

捜査支援スペクトルイメージング装置の開発

実施予定期間：平成 23 年度～平成 27 年度

研究代表者：宗田 孝之

(早稲田大学理工学術院 教授)

得られたデータは、警察無線等の他、セキュリティーが保証された通信手段によって車両を介して警察本部に送信でき、直ちに有効な資料として捜査に反映できる。

I. 概要

現場に残されたヒト由来成分、すなわち指掌紋や体液等に含まれる脂肪やタンパク質（アミノ酸）を非破壊・非接触で多角的に分析でき、導入済み機器とのデータ互換性をもつ装置であり、かつ現場への可搬性に優れた装置を開発し、実用化する。目的分子を背景から顕在化させて検出するため、目的分子特有の情報を有する光の反射、散乱、燐光、蛍光スペクトルを利用する。計測時間短縮のため、ハイパースペクトルイメージング(HSI)技術を応用する。計測対象分子が微量であっても背景から顕在化し S/N 比良くそのスペクトルを検出するためにコヒーレント分光法（CARS）法や時間分解蛍光分光法（TRPL）法を利用することも目指し、装置実用化に必要な要素技術の研究に挑戦する。

1. 目標

本プロジェクトが提案・開発する装置の目的は、様々な犯罪、事故の現場において、被疑者の特定に繋がる現場鑑識資料を非接触で顕在化させることである。裁判員制度の発足に伴い、人間の目では確認できない証拠物の付着状況や形を画像によって分かり易く表現できる意味合いは大きく、立証上極めて有効な手段と考えられる。

装置概要は、物体上に印象されたヒト由来成分（皮脂、汗、血液などの成分）などの潜在的資料に対し、分光学的な観点で網羅的に検知し、正確に二次元情報として展開し、その場において等倍印画できるというものである。分光学的手法を用いることにより、非接触・非破壊で検出できるとともに、分子レベルの特徴を捉えることができる。

運用方法として、車両に搭載したままの状態を想定し、犯罪現場等に派遣した車両自体を検知場所（モバイルラボ）とする活用方法を提案する。この方式は、手狭な犯罪現場等に、装置とともに作業スペースを提供することができるため、最も理想的な運用方法と考えられる。

その他、検知に必要な部分を車両から降ろすことによって、犯罪現場や警察施設などを検知場所として運用できるなど、その時々ケース毎に最も適した運用を可能とする。システムの検知部分には、可搬性を持たせ、2人で積み卸し可能である。また、システム全体の分解、組立て、セットアップが容易な構造とする。

2. 技術的内容

指紋などの付着物を二次元画像として非接触、非破壊で検出する方法および装置の開発においての大きな課題は、a. ヒト由来の分泌物の同定方法、b. 付着物が微量で、背景に比べ信号が非常に弱い場合の S/N 比向上方法、c. DNA を破壊しないこと、d. 検出データの二次元画像化方法、および e. 装置の小型化であると考えられる。

エンドポイントは、現場に残されたヒト由来成分の内、脂肪とタンパク質（アミノ酸）の精密計測である。脂肪については 0.93, 1.21 μm 付近の特徴的吸収または 3000 cm^{-1} 近傍と不飽和脂肪酸起因の 1660 cm^{-1} 、カルボニル基起因 1700-1800 cm^{-1} のラマンシグナルなど、タンパク質のうちヘモグロビンについては 500-700nm における特徴的吸収、それ以外のタンパク質については紫外域（350nm）励起時の 380-780nm 域における発光（その蛍光寿命は 2-4ns オーダー）等が特徴である。

それらを精密に計測するために開発するシステムは、以下のコンポーネントを組み合わせて構成する。基幹となる部分は、早稲田大学が研究実績を持つ HSI コンポーネントである。短い計測時間が特徴のそのスペクトルイメージングは、現場における全体的な検索に威力を発揮すると期待される。このコンポーネントの弱点は、印象された分子の体積が少ないと S/N 比が悪化することである。これを克服するためには、印象された分子と背景とを分離することが必要であるので、TRPL コンポーネントを設けることとする。この技術、特に背景との分離技術に関しては、科学警察研究所が実績を持っている。フェムト秒(fs)レーザーを用いる 2光子励起による fsTRPL にも挑戦する。検出物質がごく微量である場合も想定する必要がある。この場合、検出光をコヒーレント光とすることで、さらなる S/N 比と空間分解能の向上を目指す。この目的で、CARS コンポーネントの導入を視野に入れている。この分光法の応用技術開発には JFE テクノリサーチが挑戦する。

上述の 3つのコンポーネントで計測できるイメージは、お互いに相補的となると考えられるので、技術開発期間を通じて収集するデータをもとに、現場の各種状況下でどのコンポーネントが最も威力を発揮するかを見極め、装置の使用者の混乱が起きないように、装置の操作マニュアルだけでなく適用範囲マニュアルを作成する。また、装置の操作性についても、現場の意見を反映して改良を加える予定

である。

いずれのコンポーネントにおいても、励起波長を 310nm よりも長波長領域に設定することにより、残留 DNA を破壊することなく指掌紋等を検出可能であると考えられる。

収集したスペクトルデータには分子種や計測環境に応じた解析が施され、二次元画像として再構築し形状を明らかにする。それらデータは、三次元測定装置によって得られた形状情報を基に、演算によって歪んだ形状を補正し、正確に二次元展開された等倍画像を得ることとする。

装置の小型化についての要素技術開発は重要である。HSI コンポーネントの小型化は、比較的短時間で目途をたてる。この延長線上で静的な蛍光分光法については装置小型化が可能となる。fsTRPL および CARS 関係ではレーザーによる励起光源回りの光学系の小型化、照射位置制御方法の最適化、測定装置運搬などに耐える実用・小型化対応技術の開発が課題となる。

3. 技術開発期間終了時の目標

ヒト由来分泌物によって印象された痕跡を、非破壊・非接触かつ状況に応じて成分特定を容易にするであろう各種分光学的手法の組み合わせにより、精度よく検出する装置を開発するにあたり、マイルストーンを以下のように設定する。

脂質とタンパク質をそれらに特徴的な静的な吸収と発光を利用して検出することを目指す HSI コンポーネント部分については、計測性能と既存システムとのデータ互換性も含めた技術水準を小型で可搬性のあるモバイルラボ用実証機の域に到達させる。

目標スペック

- a. タンパク質と脂質検出に資する可視・近赤外域 HSI コンポーネント

視野：30mm 角(30mm×30mm)相当、検出波長範囲：380-1000nm、波長分解能：2nm、計測時間：1 視野あたり 10-20 秒、光源：白色ハロゲンランプもしくは単色 ($\lambda_{ex}=350nm$) 光源、検出器：30fps 高感度モノクロ EMCCD カメラ

- b. 脂質検出に資する近赤外域専用 HSI コンポーネント

視野：30mm 角(30mm×30mm 相当、検出波長範囲：950-1700nm、波長分解能：5nm、計測時間：1 視野あたり 10-20 秒、光源：黒体輻射光源、検出器：30fps 高感度 InGaAs-NIR CCD カメラ

微量な試料を背景から分離顕在化させ検出精度向上を

目指す fsTRPL と CARS コンポーネント部分については、現場において認められるであろう現実的な量の試料からでも S/N 比の良いシグナル検出が可能であることを証明し、画像化および小型・可搬性へ向けた見通しを明らかにする。

目標スペック

- c. 微量タンパク質等検出に資する 2 光子励起 fsTRPL コンポーネント

光源： $\lambda_{ex}=700nm$ 、パルス幅 100-200fs、繰り返し周波数 80-90MHz の超短パルスレーザー、視野：30mm 角(30mm×30mm、検出波長範囲：380-780nm、波長分解能：2nm、検出器：ゲート機能付き ICCD カメラ：時間分解能：1ns

- d. 微量脂質等検出に資する CARS コンポーネント

光源： $\lambda_{ex}=800nm$ 、パルス幅 130fs、繰り返し周波数 80-90MHz の超短パルスレーザー、視野：30mm 角(30mm×30mm、検出波長範囲：500-800nm、波長分解能：0.4nm、検出器：EMCCD カメラ

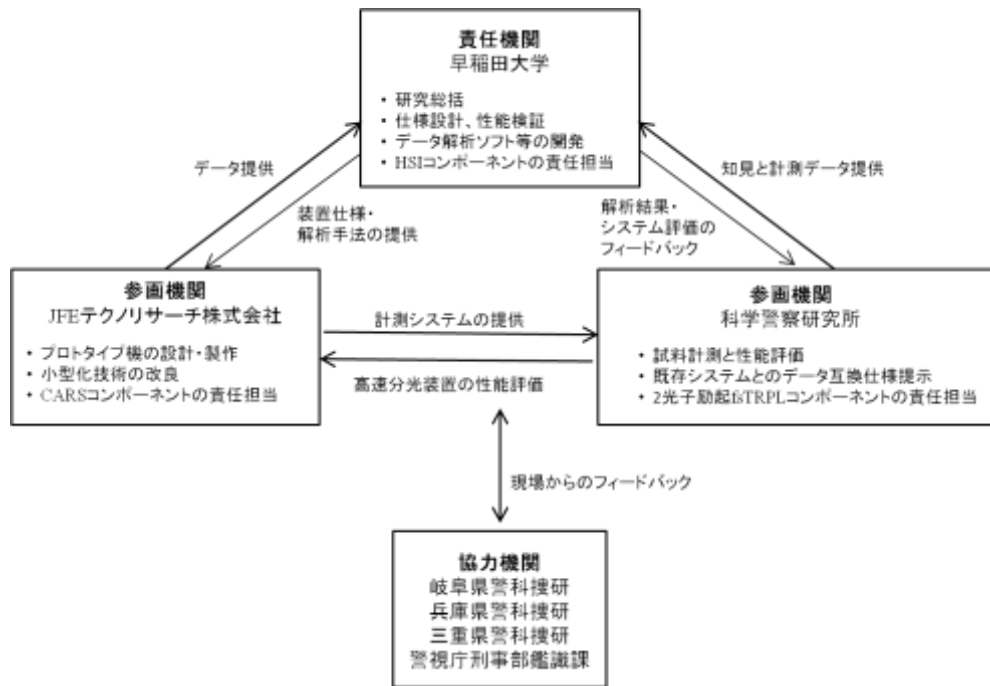
4. 実証期間終了時の目標

実証プロトタイプ機の光源や光学系を変更し、小型で可搬性のある実用実証機を製作し、実現場を想定した試料を用いた性能の実証試験を行った後、通信機能を持たせた車両に搭載してモバイルラボを製作する。その性能評価・検討を行い、既存の指掌紋自動識別システムとの整合性を確認し、市場参入を目指す実用機とする。

5. 実施体制

本システムの開発においては、基本的に、早稲田大学が仕様設計と評価を担当し JFE テクノリサーチがシステムを製作する。鑑識現場からのシステムの要求仕様と性能評価並びにその現場における性能評価を科学警察研究所とその協力機関である岐阜県警科捜研、兵庫県警科捜研、三重県警科捜研、警視庁刑事部鑑識課が担当する。性能評価のフィードバックに基づく実証システムの設計・製作は JFE テクノリサーチが担当し、本システムの総合評価を早稲田大学が担当する。本システムの各コンポーネントについては、HSI コンポーネントを早稲田大学が、fsTRPL コンポーネントを科学警察研究所が、CARS については JFE テクノリサーチが担当責任をもつ。

早稲田大学の各種分光法に関する基礎知識および技術やシステム全体の総合評価、鑑識機材開発実績のある JFE テクノリサーチの応用技術、鑑識現場と密接な関係を持つ科学警察研究所の三者による研究推進体制は本研究開発課題に最適である。



6. 各年度の計画と実績

a. 平成 23 年度

(1) 計画

- 可視域 HSI コンポーネントの設計・製作、データ解析手法の開発。
- 近赤外域 HSI コンポーネントの設計・製作、データ解析手法の開発。
- 2光子励起 fsTRPL コンポーネントのプロトタイプ機の設計、要素技術開発。
- CARS コンポーネントプロトタイプ機の設計、要素技術開発。

(2) 実績

- 可視-近赤外域 HSI コンポーネントを試作した。アルミニウム粉末法と同程度に残留指掌紋を画像化かつ対照するのに有効と考えられる 3 種類のデータ解析手法を見出した。従来の前処理法と本イメージング装置の相性について検討した。
- 近赤外域専用 HSI コンポーネントを試作し、以下のことを明らかにした。近赤域の場合、従来の前処理法との相性は総じて良くないが、未処理時には従来法以上の顕在化効果が得られた。顕在化がほぼ不可能であった、JR 券等の磁気記録面に残留した指紋の付着直後の検出が可能であった。
- 実用化に必要な要素技術開発のため、残留指紋背景となりうる各種試料の蛍光測定及び前処理試料の測定を既存装置で行った。蛍光測定では、355nm 励起レーザーにより、蛍光スペクトル及び寿命を測定した。IND, DFO 等による前処理試料については可視域励起波長にて、蛍光の性質を測定した。プロトタイプ機設計に関しては、各コンポ

ネントの選定と最適な組み合わせ及び仕様について検討した。

- 実験室レベルの測定装置仕様設計を実施し、測定系を構築した。光源にはチタンサファイアレーザーを用いた。それらにより CARS 法よる代表的な潜在指紋のスペクトル測定実験および検出アルゴリズムの検討を開始した。さらに、小型化、イメージング機能追加等に関わる改良要素技術の仕様設計も実施した。

b. 平成 24 年度

(1) 計画

- 可視域 HSI コンポーネントの性能評価、要素技術改善、既存システムとの整合性確認。
- 近赤外域 HSI コンポーネントの性能評価、要素技術改善、既存システムとの整合性確認。
- 2光子励起 fsTRPL コンポーネントのプロトタイプ機の製作、データ収集による評価、小型化要素技術開発。
- CARS コンポーネントのプロトタイプ機の製作、データ収集による評価、小型化要素技術開発。
- 実証プロトタイプ機仕様設計、システム設計開始。

(2) 実績

- 試作機を用い、計測対象物の形状計測機能追加と装置小型化の両立を検討した。前者に対する計測アルゴリズムを開発した。残留指紋共通資料(スライドガラスと白色セラミックス)を準備し、試作機の性能評価を実施した。その経時的劣化について検討した。

- (b) 共通試料による試作機の性能評価を実施した。S/N比向上のため、最適露光時間を検討した。
- (c) 実験室レベルの測定装置を構築した。標準試料により、2光子励起 TRPL の実現を確認した。スライドガラス上指紋の2光子 PL 画像取得に成功した
- (d) 試作測定系により透過ならびに反射配置での共通試料上指紋の CARS 画像取得に成功した。標準計測手法の開発を行った。実証機設計へ向けた小型化コンポーネントを試作した。
- (e) 可視域 HSI コンポーネントの実証プロトタイプ機を試作した。残留指紋画像の2次元展開と等倍化機能を確認した。

c. 平成 25 年度

(1) 計画

- (a) 可視域 HSI コンポーネントの性能評価、要素技術改善、既存システムとの整合性確認。
- (b) 近赤外域 HSI コンポーネントの性能評価、要素技術改善、既存システムとの整合性確認。
- (c) 2光子励起 fsTRPL コンポーネントのプロトタイプ機のデータ収集による評価、小型化要素技術開発。
- (d) CARS コンポーネントのプロトタイプ機のデータ収集による評価、小型化要素技術開発。
- (e) 実証プロトタイプ機仕様設計、システム設計/製作。

(2) 実績

- (a) 実証プロトタイプ機の緑色レーザーとの組み合わせによる探査能力を調査・検討した。従来法で探査範囲外であった家屋壁面や、検出効率が極めて低かった切符磁気面の潜在指紋の顕在化・検出が可能になること、付着時期の違う重畳指紋の検出・分離も簡単にできることが分かった。ユーザー評価を実施して改良点を調査し、要望の多かった計測拡張ユニットを付加した。
- (b) 計測拡張ユニット付実証プロトタイプ機を試作し、ユーザー評価を開始した。
- (c) 24 年度に開発した装置を改良することにより、可視化領域の広範囲化を図り、30mm x 30mm の範囲でセラミックス上の指紋の2光子励起 TRPL 画像取得に成功した。潜在指紋の背景となりうる物質群の蛍光寿命データベースを作成した。
- (d) CARS 小型化コンポーネントの基本性能を検証した。レーザーアブレーション発生原因と回避法について検討した。
- (e) 各コンポーネントの光源が DNA 型検査に実用上影響しないことを、計画前倒しで確認した。ユーザー評価に基づき、HSI コンポーネントのさらなる小型化のための基本設計を実施した。fsTRPL と CARS コンポーネントを一体化する実証プロトタイプ機を設計した。

d. 平成 26 年度

(1) 計画

- (a) 2光子励起 fsTRPL コンポーネントのプロトタイプ機のデータ収集による評価、小型化要素技術開発、要素技術の改善及び既存システムとの整合性の確認。
- (b) CARS コンポーネントのプロトタイプ機のデータ収集による評価、小型化要素技術開発、要素技術の改善及び既存システムとの整合性の確認。
- (c) 実証プロトタイプ機改良と設計/製作、システム設計/製作、システム評価/既存システムとの整合性の確認。

(2) 実績

- (a) fsTRPL プロト機を用い、fs レーザーの繰り返し周波数と検出器のゲート周波数の同期をとる分周回路を設計製作し、性能を確認した。また時間分解計測に必須である遅延特性を検証した。小型化に資する CARS コンポーネントと一体化を図る検討を行い、検出器等の選定を行った。
- (b) CARS プロト機に遅延光学系の改良を施し、設計通りの性能が発揮されていることを実証した。新たに選定したレーザーを用いて、ガラス上の指紋を透過・反射配置で、フォトペーパー上の指紋を反射配置で顕在化・画像化できることを確認した。またこのレーザーにより、2光子励起蛍光計測も可能であることを確認した。これにより、CARS と fsTRPL コンポーネントとの一体化が実現可能であることが実証された。

レーザーアブレーションに関する基礎的なデータを収集し、その低減に向けたガルバノミラー制御プログラムを改良するとともに、レゾナントスキャナを導入し、両者の組み合わせ方法について検討を開始した。高分解能型分光器を使用した場合、-CH2-だけでなくアミド I の信号が計測可能であることを実証した。曲面を有する対象物に対する計測を可能にするためのユニットと制御プログラムを作成した。

- (c) 可搬性向上を目指し、VIS-, NIR-HSI 実証プロトタイプ機をベリカンケース収納型とする改良を施し、可搬性向上を実現した。VIS-HSI 実証プロト機と緑色レーザーとの組み合わせによる潜在指紋探査能力の検証を、警視庁刑事部鑑識課の協力のもと、模擬現場において開始した。

CARS と fsTRPL 一体型実証プロトタイプ機仕様を決定し、組立・調整を開始した。本装置によりセラミックス上の指紋からの2光子励起 PL イメージの計測、さらには2光子励起 fsTRPL イメージングにも成功した。

e. 平成 27 年度

(1) 計画

- (a) 2光子励起 fsTRPL コンポーネントのプロトタイプ機の要素技術の改善及び既存システムとの整合性の確認。
- (b) CARS コンポーネントのプロトタイプ機の要素技術の改善及び既存システムとの整合性の確認。

- (c) 実証プロトタイプ機のシステム評価/既存システムとの整合性の確認及び非破壊 (DNA) の検証。
- (d) 小型・可搬型実証機仕様確定、設計、製作、性能評価および製品化の検討。

7. 年次計画

取組内容	1年度目	2年度目	3年度目	4年度目	5年度目
a. 可視域 HSI コンポーネント	<p>プロトタイプ的设计・製作、データ解析手法の開発</p> <p>データ収集とシステム評価及び改良、実用機に向けた要素技術改善</p>	<p>既存システムとの整合性の確認</p>			
b. 近赤外 HSI コンポーネント	<p>プロトタイプ的设计・製作、データ解析手法の開発</p> <p>データ収集とシステム評価及び改良、実用機に向けた要素技術改善</p>	<p>既存システムとの整合性の確認</p>			
c. 2光子励起 fsTRPL コンポーネント	<p>システムシミュレーションによる仕様設計 (プロトタイプ機的设计)、要素技術開発</p>	<p>プロトタイプ機の製作</p> <p>データ収集とシステム評価及び改良、小型化に向けた要素技術開発</p>		<p>要素技術の改善</p> <p>既存システムとの整合性の確認</p>	
d. CARS コンポーネント	<p>システムシミュレーションによる仕様設計 (プロトタイプ機的设计)、要素技術開発</p>	<p>プロトタイプ機の製作</p> <p>データ収集とシステム評価及び改良、小型化に向けた要素技術開発</p>	<p>設計に反映</p>	<p>要素技術の改善</p> <p>既存システムとの整合性の確認</p>	
e. 実証プロトタイプ機			<p>実証プロトタイプ機仕様設計、システム設計/製作</p> <p>システム評価/既存システムとの整合性の確認、DNA非破壊の検証</p>		
f. 小型・可搬型実証機				<p>実証機仕様確定、設計・製作、性能評価、製品化の検討</p>	