

励起光強度変調による $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Tm}, \text{Yb}$ ナノ粒子の 高次非線形なアップコンバージョン蛍光発光

High-order nonlinear upconversion fluorescence of $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Tm}, \text{Yb}$ nanoparticles
under temporally modulated excitation.

名古屋大学¹、横浜国立大学²、大阪大学³、[○](M2) 佐藤大暉¹、山中真仁¹、古川太一²、
新岡宏彦³、西澤典彦¹

Nagoya Univ.¹, Yokohama National Univ.², Osaka Univ.³, [○]Daiki SATO¹, Masahito YAMANAKA¹,
Taichi FURUKAWA², Hirohiko NIIOKA³, Norihiko NISHIZAWA¹

E-mail: yamanaka.masahito@h.mbox.nagoya-u.ac.jp

近年、生体イメージングの新規蛍光プローブとして、近赤外光で励起によってアップコンバージョン (UC) 発光を示す希土類元素を添加したナノ粒子が報告されている[1]。UC 発光の発光過程において、1つの UC 発光光子を得るには複数の励起光子が必要になるため、その励起光と UC 発光強度の関係は非線形となる。このように希土類添加ナノ粒子では連続発振 (CW) レーザーによる1光子多段階励起により非線形な応答が誘起できるため、従来の多光子顕微鏡より低い励起光のピーク強度で多光子顕微鏡のような高空間分解能を実現できる蛍光体として期待されている。

これまでに我々は希土類ツリウム (Tm) とイッテルビウム (Yb) を共添加した酸化イットリウム ($\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Tm}, \text{Yb}$) ナノ粒子の可視域 UC 発光を利用した蛍光イメージングを行ってきた[2,3]。 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Tm}, \text{Yb}$ ナノ粒子では、波長 980 nm の光子を3回吸収し、波長 480 nm 帯の発光が得られるため、3次の非線形応答が得られることが期待される。しかし、希土類原子の励起寿命が数 ms と長いため、得られた UC 発光の応答は2乗以下であった。近年、希土類エルビウムを添加したナノ粒子において、ナノ粒子を励起した後、励起準位の寿命程度の時間、励起光強度を OFF にすればより高い非線形性を誘起出来ることが示された[4]。この手法を利用すれば、UC 発光イメージングにおいてより高次の非線形性が利用でき、より高い空間分解能の実現が期待できる。

本研究では、 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Tm}, \text{Yb}$ ナノ粒子の可視域 UC 発光イメージングの空間分解能と光セクション能力の向上を目指し、励起光強度変調を利用した可視域 UC 発光の蛍光応答の改善を試みた。本測定では、波長 980 nm の CW レーザー光をペレット状にした $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Tm}, \text{Yb}$ ナノ粒子に集光し、波長 480 nm 帯の UC 発光を測定した。この際に、波長 980 nm の CW レーザー光強度は周波数 200Hz で ON/OFF 変調した。左図が ON 時間 0.3ms、OFF 時間 4.7ms の際の結果、右図が ON 時間 4.5ms、OFF 時間 0.5ms の際の結果である (両対数グラフ)。これらの結果から、ON 時間 0.3ms、OFF 時間 4.7ms の際に、より高い非線形性がより高い励起光強度領域で誘起できることが確認できた。

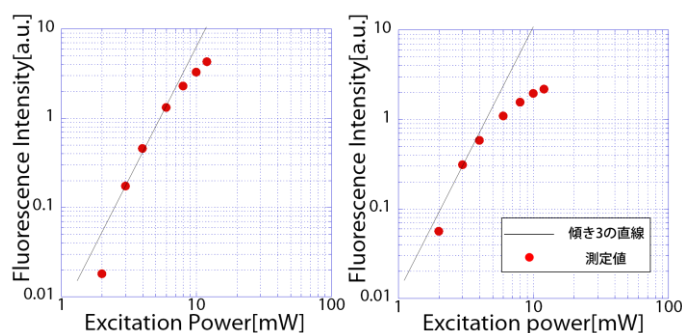


Fig. 1 蛍光強度と励起光強度の関係

(左: ON 0.3 ms, OFF 4.7 ms, 右: ON 4.5 ms, OFF 0.5 ms)

参考文献[1] Fukushima et al., *Sci. Rep.* **6**, 25950 (2016), [2] Sato et al, The 64th JSAP Spring Meeting, 17a-413-9 (2017), [3] Sato et al, ALPS'17, p14-40 (2017), [4] Hodak et al., *Anal. Chem.* **88**, 1468-1475 (2016)