

光電子増倍管による単一光子検出技術の進展

須山 本比呂

Single-Photon Detection with Recent Photo-Multiplier Tubes

Motohiro SUYAMA

A photomultiplier tube (PMT) is a vacuum tube having a long history of 70 years, as a photon sensor to detect single photons. The operational principle is almost the same for several ten years, as well as a function of every part consisting of PMT, however, the application, thus demands for PMTs have been varied gradually. In order to apply these new demands, PMTs should change continuously in a microscopic view, and have big improvements in some cases. In this report, I describe the recent progress of PMTs, in addition to the applications of these days.

Key words: photomultiplier tube (PMT), photon sensor, single photon, photocathode, multiplication

光子（フォトン）はいうまでもなく光の最小単位であり、1個、2個と数えられる。この光子1個1個を検出するのが単一光子検出である。光子を検出するには、まず、光子を電子に変換し、そして電子を検出すればよい。一般的に、光子1個は電子1個に変換されるので、単一光子の検出は単一電子の検出に等しくなる。ここで電子は $1.6 \times 10^{-19} \text{C}$ という非常に小さな電荷しかもたないので、単一電子の検出は容易ではない。例えば電気回路を駆使して信号の増幅を試みても、アンプのノイズに邪魔されて単一電子の検出はできない。そこで単一光子を検出するセンサーは、アンプのノイズを超えるゲインを発生する増倍部を必要とする。

真空中で物質に電子を加速して照射すると、二次電子が放出される。ここで放出する二次電子数は、物質の表面状態、入射電子のエネルギーを整えると5を超える。この二次電子増倍を繰り返すように電極を配置すると、例えば10段で 10^7 のゲインを実現できる。これは、単一電子をアンプノイズに影響されることなく検出するのに十分なゲインである。一方、入射する光子を電子に変換する膜、光電面も古くから知られた技術である。光電子増倍管 (photo-multiplier tube, PMT) は、この光電面と増倍電極を配置した真空管であり、光子の入射に応じて光電面から放出され

た電子を8から10段ほどの増倍電極（ダイノードとよばれる）で増倍し出力する。

光電面と二次電子増倍のおかげで、光電子増倍管は数々の特長を有する。まず、光電面は必要に応じて直径50 cmほどに大型化できる。加えて暗電流がきわめて低い。例えばカリウムとセシウムを主成分とするバイアルカリ光電面の暗電流は室温にて $8 \times 10^{-18} \text{ A/cm}^2$ ほどである。これは1秒間に 1 cm^2 より50個の電子しか放出されないことを意味する。一方、二次電子増倍は真空中で起こるため、光電子増倍管の応答速度はナノ秒ほどと高速である。このような特長のため、光電子増倍管は水チェレンコフ実験に代表される高エネルギー物理分野、蛍光を検出する顕微鏡やバイオ分野、微弱な化学発光を計測する分析分野、シンチレーターと組み合わせて γ 線を検出する核医学分野など、多くの分野で利用されている。

70年を超える長い歴史をもった光電子増倍管であるが、さまざまな応用分野からの要請に応えるために日々進化しているといっても過言ではない。本稿では動作原理の解説からはじめ、光電面の高感度化について応用例を含めて報告する。また、電子増倍部の小型化、薄型化という課題に取り組んだ結果、指先に乗るほどに小型化した μ PMT を紹介する。加えて、ダイノードに替わり半導体素子への

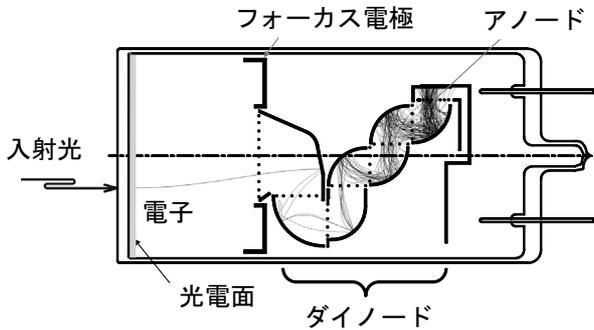


図1 光電子増倍管の断面模式図。光の入射によって光電面より放出された電子は電界によってダイノードに導かれ、 10^6 倍に増倍されてアノードより出力する。

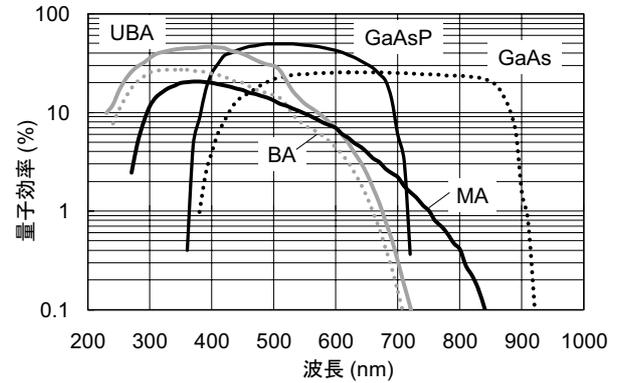


図2 各種光電面の量子効率。アンチモンにカリウム、セシウムを反応させて作製されたバイアルカリ光電面 (BA)、さらにナトリウムを反応させて近赤外域まで感度を伸ばしたマルチアルカリ光電面 (MA)、およびバイアルカリ光電面の結晶性を向上して高感度化したウルトラバイアルカリ光電面 (UBA) の特性を示す。加えて GaAs, GaAsP 結晶よりなる結晶光電面の量子効率も示す。

電子照射による増倍を利用した新しい光電子増倍管について解説する。

1. 光電子増倍管の動作原理

光電子増倍管は、光子の入射に応じて電子を放出する光電面、電子を次々に増倍する電子増倍部 (ダイノード)、およびアノードよりなる^{*1,1)}。代表的な光電子増倍管の断面模式図を図1に示す。この光電子増倍管は、光子の進行方向へ電子を放出する透過型光電面を有する。光電面はおもにアルカリ金属の合金として形成され、用途に応じてさまざまな組成の光電面が用いられる。その感度は測定する波長において極力高いことが望まれるため、後述するように高感度化の試みがなされている。ダイノードも増倍率の高さや応答速度などによっていくつかの種類があるが、図では増倍率の高いボックス型を示している。ダイノードはステンレスなどの金属よりなり、アルカリ金属を堆積して増倍率の向上を図っている。1段あたりの増倍率はダイノード間電圧 100 ~ 200 V において 3 ~ 10 である。

この光電子増倍管を動作させるためには、光電面に -1000 V、最初のダイノードに -800 V、それ以降、各ダイノード間に 100 V の電位差を与え、アノードをグランド電位 (0 V) とする。各部へこのような電圧を印加するために、抵抗チェーンを使うことが多い^{*1}。このように電圧が印加された光電子増倍管に光子が入射すると、ある確率で真空中に電子が放出する。放出された電子は、光電面、フォーカス電極によって形成される電界によって加速、収束され、第1ダイノードへ入射する。そこで二次電子増倍が発生し、電子は5~10個に増倍される。増倍した電子は加速されて第2ダイノードに導かれ、さらに増倍される。第3ダイノード以降もこれが繰り返され、8段のダイノード

で 10^6 ほどに増倍されてアノードより出力する。この出力信号をオシロスコープに接続すると、単一光子は 10 mV ほどのパルス信号として観察される。これが光電子増倍管による単一光子計測である。図1には、電子がダイノードで増倍される様子も示している。

2. 光電面の進展：高感度化、長波長化

光電子増倍管において、光電面は入射した光子を電子に変換するというきわめて重要な役割を果たす。よって光子計測の信号対雑音比 (signal to noise ratio, S/N) を確保するという観点から、光電面は計測する波長域において極力高い感度が望まれる。どんな金属でも、仕事関数より大きなエネルギーの光子を入射させると、光電効果によって電子が真空中に放出される。ただ、材料を選ばないと、必要な光子エネルギーは 4 eV を超え (波長 300 nm 未満)、光子と電子の変換効率 (量子効率) は 1% に満たない。光電子増倍管に用いられる光電面は図2に示すように、紫外から近赤外域に高い感度を有するアルカリ-アンチモナイド系光電面および結晶光電面である^{*1}。アルカリ-アンチモナイド系光電面には、アンチモンを下地として、カリウム、セシウムを反応させて仕事関数の低減を図ったバイアルカリ光電面 (BA)、さらにナトリウムを反応させて近赤外域まで感度を伸ばしたマルチアルカリ光電面 (MA) などがある。ここで光電面からの電子放出は、① 光の吸収・励起電子の生成、② 電子の真空界面への移動、③ 真空への放出の3ステップモデルで説明できる。このうち、② 電子

^{*1} http://jp.hamamatsu.com/resources/products/etd/jpn/html/pmt_010.html

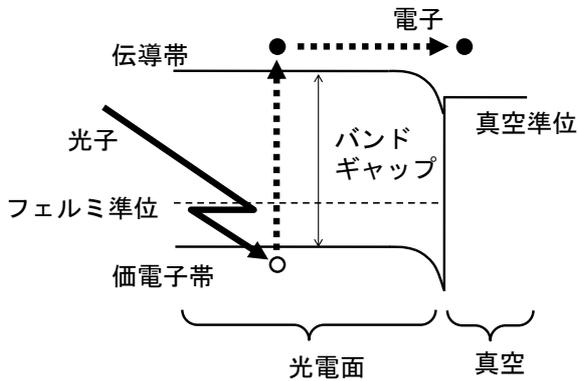


図3 結晶光電面のバンド図. 表面にセシウムを反応させバンドを湾曲させることでNEAを実現している.

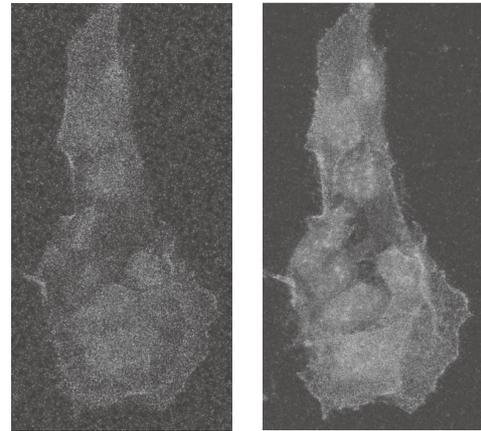
の真空界面への移動時に再結合して失われる電子を減少するために、結晶性の向上を図った光電面がウルトラバイアルカリ光電面 (UBA) である。その結果、UBA は 400 nm 付近で 50% 近い量子効率を実現している。

光電面の結晶性をさらに向上し、可視、および近赤外域での高感度化を図ったものが結晶光電面である。結晶光電面は砒化ガリウム (GaAs) あるいは砒化ガリウム・リン (GaAsP) よりなる結晶をガラスに接着、数 μm ほどに薄膜化した後にセシウムを反応させて高い量子効率を実現している。これら結晶光電面は、3 ステップモデルにおいて以下の改善を図っている。

- ① アルカリ-アンチモナイト系光電面 (膜厚 50~100 nm) に比べて厚いので、光の吸収・励起電子の生成量が多い
- ② 結晶性が高いので、電子の真空界面への移動中に再結合する電子の割合が少ない
- ③ 負の電子親和力 (negative electron affinity, NEA) により電子の真空への放出が容易

このうち NEA は、図 3 に示すバンド図にて説明できる。すなわち、p 型材料である結晶は表面にセシウムが付着することで表面付近のバンドが下方へ湾曲し、真空準位が伝導体より低い NEA となって電子の真空への放出を容易にしている。上記 ① から ③ により、結晶光電面は光電面として理想的な状態を実現している。

このような可視および近赤外域での高い量子効率は、蛍光を検出する共焦点顕微鏡や二光子励起顕微鏡における生体細胞の計測で特に有益である。二光子励起顕微鏡は 800 nm ほどのフェムト秒パルス光を限界まで集光し、例えば 510 nm の蛍光を発生する蛍光分子を二光子で励起し、発生する蛍光を計測する。このとき集光点を二次元に走査する



(1) (2)

図4 (1) アルカリ光電面、および (2) GaAsP 光電面よりなる光電子増倍管を用いた二光子顕微鏡 (LSM780, Carl Zeiss) での出力画像例。GFP、および mCherry にて標識した 2h8 細胞を撮像した。GaAsP 光電面の高い量子効率により、(2) では S/N の高い画像が取得できている*²。(Carl Zeiss 社、ならびに Cancer Research, London, UK の A. Bruchbauer 氏のご好意による。)

ので、蛍光の二次元分布を計測できる。ここで二光子励起は集光点でしか発生しないので、深さ方向の分解能がきわめて高い断面蛍光像を計測できる。さらに、高さを変えながら三次元像を取得することも可能である。このような二光子励起顕微鏡では、さまざまな理由から発生する光子数が制限される。そこで発生する蛍光の波長域で、感度の高い GaAsP 光電面を用いた光電子増倍管が使用される*²。図4に、(1) アルカリ光電面、および (2) GaAsP 光電面よりなる光電子増倍管を二光子励起顕微鏡 (LSM780, Carl Zeiss) に適用して取得された画像の一例を示す*²。(2) に示す GaAsP 光電面では量子効率が高いので、画像の S/N が改善されていることがわかる。

近赤外域では波長 1000 nm 以上で単一光子計測の要請がある。ところが、結晶光電面で NEA を実現できるのはバンドギャップ 1.1 eV 以上 (波長 1100 nm 以下) といわれるように、これ以上の長波長域の光子を受けて真空中に電子を取り出すことはきわめて難しい。これを実現するために InP/InGaAs 結晶、あるいは InP/InGaAsP 結晶の両端に電極を設け、結晶に電圧を印加して電子を加速し真空へ放出させるという手法が取られた^{1,2)}。このように設計製作された電界補助型光電面は、図5に分光感度を示すように 1.7 μm までの感度を有する。このように波長域を延ばすことで、太陽電池材料のフォトルミネセンスを計測し、材料の欠陥などを評価するといった領域にも光電子増倍管は

*² <http://www.zeiss.co.jp/C125694A004AE3CB?Opendatabase>

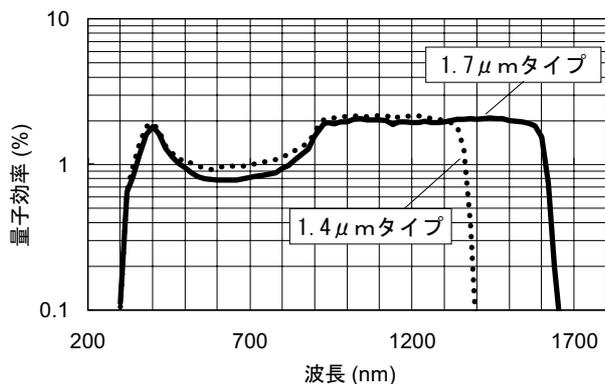


図5 波長 1.7 μm まで感度を有する電界補助型光電面の分光感度特性。

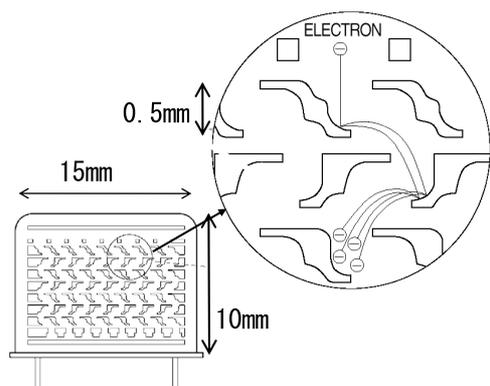


図6 メタルチャネルダイノードの断面模式図、およびこれを採用した光電子増倍管 (R9880U)。メタルチャネルダイノードは、エッチングによって電子増倍に適した形状に加工された板を積層してダイノードを形成している。

用途を広げている³⁾。

3. 電子増倍部 (ダイノード) の進展：薄型化・小型化

光電子増倍管は、ダイノードで電子を受けて二次電子を発生し、その二次電子を次々と増倍するという原理のため、図1のような形状が必然であり、結果として5 cm ほどの長さが必要となる。この長さは有効エリア 5 cm を超える光電子増倍管では許容されるものの、小さな有効エリアの光電子増倍管では小型化を阻む大きな要因となっていた。そこで薄い板をエッチングし、それを積層することによりダイノードを作製することが考案された⁴⁾。このようにして開発されたメタルチャネルダイノードの断面模式図、および、これを採用した当時世界最小の光電子増倍管 R9880U を図6に示す。その後メタルチャネルダイノードは構造や製法に改良が加えられ、フラットパネル PMT へと進化した^{*3)}。フラットパネル PMT は外形 (52×52 mm)



図7 メタルチャネルダイノードを内蔵した光電子増倍管の写真。左からフラットパネル PMT (H8500)、R9880U、および R7600U を示す。

に対して有効エリアが 49×49 mm と大きいので、隙間なく並べて使用する用途、例えば高エネルギー物理実験やポジトロン・エミッション・トモグラフィー (positron emission tomography, PET) などに向いている⁵⁾。図7には左からフラットパネル PMT (H8500)、R9880U、およびそれらの中間的なサイズとなる R7600U を示す。

フラットパネル PMT は上述のように広いエリアを隙間なくセンサーで覆うという応用に適するが、一方、計測装置を小型化したいというニーズの中で、光電子増倍管のさらなる小型化の要求もあった。このような要求に応えるため、ダイノード作製にシリコン微細加工技術を適用した μPMT が開発されている⁶⁾。 μPMT はシリコンドライエッチングを適用してダイノードを形成し、陽極接合などによりガラスプレートで上下をシールして真空領域を確保している。シリコンプロセスを適用するので、6 インチサイズで多数の μPMT を一度に作製するというように量産にも適している。製作された μPMT を図8に示す。外形寸法は 10(幅)×13(高さ)×2(厚さ, mm) であり、1×3.5(mm) のバイアルカリ光電面より放出された電子はダイノードで増倍されて出力される。この指先に乗るほどの光電子増倍管は、R9880U に比べて体積は 7 分の 1、重量は 9 分の 1 となり、現時点で世界最小である。他の光電子増倍管と同様に 10^6 のゲインが確認されており、2012 年秋に発売開始を予定している。この μPMT によって、今まで分析室に設置されていた各種大型分析装置はフィールドに持ち運べるほどに小型化されることが期待され、環境測定、在宅医療、農業現場、食品衛生などのさまざまな分野に寄与すると予想している。

*3 http://jp.hamamatsu.com/resources/products/etd/pdf/H8500_H10966_TPMH1327E02.pdf

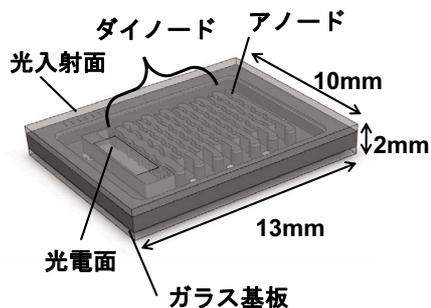
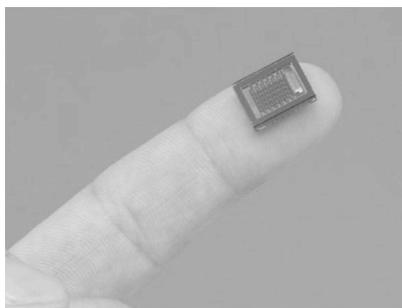


図8 作製された μ PMT. R9880U (図6) に比べて体積で7分の1, 重量で9分の1であり, 現時点で世界最小の光電子増倍管である.

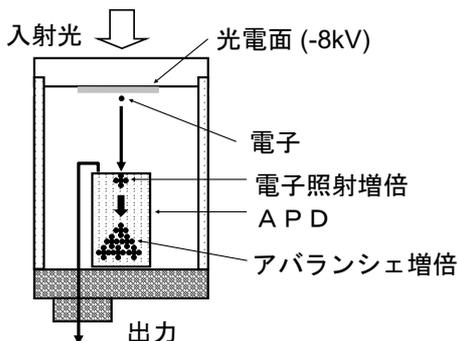


図9 HPDの構造. HPDは光電面より放出された電子を電子レンズによって加速, 収束してAPDに照射している. APD中では入射した電子がエネルギーを失う際に約1500倍のゲインを発生し, さらにアバランシェ増倍によって80倍ほどのゲインが追加されるので, トータルゲインは 10^5 ほどとなる.

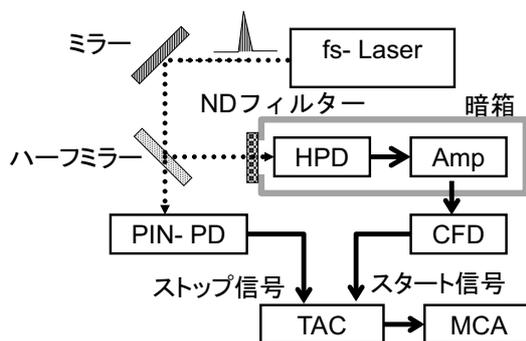


図10 時間相関単一光子計数法による測定系. HPDへの入射光を単一光子レベルまで減光した上で高速フォトダイオードからの信号との時間差を計測する. フェムト秒パルスを入射しているので, この系で得られる出力がHPDのタイミング分解能を示す.

4. 新たな増倍原理による単一光子検出: HPD

電子を加速して半導体素子に照射すると, 半導体素子内で電子が増倍するという現象がある. この増倍原理を利用して, 光電面から放出された電子を加速, 収束してシリコン・アバランシェフォトダイオード (silicon avalanche photodiode, Si-APD) に照射し, 単一光子計測を実現した新たな光センサーが開発されている^{7,8)}. このセンサーは真空技術と半導体技術を融合していることから, ハイブリッド・フォトディテクター (hybrid photo-detector, HPD, あるいは hybrid avalanche photo-diode, HAPD) とよばれている.

HPDは図9に構造を示すように, 光電面より放出された電子を電子レンズによって加速, 収束してAPDに照射している. ここで光電面に -8 kV の高電圧を印加しているのでAPDに入射する電子のエネルギーは 8 keV となり, この電子がエネルギーを失う際に約1500個の電子-正孔対, すなわちゲインを発生する. 発生した電子は, さらにアバランシェ増倍によって80倍ほどに増倍されるので, トータルゲインは 10^5 ほどとなる. これは光電子増倍管に比べて1~2桁低いゲインであるが, 現在の電子回路を用

いれば, 十分に単一光子を検出できる.

このように半導体素子中で電子増倍すると, 以下のような利点がある. ①初段の増倍率が高いので電子増倍のS/Nが高い, ②小さな半導体素子 (例えば有効径 1 mm) を用いると 1 GHz ほどの高速応答を実現できる, ③光電面から放出された電子のみが真空を飛行するのでイオンによるノイズの発生確率が低い. このような利点により, GaAsP光電面を搭載したHPDは, 二光子顕微鏡⁴⁾, 蛍光相関分光法⁹⁾, 時間相関単一光子計数法¹⁰⁾など, おもにバイオ分野に利用されている.

HPDの高速応答性を評価するために, 図10に示す時間相関単一光子計測法を適用した. 光源はチタンサファイヤよりなるフェムト秒パルスレーザーを用い, 分岐したビームの一方は単一光子レベルまで減光してHPDに導入した. また, 他のビームは減光せずに高速フォトダイオードに入射した. おおのこの信号はアンプで増幅した後にコンスタントフラクション・ディスクリミネーター (constant fraction discriminator, CFD) でタイミング信号に変換し, 時間振幅変換器 (time to amplitude converter, TAC) のス

^{*4} <http://www.leica-microsystems.com/jp/products/confocal-microscopes/details/product/leica-hyd/>

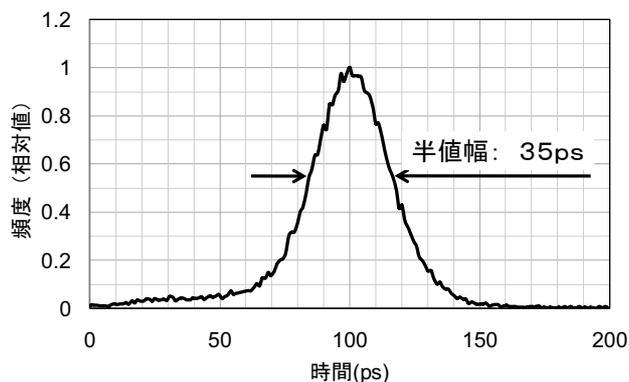


図 11 時間相関単一光子計数法で計測された HPD のタイミング分解能。横軸は HPD の出力とフォトダイオードとの時間差，縦軸は頻度を表す。

タート，およびストップ信号とした。TAC ではスタート，およびストップ信号の時間差を計測し電圧振幅として出力する。この出力をパルス波高アナライザ（pulse height analyzer, PHA）で集計し，横軸を出力振幅，縦軸を頻度として表した。入射エリアを直径 3 mm として計測した HPD の評価結果を図 11 に示す⁸⁾。ここで入射光のパルス幅は 50 fs と短く，デルタ関数とみなせるので，図 11 は HPD のタイミング分解能を示し半値幅で 35 ps であることがわかる。HPD の時間応答波形はライズタイム，フォールタイムがともに 400 ps であるが，時間相関単一光子計数法を用いると応答波形の 10 分の 1 ほどのタイミング分解能が得られたことになる。この方式では，回路系などの歪みの影響を受けることなく 10^4 を超える高いダイナミックレンジを得られることも特長である¹¹⁾。なお，実際の計測で HPD に入射するのは，短パルスレーザーで励起されたサンプルからの蛍光であり，これによりダイナミッ

クレンジが高く，また高い時間分解能で蛍光寿命を詳細に計測できる¹⁰⁾。

文 献

- 1) 神谷昭文, 中村公嗣, 新垣 実: “光電子放出デバイスによる極微弱光分光”, 分光研究, **52** (2003) 249-259.
- 2) M. Niigaki, T. Hirohata, T. Suzuki, H. Kan and T. Hiruma: “Field-assisted photoemission from InP/InGaAsP photocathode with p/n junction,” Appl. Phys. Lett., **71** (1997) 2493-2495.
- 3) B. M. Keyes, P. Dippo, J. AbuShama and R. Noufi: “Cu (In, Ga) Se₂ thin-film evolution during growth—A photoluminescence study,” *Conference Record of the 29th IEEE Photovoltaic Specialists Conference* (New Orleans, 2002) pp. 511-514.
- 4) H. Kyushima, Y. Hasegawa, A. Atsumi, K. Nagura, H. Yokota, M. Ito, J. Takeuchi, K. Oba, H. Matsuura and S. Suzuki: “Photomultiplier tube of new dynode configuration,” IEEE Trans. Nucl. Sci., **41** (1994) 725-729.
- 5) R. Pani, M. N. Cinti, R. Pellegrini, C. Trotta, G. Trotta, L. Montani, S. Ridolfi, F. Garibaldi, R. Scafé, N. Belcari and A. Del Guerra: “Evaluation of flat panel PMT for gamma ray imaging,” Nucl. Instr. Meth., **A504** (2003) 262-268.
- 6) 加納康平: “進化し続ける真空管—光電子増倍管—”, 応用物理, **81** (2012) 130-133.
- 7) M. Suyama, Y. Kawai, S. Kimura, N. Asakura, K. Hirano, Y. Hasegawa, T. Saito, T. Morita, M. Muramatsu and K. Yamamoto: “A compact hybrid photodetector,” IEEE Trans. Nucl. Sci., **NS-44** (1997) 985-989.
- 8) A. Fukasawa, J. Haba, A. Kageyama, H. Nakazawa and M. Suyama: “High speed HPD for photon counting,” IEEE Trans. Nucl. Sci., **NS-55** (2008) 758-762.
- 9) X. Michalet, A. Cheng, J. Antelman, M. Suyama, K. Arisaka and S. Weiss: “Hybrid photodetector for single-molecule spectroscopy and microscopy,” Proc. SPIE, **6862** (2008) 1-12.
- 10) W. Becker: *The bh TCSPC Handbook*, 4th ed. (Becker & Hickl, 2010) pp. 37-44.
- 11) H. Kume, K. Koyama, K. Nakatsugawa, S. Suzuki and D. Fatlowitz: “Ultrafast microchannel plate photomultipliers,” Appl. Opt., **27** (1988) 1170-1178.

(2012年5月10日受理)