

令和 6 年 6 月 25 日現在

機関番号：82505

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2023

課題番号：19K20687

研究課題名（和文）蛍光寿命イメージングを用いた潜在指紋の可視化

研究課題名（英文）Fluorescence Lifetime Imaging of Latent Fingerprints

研究代表者

角田 英俊（Kakuda, Hidetoshi）

科学警察研究所・法科学第二部・主任研究官

研究者番号：80773936

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,000,000円

研究成果の概要（和文）：光を用いた指紋の非破壊検出において、従来法では可視化できなかった指紋を、蛍光寿命イメージングにより可視化することに成功した。指紋が付着した試料を光励起した際、物体が発する蛍光強度が、指紋の蛍光強度より約4桁大きいために、従来法である波長フィルタや時間分解分光法を用いた指紋可視化が困難であった試料から、蛍光寿命イメージングにより指紋を可視化することができた。光励起には可視域のナノ秒パルスレーザを用いた。このように指紋に比べて背景の蛍光強度が著しく大きな場合に光を用いて指紋可視化に至ったことは、蛍光強度の観点からは説明できず、指紋と背景との何らかの相互作用による可能性が考えられた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光を用いた指紋の非破壊検出において、従来法では可視化できなかった指紋を、蛍光寿命イメージングにより可視化することに成功した。光を用いた指紋の非破壊検出では、物体に付着した目に見えない指紋（潜在指紋）を光励起し、指紋が放出する蛍光を撮影することで、指紋を非接触に可視化する。従来の波長フィルタや時間分解分光法を用いて潜在指紋の可視化が困難な場合に、蛍光寿命イメージングを用いることでその指紋を可視化できる場合があることを示した。このことは、蛍光寿命イメージングが潜在指紋の可視化手法の新たな選択肢になりうることを示すものであり、法科学分野における指紋の非破壊可視化手法の拡大につながるものと考えられる。

研究成果の概要（英文）：Latent fingerprints were visualized by fluorescence lifetime imaging (FLIM). It was demonstrated that from a background paper whose fluorescence intensity was about four orders of magnitude larger than that of fingerprints, latent fingerprints were successfully visualized by FLIM. These fingerprints were not visualized by conventional methods such as using wavelength filters or time-resolved spectroscopy. The photoexcitation source was a nanosecond pulsed-laser with visible region. The reason for visualization of the latent fingerprints by FLIM was not given from a point of view of the fluorescence intensity. It was pointed out as a possibility that a certain interaction between the fingerprint and the background paper caused a detectable difference in fluorescence lifetime between them.

研究分野：生体医工学

キーワード：光を用いた指紋の非破壊検出 紙上の潜在指紋の蛍光寿命イメージング

1. 研究開始当初の背景

指紋は万人不同かつ終生不変であり、指紋と個人とを一对一に結び付けることが可能であるため、客観的証拠の重要性が増す科学捜査において従来にも増してその重要性が高まっている。以前より粉末、液体、気体を用いた指紋採取が行われているが、指紋採取時に指紋を破壊してしまうことがあり、指紋を非接触・非破壊に採取することが求められている。

この要請に応える手法として、指紋に光を照射した際に指紋から放出される蛍光を観測する手法が用いられている。指紋が付着した背景物質の蛍光が指紋の蛍光より強い場合でも、両者の蛍光寿命の差を利用して、指紋の蛍光のみが存在する時間帯に指紋蛍光を撮影する時間分解分光法が存在するが、これは背景の蛍光寿命が指紋の蛍光寿命より短い場合にのみ有効である(図1、図2)。背景となりうる40種類以上の物質の蛍光寿命を調べた報告①によれば、その半数以上の物質の蛍光寿命は指紋の蛍光寿命よりも長い。このような資料では、指紋の蛍光は常に背景の蛍光と共存することになり(図3)、指紋の蛍光のみが存在する時間帯を利用する従来手法による潜在指紋の顕在化が難しい。

従来手法の適用が難しい場合であっても、光を用いて指紋を非接触・非破壊に顕在化することが必要である。

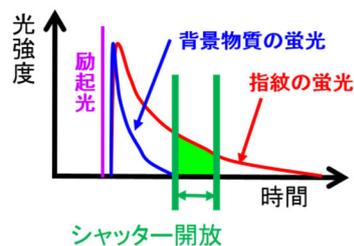
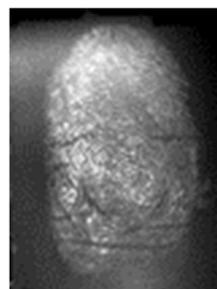


図1 時間分解分光法による指紋撮影



2. 研究の目的

本研究の目的は、指紋が付着した領域と指紋が付着していない領域の蛍光寿命の僅かな差を利用して、蛍光寿命イメージングを用いて潜在指紋を顕在化することである。指紋の蛍光と背景の蛍光が混在する時間帯における蛍光寿命と、背景の蛍光のみが存在する時間帯における蛍光寿命は、指紋の蛍光の存在およびその時間変化を反映した差異を有すると考えられ(図4)、この差異を画像表示することにより潜在指紋の顕在化を目指す。

図2 撮影された指紋画像

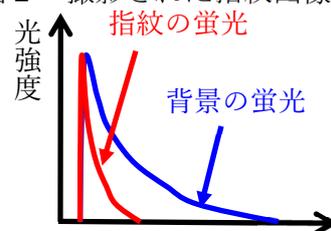


図3 背景の蛍光寿命の方が長い場合の蛍光の時間変化

3. 研究の方法

(1) 紙など指紋が付着した試料を波長可変ナノ秒パルスレーザで光励起し、イメージング分光器及び高速ゲート付きICCDカメラによりゲート幅2 nsで撮影した。カメラの解像度は1024×1024であり、蛍光撮影はレーザパルスからの遅延時間6 nsから16 nsまでを1 ns間隔で行い、各遅延時間で900回積算した。可視各画素の蛍光寿命 τ を、蛍光強度 $I = a \times \exp(-t/\tau)$ (t は時間、 a は正数)の自然対数 $\ln(I) = -t/\tau + \ln(a)$ に対する線形フィッティングにより求め蛍光寿命イメージを構築した。

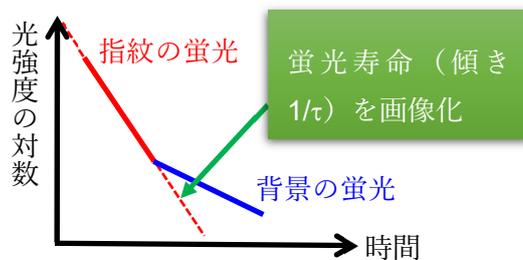


図4 図3における、指紋と背景の蛍光の和の時間変化(片対数表示)

(2) (1)では、試料の蛍光はICCDカメラの波長感度で積分されてCCDに蓄積されるため、試料各部位の蛍光スペクトルを取得することはできない。試料各部位の蛍光スペクトル測定のため、試料の蛍光をスリットに通した後で分光し、スリット長さ方向の空間一次元、波長分散方向の空間一次元の合計二次元に広がった光をICCDカメラで受光した。試料の線状領域のこの蛍光スペクトル測定を試料全体で行うため、図5のように試料を電動ステージ上に設置し、試料をスリットの幅方向にラインスキャンを行える機構を構築した。

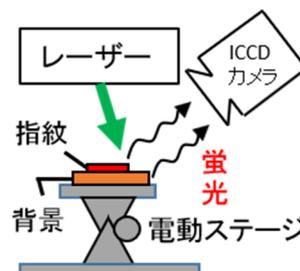


図5 測定系模式図

4. 研究成果

(1) 従来法では可視化困難であった潜在指紋を、蛍光寿命イメージングにより可視化することに成功した(②)。潜在指紋可視化に成功した条件は、桃色の紙上の潜在指紋を波長532 nmで光励起したとき、及び緑色の紙上の潜在指紋を波長450 nmで光励起した時であり、光励起に用いた波長可変ナノ秒パルスレーザのパルスエネルギーはいずれも3-4 mJ、パルス幅は約5 nsであった。

光励起に用いた波長可変ナノ秒パルスレーザのパルスエネルギーはいずれも3-4 mJ、パルス幅は約5 nsであった。

これらの試料の共通点は、指紋が付着した紙（背景）の蛍光強度が、スライドガラス上で指紋単独で測定した指紋の蛍光強度に比べて4桁以上大きいことであった。また、指紋と背景の蛍光スペクトル波長域はほぼ重なっており、波長フィルタを用いて指紋の蛍光のみを測定することは困難であった。蛍光寿命の観点からは、指紋の蛍光寿命は背景のそれより約1-3 ns長かった（指紋が約4-5 ns、背景が約2-4 ns）ものの、およそ4桁の蛍光寿命差を逆転するためには長い遅延時間が必要であり、指紋の蛍光強度が背景の蛍光強度と競合するオーダーまで背景蛍光が減衰する頃には、両者の蛍光強度はICCDカメラの検出下限を下回り、従来の時間分解分光法を用いても指紋可視化は困難な試料であった。

蛍光寿命イメージングによる上記の潜在指紋可視化結果のうち、桃色の紙上の潜在指紋に関する同種の可視化結果(③)を図6から図8に示す。一般的な可視デジタルカメラによる撮影(図6)や従来の時間分解分光法による撮影(図7)では可視化できなかった指紋が、蛍光寿命イメージングにより可視化された(図8)。指紋単独で測定した蛍光寿命は、背景の蛍光寿命より長かったにもかかわらず、図8の蛍光寿命イメージ上では指紋が暗く表示されており、背景の蛍光寿命よりも短くなっていた。指紋が背景に付着することで指紋の蛍光寿命が変化し、蛍光寿命イメージングにより可視化できるだけの蛍光寿命差が背景との間に生じたことは、両者の大きな蛍光強度差からは説明できず、指紋と背景との何らかの相互作用による可能性が考えられた。また、これまでに確認した範囲では、背景の蛍光強度が指紋より4桁大きい場合は蛍光寿命イメージングによる潜在指紋可視化例が得られている一方、2~3桁大きい場合は可視化に至っておらず、背景の蛍光強度が大きい方が、蛍光寿命イメージングを用いて潜在指紋を可視化しやすい可能性がある。

(2) 試料の線状領域の蛍光スペクトル測定を行い、電動ステージによるラインスキャンで試料全体の蛍光スペクトルを行うシステムを構築した。スライドガラス上の指紋について、試料の各部位の蛍光スペクトル測定を行えることを確認した。(1)において潜在指紋が可視化された原因を調べるには蛍光スペクトルを指紋付着部位と非付着部位で比較する必要があると考えており、引き続きこのシステムを、科研費若手研究「蛍光寿命イメージングによる潜在指紋可視化メカニズムの解明(23K13527)」において活用していく。なお、当初はフェムト秒レーザーを活用する予定であったが、新型コロナウイルス感染症拡大による光学結晶の納期遅延等により光学系整備に時間を要したこと、(1)でナノ秒パルスレーザーを用いた蛍光寿命イメージングによる指紋可視化成功例が得られたこと等により、ナノ秒パルスレーザーを用いて本研究を遂行した。

研究成果の総括として、従来の波長フィルタや時間分解分光法を用いて潜在指紋の可視化が困難な場合に、蛍光寿命イメージングを用いることでその指紋を可視化できる場合があることを示した。このことは、蛍光寿命イメージングが潜在指紋の可視化手法の新たな選択肢になりうることを示すものであり、法科学分野における指紋の非破壊可視化手法の拡大につながるものと考えられる。

<引用文献>

- ① 秋葉ら, 科学警察研究所報告, **63**, 2, p. 33-38, 2015.
- ② Kakuda Hidetoshi, Akiba Norimitsu, Hibino Kazuhito, Tsuchiya Ken'ichi, Tanabe Kosuke, Shibasaki Kazunari, Journal of Forensic Sci. **69**, 2, p. 669-677, 2024.
- ③ 角田ら, 2023年光化学討論会予稿集, 3P60, 2023.

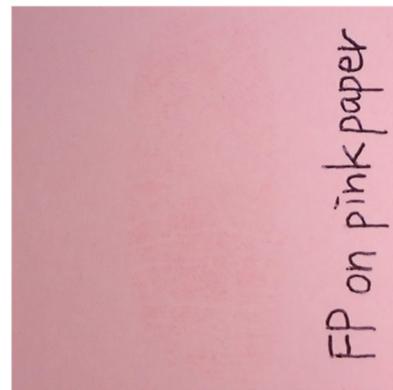


図6 桃色紙上の潜在指紋(③)



図7 従来法で図5の試料を撮影して得られた蛍光画像。遅延時間 10 ns、ゲート幅 10 μ s (③)

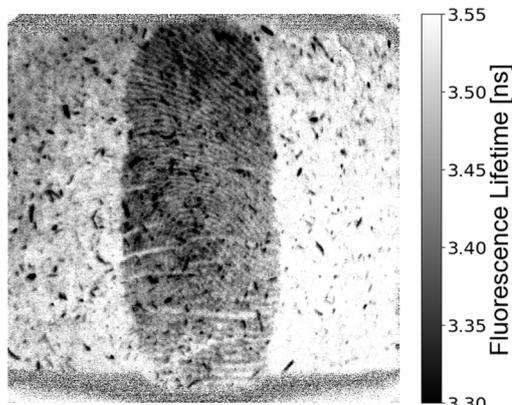


図8 遅延時間 6-16 ns で 1 ns 間隔で撮影した蛍光画像から構築された潜在指紋の指紋の蛍光寿命イメージ(③)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

| | |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名 Kakuda Hidetoshi, Akiba Norimitsu, Hibino Kazuhito, Tsuchiya Ken'ichi, Tanabe Kosuke, Shibasaki Kazunari | 4. 巻 69 |
| 2. 論文標題 Visualization of latent fingerprints using fluorescence lifetime imaging on paper emitting strong fluorescence | 5. 発行年 2024年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Forensic Sciences | 6. 最初と最後の頁 669 ~ 677 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1111/1556-4029.15461 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件／うち国際学会 2件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 Hidetoshi Kakuda, Norimitsu Akiba, Kazuhito Hibino, Ken'ichi Tsuchiya, Kosuke Tanabe, Kazunari Shibasaki |
| 2. 発表標題 A development of fluorescence lifetime imaging (FLIM) of latent fingerprints with spectral information |
| 3. 学会等名 The 23rd Triennial Meeting of the International Association of Forensic Sciences (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 角田英俊、秋葉教充、土屋兼一、田辺鴻典 |
| 2. 発表標題 ナノ秒パルスレーザを用いた潜在指紋の蛍光寿命イメージング |
| 3. 学会等名 2023年光化学討論会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 角田英俊、秋葉教充、日比野和人、土屋兼一、田辺鴻典、柴崎一成 |
| 2. 発表標題 潜在指紋の蛍光寿命イメージングのフィッティング法の検討 |
| 3. 学会等名 日本法科学技術学会第29回学術集会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 角田英俊, 秋葉教充, 日比野和人, 土屋兼一, 田辺鴻典 |
| 2. 発表標題 532 nmパルスレーザを用いた潜在指紋の蛍光寿命イメージングの検討 |
| 3. 学会等名 2022年 第83回 応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 角田英俊, 秋葉教充, 日比野和人, 土屋兼一, 田辺鴻典, 柴崎一成 |
| 2. 発表標題 潜在指紋の蛍光寿命イメージングの初期検討 [第三報] ~ 隆線と谷の蛍光寿命差の可視化及び定量化 ~ |
| 3. 学会等名 日本法科学技術学会 第28回学術集会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 角田英俊, 秋葉教充, 日比野和人, 田辺鴻典, 柴崎一成, 土屋兼一 |
| 2. 発表標題 潜在指紋の蛍光寿命イメージングの初期検討 [第二報] ~ 紫外から可視域の励起波長に対する指紋の蛍光寿命の見積 ~ |
| 3. 学会等名 日本法科学技術学会第27回学術集会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 角田英俊, 秋葉教充, 日比野和人, 田辺鴻典, 柴崎一成, 土屋兼一 |
| 2. 発表標題 指紋付着背景物質の蛍光寿命測定 |
| 3. 学会等名 2021年度日本分光学会年次講演会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Hidetoshi Kakuda, Norimitsu Akiba, Kazuhito Hibino, Kazunari Shibasaki, Ken'ichi Tsuchiya, Kosuke Tanabe |
| 2. 発表標題 Fluorescence Lifetime Imaging (FLIM) of Latent Fingerprints on Paper Emitting Strong Fluorescence at Excitation by 532 nm Pulsed Laser |
| 3. 学会等名 74th Annual AAFS Scientific Conference (*AAFS: American Academy of Forensic Sciences) (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 角田英俊、秋葉教充、田辺鴻典、柴崎一成、土屋兼一 |
| 2. 発表標題 蛍光寿命イメージングを用いた潜在指掌紋の顕在化の初期検討 |
| 3. 学会等名 日本法科学技術学会第26回学術集会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 角田英俊、秋葉教充、土屋兼一、田辺鴻典 |
| 2. 発表標題 波長532nmのナノ秒パルスレーザーを用いた時間分解分光法による潜在指紋の蛍光特性の測定 |
| 3. 学会等名 日本法科学技術学会 第25回学術集会 (法科学技術, 24, 別冊号, 106, 2019.) |
| 4. 発表年 2019年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
| | | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|