

励起周波数掃引方式光子計数型位相変調方式蛍光寿命測定計

Photon-counting phase-modulation fluorometer with variable excitation frequency

徳島大院, ○多賀 貴規, 水野 孝彦, 岩田 哲郎

Graduate School of Tokushima University, ○Takanori Taga, Takahiko Mizuno, Tetsuo Iwata

E-mail: c501632013@tokushima-u.ac.jp

1. はじめに

我々はこれまでに光子計数型位相変調方式蛍光寿命計 (PC-PMF; photon-counting phase-modulation fluorometer) の報告を行った¹⁾。それにより、従来の位相変調法では原理的に対応不可能であった微弱光に、最大 1.0 GHz の変調周波数、分解時間 10 ps 以下で対応できるようにした。しかし、時間分析器として時間振幅変換器 (TAC; time-to-amplitude converter) を用いたため、波高分析器として用いるマルチチャネルアナライザの不感時間に起因して、励起の繰り返し周波数が制限され、信号の収集効率も非常に低いという問題点があった。ある程度の“明るい”試料に対しては、分解時間を多少犠牲にしても信号の収集効率を向上させたいという要求は根強い。そこで、パルス励起方式の高効率光子計数型位相変調方式蛍光寿命計を製作した²⁾。その結果、光子計数法を採用しながら、デジタルオシロスコープのような感覚で波形の取得が可能となった。装置の構成要素として FPGA の使用がそれを可能とした。しかし、パルス光励起であるため、試料の損傷や非線形効果に対する配慮が必要である。今回は、そのような配慮をさほど必要とせず、測定精度が高いとされる位相変調方式での同様なシステム³⁾に組み直し、さらに励起光周波数掃引方式⁴⁾とした。これにより、多成分試料への対応も可能となった。単一成分でもそれを確認するためには必要なことである。周波数マルチプレックス方式⁵⁾への変更も容易である。本報告では装置の詳細と基礎性能評価の結果を示す。

2. 光子計数型位相変調方式蛍光寿命計の測定システム

Fig.1(a)に、測定システムのブロック図を示す。RF オシレーター (RF oscillator; SG384, SRS) により、周波数 $f_1 \sim f_2$ ($f_1 < f_2$) まで周波数を線形に変化するチャープ波形と、それに同期した周波数、例えば 2 MHz の参照信号を繰り返し発生させる。ここで、サンプリング時間間隔は 1.0 ns、全データ点数は 500 とし、繰り返し合成波形に不連続点が生じないようにした。その波形で発振波長 $\lambda = 405$ nm のレーザダイオード (LD; NDV4313, Nichia) を変調させ、試料を励起した。試料からの蛍光は長波長透過フィルター (LPF; SCF-50S0-44Y, Sigma Koki) を経て、光電子増倍管 (PMT; R7400U, Hamamatsu Photonics) で検出した。PMT からの出力信号は、自作の高速パルス増幅器と波高弁別器を経た後、FPGA (Cyclone V GX, Altera) で構成された光電子パルス列同時検出器に入力させた。一方、周波数 2 MHz の参照信号を適当な遅延の後、直接 FPGA に入力させた。

Fig.1(b)は、FPGA 内部の光電子パルス列同時検出の構成図である。光電子パルス列をシフトレジスタに入力し、参照信号は内部の PLL で 500 MHz まで周波数通倍した。

その結果、分解時間は 2 ns となった。シフトレジスタからの並列出力は参照信号でラッチされた後、32bit カウンタに並列積算される。カウンタの値はシリアライザを経由して定期的にパソコンに転送する。

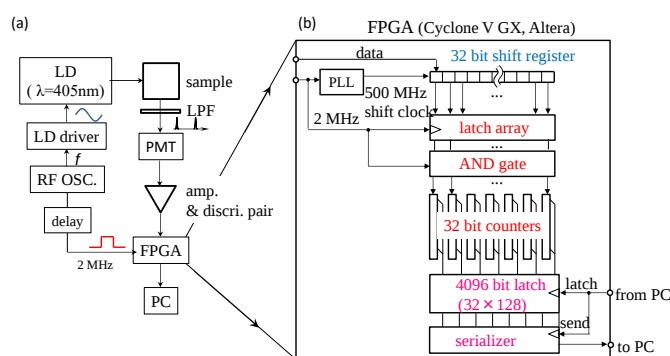


Fig. 1 (a) Schematic of PC-PMF using an FPGA and (b) a block diagram in the FPGA.

3. 蛍光寿命測定結果

Fig.2 に、周波数を掃引した励起波形と 10 μ M ローダミン 6G エタノール溶液 (吸収ピーク波長 531 nm, 蛍光ピーク波長 553 nm) の蛍光波形を示す。ここで、 $f_1 = 4$ MHz, $f_2 = 20$ MHz とした。実線は励起波形、点線は蛍光波形である。グラフより蛍光寿命は 4.2 ns と推定された。FPGA を用いることにより、カウンタのビット長など細かい測定条件がその場で変更可能となった。

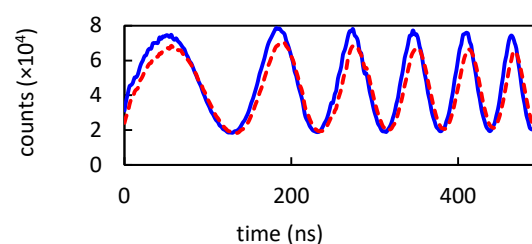


Fig. 2 Excitation (blue solid line) and fluorescence (red dotted line) waveform. The sample was 10 μ M rhodamine 6G in ethanol.

参考文献

- 1) T. Mizuno. et. al., Rev. Sci. Instrum., **86**, 043110 (2015).
- 2) T. Iwata and T. Mizuno, Meas. Sci. Technol., **28**, 075501 (2017).
- 3) T. Mizuno. et. al., OPJ 2016 [2aD4].
- 4) T. Iwata. et. al., Meas. Sci. Technol., **16**, 2351 (2005).
- 5) T. Iwata. et. al., Appl. Spectrosc., **61**, 9, 950 (2007).