

# 信号取得回路における ノイズの検討

---

大阪大学理学部物理学科

豊田研究室

石垣綾香

2016年3月

## 目次

第1章	はじめに.....	3
第2章	装置説明.....	5
2.1	イオン化部.....	5
2.2.1	飛行時間型 (time of flight 型 : TOF 型) .....	5
2.4	信号取得回路 .....	8
2.4.3	信号取得回路 .....	10
第3章	ノイズの原因の検討 .....	11
第4章	疑似信号発生装置の原理 .....	13
4.1	回路の構成.....	13
4.2	光電子増倍管 .....	14
4.3	LED (light emitting diode) .....	15
第5章	性能評価.....	17
第6章	まとめと今後の課題 .....	19
第7章	謝辞.....	20
第8章	参考文献.....	21

## 第1章 はじめに

質量分析 (mass spectrometry ; MS) とは, 質量分析装置を用いて物質をイオン化し, イオンの質量電荷比を測定する分析手法である. 我々のグループではマルチターン飛行時間型質量分析計を用いた2次イオン質量分析計 (secondary ion mass spectrometry ; SIMS) を開発した (図 1-1). この装置は試料が微量でも分析可能という特徴があり, 我々は SIMS を用いて同位体比測定を行うことを目指している.

SIMS を用いた同位体比測定では, 精密な同位体比を得るためには広いダイナミックレンジが必要である. また, 測定対象である同位体付近の質量範囲のみ測定すればよい.

一般に飛行時間型質量分析計では検出器に MCP (micro channel plate) が使用される. 出力信号は 0.5ns 程度の立ち上がり速度をもち非常に高速である. MCP からの出力信号を記録する方法としては, 主に次の2つが用いられる. 1つはアナログデジタル変換器 (analog-to-digital convertor ; ADC) を用いたアナログデータ解析である. MCP からの出力信号を変換するには数 MHz のサンプリングレートが必要だが, 高速 ADC はダイナミックレンジが小さく, 同位体比測定には適さない. また, データを積算していく過程でノイズも蓄積されるので, 同位体比測定の場合, 存在比が小さい同位体の信号がノイズに埋もれてしまう恐れがある. 2つめの方法はパルスカウント法である. 一定の強度以上の信号がきたとき, その時間を記録するデータ取得方法である. 信号の強度がノイズより有意に大きいとき, ノイズの除去が容易にできるという利点がある. しかし, 信号がきた時間しか記録しないので, 同時に複数の信号がきた場合でも信号が1つきた場合とを区別できない. よって, ADC を用いたアナログデータ収集法とパルスカウント法の両方の特徴を持つ信号取得システムが必要である.

先行研究において, 信号取得システムで得たデータは想定よりもノイズが大きい, 理論値と実際に信号が積分された値が大幅に異なるという問題があった. そこで, 本研究では信号取得システムのノイズの検討のため, 疑似信号発生装置を作成した.

本論文では, 2章で質量分析器と信号取得システムの原理説明, 3章でノイズの原因の検討, 4章で疑似信号発生装置の原理説明, 5章で性能評価, 6章でまとめと今後の課題について説明する.

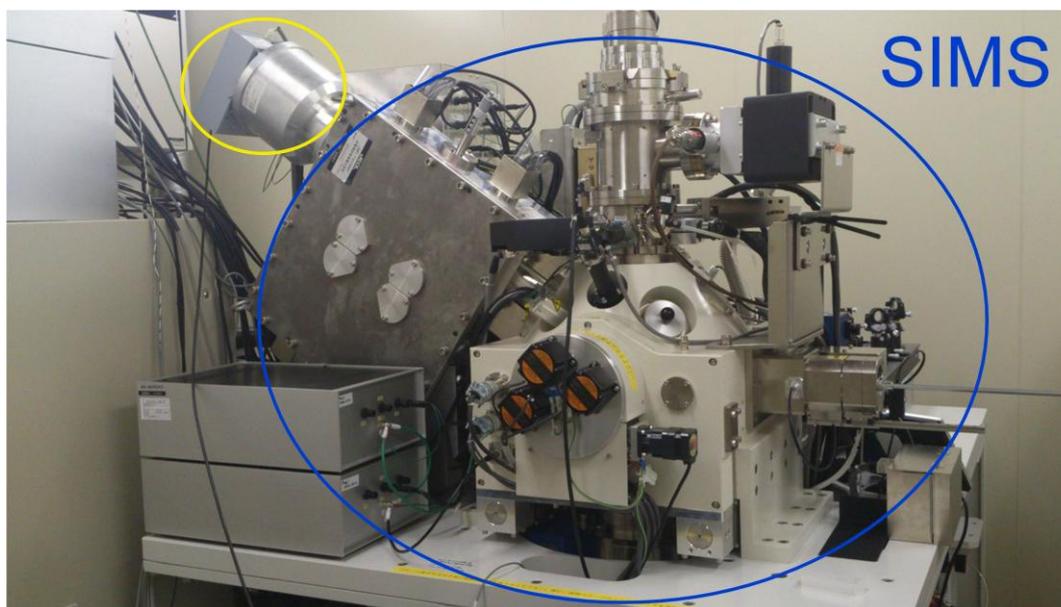


図 1.1 : MULTUM II を用いた SIMS

## 第2章 装置説明

質量分析装置はイオン化部, 質量分離部, 検出器で構成されている.

### 2.1 イオン化部

本論文では2次イオン質量分析計を用いた. 測定したい試料に1次イオンを照射する. 1次イオンビームの数100~数10keVのエネルギーによって試料表面がスパッタされ, 試料が中性粒子となって空間中に遊離する. 中性粒子にレーザーを照射しイオン化する(2次イオン).

### 2.2 質量分離部

本論文ではマルチターン飛行時間型の質量分離部である MULTUM II を用いた. MULTUM II は本研究室で開発され, 1200 回周回させたときの質量分解能が 250000 を達成した.

#### 2.2.1 飛行時間型 (time of flight 型 : TOF 型)

イオン源でイオン化された  $z$  価のイオンはパルス電圧  $V$  によって加速される. 距離  $L$  飛行し検出器に到達する. 初期速度が0のとき, イオンの飛行速度  $v$  は以下のように表される.

$$\frac{1}{2}mv^2 = zeV \quad (2.1)$$

$$v = \sqrt{\frac{2zeV}{m}} \quad (2.2)$$

これより, 質量の大きいイオンほど飛行速度が速いことがわかる. さらに, イオンの飛行時間  $T$  は,

$$T = L\sqrt{\frac{m}{2zeV}} \quad (2.3)$$

となり, 質量電荷比  $m/z$  に依存する. したがって, 飛行時間型の質量分離部では飛行時間  $t$  をから質量電荷比  $m/z$  を求めることができる.

図 2.1 は飛行時間型の質量分離部の模式図である.

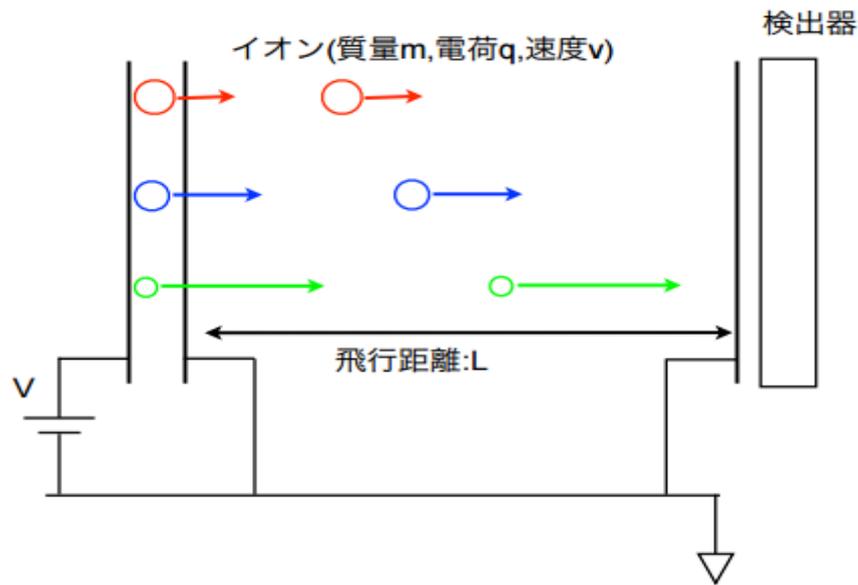


図 2.1 : TOF 型質量分離部の模式図

### 2.2.2 マルチターン飛行時間型質量分計

質量分解能とは、近接するピークを互い分離する能力であり、質量分析器の能力を表す指標の一つである。例えば質量分解能が 100 のとき、 $m/z$  が 100 と 101 のピークを分離できる。

飛行時間型の質量分解能  $R$  は、あるピークの質量電荷比が  $m$  であり、その半値幅が  $\Delta m$  のとき次のように表される。

$$R = \frac{m}{\Delta m} \quad (2.4)$$

TOF 型で実際に得られるデータは飛行時間なので、式(2.3)より時間の式に直すと次のようになる。

$$R = \frac{T}{2\Delta T} \quad (2.5)$$

したがって、分解能の向上を目指す場合、飛行時間  $T$  を大きくするか  $\Delta T$  を小さくしなければならない。現状、 $\Delta T$  を小さくしても検出器などほかの要素によりそれほどの効果は得られない。一方、飛行時間  $T$  を大きくするには飛行距離  $L$  を大きくするか、パルス電圧  $V$  を小さくする。しかし、電圧  $V$  を小さくすると検出感度が低下してしまう。よって、飛行距離  $L$  を大きくすることで分解能の向上を目指す必要がある。

マルチターン飛行時間型質量分析計は、イオンを同一軌道上で周回させることによって飛行距離を長くし、質量分解能を向上させることが可能である。本研究室では、完全時間、

空間収束の光学系であり、イオンを多重周回させても検出感度の低下を抑えることができる MULTUM を開発した。これによって装置を巨大化せずに飛行距離を長くすることに成功した。

図 2.3 は MULTUM-S II の内部の写真である。図中の矢印のように、8 の字型に周回する。

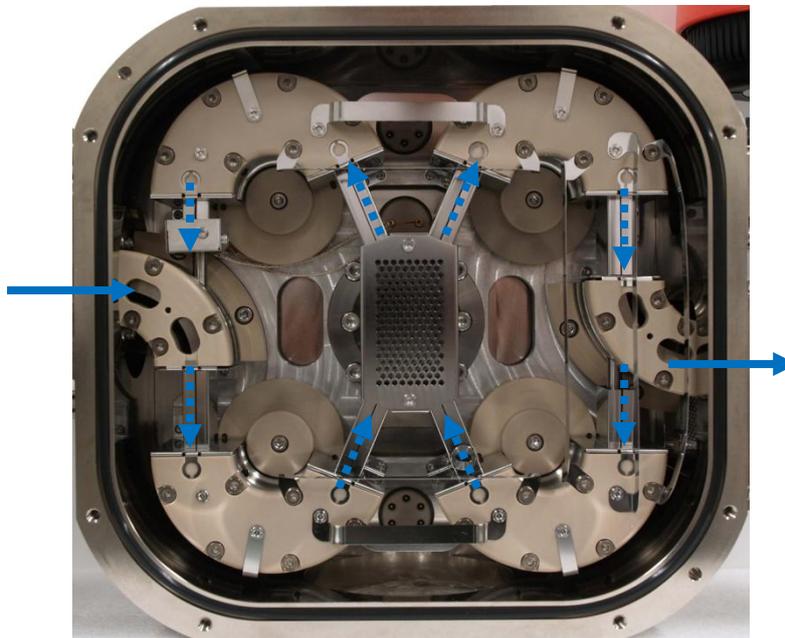


図 2.2 : MULTUM-S II の内部

### 2.3 検出器

通常、飛行時間型質量分析計では MCP (micro channel plate) が使用される。MCP は内径  $6\sim 20\mu\text{m}$  のガラスキャピラリ多数を束ねた構造をしており、1つ1つのキャピラリが二次電子増倍器になっている。入射した粒子がキャピラリの壁面に衝突すると、1つ以上の二次粒子が放出される。二次電子が再び壁面に衝突し、最終的に1枚の MCP で  $10^3 \sim 10^6$  倍程度に粒子数が増幅される。

図 2.3 は MCP の構造と増倍原理を表したものである。

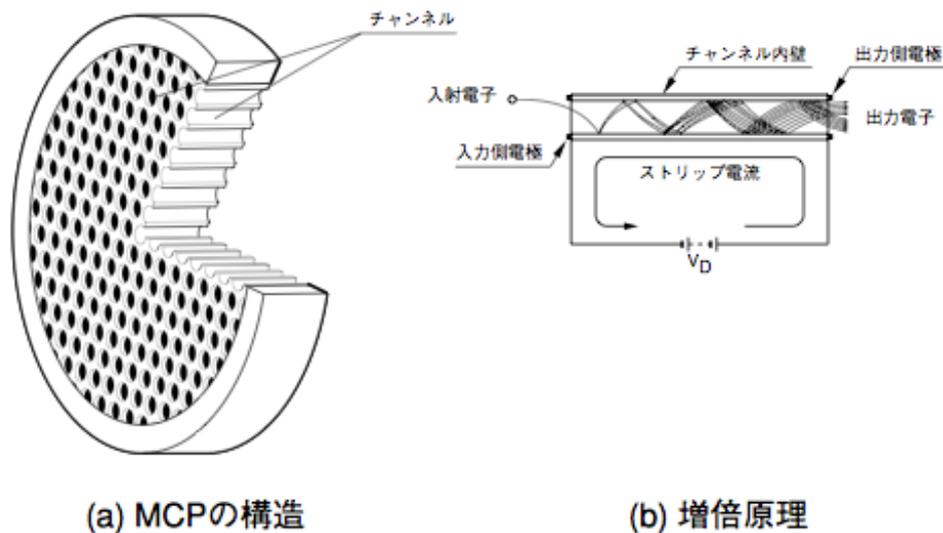


図 2.3 : MCP の全体図と増倍部の構造 [1]

## 2.4 信号取得回路

本研究室ではSIMSを用いた同位体比測定を目指している。第1章で述べたように、この測定のデータを取得するためには数GHz程度のサンプリングレートと3桁から5桁のダイナミックレンジの両方が必要である。

これより、先行研究 [2] において、上記の条件を満たす、アナログスイッチと積分回路を組み合わせた信号取得システムが開発された。

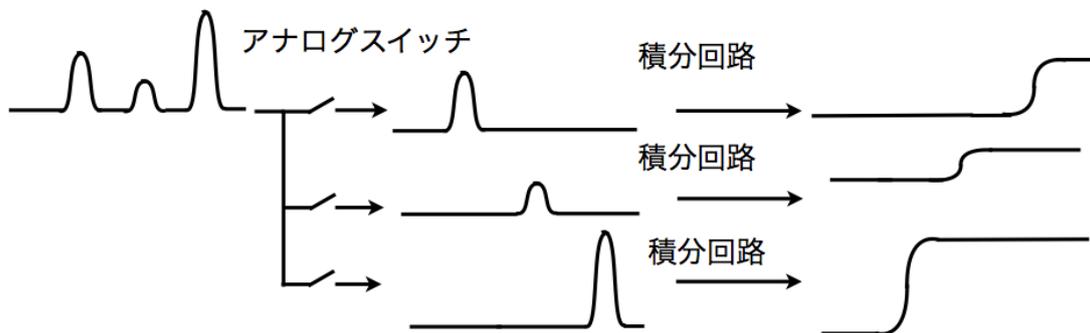


図 2.4 : 信号取得回路における信号ピークの流れ

### 2.4.1 アナログスイッチ回路

検出器の信号から測定するピークを分岐するためにアナログスイッチを用いる。アナログスイッチとは制御信号によってON, OFFを切り替え、スイッチの開閉を行うことができ

る素子である。測定したいピークが来たときのみスイッチを ON にすることによって後の積分回路に測定したいピークのみを入力する。

図 2.4 はアナログスイッチ部分の回路図である。

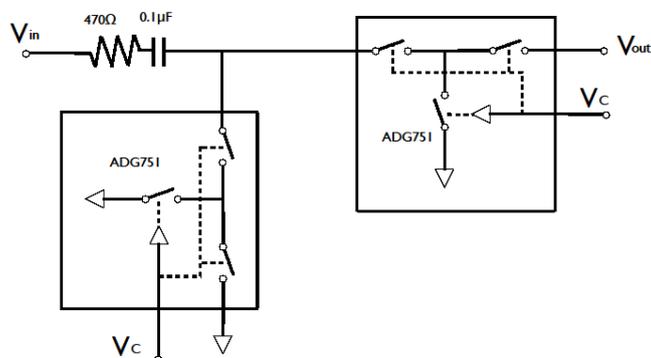


図 2.5 : アナログスイッチ部の回路図

今回用いたアナログスイッチは、アナログデバイゼズ社の CMOS アナログスイッチ ADG751 である。ADG751 は制御信号が +V<sub>dd</sub> のときはスイッチが OFF, GROUND のときはスイッチが ON になる。オフ・アイソレーション -75dB, 帯域幅 300MHz, オン抵抗 15Ω, スイッチング時間  $t_{on} 9ns$ , リーク電流  $\pm 0.01nA$  である。

## 2.4.2 積分回路

積分回路とは抵抗を通して入力された電圧を積分した値に比例した電圧を出力することができる回路である。図 2.6 が積分回路の回路図である。つまり、電荷量に比例した電圧を出力する。入力電圧を  $V_{in}$ , 電流を  $I$ , コンデンサの静電容量を  $C$  とすると、出力電圧  $V_{out}$  は、

$$V_{out} = -\frac{1}{C} \int_0^t I dt \quad (2.6)$$

となる。オペアンプのマイナス端子とプラス端子は仮想的に短絡されており、図 2.6 より電位は 0 である。よって、

$$I = \frac{V_{in}}{R} \quad (2.7)$$

を式(2.6)に代入すると、

$$V_{out} = -\frac{1}{CR} \int_0^t V_{in} dt \quad (2.8)$$

となり、入力信号の電圧を積分した値に比例した電圧を出力することが分かる。

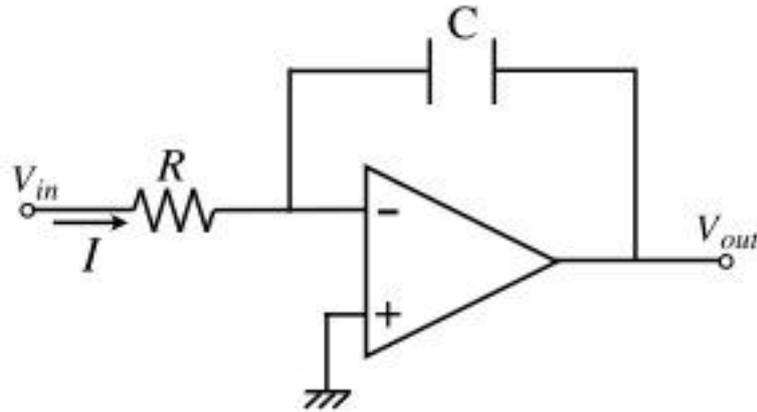


図 2.6 : 積分回路

今回はピークの幅を広げるため、積分回路の前段にもう一段積分回路を設置している。1 段目の積分回路で入力されるピークの幅を広げ、2 段目の積分回路で積分結果を保持し読み取りを行っている。

### 2.4.3 信号取得回路

信号取得回路の全体図が図 2.7 で示されている。この回路によってサンプリングレートが遅くダイナミックレンジが広い高分解能 ADC を用いてデータの取得が可能になる。

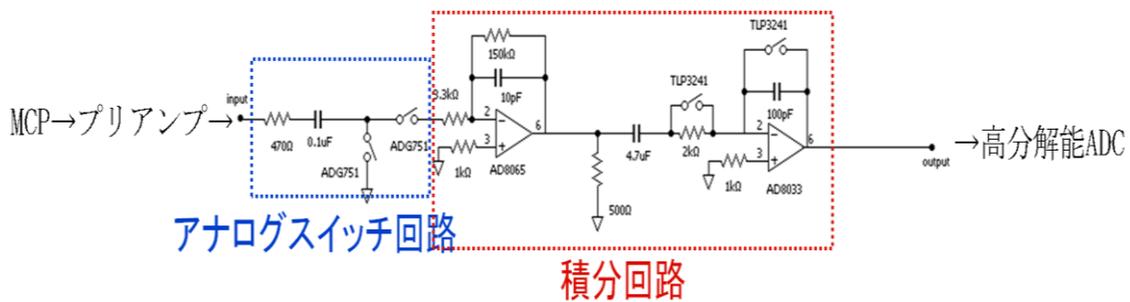


図 2.7 : 信号取得回路

### 第3章 ノイズの原因の検討

この章では、先行研究で作成された信号取得回路のノイズについて説明する。

先行研究において、信号取得回路を用いて $^{206}\text{Pb}$ を測定した結果が図3.1である。信号取得システムを用いて取得したデータを50万点分積算した。左側のピークがノイズである。このノイズについて検討した。

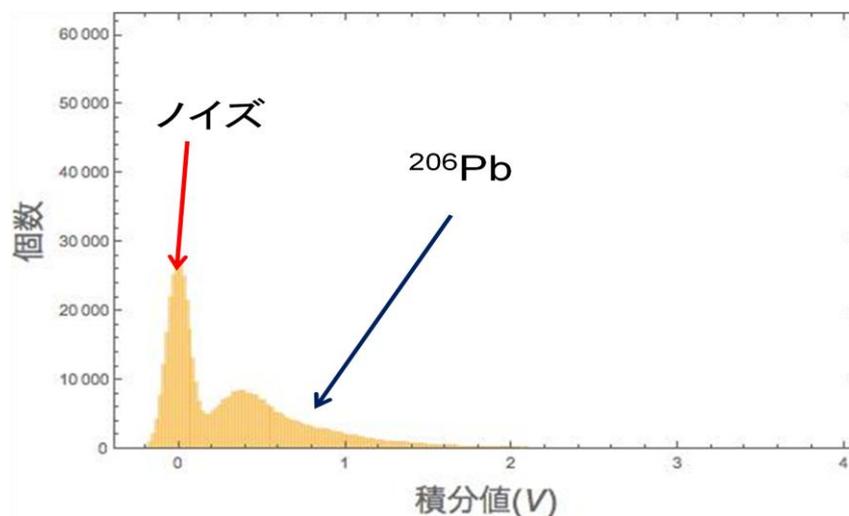


図 3.1 : 信号取得回路で測定された $^{206}\text{Pb}$

信号取得回路で測定する際、MCPとプリアンプの間に図3.2の回路が設置されている。この回路の抵抗による熱雑音が測定結果のノイズの原因として現れると考えた。

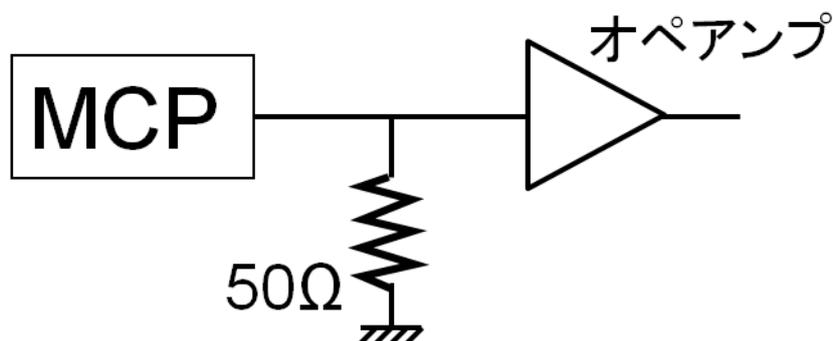


図 3.2 : ノイズの原因と考えられる回路

抵抗で発生する熱雑音の電流値はジョンソン・ナイキスト・ノイズの式で求められる。

$$I_n = \sqrt{\frac{4k_B T \Delta f}{R}} \quad (3.1)$$

ボルツマン定数 $k_B = 1.380 \times 10^{-23} [\text{J}\cdot\text{K}^{-1}]$ 、絶対温度  $T=300[\text{K}]$ 、抵抗は図 3.1 より  $R=50[\Omega]$  を用いる。

アナログスイッチ ON の幅が  $\tau = 100\text{ns}$  なので、周波数は  $f = 1/\tau = 10^7[\text{Hz}]$ .

サンプリング定理より、周波数の  $\frac{1}{2}$  の帯域幅に測定したい波形が存在する.

よって、式(3.1)に代入する帯域幅は  $\Delta f = \frac{1}{2\tau}[\text{Hz}]$  である.

以上より、図 3.1 の抵抗で発生するノイズの電流値は

$$I_n = \sqrt{\frac{4k_B T \frac{1}{2\tau}}{R}} \quad (3.2)$$

$$I_n = \sqrt{\frac{4 \times 1.380 \times 10^{-23} \times 300 \times \frac{1}{2 \times 100 \times 10^{-9}}}{50}} \quad (3.3)$$

$$I_n = \sqrt{16.56 \times 10^{-16}} \quad (3.4)$$

$$I_n = 4.07 \times 10^{-8} \quad (3.5)$$

となる.

これより、発生するノイズの電荷量[C]は、以下の式で表せる.

$$Q = I_n \times \tau = 4.07 \times 10^{-15} \quad (3.6)$$

ところで、MCP2枚の増幅率は $10^6$ なので、1個の荷電粒子がMCPに入射したときの出力信号の電荷量  $Q'[\text{C}]$ は、増幅率×電気素量で以下のように求められる.

$$Q' = 10^6 \times 1.602 \times 10^{-19} = 1.60 \times 10^{-13} \quad (3.7)$$

式(3.3), (3.4)より、 $Q$  と  $Q'$  を比較すると、ノイズより測定したい荷電粒子の信号のほうが2桁程度大きい. よって、測定結果として得られる積分値も2桁程度大きくなるはずである.

しかし、図 3.1 を見ると  $^{206}\text{Pb}$  の積分値はノイズの積分値の約3倍となっており、計算と解離している.

また、第2章 2.4.2 より、電荷量に比例した電圧が出力されるはずだが、異なっている.

これらを検証するため、疑似信号発生装置を作成した.

## 第4章 疑似信号発生装置の原理

信号取得回路の検討のためには、TOF 型質量分析計の出力信号と同種の疑似信号を発生させる必要がある。つまり、高速電荷パルス源である必要がある。そのために LED から出るとごく少数の光子を光電子増倍管で増幅することによって、散発的に信号を発生させることにした。

### 4.1 回路の構成

図 4.1 は疑似信号発生装置の全体図である。LED から出るとごく少数の光子を PMT に入射させ、PMT から散発的に信号が出力されるようにする。

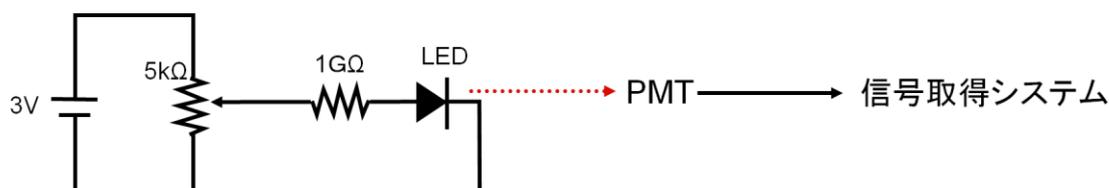


図 4.1 : 疑似信号発生装置の全体図

パルス幅が数 10ns の疑似信号を得たいので、PMT から出力される信号の電子数  $n_{out}$  を  $10^6$  個/s 程度にしたい。

図 4.2 は LED に電流が流れてから PMT で電子が発生するまでの過程のイメージ図である。LED に流れ込む電流を  $I$ 、LED に流れた電子の発光に寄与する効率を  $\alpha_\gamma$ 、発光した光子の PMT の光電面への入射効率を  $\alpha_\Omega$ 、PMT の光電面の量子効率を  $\alpha_q$  とする。

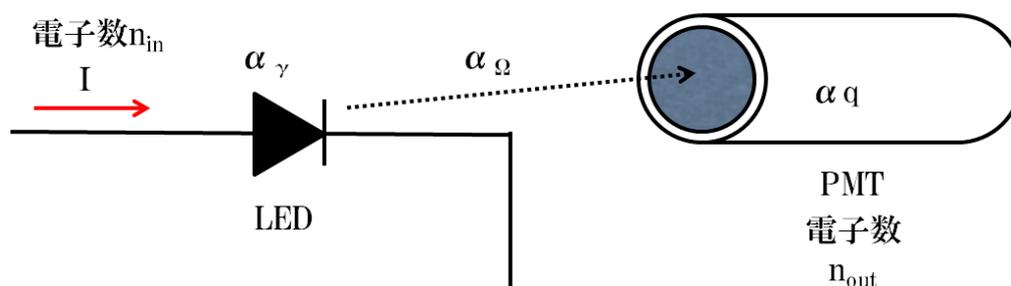


図 4.2 : LED に流れ込む電流が PMT で出力されるまでのイメージ図

$\alpha_\gamma = \alpha_\Omega = 1/10$  と仮定する。

PMT のデータシートより、 $\alpha_q = 1/10$  である。

LED に 1 秒あたりに流れ込む電子の数を  $n_{in}$  [個/s] とすると、電気素量  $e$  [C] を用いて以下の計算で求められる。

$$n_{in} = \frac{I}{e} \quad (4.1)$$

したがって、次の式が成り立つ。

$$n_{in} \times \alpha_{\gamma} \times \alpha_{\Omega} \times \alpha_q = n_{out} \quad (4.2)$$

式(4.2)より、LED に以上あたりに流れ込む電子の数 $n_{in}$ は、

$$n_{in} \times \frac{1}{1000} \propto 10^6 \quad (4.3)$$

$$n_{in} \propto 10^9 \quad (4.4)$$

となり、LED に流れる電流の大きさ  $I[A]$ は、

$$I = n_{in} \times 1.602 \times 10^{-19} \propto 10^{-10} \quad (4.5)$$

が望ましい。

したがって LED の直前に設置する抵抗の大きさは  $1G\Omega$ にした。

#### 4.2 光電子増倍管

光電子増倍管 (photomultiplier tube ; PMT) とは、光電効果によって光子を電子に変化し、その電子を増倍し出力する装置である。入射面、光電面、集束電極、電子増倍部、陽極によって構成されている。

図 4.2 は PMT の構造を表している。

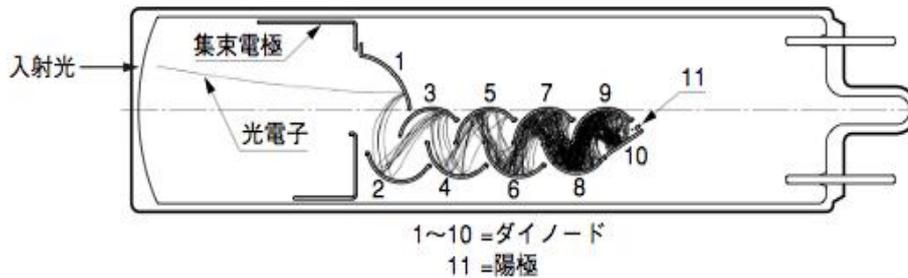


図 4.3 : PMT の構造 [1]

電子増倍部の動作原理は MCP の動作原理と同じなので、MCP からの出力信号と同種の信号が得られる。また、MCP は真空中で動作させ、入射させる荷電粒子が必要であるが、PMT は大気中で使用可能であり、入射させるのは光でよいので測定が容易である。

今回用いた PMT は浜松ホトニクス社の R12421 である。直径は 13.5mm、ガラス管部分の長さは 43mm である。波長域は 300~650nm、ピーク波長 $\lambda_{peak} = 420nm$ 、ゲインは  $2.0 \times 10^6$ である。ダイノードは liner-focused 型である。図は PMT にソケットアセンブリをセットした状態の写真である。ソケットアセンブリは浜松ホトニクス社の E849-99 を使用した。



図 4.4 : PMT とソケットアセンブリ

#### 4.3 LED (light emitting diode)

PMT に入射させる光源として LED を使用した. 今回使用したのは Kingbright 社の L-53SGC. 色は GaP による SUPER BRIGHT GREEN, ピーク波長は  $\lambda_{\text{peak}} = 565\text{nm}$ , 順方向電圧  $V_F = 2.2\text{V}$  である.



図 4.5 : LED

図は疑似信号発生装置の全体写真である. 下部のダイヤルで可変抵抗を調節し LED に流す電流の大きさを調節する.

図 4.5 は疑似信号発生装置の全体写真である. 可変抵抗 (図 4.5 の下部の青い素子) を用いて LED に流れる電流値を制御している. 実際に使用する際は上から蓋を閉め, 暗幕に包み使用する.

今論文では外箱が紙製で, 遮光性に不安があったため, 基板上的 LED と PMT の先端 (光電面) を紙製の筒で覆い, 2 重に遮蔽した. また, 箱の側面 3 か所に配線などの都合で穴をあけているが, そこから光が入り込まないように, 黒いビニールテープを用いて弁を作成した.



图 4.6 : 疑似信号发生装置

## 第5章 性能評価

第4章で説明した疑似信号発生装置の出力をオシロスコープで確認したところ、LEDが発光していなかった。

原因として、LEDに電圧をかけた際、LED内部を流れる電流の大部分が再結合電流であることが考えられた。

LEDに電圧をかけると内部で再結合電流と拡散電流が発生する。再結合電流とは空乏層内の再結合準位を通して、p型層のホールとn型層の電子が再結合して電流として流れるものであり、この場合はLEDはほとんど発光しない。一方、拡散電流とは順バイアスによって空乏層にできる電位障壁が弱められて、p型層のホールがn型層に、n型層の電子がp型層にそれぞれ注入されることで流れる電流であり、このときLEDは発光する。

図5.1, 図5.2はそれぞれ再結合電流と拡散電流のイメージである。

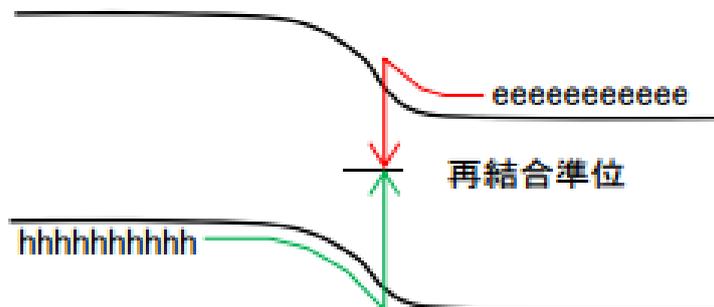


図 5.1 : 再結合電流発生イメージ図

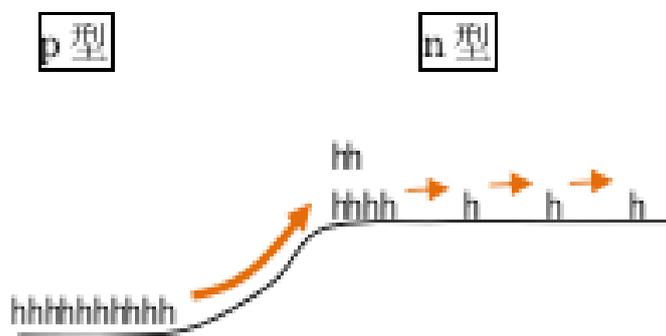


図 5.2 : 拡散電流発生イメージ図

図5.3のように、LEDにかかる順電圧が小さいとき再結合電流が支配的になり、順電圧が大ききときは拡散電流が支配的になる。

pn接合を流れる電流は以下の式で表される。

$$I \propto \left( \frac{qV}{nkT} \right) \quad (5.1)$$

ただし、再結合電流が支配的なとき  $n = 2$ , 拡散電流が支配的なとき  $n = 1$ .

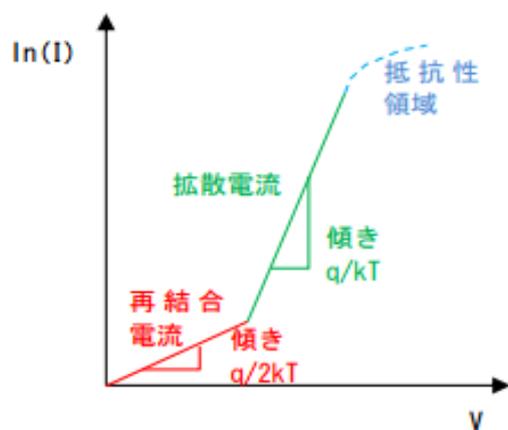


図 5.3 : LED にかかる電圧と LED 内部を流れる電流の関係

したがって、LED にかかる電圧を大きくするため第章図の抵抗の大きさを  $1G\Omega$  から  $1M\Omega$  に変更した。その結果、LED が発光した。

オシロスコープで観察した疑似信号発生装置からの出力信号が図 5.4 である。信号のピーク幅が数 ns 程度であり、目的の高速パルスが得られた。

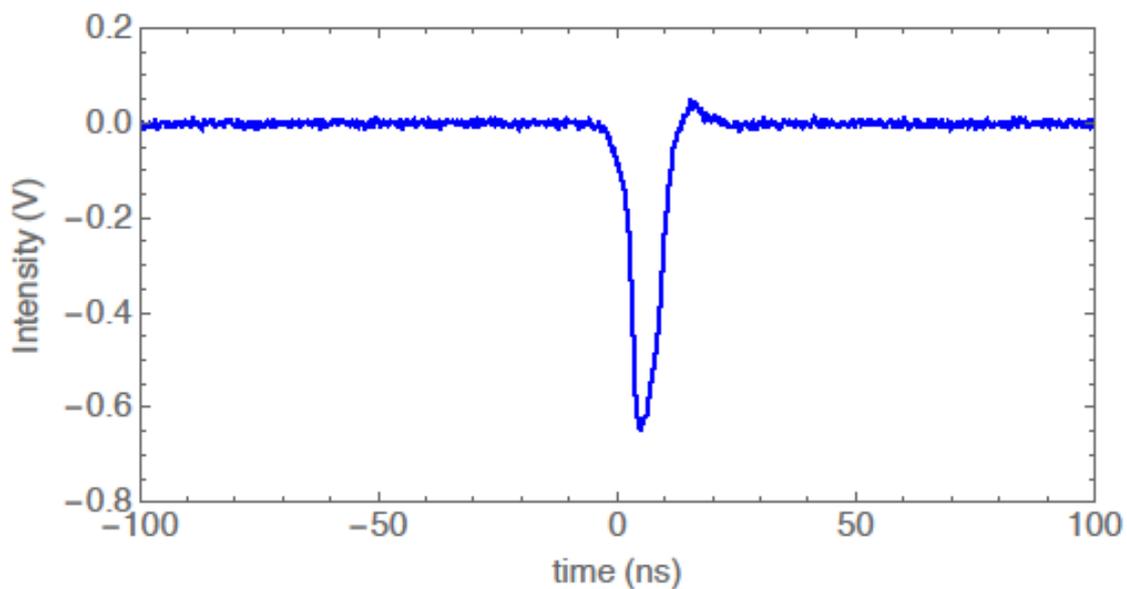


図 5.4 : 疑似信号発生装置からの出力信号

## 第6章 まとめと今後の課題

- ・ 先行研究で作成された信号取得回路はノイズの大きさが理論値と異っており、ノイズの検討のため疑似信号発生装置を作成した。
- ・ LED に流れ込む電流値が小さすぎると、LED 内部で再結合電流が支配的になり、LED が発光しないことが分かった。
- ・ 疑似信号発生装置から高速パルスが得られることを確認した。
- ・ PMT への光の入射頻度が安定せず、信号が連続的に出力される場合もある。
- ・ 現在 LED を流れる電流を可変抵抗で制御しているが、電流が小さいので制御が難しい。今後は LED と PMT の距離を離し立体角を小さくすることによって光子の PMT への入射頻度を制御する。

## 第7章 謝辞

本研究をすすめるにあたってご協力いただいた皆様に心よりお礼申し上げます。豊田岐聡先生には、この研究のテーマを提案していただき、研究全般に対する多くのご指導をいただきました。石原 盛男先生には、指導教官として、質量分析の基礎から論文作成に至るまで終始丁寧にご指導を賜りました。研究室の皆さまには研究生活でお世話になりました。

## 第8章 参考文献

- [1] [https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/PMT\\_handbook\\_v3aJ.pdf](https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/PMT_handbook_v3aJ.pdf).
- [2] 日野裕太. “積分回路を用いた質量分析計用信号取得回路の開発.” 修士論文, 2015.