InGaAs-PIN ホトダイオードを用いた 電荷蓄積型微弱光検出システム

正員 水 本 巖 (東 北 大)

非会員 益 子 信 郎 (郵 政 省)

非会員 鈴 木 喜 隆 (下関水産大)

Low-Noise Detection System using an InGaAs PIN Photodiode with a Charge Integrating Amplifier

Iwao Mizumoto, Member (Tohoku University), Shinro Mashiko, Non-member (Communications Research Laboratory), Nobutaka Suzuki, Non-member (Shimonoseki University of Fisheries)

We developed a low noise detection system using an InGaAs-PIN photodiode for near infrared spectroscopic measurement. Since no practical photomultipliers are available in near infrared region, a Ge PIN photodiode cooled at 77 K with a transimpedance (TIA) circuit and lock-in amplifier is usually used. InGaAs PIN photodiodes are more suitable than Ge PIN photodiodes for detecting low level light in the view of dark current and quantum efficiency. The detection system consists of an InGaAs PIN photodiode with a charge integrating amplifier operated at 77 K. The minimum detectable power of 10^{-16} W was achieved at the wavelength of 1.28 μm . The integration time was 10 s.

The system performance was tested by the measurement of the spectrum of singlet oxygen.

キーワード：InGaAs-PIN ホトダイオード，電荷蓄積型増幅器，近赤外域極微弱光

1. はじめに

可視域での微弱光検出システムには，光電子増倍管⁽¹⁾やイメージンテンシファイア(Image Intensifier)を付属させたSi-CCD⁽²⁾などが用いられてきたが，波長1~2 μm 付近の近赤外域では増倍管に適当な材料がないためこれらの検出器を使用できない。そのため光検出器材料にはGeおよびPbS，InGaAsなどの固体光検出素子を使用する。

これまで，この波長域ではもっぱら光通信用デバイスの開発が主であった⁽³⁾。そのため，半導体レーザ光受光用のAPD⁽⁴⁾など高速応答素子を主眼として開発されてきており，インコヒーレントな極微弱光を検出するシステム⁽⁵⁾はほとんど開発されていない状況である。

従来，近赤外域微弱光計測用受光素子として，比較的広い受光面積（直径5 mm程度）を有したGe PIN ホトダイオードを，トランスインピーダンス型増幅器（別名，電流電圧変換型増幅器，Transimpedance Amplifier；TIA）⁽⁶⁾⁽⁷⁾およびロックインアンプと組み合わせ用いられてきたが，暗電流および量子効率，検出回路の簡素化を考慮するとInGaAs ホトダイオードを使用したほうが微弱光検出には有効である。

そこで著者らは，InGaAs PIN ホトダイオードを用いた電荷蓄積型（Charge Integrating Amplifier；CIA）光検出システムを構築し，波長1.28 μm において 10^{-16} W（10秒間蓄積）の検出感度を得た。

2. ホトダイオードの基礎特性

〈2・1〉 暗電流特性 従来，1~2 μm 帯の近赤外

域の光検出には、Ge PIN ホトダイオードや PbS ホトダイオードのような受光素子を TIA 回路とロックインアンプとを組み合わせ用いてきた。その際、素子の暗電流による雑音電流は(1)式で与えられる。

$$I_n = \sqrt{I_{an} e \Delta f} \quad (1)$$

ここで、 I_n : 雑音電流、 I_{an} : 暗電流、 e : 電子電荷、 Δf : 帯域幅

このように、暗電流は雑音源となるので少ないほうがよい。一方、InGaAs PIN ホトダイオードに用いられる絶縁保護膜は、Ge PIN ホトダイオードに用いられる保護膜に比べ良好な材料があるため、暗電流が

少ない。

図1に暗電流の温度依存性の測定結果を示す。用いたホトダイオードは、市販されている通信用のホトダイオードから選んだものであり、InGaAs-PIN ホトダイオードは富士通製 FID 13 Y 23 WX、素子容量 300 pF、素子直径 2 mmφ、Ge PIN ホトダイオードは富士通製 FID 13 R 53 WZ、素子容量 1,300 pF、素子直径 5 mmφ を使用した。Ge PIN ホトダイオードの暗電流は、温度 77 K で 10^{-11} A、InGaAs PIN ホトダイオードでは 10^{-14} A である。受光面積をも考慮しなければならないが、暗電流値は約 3 桁程度 InGaAs-PIN ホトダイオードのほうが少ない。

〈2・2〉 量子効率 通常、暗電流を減らすために素子を冷却して動作させる。そのため、低温領域における受光素子の量子効率が問題になる。図2に量子効率の温度依存性の測定結果を示す。用いた受光素子は、暗電流を測定したものと同じである。光源には、日本電気製 InGaAsP-LED TDL5300 波長 1.30 μm、FWHM 30 nm を用いて測定した。図より、InGaAs-PIN ホトダイオードは、77 K においても 69% の高効率を保っている。

暗電流および量子効率から考察すると、InGaAs-PIN ホトダイオードは微弱光を受光するのに有効であると考えられる。

3. 電荷蓄積型増幅方式および動作解析

〈3・1〉 電荷蓄積型増幅方式 従来用いられてきた TIA 回路は、フィードバック抵抗と受光素子の間にインピーダンスマッチングをとる必要があるため、内部抵抗が 10 TΩ 程度の受光素子には、用いることができない。そのため入力インピーダンスの高い受光素子には、CIA 回路^{(8)~(10)}による信号電圧取出しが適する。図3に CIA 回路の簡略した等価回路を示す。これは受光素子そのものに電荷を蓄積して光信号を(2)式により信号電圧として取り出す方式である。

図1 InGaAs PIN ホトダイオードおよび Ge PIN ホトダイオードの暗電流の温度依存性
Fig. 1. The temperature dependence of a darkcurrent InGaAs PIN photodiode and Ge PIN photodiode.

図2 InGaAs PIN ホトダイオードおよび Ge PIN ホトダイオードの量子効率の温度依存性

Fig. 2. The temperature dependence of a quantum efficiency InGaAs PIN photodiode and Ge PIN photodiode.

図3 電荷蓄積型増幅回路の簡略化した等価回路

Fig. 3. Diode equivalent of CIA circuit with simplified signal sources.

$$V_s = \frac{Q}{C_d} = \int \frac{I_{ph}}{C_d} dt \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 V_s : 信号出力電圧、 Q : 検出素子に蓄積された電荷、 C_d : 光検出素子の容量、

I_{ph} : 光励起電流

この増幅方式は、受光素子そのものの接合容量をコンデンサとみなし、電荷が逐次蓄積されるに伴い電圧が発生することを利用している。CIA 回路は、従来の TIA 回路と異なりフィードバック抵抗を用いないので、インピーダンスマッチングをとらずに電流電圧変換が可能である。電圧としては、 Q/C_d 倍 ($C_d=300$ pF, 約 10^9 倍) の値で取り出すことができる。

〈3・2〉 動作解析 InGaAs PIN ホトダイオードを用いて構成した CIA 光検出システムの S/N 見積もりを示す。まず、主な雑音源としては、アンプ系の雑音⁽¹⁾と暗電流による揺らぎがあげられる。雑音電圧としては(3)式で与えられる。

$$V_N^2 = (\sqrt{2}e a_m \sqrt{\Delta f})^2 + \left(\frac{\sqrt{I_{dn} e \tau}}{C_d} \right)^2 \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 $e a_m$: アンプの等価入力雑音電圧、 Δf : アンプの帯域幅、 τ : 蓄積時間、 η : 量子効率、 C_d : 検出器の素子容量、 I_{dn} : 検出器の暗電流

有効信号強度としては

$$I_{ph}^2 = 2 \left(\frac{P_{eq}}{h\nu} \right)^2 \dots\dots\dots (4)$$

$$V_s = \frac{I_{ph} \tau}{C_d} \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 I_{ph} : 光励起電流

が得られる。以上、(4)、(5)式より、 S/N 電圧比は、

$$\frac{V_s}{V_N} = \frac{\sqrt{2} \{ (P_{eq}/h\nu) \tau \} / C_d}{\sqrt{(\sqrt{2} e a_m \sqrt{\Delta f})^2 + \left(\frac{\sqrt{I_{dn} e \tau}}{C_d} \right)^2}} \dots\dots\dots (6)$$

が得られる。いま、アンプの雑音が支配的と考えると $V_s/V_N=1$ となる検出可能入力信号光強度は、

$$P_{min} = \frac{h\nu}{\eta} \left(\frac{e a_m \sqrt{\Delta f}}{e \tau} C_d \right) \dots\dots\dots (7)$$

である。すなわち、検出可能な信号光強度は蓄積時間 $1/\tau$ に比例する。これより、蓄積時間を長くすることにより、より微弱な信号を検出できるものと考えられる。

4. 電荷蓄積型光検出システムの試作および検出感度の測定結果

〈4・1〉 電荷蓄積型光検出システムの試作および動作特性 図4に InGaAs-PIN ホトダイオードを用いた CIA の回路図を示す。用いた InGaAs-PIN ホトダイオードは、富士通製 FID 13 Y 23 WX を温度

77 K で動作させた。InGaAs-CIA の蓄積開始 (set)、終了 (reset) 用スイッチには、液体窒素温度でも動作する MOS-FET 3SJ11A を用いた。また、受光素子の電圧は、JFET 2N 6483 で構成したエミッタフォロワ回路を通して、高インピーダンスから低インピーダンスへの変換を行った後に出力している。その際、出力電圧は AD コンバータもしくはレコーダで処理した。時間設定には、0.1~300 s まで自由に設定できるタイマ IC NE 7555 を用いて行っている。

図 4 InGaAs PIN ホトダイオードを用いた電荷蓄積型光検出システムの回路図
Fig. 4. CIA circuit diagram using InGaAs PIN photodiode.

図 5 InGaAs PIN ホトダイオードを用いた電荷蓄積型光検出システムの動作例
Fig. 5. Chart records of CIA detection system using InGaAs PIN photodiode.

蓄積開始信号はコンピュータの入出力インタフェース (PIO: 8255) を用いた。

図 5 に InGaAs-CIA の動作例を示す。光源には、LED (ADVANTEST TQ-28, $1.28 \mu\text{m}$, FWHM 30 nm) を減衰フィルタによって 10^{-15} W に減衰させて用いた。光の有無により、一定蓄積時間経過後の到達電圧に差異が生ずることから、光信号を検出することができる。

更に MOS-FET スイッチで電荷の蓄積、排出を制御することにより、繰返し非破壊読出しが可能である。連続動作での出力電圧は、暗電流のみの蓄積による電圧揺らぎが 10 mV 以下であるのに対し、 10^{-15} W 入力時の光出力は 130 mV である。ただし、この出力電圧値は AD 625 アンプの増幅率の設定によって変わるが、AD 変換を十分行える電圧値である。本システムは簡素な回路構成であり、ロックインアンプを用いずに高感度測定できるため、容易に多チャネル化を行うことができる。

〈4・2〉 システム感度の実験結果 最小検出可能入力光強度の蓄積時間依存性の実験結果と (6) 式による計算結果を図 6 に示す。計算に用いた具体的な値は、 $I_{dn}=5 \times 10^{-15} \text{ A}$, $e_{am}=100 \times 10^{-9} \text{ V}/\sqrt{\text{Hz}}$, $C_d=300 \text{ pF}$, $\Delta f=100 \text{ Hz}$, $\eta=0.7$ である。同図より、蓄積時間 τ に比例して検出能力が向上するのがわかる。途中 10 秒付近から飽和しているが、これは蓄積時間が長くなるにつれて、アンプ系に含まれる $1/f$ 雑音の影響が見積もりで計算した値より増えるためと考えられる。

〈4・3〉 受光システムを用いた分光装置 本受光システムが実際に分光測定に応用できることを確かめるために、近赤外域極微弱光分光装置を構築した (図

図 6 InGaAs PIN ホトダイオードを用いた電荷蓄積型光検出システムの最小検出可能入力光強度の蓄積時間依存性

Fig. 6. The minimum detectable power of InGaAs-CIA dependence of integration time.

図 7 InGaAs-CIA を用いた分光装置の構成図

Fig. 7. Block diagram of filter spectroscopic system using the InGaAs-CIA.

7)。本装置は、微弱でインコヒーレントな光を効率良く集光するために、波長分散素子には 15 枚の多層膜干渉フィルタ (日本真空光学製) を使用した。波長範囲は $1.0 \sim 1.6 \mu\text{m}$ で、分解能は約 $30 \sim 35 \text{ nm}$ 、透過率は約 $73 \sim 86\%$ である。測定開始は、コンピュータの PIO ボードよりタイマ IC NE 555 に蓄積開始信号 (SET PULSE) を送り動作させる。光信号出力は、A/D コンバーターを介してパーソナルコンピュータに取り込まれる。従来から用いられた TIA 回路とロックインアンプとの組合せは、位相調整が必要であり、常に補正および調整を行わねばならなかった。本装置はその必要がないので、誰でも容易に使いこなすことができる。また、簡素な部品構成なので廉価に構

図 8 測定した励起一重項酸素分子の近赤外域発光スペクトル (13-リノール酸ヒドロペルオキシド-チトクローム c の混合系)
Fig. 8. Near infrared singlet oxygen chemiluminescence emission spectrum by 13-LOOH, cyt. c, D₂O.

成することができる。更に受光システムは蓄積効果を利用しているため、総発光量を簡単に比較できる。ただし、時間分解能を必要とする測定には不向きである。

本装置を用いて分光測定した一例として、微弱な近赤外域発光を伴う励起一重項酸素分子 ($^1\text{O}_2$)^{(12)~(14)}の発光スペクトル ($^1\Delta_g \rightarrow ^3\Sigma_g^-$) を図 8 に示す。励起一重項酸素分子は活性酸素の一種であり、可視域から近赤外域にかけて発光する。これまで化学的な検出方法により、過酸化脂質 (脂質に酸素分子が付加した物) から励起一重項酸素分子が発生し、これが脂質を更に過酸化しているものと推測されていた⁽¹⁵⁾。しかしながら、この検出方法は反応性の問題もあり、物理的に信頼のおける確実な検出方法としては認められていなかった。今回、生体に含まれる 13-リノール酸ヒドロペルオキシド (過酸化脂質) とチトクローム c (ヘム蛋白) を用いて、励起一重項酸素分子の近赤外域の発光スペクトルを測定することにより、脂質過酸化に励起一重項酸素分子が関与していることが確かめられた。

5. む す び

本論文を要約すると、次のようである。

- (1) InGaAs-PIN ホトダイオードの暗電流およ

び量子効率の、温度依存性を示し、近赤外域における微弱光の検出に最適であることを提案した。

- (2) 本検出システムの動作解析を行い、理論的な検出限界を明らかにした。

- (3) 本検出システムを試作し、動作特性を示した。

- (4) 波長 1.28 μm において 10^{-16}W (10 秒間蓄積) の検出感度を得た。実測値と理論値がほぼ一致した、蓄積時間が 10 秒以上では、飽和していることが判明した。

- (5) 本検出システムを用いて近赤外域極微弱光用分光装置を試作し、実際の測定にも有効であることを示した。

今後このシステムを用いた近赤外域での、リモートセンシングおよび医療検査機器などへの応用が期待される。

本研究は東北工業大学 稲場文男教授 (東北大学名誉教授) の御指導で行われたものであり、ここに深謝致します。また、測定に御協力いただいた浜松医科大学 光量子医学研究センター 中野 稔教授、古賀 聡助手に感謝します。また、有益な示唆および討論をいただいた郵政省通信総合研究所 廣本宣久博士、秋葉誠博士、高見英樹博士に感謝いたします。

(平成 5 年 3 月 3 日受付, 同 5 年 6 月 14 日再受付)

文 献

- (1) Y. Shimizu, H. Inaba, K. Kumaki, K. Mizuno, S. Hata & S. Tomioka: "Measuring Methods for Ultra-Low Light Intensity and Their Application to Extra-Weak Spontaneous Bio-luminescence from Living Tissues", *IEEE Trans. Instrum. & Meas.*, **IM-22**, 153 (1973)
- (2) R. Q. Scott, M. Usa & H. Inaba: "Ultraweak Emission Imagery of Mitosing Soybeans", *Appl. Phys. B*, **48**, 183 (1989)
- (3) S. Kakimoto, Y. Nakajima, Y. Sakakibara, H. Watanabe, A. Takemoto & N. Yoshida: "Extremely Narrow Spectral Linewidth and Low Chirping of the MQW-DFB-PPIBH Laser Diode", *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-26**, 1460 (1990)
- (4) M. Ghioni, A. Lacatita, G. Ripamonti & S. Cova: "All-Silicon Avalanche Photodiode Sensitive at 1.3 μm with Picosecond Time Resolution", *IEEE J. Quantum Electron.*, **28**, 2678 (1992)
- (5) 益子信郎・町田 博・戸恒博子・杉岡克昭・沢田英夫・水本 巖・中野 稔・稲場文男: 「過酸化脂質反応系由来の励起一重項酸素分子の高感度近赤外分光検出」, レーザー医学誌, **9**, No. 3, 359 (昭 63)
- (6) D. N. B. Hall, R. S. Aikens, R. Joyce & T. W. McCurnin: "Johnson Noise Limited Operation of Photovoltaic InSb Detectors", *Appl. Opt.*, **14**, 450 (1975)
- (7) E. L. Dereniak, R. R. Joyce and R. W. Capps: "Low-noise preamplifier for photoconductive detectors", *Rev. Sci. Instrum.*, **48**, 392 (1977)
- (8) F. J. Low: "Integrating amplifiers using cooled JFETs", *Appl. Opt.*, **23**, 1309 (1984)
- (9) H. Murakami, M. Akiba, T. Matsumoto & M. Noda:

"Low-Noise Infrared Detection System with InSb Photodiode for Infrared Astronomy", *Japan. J. Appl. Phys.*, **27**, L 1973 (1988)

- (10) 水本 巖・益子信郎・今井 聡・鈴木喜隆・稲場文男：「電荷蓄積型 InGaAs 光検出器の近赤外域分光への応用」，第 50 回応用物理学会学術講演会，29 p-ZM-13, 931 (平元)
- (11) INTERSIL: Component Data Catalog 10-60 (1987)
- (12) A. U. Kahn: "Near Infrared Emission of Singlet Oxygen Generated in the Dark", *J. Biol. Chem.*, **4**, 200 (1989)
- (13) 佐藤俊一・稲場文男：「レーザーを用いた悪性腫瘍の光化学診断・治療法」，応用物理，**58**, 1075 (平元)
- (14) 蛋白質 核酸 酸素 臨時増刊：活性酸素 (昭 63) 共立出版
- (15) K. Sugioka & M. Nakano: "A Possible Mechanism of The Generation of Singlet Molecular Oxygen in NADPH-dependent Microsomal Lipid Peroxidation", *Biochim. Biophys. Acta*, **423**, 203 (1976)

水 本 巖 (正員)

平成 3 年東北大学大学院博士課程期間満了退学。同年同大学電気通信研究所助手，平成 4 年同工学研究科研究生。5 年富山商船高等専門学校情報工学科講師，現在に至る。主として，極微弱光検出の研究に従事。工学博士。分光学会会員。

益 子 信 郎 (非会員)

昭和 61 年東北大学大学院工学研究科電子工学専攻博士過程修了。同年新技術事業団生物フォトンプロジェクト研究員。平成元年郵政省通信総合研究所入所，5 年同所関西先端研究センター，ナノ機構研究室室長，現在に至る。工学博士。有機薄膜の作製・計測，生体の光計測などの研究に従事。

鈴 木 喜 隆 (非会員)

昭和 46 年名古屋大学大学院農学研究科農芸化学専攻博士課程満了。三重大学工学部助手，助教授を経て，63 年新技術事業団・稲場生物フォトンプロジェクト研究員。平成 2 年下関水産大学校製造学科助教授，5 年同教授，現在に至る。農学博士。動的天然物有機化学（生物発光，化学発光，活性酸素による過酸化と天然抗酸化物の速度論，アミノ-カルボニル反応の機構研究）の研究に従事。