

特集 光センシング I

蛍光分光法と地球環境センシング技術としての
蛍光ライダーへの適応事例

齊藤 保典

信州大学学術研究院工学系 (〒380-8553 長野県長野市若里 4-17-1)

Fluorescence spectroscopy and its adaptation to fluorescence lidar
as earth environmental sensing technique

Yasunori Saito

*Institute of Engineering, Academic Assembly, Shinshu University,
4-17-1 Wakasato, Nagano City 380-8553*

(Received July 30, 2021)

Since fluorescence is one of essential spectroscopical characteristics of substance, fluorescence spectroscopy can be a promised manner of obtaining such information. In this paper, we focus on fluorescence lidar as an earth environment sensing technique/system based on fluorescence spectroscopy, and discuss its usefulness in the measurement. The substances handled here are ubiquitous on the earth formed by the atmosphere, hydrosphere, geosphere and biosphere which are natural environmental systems and livingosphere which is an artificial one. The fluorescence lidar can help track material transfer between systems. This is a unique ability of the fluorescence lidar and very important for understanding the circulation of materials. The quantity and quality of the measurement data presented here measured in the individual environmental systems was sufficient to demonstrate the ability of the fluorescence lidar. Monitoring environmental conditions caused by human activity is one of the most promising applications of the fluorescence lidar in the future.

キーワード：蛍光分光, レーザ誘起蛍光, 蛍光ライダー, 地球環境, センシング技術

Key Words: Fluorescence spectroscopy, Laser-induced fluorescence, Fluorescence lidar, Earth environment, Sensing technique

1. はじめに

地球環境は自然環境としての大気圏, 地圏, 水圏, 生物圏と人工環境としての生活圏から構成されるが¹⁾, もちろん環境圏毎の境界があるわけではない. 例えば, 花粉の発生は植物自体(生物圏)と生育環境(地圏, 水圏, 大気圏)に依存し, 空気中(大気圏)を伝搬し, 私たちの居住空間(生活圏)へと入り込む. マイクロプラスチックは生活圏からの排出物であり, 河川から海(水圏)へと運ばれ, 一部は魚類等(生物圏)の体内へ蓄積され私達の食卓に上る(生活圏)こともある. 人里から離れたピレネー山脈の大気中²⁾や雨水³⁾からも見つかっている. 地球環境を知るには, 発生から伝搬, 沈着, 影響に至る一連の過程を, 空間や時間が連続する情報として取得する必要がある. これにはリモートセンシングの技術が有効である. また, 異なる環境圏間の連続した情報を統一して理解するには, 出来る限り同じ指標や手法での計測が望ましい. 太陽からの光エネルギーが地球環境の変遷に大きな役割を担ってきたことを考えると, 共通指標は「光」で手法は「分光計測」が適当と考えられる.

リモートセンシングに光の一種であるレーザの利用を考えた場合、レーザはもともと分光学から誕生したものであることを踏まえると、そのシステム開発において（特に受信系に）分光技術や分光情報を取り入れることは至極当然の発想である。分光手法を多波長の発光現象を扱うものとする、蛍光、ブレイクダウン、ラマン散乱が対象となるが、本稿では蛍光のみを扱う。またレーザリモートセンシングは離れた場所にある物質を計測するため、医学分野などで用いられるような蛍光物質で染色する手法の使用は困難である。そのため自家蛍光を有する物質のみが計測対象となるが、地球を構成する多くの物質が多かれ少なかれ自家蛍光特性を示すため⁴⁾、自家蛍光と限定することでレーザリモートセンシングの応用範囲を限定することにはならない。自然界に存在し循環する物質の蛍光をトレーサーにすることで、生活圏—大気圏—水圏—地圏—生物圏の連続した情報が得られると期待される。

本稿では、2章で蛍光分光法の簡単な説明を行った後、3章で蛍光ライダーのシステムについて要点を概説する。4章では蛍光ライダーを中心にしてこれまでの計測事例を紹介する。古くとも（筆者の知る限りでは）最初の報告であったりその領域に大きな進展をもたらした報告を選んだ。さらに最近の報告をなるべく一緒にして紹介するようにした。今後の蛍光ライダーへの展開を期待して、レーザ蛍光分光計測例も取り上げた。

2. 蛍光の利用

2.1 蛍光発生の原理

蛍光の英語表記は Fluorescence であるが、蛍光発光は化学反応・生体反応・太陽光・電界印加などでも起こるため、レーザセンシングでは「レーザを誘起源とする」の意味を強調した LIF(Laser-induced Fluorescence)の表記でそれらと区別することが多い。誘起より励起表記が一般的である場合には励起を優先した。

分子の光吸収や発光等のエネルギー移動過程は、Fig. 1 のヤブロンスキー図(Jablonski Diagram)で示される。電子エネルギーが最低の一重項基底状態 S_0 にある分子に適当なエネルギーを持つ光が照射されると、

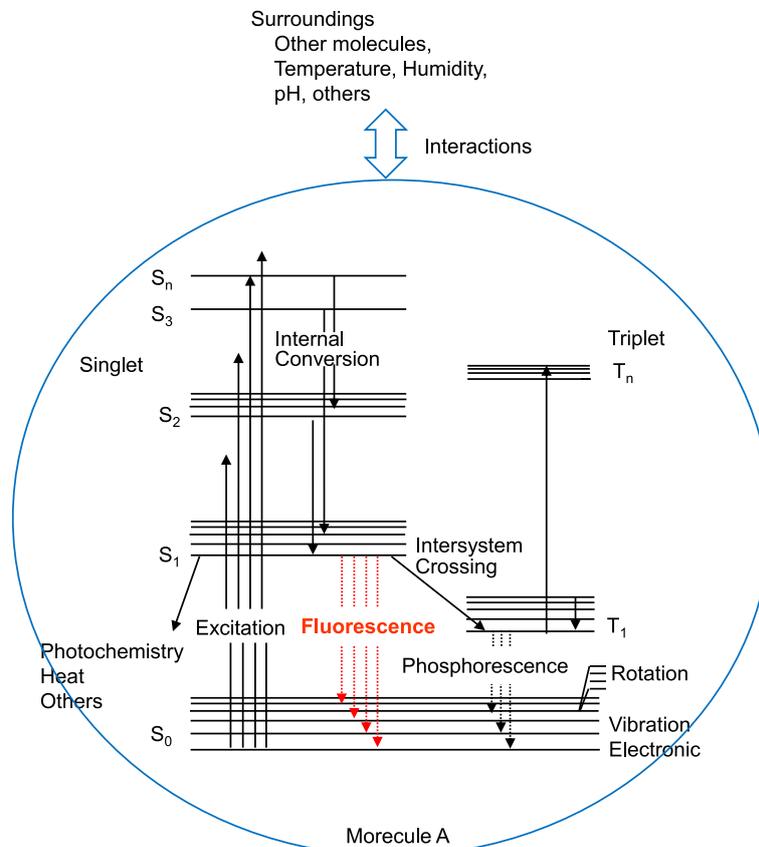


Fig. 1 Principle of fluorescence (Jablonski diagram).

分子はその光エネルギーを吸収し、 10^{-15} 秒程度の短時間内に上準位の電子項 ($S_1, S_2 \cdots S_n \cdots$) に遷移し励起状態となる。どの準位に励起されるかは使用する光の波長に依存する。励起状態は非常に不安定なため、内部転換や振動緩和により 10^{-12} 秒程度の時間で第一電子励起状態（一重項）の最低励起状態 S_1 に遷移する。 S_1 から基底状態 S_0 への電子項準位間の遷移によって生じる発光を蛍光と呼ぶ。その寿命は 10^{-8} 秒以下程度である。 S_1 から項間交差により三重項の最低励起状態 T_1 を経由して S_0 へ戻る過程でも発光するが（燐光）、その寿命は 10^{-6} 秒～10 秒程度であることから、通常のパルスライダでは計測対象にならないが、CW ライダでは対象になる場合もある。なお振動緩和、内部転換、項間交差などは非放射過程である。興味深いのは、蛍光は S_0 内の一連の振動準位間への遷移で発生するため、発光はある幅のスペクトルを持つことである。また蛍光遷移間のエネルギーは吸収した光エネルギーよりも低く、蛍光スペクトルは励起波長よりも長い方に現れる（ストークスの法則）。蛍光スペクトルには、発光スペクトル（励起波長を固定したときの発光強度の発光波長依存性）と励起スペクトル（蛍光波長を固定したときの発光強度の励起波長依存性）があるが(Fig. 2)、一般には任意の特定の波長で励起された発光スペクトルを蛍光スペクトルと呼ぶことが多い。

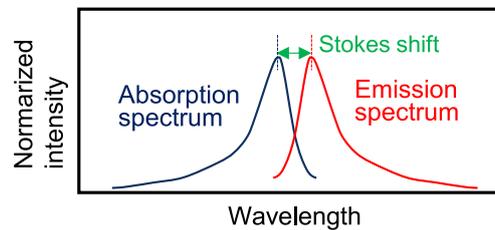


Fig. 2 Absorption spectrum and emission spectrum.

2.2 レーザリモートセンシングの計測パラメータとしての蛍光

蛍光分光法の特徴は、高感度、選択性に優れる、周囲環境の情報が得られることなどである。蛍光を扱うレーザリモートセンシングにおいてもその特徴が活かされる。高感度は、吸収法が入射前後の差を計測するのに対し、発光ゼロの状態を基準とできることで得られる。 S_1 や S_0 は基本的には分子や物質に固有であることから蛍光スペクトル形状より物質の種類同定が可能である（選択性）。蛍光スペクトルは蛍光物質が置かれた周辺環境（物理的、化学的、生理生態学的など）により影響を受けるため、逆にそれらの情報が得られることになる。Fig. 1 では計測対象である分子(Molecule A)の周辺環境として、他の分子の存在、気温、湿度、pH 等を挙げたが、これらとの相互作用を行った結果として、当該分子の蛍光発光に変化が生じる。具体的には発光スペクトル、励起スペクトル、量子収率、蛍光寿命、蛍光異方性、蛍光消光など多くのパラメータが計測の対象となるが、現在までにライダ計測で実現されているものは蛍光スペクトルと蛍光寿命に限られるようである。蛍光寿命は蛍光物質が置かれた状況での励起エネルギーの減少時間（時定数）で定義されるが、個々の物質やその置かれた状況で蛍光寿命が異なることから、蛍光寿命計測により物質や周辺環境に関する情報が得られる。

3. 蛍光ライダの構成

3.1 基本事項

蛍光ライダの製作にあたっては励起波長（送信系）と蛍光波長（受信検出系）の関係を知ることが重要で、そのためには計測対象物質の励起スペクトルと発光スペクトル(Fig. 2)を知る必要がある。 S_1 より高エネルギー状態($\Sigma S_{1...n}$)へ励起された場合にも S_1 から S_0 の電子項準位間の遷移で生じる同じ蛍光が得られるため、レーザの選択については吸収型ライダと比べると自由度が高い。しかしながら通常は吸収極大の波長で蛍光強度が最大になることから、送信系では吸収極大波長にレーザ波長を設定しその時に得られる蛍光スペクトル全体を検出できるように分光系を組むことが多い。しかしながら吸収極大波長が長波長側にあり過ぎると、蛍光強度は十分でも蛍光スペクトル全体が狭くなることや（ストークスの法則）短波長域の蛍光が意味を持つこともあるので、設計においては両者のバランスを考慮する。この時に役に立つのが EEM (Excitation-Emission-Matrix) で、Fig. 2 を複数の励起波長で求め三次元的に表現したものである。スギ花粉と

ブタクサ花粉の EEM を Fig. 3 に示す⁵⁾。スギ花粉では 460 nm 励起で 510 nm 蛍光検出の組み合わせの時に検出効率が高いが、ブタクサ花粉の場合は 320 nm 励起で 430 nm 蛍光検出が良いことがわかる。ただしスギ花粉の例では 460 nm 以下の蛍光情報が得られないことから、励起波長が最適励起波長よりも短波長側にあって、そこでの蛍光強度は小さくとも広い蛍光スペクトルを得ることが得策の場合もある。EEM 特性は蛍光分光光度計で簡単に得られる。

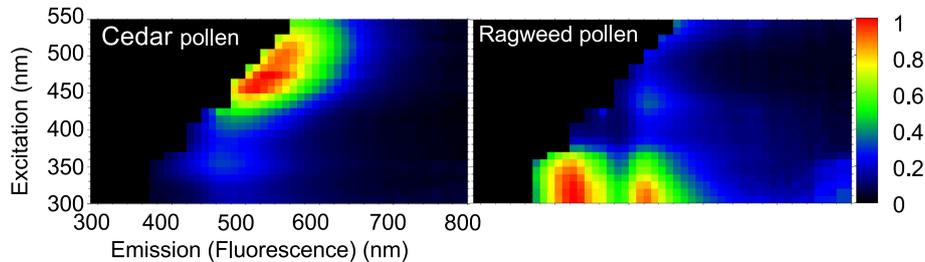


Fig. 3 Examples of EEM: Cedar pollen (left) and ragweed pollen (right). Each intensity is normalized by the max one.

物質の EEM については多くの報告があるが、特に蛍光ライダー計測で役に立つものをいくつか紹介する。大気エアロゾルとしてのバイオエアロゾルを含む有機炭素系エアロゾルの EEM 特性については Hill ら⁶⁾、Pan⁷⁾、Pöhlker ら⁸⁾の報告、水溶性エアロゾルに関しては Hudson⁹⁾らや Baker ら¹⁰⁾の報告、植物生体分子や細胞に関しては Cerovic ら¹¹⁾や Roshchina¹²⁾の報告に詳しい。これらの文献には蛍光断面積も載っており、蛍光ライダーで計測したい物質の設定や設計シミュレーションに役に立つ。

3.2 送信系

上述の通り、蛍光発生には S_1 への遷移に必要な光エネルギーだけがあれば良く、あるいは S_n のどの準位への遷移でも良いことから、蛍光ライダーの光源設定においては自由度が高くなる。一般的には吸収量が多いほど蛍光強度も大きくなることから、送信レーザも吸収極大波長を有することが望ましく、その意味からは理想的には最適励起波長を選択可能な波長可変固体レーザが良い。しかしながら Fig. 3 からわかるように、蛍光ライダーで対象となる物質の多くは吸収スペクトルが広いため、Nd:YAG レーザの 355 nm や 266 nm を利用し紫外から可視にわたる全領域の蛍光スペクトルを検出するのが、現時点では最適であろう。紫外光を使うことでラマン散乱断面積が大きくなるという特長を生かし、大気中の窒素、酸素、水蒸気などの散乱断面積が既知のラマン散乱信号を蛍光と同時に取得できるという利点もある。近年開発が著しい深紫外 LED は菌やカビ、ウイルスの制御に効果があるとされているが、蛍光分光法の有力な励起光源になることが期待される。

3.3 受信系

蛍光ライダーに使用されている検出系は次のように分類できる。1)最も標準なものでは、フィルターやダイクロイックミラーの多段組み合わせあるいは複数枚のフィルターを備えた回転式ホルダーによる分光系と光検出器（光電子増倍管や CCD）、2)液晶チューナブルフィルター（1個で可視域全域にわたり波長選択が印加電圧変化のみにより行える）と光検出器の組み合わせ¹³⁾、3)分光器とゲート機能付きイメージンテンシファイヤー付きの CCD 検出器の組み合わせ¹⁴⁾、4)分光器とマルチチャネル（マルチアノード）光電子増倍管の組み合わせ¹⁵⁾、5)ストリークカメラ¹⁶⁾などがある。1)は飛び飛びまたは単一蛍光波長の検出になるが、その波長だけに関していえば感度が高い。連続した蛍光スペクトル計測という観点では2)3)4)5)が良い。5)は特に 10^{-9} 秒以下程度の高速度時間分解で蛍光スペクトル計測が可能で通常は蛍光寿命計測に利用される。またライダー研究者は自身で装置を組み立てることが多いが、自作の容易さと費用の点では1)が良い。1)2)では多波長蛍光画像が得られる。

4. 蛍光ライダーによる地球環境計測例

蛍光ライダーの原型は Measures と Bristow が 1971 年に報告した Laser Fluorosensor である¹⁷⁾。ミーライダーの報告が、レーザ発明の直後の 1963 年だった事と比べると 10 年ほど遅い。これは、蛍光の相互作用断面積が散乱や吸収と比べて 3 桁以上も小さいことや連続したスペクトル形状全体 (200 nm 以上) の把握が望ましく、ライダー受信系がやや複雑になることに起因したものと思われる。そのため彼らの実験では、7 m 程度の近距離で蛍光断面積が大きな油膜、汚染水、水溶性クロロフィル、岩石を対象としたものが計測対象であったが、地球環境要素をほぼ網羅していたことがわかる。

筆者らの蛍光ライダー計測の実際を Fig. 4 (写真) に示した。大気エアロゾル蛍光計測では、受光系にダイクロミックフィルターとフィルターを組み合わせて蛍光の一部を取り出し光電子増倍管でアナログ検出する。これを基本セットとして波長組み合わせの異なる 4 セットを用意し、断片的ではあるがスペクトル情報としている (3.3 節 1) の構成)。植生・花粉・プラスチック・土壌・河川水質の計測では、検出系に分光器と CCD 検出器を使用した (3.3 節 3) の構成)。装置全体をストレッチャー上にコンパクトに配置した移動型かつ小型軽バン車両搭載型となっている。小電力容量 (900 VI) 発電機を装備しており、インフラ設備のないフィールドでも計測ができる。計測場所を制限しない。(特殊大型観測車が不要なことから) 緊急時等での初期計測にも即座な対応が可能である。



Fig. 4 Photos of the earth environmental sensing by the fluorescence lidar: Atmospheric aerosol (upper left), vegetation (lower left), pollen (upper right), waste-plastic and soil (middle right), and river water (lower right).

4.1 大気圏環境計測例

エアロゾルの計測例が多くある中で、最近では蛍光性エアロゾルへの関心が高まっている。ラマンライダー観測によりその存在が推論されていたが、大気エアロゾルからの蛍光スペクトルの計測によりその存在を明確に示したのは Sugimoto らの報告¹⁵⁾が最初と思われる。Nd:YAG レーザー (355 nm) と 32 チャンネルマルチフォトンカウンティング光電子増倍管を組み合わせた蛍光ライダー (ラマン散乱とミー散乱も同時に計測できることから Raman-Mie-fluorescence lidar と記している) で、低層大気エアロゾルの蛍光スペクトルの高度

分布について報告した。黄砂、都市域や工業地帯からの汚染物質流入時に強い蛍光強度が得られた。黄砂粒子や汚染気体エアロゾルなど5種類の蛍光後方散乱係数の推定を試み、420 nm~510 nm 間の総蛍光強度は窒素ラマン信号強度と同じ程度であったとしている。白石らもほぼ同じ構成の蛍光ライダーを用いて、福岡市上空の大気観測を行い同様の結果を得ている。地上サンプリングにより得られた粒子の蛍光スペクトルと蛍光ライダーのスペクトルとを比較し、ケイ酸塩や硫酸カルシウムと思われる粒子が蛍光に寄与していた可能性を示唆した¹⁸⁾。Reichardt らは雲粒子と蛍光性エアロゾルの共存状況について報告した¹⁹⁾。蛍光性エアロゾル源の一部は、各地で行われる復活祭の焚き火(local Eater bonfires)としており、生活圏との関係を示すもので興味深い。蛍光スペクトルを緑領域(540-615 nm)と青領域(455-530 nm)に分けて解析することで、エアロゾルの種類判別が可能で、今後は440 nm 以下の蛍光スペクトルが重要だとしている。Li 等は、416-720 nm までの信号の積分値を蛍光性エアロゾルの信号とし、地上局で測定されたSO₂、NO₂、PM2.5、PM10濃度と比較して、蛍光性エアロゾルは排気ガスや化石燃料の燃焼によるものとした²⁰⁾。最近の蛍光性エアロゾル計測は Huffman ら²¹⁾の報告に良くまとめられている。

4.2 水圏環境計測例

降雨による海洋表層へ注入される溶存有機カーボンの量は 90×10^{12} gC yr⁻¹ とされており²²⁾、降雨は大気圏—水圏の物質循環において重要な要素である。雨に含まれた水溶性有機系カーボンのエアロゾルの EEM 特性が調べられている^{23,24)}。チベット高原の氷河からは、微生物性フミン様物質、土壌性フミン様物質、二種類の蛋白様物質が見つけれられた²⁵⁾。物質循環過程を蛍光情報で追跡した事例である。

Hoge らは航空機搭載蛍光ライダー(AOL: Airborn Oceanographic Lidar)による海洋沿岸域の広域環境調査を行い、水溶性クロロフィルおよびコロイド状物質からの蛍光を捕えることに成功した²⁶⁾。航空機からの蛍光ライダー観測は初としている。湖沼や河川の水質調査が Saito らにより行われた¹⁴⁾。軽車両搭載蛍光ライダーが使われた。動作の特徴は、レーザ照射のタイミングに合わせて CCD ゲートの開閉時間を同期させながら遅延させることで距離分解能を得たこと、ゲート時間幅を 20 ns 程度に短くすることで太陽背景光雑音の低減化を図り微弱な蛍光の日中観測が可能になったことである。諏訪湖から天竜川水系に流れる(毒素成分を含むこともある)藍藻に含まれるフィコシアニン濃度や溶存有機物及びクロロフィル濃度の変化を3年間の長期に渡って調査した。さらに、データを速報値として現場からスマートフォンで実時間配信する新たな水資源利用管理システムを開発した。近年ではドローン搭載型²⁷⁾、携帯型²⁸⁾の蛍光検出センサーが開発され、より身近で個人レベルで使用可能な水質診断システムが開発されつつある。どちらも 412 nm の CW 半導体レーザを使用していることが特徴である。

海洋生態系への展開として、篠野らはサンゴ生態調査のためのイメージング蛍光ライダーを開発した。UV をサンゴに照射した際に得られる蛍光蛋白からの青~緑の蛍光をイメージインテンシファイヤー付きの CCD カメラで観察した。グラスボートに搭載した装置でのサンゴ礁海域における結果では、水深 12 m 程度までのサンゴの生死判別が可能であった(死んだサンゴは蛍光を発しない)²⁹⁾。さらに牽引可能なブイ搭載蛍光センサーを開発し、1 km の距離範囲内で水深 100 m までのサンゴ生育分布図を作成した³⁰⁾。サンゴの生育は海洋環境変化を敏感に反映し、その消失は漁業への大きな被害を及ぼすことから生態調査の重要性が再認識されている。インド洋上 Andaman and Nicobar 諸島では UV 蛍光計測によるサンゴの生態調査が始まった³¹⁾。北極海洋中の藻類バイオマス生態の三次元調査用に水中ビークル搭載蛍光ライダーを利用することが提案されている。Rehm らは、ライダーセンサー部が容量最大 30 L と限られたビークル空間内に、473 nm (8.3 μJ) と 532 nm (26.0 μJ) のマイクロチップパルスレーザと 5 枚の干渉フィルターを配置したフィルターホイール型分光器と光電子増倍管の検出系を配置した。水槽実験の段階であるが、有色溶存有機物質と藻のクロロフィル蛍光強度の時間変化が得られている。クロロフィル蛍光 685 nm は水中での減衰が大きく今後の課題である³²⁾。

4.3 地圏環境計測

地質学観点から地球表層の鉱物や物質の蛍光特性の研究が行われている³³⁻³⁵⁾。Gaft らは自然界に存在するアパタイトやジルコンなどの鉱物の発光スペクトルの時間分解特性を調査し、約 20 種の含有レアアース成分への帰属を行った³³⁾。NASA では、このようなデータを火星、木星エウロパ、金星、月などの惑星表

面探査のレーザリモートセンシングへ適応する計画を進めており、蛍光ライダーとともにラマンや LIBS 手法も取り入れた複合分光計測システムを開発している³⁶⁾。

地表面層の生態系においてはバイオフィームと呼ばれる菌類の凝縮形質が重要な役割を果たしている。バイオフィームの光合成機能や種別調査のためにレーザ誘起蛍光法が使われた。Silva らによると、微生物を含む岩石表面の蛍光スペクトルには珪藻や藍藻など原生植物に関連する情報が含まれていた。地衣類からは 690 nm と 707 nm にピークを持つ蛍光スペクトルが得られた。クロロフィルからの蛍光スペクトルは 690 nm と 740 nm 付近に二つのピークを持つことが知られているが、後者に関しては 30 nm 以上もの差があった。窒素欠乏時の向日葵の蛍光スペクトルではそのような短波長化が見られることなどから、周辺の生育環境変化が影響したとしている³⁷⁾。菌類、地衣類、藻類などは地球の最も初期に出現した生物といわれ、その生態系の理解は、将来の地球環境の予測にとって大変有効である。

鉱物や動植物の化石の蛍光観察が 1960 年初期に始まっている。例えば Gijzel は、高圧水銀ランプを使った蛍光顕微鏡で花粉や孢子の化石の蛍光波長を観察し、地質学的年代が経過するほど炭化が進むにつれて青・緑から赤・褐色へと変化することを示し、蛍光情報より植物繁栄時期の推定が可能とした³⁸⁾。現在では UV レーザが使われることが多いが、レーザ励起は特に軟部組織の蛍光検出に有効であった^{39,40)}。Kaye らは UAV 搭載蛍光ライダーを製作し地表付近の化石検出の実証試験を行っている。特徴は、レーザービーム(450 nm)を 4 m 長のライン形状にし UAV 移動により地上スキャン画像を得ていること、記録に特別な分光素子を配置しない通常の RGB ビデオカメラを使ったことである。但し RGB ビデオカメラからの蛍光色再現には、事前に取得しておいた化石蛍光スペクトルで修正しておく必要があった。菌の化石や実験地(ワイオミング)で発掘された化石などを対象にした実証実験でその有効性を確かめた。一回の飛行で 4500 m² の範囲の調査が可能であった⁴¹⁾。

4.4 生物圏環境計測例

蛍光物質は動植物にも多く含まれ⁴²⁾ 蛍光情報は生態調査に役にたつ。鳥や虫類の蛍光ライダー関連研究はスウェーデン・ルンド大学の報告が多い。Brydegaard らは鳥観測への蛍光ライダーの適応例を報告した⁴³⁾。6 種類の鳥の羽毛について 266 nm 励起の蛍光スペクトルを求めた結果、350 nm~650 nm の蛍光スペクトルを得、蛍光物質としてはフェオメラニン、ユウメラニン、青色羽毛色素、カロテノイドであるとした。フェンスで囲まれた実験領域にスグロムシクイ、ウグイス、ムクドリ、ミヤマガラスを放鳥し、蛍光ライダーで観測を行った。レーザ波長は 266 nm で、蛍光はロングパスフィルターを介してダイクロイックミラーで青領域と黄色領域に分けられた後に光電子増倍管で検出された。両蛍光強度の相対変化および散乱信号との比較を二次元にプロットすることで、4 種類の判別ができた。他に羽毛に含まれる β カロテンの蛍光を利用する方法⁴⁴⁾、欧州のライダーネットワーク EARLINET で使われているラマンライダーの 407 nm に含まれる蛍光信号を使った渡り鳥調査⁴⁵⁾を報告している。昆虫類ではイトトンボ⁴⁶⁾、ビワハゴロと蛾⁴⁷⁾、蝶⁴⁸⁾の検出実験が行われた。

植物関連では特に光合成研究の観点からクロロフィル蛍光が注目されてきた^{49,50)}。クロロフィル蛍光の、リモートセンシング全般での利用法については大政の解説⁵¹⁾、蛍光ライダーを含めたアクティブセンシング技術研究の推移経過等については Malenovsky らの解説⁵²⁾に詳しい。

植物蛍光画像の研究では Omasa の功績が大きい。向日葵葉の SO₂ に暴露された際に起こるクロロフィル蛍光の過渡変化(Chlorophyll transient induction)のビデオカメラ収録⁵³⁾、光合成抑制剤注入時のクロロフィル蛍光強度の三次元構造の時間変化計測⁵⁴⁾などは世界に先駆けた成果である。

蛍光ライダーによる植物計測の報告は 1990 年頃から増加したように思われる。これは EUREKA-LASFLEUR という、レーザによる植物計測診断に関する EU プロジェクトによるところが大きい。さらに ESA が 2022 年度の打ち上げを予定している FLEX という衛星から植物蛍光観測に向けての大型研究プロジェクト⁵⁵⁾が、その後の研究継続を後押しした。FLEX は太陽誘起植物クロロフィル蛍光を観測するものがあるが、蛍光ライダーは検証データの提供などの観点から期待されている。

植物蛍光の画像化は蛍光ライダーでも進められた。Edner らはトレーラー搭載の多波長画像蛍光ライダーを製作した⁵⁶⁾。レーザ波長は YAG レーザ 355 nm を重水素のラマンシフトを用いて 397 nm とした。355 nm よりもクロロフィル蛍光をより効率的に発生させることができる。分光検出は 4 分割のミラー構造を持つ二

つ目の望遠鏡で行われた。4分割した画像をそれぞれの波長に対応するフィルターで分光し CCD カメラの異なる4位置に結像させ同時に検出する。3波長の蛍光画像と送信波長の散乱画像から、葉内含有クロロフィル量の部位の違いによる差を画像化することに成功した。クロロフィル量の計測には通常化学分析法が用いられるが、葉を採取し薬品処理等の作業が必要になる。生育したままの状況で同じ葉を継続的に調査することはできない。蛍光ライダーを用いた方法ではこれら全てを解消する。蛍光ライダーの画像化手法にはこの他、Push-broom法⁵⁷⁾、レーザービームスキャン法⁵⁸⁾、フィルター交換法⁵⁹⁾がある。Yangらは、蛍光ライダーで植生観測を行う際の蛍光強度の葉のレーザー入射角依存性を求めた。これはFLEXで用いられている蛍光伝搬特性モデルFluorMODleaf modelの検証に必要な作業である⁶⁰⁾。

Hogeらは航空機搭載蛍光ライダー(AOL)で地表面の植生観測を行った。XeCl励起色素レーザー422nmに照射されたクロロフィル蛍光685nmを分光器と光電子増倍管の組み合わせの検出系で観測した。また植生高度を計532nmの散乱信号から推測し、高度と植生の関係を報告した⁶¹⁾。

クロロフィルの蛍光寿命は明反応のZスキームでの光反応系IIとIの電子移動に係る光合成初期反応に関する情報を含み、光合成における光化学変換効率の推定に利用できることが確かめられており⁶²⁾、屋外に自然生育している植物への適応が切望されていた。蛍光ライダーで寿命計測を行った事例を紹介する。Sowinskaらは、ピコ秒レーザーとストリークカメラの組み合わせによる車載型蛍光ライダーを作成し、40-80m遠方の様々な種類の植物の蛍光寿命計測を行った。蛍光時間波形の指数関数からなる減衰モデル波形とのフィッティング解析を行った結果では、ポプラの例では午前中の蛍光寿命0.8nsが日中には0.4nsまで急速に減衰し、夜間にかけて1.21nsまでゆっくりと増加するという結果を得た¹⁶⁾。Goulasらはパルス幅100ps以下のレーザー355nmと3GHzの高速光電子増倍管および1GHzのオシロスコープからなる蛍光ライダーを製作し、トウモロコシの蛍光寿命計測を行った。クロロフィル蛍光と散乱光の畳み込み積分により求めた日中の平均蛍光寿命は0.32nsであった⁶³⁾。齊藤らもほぼ同じような構成の装置を製作し、プラタナスの日陰葉と日向葉の寿命計測を行い、日向葉の蛍光寿命の変化は、朝は1.1ns、12時付近で0.8ns、夕方にかけて1.2ns程度と変化することを報告した⁶⁴⁾。平均蛍光寿命と蛍光量子収率は比例関係にあることが知られており⁶⁵⁾、蛍光ライダーで屋外に生育している植物の寿命が計測できたことは大きな意味を持つ。

4.5 生活圏観測への応用例

地球環境が私達の健康や生活に及ぼす影響、また逆に私達の生活や生産活動が与える地球環境への影響について、蛍光ライダーや蛍光分光法が果たす役割を考える。バイオエアロゾル検出技術は、生物兵器としてのテロや紛争への対策として行われた欧州・北米諸国の国防関連プロジェクトにより大きな進展が得られたことは否めない⁶⁶⁻⁶⁸⁾。

花粉症は国民病と言われるほどにその疾患に悩んでいる人は多い。Saitoらは、蛍光ライダーを用いて日

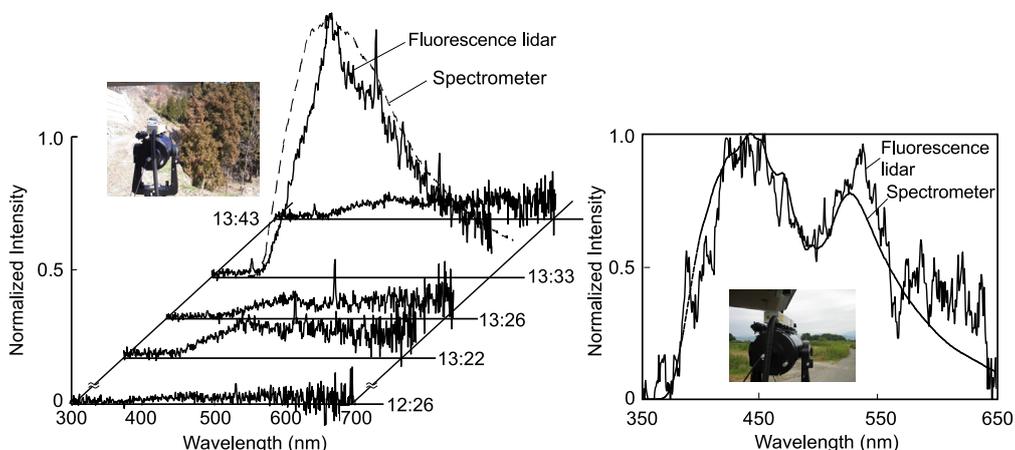


Fig. 5 Fluorescence spectra of pollen measured by the fluorescence lidar: Cedar pollen (left) and ragweed pollen (right). Lidar results were compared with fluorescence spectra monitored using a spectrometry in the laboratory.

中に大気中に浮遊するスギ花粉の検出を報告した(Fig. 5)⁶⁹⁾。諏訪湖の水質計測に使われたものと同じ装置である。解析では25種類の花粉の蛍光スペクトルとライダー計測スペクトルの形状フィッティング法で花粉種類を同定したことから、スギ花粉の蛍光断面積($2 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}/\text{particle}$)を求め観測時のスギ花粉密度($2.2 \times 10^7 \text{ particle}/\text{m}^3$)を推定したことが大きな成果である。ライダーで大気中に浮遊している花粉の蛍光スペクトルを観測したのは初と思われる。秋口の花粉症の原因であるブクサ花粉の検出にも成功している。Richardsonらは、266 nm/355 nmのレーザと分光器と32マルチチャンネル光電子増倍管の検出系で蛍光スペクトルの観測を行った。サンプラーで採集した試料の菌類と花粉の蛍光スペクトルを観測結果に適応して、観測当日の(バイオエアロゾル12種)の混合割合を求めた⁷⁰⁾。Veselovskiiらは多波長ミー・ラマンライダーのラマンチャンネルを花粉検出用チャンネル(466 nm)に代えて花粉検出を試みた。ミー散乱の偏光解消度と花粉蛍光強度の比較を行うことで、花粉(偏光解消度強大きい)、ダスト、煙粒子、花粉を含むエアロゾルとの分類分けを行った⁷¹⁾。Raoらは、蛍光ライダー計測結果から、観測時(冬季間)のバイオエアロゾル量を3456-8835 particles m^{-3} と推定した⁷²⁾。大気圏観測で述べた蛍光性エアロゾル観測例も含め、Saitoらの観測以外は全て夜間観測であったことを付記しておく。

昨今ウイルスの健康被害が社会問題になっている中で、非接触・遠隔検出が可能なライダーに寄せる期待は大きい。今回の調査した限りでは蛍光ライダーによるウイルス検出の事例は見つからなかったが、Owoichoらはその可能性について最新の報告書で述べている⁷³⁾。

船舶からの漏洩やタンカー座礁による石油流出は人間の生産活動の影響が海洋汚染という形で顕在化した最たるものである。油類は強い発光特性を示すことから蛍光分光法の利用が進められてきた。既に1974年にはヘリコプタ搭載蛍光ライダーでの油膜実験が行われている⁷⁴⁾。Alaruriは油類の種類判定を行った。YAGレーザと色素レーザを組み合わせた多波長(266 nm, 355 nm, 428 nm, 532 nm)励起に分光器とCCD検出器からなる受信系の組み合わせで、原油と精製油の8種類の油の蛍光スペクトルを観測した。428 nmは蛍光寿命計測に用いられた。31の基礎データから、蛍光スペクトル形状、蛍光強度の励起波長依存性、蛍光強度の経過時間変化(自然環境下での劣化)など、変化の大きい7つの固有値を使うことで油種を5つのグループに分類できた⁷⁵⁾。

日常生活で使用したプラスチックの環境への影響が広がっている。マイクロプラスチックは海洋に限らず大気・雨・土壌、魚類との体内からも見つかっている。Ornikらは、プラスチック破片9種類、海洋生物(骨や貝殻など)7種類、砂と木片(非蛍光物質)の計18種類の試料を採集し、405 nmのLDで励起した蛍光スペクトルを求めた。蛍光波長427 nm, 462 nm, 552 nmの強度比をそれぞれ比較することで、18種類の分類が可能なことを報告した⁷⁶⁾。台所プラスチック用品に含まれるメラミン⁷⁷⁾、プラスチック容器から飲料水や温水中に溶けだしたビスフェノールA⁷⁸⁾また湾岸海水液中のビスフェノールA⁷⁹⁾、淡水や河川水のポリマーとビスフェノールAやフタル酸エステル⁸⁰⁾のレーザ誘起蛍光特性が調べられている。蛍光強度の時間減衰によるプラスチック種別判定の実験が行われている。Monteleoneらは蛍光寿命画像顕微鏡を使って440 nmと470 nm励起で6種類のプラスチックを調査したところ、ペットボトルではABS(acrylonitrile-butadiene-styrene copolymer)が3.9 ns、PPE(polyethylene tere-phthalates)が8.1 ns、PET(polyphenylene oxide)が3.5 nsと蛍光寿命に差が出た⁸¹⁾。光ブリーチング時間はポリマー薄膜の種類によりその差が生じた⁸²⁾。蛍光寿命や減衰時間などはプラスチックリサイクルでの仕分工程への適応が可能だとしている⁸³⁾。

蛍光分光法の農業利用として、抗マラリア薬剤用ハーブ植物の品質判断⁸⁴⁾、農地土壌の有機物質の腐食程度診断法⁸⁵⁾、耕作の有無による土壌成分の差異と自然農耕法への適応例⁸⁶⁾がある。

蛍光ライダーによる遺跡や歴史的建造物の蛍光計測が行われた。Rainmondiらは車載搭載蛍光ライダーでパルマ教会と礼拝堂の外壁面の蛍光スペクトルを計測して、その違いから石材種類や産地、浸食部などに関する情報を得た⁸⁷⁾。lund大学との合同観測では、ローマ・コロッセオ遺跡の外壁面をレーザ掃引し蛍光スペクトルの画像観測を行った。その違いから微生物による浸食部、改修痕などに関する情報を得た⁸⁸⁾。Paroパルマ礼拝堂外壁⁸⁹⁾、聖アンソニアアボット教会内壁のフラスコ画⁹⁰⁾、聖ニコラス教会の内部構造⁹¹⁾の調査などがそれぞれのグループで実施された。修復や保存に置ける貴重な情報が集まったとしている。

5. まとめと将来展開

地球環境の知見を得るための蛍光分光法のライダーやレーザーセンシングへの適応について、地球環境を構成する大気圏・水圏・試験・生物圏・生活圏毎に計測事例を紹介した。それぞれのみに分類するのは困難な事例が殆どであるが、これは循環であることを意味する。また蛍光ライダーとして紹介したものの中には、ミー散乱—ラマン散乱—蛍光という形態のものが多い。実は分光器と CCD やマルチチャンネル光電子増倍管を組み合わせた検出系では、これらの情報が全て検出できる。LIBS 計測も可能である。発光分光ライダー (Mie-Raman-Fluorescence-LIBS) との表現が適切かもしれない。

これらの情報を全て利用した AI 解析による環境診断などは、すぐにでも始められそうである。紹介した蛍光ライダーをそのままの構成で他領域への応用展開できるものも多い。例えば、JAXA では国際宇宙ステーション搭載ミー散乱ライダーによる植生高度計測 (MORI) の計画を進めているが⁹²⁾、クロロフィル蛍光チャンネル (685 nm と 740 nm) の追加により、植物バイオマスに関連した光合成情報が得られる⁹³⁾。

今後は、これまで (特に日本では) ライダー関係者の関りが多くはなかった、人間の活動が環境に及ぼす諸現象の理解と、そこから始まる安全で安心かつ豊かな社会の設計に役に立つ情報の提供が望まれる。例えば、原油産出国ナイジェリアではパイプライン (総計 7000 km) からの原油やガス漏れが長年にわたり続いている⁹⁴⁾。飛翔体搭載蛍光ライダーによる油漏れ検出^{74, 95)}の方法により、パイプラインの補修だけでなく周辺環境保全や日常生活全般にわたる影響への対策に有効な情報が提供できる。人類の存続にかかわるウイルスや病原菌の検出、人間生活基盤を支える農水産品の現場における栽培・検査技術、人類が培ってきた文化財の保存やアーカイブ化など、生活圏で蛍光分光法や蛍光ライダーが活躍できる場は多く残されている。さらに展開を加速させるためには、400 nm 以下の LD 光源開発、スマートフォンを利用した蛍光センサーの利用^{96, 97)}、プラットフォームとしてのドローンの積極的な活用、物質の基礎蛍光データ (EEM など) のデータベース化などが検討項目として挙げられる。

参考文献

- 1) Y. Saito, K. Kobayashi and F. Kobayashi: Laser-induced fluorescence spectrum (LIFS) LIDAR for remote detection of biological substances surrounding the "Livingsphere", The 8th International Symposium on Advanced Environmental Monitoring, Sapporo, Japan, II-EO1, 54-57, June. 29-Jul. 2, 2010.
- 2) S. Allen, D. Allen, V. R. Phoenix, G. L. Roux, P. D. Jiménez, A. Simonneau, S. Binet, and D. Galop: Atmospheric transport and deposition of microplastics in a remote mountain catchment, *Nature Geoscience*, 12, 339-344, April, 2019.
- 3) G. A. Wetherbee, A. K. Baldwin, and J. F. Raville: It is raining plastic, USGS Open-File Report 2019-1048, 2019.
- 4) S. G. Schulman (ed.): *Molecular Luminescence Spectroscopy Methods and Applications; Part 1*, John Wiley & Sons, New York, 1985
- 5) Y. Saito, K. Kameya, A. Ogasawara, T. Kirinaka, S. Utsunomiya, and M. Yabuki: Collection of fluorescence spectrum of aerosol-candidate-substance for fluorescence lidar, ETh4E. 3, OSA Application, Optics and Photonics for Sensing the Environment 2020, Washington, D. C., Jun. 22-26, 2020. ISBN:978-1-943580-78-1
- 6) S. C. Hill, M. W. Mayo, and R. K. Chang: Fluorescence of bacteria, pollens, and naturally occurring airborne particles: Excitation/Emission Spectra, Report on Army Research Laboratory, ARL-TR-4722, 52 pages, 2009.
- 7) Y.-L. Pan: Detection and characterization of biological and other organic-carbon aerosol particles in atmosphere organic-carbon aerosol particles in atmosphere using fluorescence, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 150, 12-35, 2015.
- 8) C. Pöhlker, J. A. Hoffman, and U. Pöschl: Autofluorescence of atmospheric bioaerosols - fluorescent biomolecules and potential interferences, *Atmospheric Measurement Techniques*, 5, 37-71, 2012.
- 9) N. Hudson, A. Baker, and D. Reynolds: Fluorescence analysis of dissolved organic matter in natural, waste and polluted waters-A Review, *River Research and Applications*, 23, 631-649, 2007.
- 10) A. Baker and R. G. M. Spencer: Characterization of dissolved organic matter from source to sea using fluorescence and absorbance spectroscopy, *Science and Total Environment*, 333, 217-232, 2004.
- 11) Z. G. Cerovic, G. Samson, F. Morales, N. Tremblay, and I. Moya: Ultraviolet-fluorescence for plant monitoring: present state and prospects, *Agronomie*, 19, 543-578, 1999.
- 12) V. V. Roshchina: Vital autofluorescence: application to the study of plant living cells, 2012, *International Journal of Spectroscopy*, 14 pages, 2012. doi:10.1155/2012/124672

- 13) Y. Saito, T. Matsubara, T. Koga, F. Kobayashi, T. D. Kawahara, and A. Nomura: Laser-induced fluorescence imaging of plants using a liquid crystal tunable filter and charge coupled device imaging camera, *Review of Scientific Instruments*, 76, 106103, 3 pages, 2005.
- 14) Y. Saito, K. Takano, F. Kobayashi, K. Kobayashi, and H.-D. Park: Development of a UV laser-induced fluorescence lidar for monitoring blue-green algae in Lake Suwa, *Applied Optics*, 53, 7030–7036, 2014.
- 15) N. Sugimoto, Z. Huang, T. Nishizawa, I. Matsui, and B. Tatarov: Fluorescence from atmospheric aerosols observed with a multi-channel lidar spectrometer, *Optics Express*, 20 (19), 20800–20807, 2012.
- 16) M. Sowinska, F. Heisel, J. A. Miehe, M. Lang, H. K. Lichtenhaler, and F. Tomasini: Remote sensing of plants by streak camera lifetime measurements of the chlorophyll *a* emission, *Journal of Plant Physiology*, 148 (5), 638–644, 1996.
- 17) R. M. Measures and M. Bristow: The development of a laser fluoro-sensor for remote environmental probing, *Canadian Aeronautics and Space Journal*, 17, 421–422, 1971.
- 18) 白石浩一, 林 政彦, 齊藤保典, 水谷耕平: 大気エアロゾルの蛍光計測と蛍光物質の同定, 光アライアンス 10月号 13–16, 2018.
- 19) J. Reichardt, R. Leinweber, and A. Schwebe: Fluorescence aerosol and clouds investigations of co-existence, *EPJ Web of Conference (ILRC 28)*, 176, 05010, 4 pages, 2018. <https://doi.org/10.1051/epjconf/201817605010>
- 20) B. Li, S. Chen, Y. Zhang, H. Chen, and P. Guo: Fluorescent aerosol observation in the lower atmosphere with an integrated fluorescence-Mie lidar, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 227, 211–218, 2019.
- 21) J. A. Huffman, A. E. Perring, N. J. Savage, B. Clot, B. Crouzy, F. Tummon, O. Shoshanim, B. Damit, J. Schneider, and V. Sivaprakasam et al. : Real-time sensing of bioaerosols: Review and current perspectives, *Aerosol Science and Technology*, 50 (5), 465–495, 2020.
- 22) J. D. Willey, R. J. Kieber, M. S. Eyman, and G. B. A. Jr: Rainwater dissolved organic carbon: Concentrations and global flux, *Global Biogeochemical Cycles*, 14 (1), 139–148, 2000.
- 23) C. Miller, K. G. Gordon, R. J. Kieber, J. D. Willey, and R. J. Seaton: Chemical characteristics of chromophoric dissolved organic matter in rainwater, *Atmospheric Environment*, 43, 2497–2502, 2009.
- 24) H. Bao, Y. Yi, C. Wang, R. G. M. Spencer, X. Deng, and W. Guo: Dissolved organic matter in coastal rainwater concentration bioavailability and depositional flux to seawater in southeastern China, *Marine Chemistry*, 205, 48–55, 2018.
- 25) L. Feng, Y. An, J. Xu, and S. Kang: Characteristics and sources of dissolved organic matter in a glacier in the northern Tibetan Plateau: Differences between different snow categories, *Annals of Glaciology*, 59, 31–40, 2018.
- 26) F. E. Hoge and R. N. Swift: Airborne simultaneous spectroscopic detection of laser-induced water Raman backscatter and fluorescence from chlorophyll *a* and other naturally occurring pigments, *Applied Optics*, 20 (18), 3197–3205, 1981.
- 27) Z. Duan, Y. Li, J. Wang, G. Zhao, and S. Svanberg: Aquatic environment monitoring using a drone-based fluorosensor, *Applied Physics B*, 125:108, 8 pages, 2019.
- 28) J. Lu, Y. Yuan, Z. Duan, G. Zha, and S. Svanberg: Short-range remote sensing of water quality by a handheld fluorosensor system, *Applied Optics*, 59 (10), C1-C7, 2020.
- 29) 篠野雅彦, 松本 陽, 今里元信, 山野博哉, 小熊宏之: グラスボート搭載イメージング蛍光ライダーによるサンゴ観測, 日本リモートセンシング学会誌, 33 (5), 377–389, 2013.
- 30) M. Sasano, M. Imasato, H. Yamano, and H. Oguma: Development of a regional coral observation method by a fluorescence imaging lidar installed in a towable buoy, *Remote Sensing*, 8 (48), 9 pages, 2016.
- 31) C. H. Ramesh, S. Koushik, T. Shunmugaraj, and M. V. R. Murthy: A rapid in situ fluorescence census for coral reef monitoring, *Regional Studies in Marine Science*, 28, 100575, 7 pages, 2019.
- 32) E. Rehm, F. Dalglish, M. Huot, J. L.-Morales, S. L.-Girard, S. Matteoli, P. Archambault, and M. Piché: Comparing fluorescent and differential absorption LiDAR techniques for detecting algal biomass with applications to Arctic substrates, *Proceedings of SPIE*, 10631, 106310Z-1-15, 2018.
- 33) M. Gaft, R. Reisfeld, G. Panczer, Ph. Blank, and G. Boulon: Laser-induced time-resolved luminescence of minerals, *Spectrochimica Acta Part A*, 54, 2163–2175, 1998.
- 34) J. E. Kenny, J. W. Pepper, A. O. Wright, Y.-M. Chen, S. L. Schwartz, and C. G. Shelton: *Subsurface Contamination Monitoring Using Laser Fluorescence*, K. B-Biddle, C. L. Oubre, C. H. Ward (eds.), CRC Press, Inc. (Boca Raton), 2000.
- 35) Y. V. Fedotov: Experimental studies of laser-induced fluorescence spectra of natural objects on the ground surface, *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering (MIST: Aerospace-III 2020)*, 1047, 012164, 7pages, 2021.
- 36) M. N. Abedin, A. T. Bradley, S. K. Sharma, A. K. Misra, P. G. Lucey, C. P. McKay, S. Ismail, and S. P. Sandford: Mineralogy and astrobiology detection using laser remote sensing instrument, *Applied Optics*, 54 (25), 7598–7611, 2015.
- 37) J. M. D. Silva and A. B. Utkin: Application of laser-induced fluorescence in functional studies of photosynthetic biofilms, *Process*, 6, 227, 15 pages, 2018.
- 38) P. V. Ginjel: Autofluorescence of fossil pollen and spores with special reference to age determination and coalification, *Leidse Geologische Mededelingen*, 40 (1), 261–317, 1967.

- 39) T. G. Kaye, A. R. Faik, M. Pittman, P. C. Sereno, L. D. Martin, D. A. Burnham, E. Gong, X. Xu, and Y. Wang: Laser-stimulated fluorescence in paleontology, *PLOS one* 10 (5), 22 pages, 2015.
- 40) X. Wang, M. Pittman, A. Zheng, T. G. Yaye, A. R. Falk, S. A. Hartman, and X. Xu: Basal paravian functional anatomy illuminated by high-detail body outline, *Nature Communications*, 8:14576, 6 pages, 2017.
- 41) T. G. Kaye and M. Pittman: Fluorescence-based detection of field target using an autonomous unmanned aerial vehicle system, *Methods in Ecology and Evolution*, 11, 890–898, 2020.
- 42) M. Brydegaard and S. Svanberg: Photonic monitoring of atmospheric and aquatic fauna, *Laser & Photonics Reviews*, 1800135, 28 pages, 2018.
- 43) M. Brydegaard, P. Lundin, Z. Guan, A. Runemark, S. Akesson, and S. Svanberg: Feasibility study: Fluorescence lidar for remote bird classification, *Applied Optics*, 49 (24), 4531–4544, 2010.
- 44) P. Lundin, P. Samuelsson, S. Svanberg, A. Runemark, S. Akesson, and M. Brydegaard: Remote nocturnal bird classification by spectroscopy in extended wavelength ranges: *Applied Optics*, 50 (20), 3396–3411, 2011.
- 45) S. Jansson, A. Papayannis, S. Akesson, G. Tsaknakis, and M. Brydegaard: Exploitation of multi-band lidar for the classification of free-flying migratory birds: A pilot study over Athens, Greece, *EPJ Web of Conference (ILRC27)*, 119, 27002, 4 pages, 2016.
- 46) Z. Guan, M. Brydegaard, P. Lundin, M. Wellenreuther, A. Runemark, E. I. Svensson, and S. Svanberg: Insect monitoring with fluorescence lidar techniques: field experiments: *Applied Optics*, 49 (27), 5133–5142, 2010.
- 47) L. Mai, Z. G. Guan, H. J. Zhou, J. L. Z. R. Zhu, J. A. Cheng, C. Lofstedt, S. Svanberg, and G. Somesfalean: Agricultural pest monitoring using fluorescence lidar techniques Feasibility study, *Applied Physics B*, 106, 733–740, 2012.
- 48) M. Brydegaard, A. Merdasa, A. Gebru, H. Jayaweera, and S. Svanberg: Realistic instrumentation platform for active and passive optical remote sensing, *Applied Spectroscopy*, 70 (2), 372–385, 2016.
- 49) H. K. Lichtenthaler (ed.): *Application of Chlorophyll Fluorescence*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Germany, 1988.
- 50) G. C. Papageorgiou and Govindjee (eds.): *Chlorophyll fluorescence a signature of photosynthesis*, Springer, Dordrecht, Germany, 2007.
- 51) 大政謙次: 植物のクロロフィル *a* 蛍光の画像化とリモートセンシングにおける問題点と展望, *日本リモートセンシング学会誌*, 38 (5), 386–400, 2018.
- 52) Z. Malenovsky, K. B. Mishra, F. Zemek, U. Rascher, and L. Nedbal: Scientific and technical challenges in remote sensing of plant canopy reflectance and fluorescence, *Journal of Experimental Botany*, 60 (11), 2987–3004, 2009.
- 53) K. Omasa, K. Shimazaki, I. Aiga, W. Larcher, and M. Onoe: Image analysis of chlorophyll fluorescence transients for diagnosing the photosynthetic system of attached leaves, *Plant Physiology*, 84, 748–752, 1987.
- 54) A. Konishi, A. Eguchi, F. Hosoi, and K. Omasa: 3D monitoring spatio-temporal effects of herbicide on a whole plant using combined range and chlorophyll *a* fluorescence imaging, *Functional Plant Biology*, 36, 874–879, 2009.
- 55) Report for mission selection: FLEX an earth explorer to observe vegetation fluorescence, *ESA SP-1330/2*, June 2015.
- 56) H. Edner, J. Johansson, S. Svanberg, and E. Wallinder: Fluorescence lidar multicolor imaging of vegetation, *Applied Optics*, 33 (13), 2471–2479, 1994.
- 57) J. Johansson, M. Anderson, H. Edner, J. Matson, and S. Svanberg: Remote fluorescence measurements of vegetation spectrally resolved and by multi-color fluorescence imaging, *Journal of Plant Physiology*, 148, 632–637, 1996.
- 58) P. Weibring, T. Johansson, H. Edner, S. Svanberg, B. Sundner, V. Raimondi, G. Cecchi, and L. Pantani: Fluorescence lidar imaging of historical monuments, *Applied Optics*, 40 (33), 6111–6120, 2001.
- 59) Y. Saito, R. Saito, E. Nomura, T. D. Kawahara, A. Nomura, S. Takaragaki, K. Ida, and S. Takeda: Performance check of vegetation fluorescence imaging lidar through in vivo and remote estimation of chlorophyll concentration inside plant leaves, *Optical Review*, 6 (2), 155–159, 1999.
- 60) J. Yang, Y. Cheng, L. Du, W. Gong, S. Shi, J. Sun, and B. Chen: Analyzing the effect of the incidence angle on chlorophyll fluorescence intensity based on laser-induced fluorescence lidar, *Optics Express*, 27, 12541–12550, 2019.
- 61) F. E. Hoge, R. N. Swift, and J. K. Yungel: Feasibility of airborne detection of laser-induced fluorescence emissions from green terrestrial plants, *Applied Optics*, 22 (19), 2991–3000, 1983.
- 62) L. Duysens and H. Sweers: Mechanism of the two photochemical reactions in algae as studied by means of fluorescence. In: *Studies on microalgae and photosynthetic bacteria*, Special issue of *Plant and Cell Physiology*, Japanese Society of Plant Physiologists, University of Tokyo Press, 353–372, 1963.
- 63) Y. Goulas, L. Camenen, G. Guyot, Z. Cerovic, J.-M. Briantais, G. Schmuck, and I. Moya: Measurement of Laser-induced fluorescence decay and reflectance of plant canopies, *Remote Sensing Reviews*, 15, 305–322, 1997.
- 64) 齊藤保典, 大政謙次: レーザー誘起蛍光ライダーによる植物蛍光のスペクトルおよび寿命のリモートセンシング, *日本リモートセンシング学会誌*, 38 (5), 401–409, 2018.
- 65) I. Moya, M. Hodges, and J. C. Barbet: Modification of room temperature picoseconds chlorophyll fluorescence kinetics in

- green algae by photosystem II trap closer, *FEBS Letter*, 198 (2), 256–262, 1986.
- 66) S. C. Hill, M. W. Mayo, and R. K. Chang: Fluorescence of bacteria, pollens, and naturally occurring airborne laser based stand-off detection of biological agents. RTO Technical Report TR-SET-098, 81 pages, 2010. ISBN 978–92–837–0086–9
 - 67) S. Buteau, J.-R. Simard, P. Lahaie, G. Roy, and P. Mathieu: Joint biological standoff detection system increment II: Field demonstration SINBAHD performs, Technical Memorandum TM 2006–140, Defence R&D Canada- Valcartier, 79 pages, 2007.
 - 68) X. Li, S. Huang and Z. Sun: Technology and equipment development on laser-induced-fluorescence based remote and field detection of biological aerosols, *Journal of Bioafety and Biosecurity*, 1, 113–122, 2019.
 - 69) Y. Saito, K. Ichihara, K. Morishita, K. Uchiyama, F. Kobayashi, and T. Tomida: Remote detection of the fluorescence spectrum lidar of natural pollens floating in the atmosphere using a laser-induced-fluorescence spectrum (LIFS) lidar, *Remote Sensing*, 10, 1533, 12 pages, 2018.
 - 70) S. C. Richardson, M. Mytilinaios, R. Foskinis, C. Kyrou, A. Papayannis, I. Pyri, E. Giannoutsou, and I. D. S. Adamakis: Bioaerosol detection over Athens, Greece using the laser induced fluorescence technique, *Science of the Total Environment*, 696, 133906, 15 pages, 2019.
 - 71) I. Veselovskii, Q. Hu, P. Goloub, T. Podvin, M. Choel, N. Vizez, and M. Korensky: Mie-Raman-Fluorescence lidar observations of aerosols during pollen season in the north of France, *Atmospheric Measurement Technique*, 36 pages, 2021. <https://doi.org/10.5194/atm-2020-80>
 - 72) Z. Rao, T. He, D. Hua, Y. Wang, X. Wang, Y. Chen, and J. Le: Preliminary measurements of fluorescence aerosol number concentrations using a laser-induced fluorescence lidar, *Applied Optics*, 57 (25), 7211–7215, 2018.
 - 73) O. Owoicho, C. O. Olwal, and O. Quaye: Potential of laser-induced fluorescence-light detection and ranging future stand-off virus surveillance, *Microbial Biotechnology*, 14 (1), 126–135, 2021.
 - 74) J. F. Fantasia and H. C. Ingrao: Development of experimental airborne laser remote sensing system for the detection and classification of oil spills, *Proceedings of the 9th International Symposium on Remote Sensing of the Environment*, Paper 10700–1-X, 1711–1745, Apr. 15–19, 1974.
 - 75) S. D. Alaruri: Multiwavelength laser induced fluorescence (LIF) Lidar system for remote detection and identification of oil spills. *Optik*, 181, 239–245, 2019.
 - 76) J. Ornik, S. Sommer, S. Gies, M. Weber, C. Lott, J. C. Balzer, and M. Koch: Could photoluminescence spectroscopy be an alternative technique for the detection of microplastics? First experiments using a 405 nm laser for excitation, *Applied Physics B*, 126:15, 7 pages, 2020.
 - 77) V. D. L. M. Finete, M. M. Gouvea, F. F. S. C. Marques, and A. D. P. Netto: Characterization of newfound natural luminescent properties of melamine, and development and validation of a method of high performance liquid chromatography with fluorescence detection for its determination on kitchen plastic ware, *Talanta*, 123, 128–134, 2014.
 - 78) V. Sivaprakasam and D. K. Killinger: Tunable ultraviolet laser induced fluorescence detection of trace plastics and dissolved organic compounds in water, *Applied Optics*, Vol. 42, pp. 6739–6746, 2003.
 - 79) V. Sivaprakasam, R. F. Shannon, C. Luo, P. G. Coble, J. R. Boehme, and D. K. Killinger: Development and initial calibration of a portable laser-induced fluorescence system used for in situ measurements of trace plastics and dissolved organic compounds in seawater and the Gulf of Mexico, *Applied Optics*, 42 (33), 6747–6756, 2003.
 - 80) Y. K. Lee, K. R. Murphy, and J. Hur: Fluorescence signatures of dissolved organic matter leached from microplastics: Polymers and additives, *Environmental Science and Technology*, 54 (19), 11905–11914, 2020.
 - 81) A. Monteleone, F. Wenzel, H. Langhals, and D. Dietrich: New application for the identification and differentiation of microplastics based on fluorescence lifetime imaging microscopy (FLIM), *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 9, 104769, 9 pages, 2021.
 - 82) K. R. Hawkins and P. Yager: Nonlinear decrease of background fluorescence in polymer thin-films - a survey of materials and how they can complicate fluorescence detection in μ TAS, *LAB on a chip*, 3, 248–252, 2003.
 - 83) H. Langhals, D. Zgela, and T. Schlucker: High performance recycling of polymers by means of their fluorescence lifetimes, *Green and Sustainable Chemistry*, 4 (3), 144–150, 2014.
 - 84) C. L. Y. Amuah, M. J. Eghan, B. Anderson, P. O.-W. Adueming, J. O.-Ansah, and P. K. B.-Bassuah: Laser-induced fluorescence combined with multivariate techniques identifies the geographical origin of antimalarial herbal plants, *Journal of the Optical Society of America A*, 37 (11), C103–C110, 2020.
 - 85) G. S. Senesi, L. M.-Neto, P. R. V.-Boas, G. Nicolodelli, and D. M. B. P. Milori: Laser-based spectroscopic methods to evaluate the humification degree of soil organic matter in whole soils: a review, *Journal of Soils Sediments*, 18, 1292–1302, 2018.
 - 86) M. G.-Perez, D. M. B. P. Milori, L. A. Colnago, L. M.-Neto, and W. J. Melo: Laser-induced fluorescence spectroscopic study of organic matter in a Brazilian Oxisol under different tillage systems, *Geoderma*, 138, 20–24, 2007.
 - 87) V. Raimondi, G. Cecchi, L. Pantani, and R. Chiari: Fluorescence lidar monitoring of historic buildings, *Applied Optics*, 37 (6), 1089–1098, 1998.

- 88) L. Palombi, D. Lognoli, V. Raimondi, G. Cecchi, J. Hallsrom, K. Barup, C. Conti, R. Gronlund, A. Johansson, and S. Svanberg: Hyperspectral fluorescence lidar imaging at the Colosseum, Rome: Elucidating past conservation interventions, *Optics Express*, 16 (10), 6794–6808, 2008.
- 89) D. Lognoli, G. Cecchi, I. Mochi, L. Pantani, V. Raimondi, R. Chiari, T. Johansson, P. Weibring, H. Edner, and S. Svanberg: Fluorescence lidar imaging of the cathedral and baptistry of Parma, *Applied Physics B*, 76, 457–465, 2003.
- 90) V. Raimondi, L. Palombi, A. Morelli, M. Chimenti, S. Penoni, U. Drecks, A. Andreotti, G. Bartolozzi, M. Bini, and I. Bonaduce et al. : An integrated multi-medial approach to cultural heritage conservation and documentation: from remotely-sensed LIDAR imaging to historical archive data, *Proceedings of SPIE*, 9644, 9644C, 9 pages, 2015.
- 91) N. Proietti, P. Calicchia, F. Colao, S. D. Simone, V. D. Tullio, L. Luvidi, F. Prestileo, M. Romani, and A. Tati: Moisturer damage in ancient masonry: A multidisciplinary approach for in situ diagnostics, *Minerals*, 11 (4), 406, 23, 2021.
- 92) 浅井和弘, 境澤大亮, 水谷耕平, 西澤智明: 宇宙から植生を観測するライダーミッションMORI, *レーザセンシング学会誌*, 1 (2), 45–54, 2020.
- 93) Y. Saito and T. Tomida: Vegetation LIFS (Laser-Induced Fluorescence Lidar Spectrum) lidar for plant eco-physiological information sensing, *International Workshop on Vegetation from Space*, P1, 22, Kyoto, January 6–7, 2016.
- 94) I. C. Mba, E. I. Mba, J. E. Ogbuabor, and W. O. Arazu: Cases and terrain of oil spillge in Niger delta region of Nigeria: The analysis of variance approach, *Internal Journal of Energy Economics and Policy*, 9 (2), 283–287, 2019.
- 95) Y. V. Fadotov: Experimental results of oil pollution detection on soil surface at 266 nm and 355 nm fluorescence excitation wavelengths, *Proceedings of SPIE*, 11208, 112083J, 6 pages, 2019.
- 96) Y. Saito and K. Kobayashi: Proposal of optical farming: Development of several optical sensing instruments for agricultural use, *Proceedings of SPIE*, 8881, 88109, 6 pages, 2013.
- 97) Q. Wei and A. Ozcan: Smartphone Fluorescence Microscopy allows cost-effective molecular diagnostics, *Biophotonics*, Jul/Aug, 28–32, 2017.



齊藤保典

1980年東北大学大学院前期課程電子工学専攻修了。1990年東北大学にて学位取得（工学博士）。信州大学工学部助手，助教授を経て2004年より信州大学学術研究院工学系（電子情報システム工学科）教授。2021年3月定年退職，4月名誉教授。この間，アメリカ南フロリダ大学，スウェーデンルンド工科大学，フランスLURE，スイス連邦EPFLの客員研究員。蛍光分光型ライダーの開発と地球環境計測への応用についての研究に従事。2014年5月農業情報学会論文賞（共著），2020年日本リモートセンシング学会論文賞（共著）。所属学会：米国光学会（OSA），応用物理学会，レーザー学会，農業情報学会。