fs、最大エネルギー30mJ、繰り返し周波数10Hz)を用いた。パルス幅は圧縮用グレーティング対の間隔を調整することにより、オートコリレータの計測信号を基準として最大1psまで変化させることが可能である。レーザー光は焦点距離5mの凸レンズにより望遠鏡から約10m先に設置した供試体に集光した。エアロゾル中でのブレイクダウンを避けるため、集光位置はエアロゾル領域の直後に設定した。エアロゾル中での集光径は、エアロゾル噴霧位置で約φ3mmであった。エアロゾルジェネレータにより、生物由来物質(リボフラビン)水溶液を噴霧し、エアロゾルを発生させた。水溶液の噴霧濃度は一定とし、エアロゾルの濃度は水溶液中のリボフラビン濃度の調整により変化させた。エアロゾルはアクリルパイプ(内径φ100mm、長さ2m)の終端部に噴霧し、中央部分から吸引することにより安定した濃度と噴霧ボリュームを形成している。エアロゾルによる多光子吸

収過程により発生した蛍光は、レーザ照射部付近に設置したカセグレン型望遠鏡（ $\phi 200\text{ mm}$ ）にて集光し、バンドルファイバ（バンドル径 $\phi 1\text{ mm}$ ）を介して ICCD カメラ付分光器にて分光計測を行った。信号強度増大のため分光器の入射スリット幅を広げた結果、波長分解能は  $6.3\text{ nm}$  であった。分光器内でのレーザの迷光を避けるため、バンドルファイバ入射端には光学ショートパスフィルタ（カットオフ  $675\text{ nm}$ ）を挿入した。短波長側は望遠鏡の仕様により制限され、限界波長は  $350\text{ nm}$  であった。

### 3. 実験結果

図2はリボフラビンエアロゾル（空气中濃度  $1.3\text{ mg/L}$ ）に fs レーザ（レーザ出力  $30\text{ mJ}$ 、パルス幅  $100\text{ fs}$ ）を照射した際の蛍光スペクトルである（遅延時間なし）。波長  $550\text{ nm}$  付近に強い蛍光のピークが確認できた。ピーク波長位置は文献<sup>1)</sup>および前回の実験結果<sup>3)</sup>とおおむね一致しており、リボフラビンの蛍光に起因することが裏付けられた。遅延時間の最適化を行うことにより、前回結果に比べて数十倍程度の大幅な信号強度の改善を確認した。同一レーザ・望遠鏡条件における信号強度の増加（効率の向上）はシステム負担（寸法重量他）の低減につながるため、さらなる改善が望ましい。一方、ベースラインに乗っている信号は、ブレイクダウンによるプラズマバックグラウンド信号である。多光子励起過程は理論的にはレーザの集光強度の増加と共に発光効率が増加するが、強度が高すぎるとブレイクダウンが起こり、蛍光信号が消失するので、最適な強度領域が存在すると考えられる。図2のスペクトルには両者の信号成分が存在するが、両者の信号が同一の場所から発生しているか、エアロゾル領域内の異なる場所から発生しているかは未検証である。光路差が短く時間分解が困難であるため、直接空間的な観測方法が必要である。そのほか信号特性として、遅延時間依存性、パルス幅依存性、濃度依存性のデータを取得している。

### 4. まとめ

フェムト秒レーザによる生物由来物質（リボフラビン）エアロゾルの蛍光特性の詳細を明らかにした。レーザ集光条件および遅延時間の最適化を行い、蛍光信号強度において数十倍程度の大幅な改善を確認した。今後は引き続き計測条件の最適化による信号強度のさらなる向上を試みるとともに、蛍光の空間特性の把握についての実験を計画している。

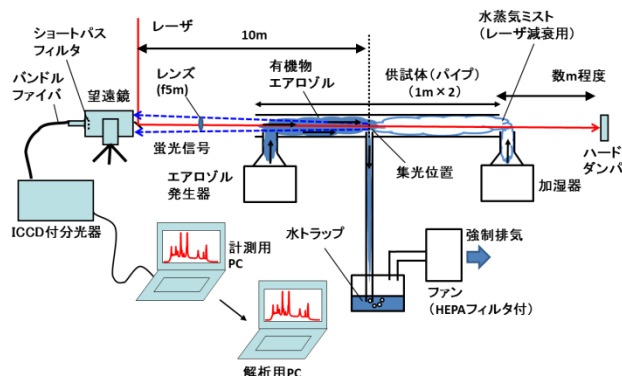


Fig.1 Schematic of Experimental setup

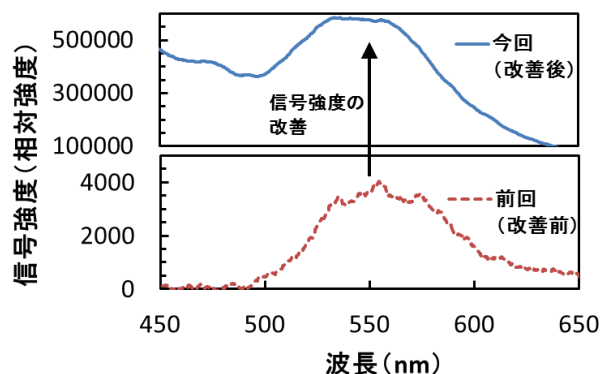


Fig.2 Fluorescence spectrum of riboflavin

### 参考文献

- 1) G. Mejean *et al.*, Appl. Phys. B 78 (2004) 535.
- 2) 横澤他；第31回レーザセンシングシンポジウム B-4 (2013).
- 3) 伊澤他；第31回レーザセンシングシンポジウム P-22 (2013).