

激光与光电子学进展

超导单光子探测器在生物领域中的应用进展(特邀)

吕超林^{1†}, 尤立星^{1,2*†}, 覃俭¹, 徐光照¹, 蒋燕阳¹, 史经浩¹¹赋同量子科技(浙江)有限公司, 浙江 嘉兴 314100;²中国科学院上海微系统与信息技术研究所集成电路材料全国重点实验室, 上海 200050

摘要 自 2001 年被发明以来, 超导纳米线单光子探测器(SNSPD)迅速成长为近红外波段的明星光子探测器, 其在近红外波段如 1550 nm 处系统探测效率超过 95%, 暗计数率低于 1 cps(counts per second), 时间抖动优于 10 ps, 探测速率高于 1 GHz, 并广泛应用于量子信息领域。近年来, 研究人员开始将 SNSPD 引入到生物领域, 以替代在近红外波段具有低信噪比、多后脉冲的半导体单光子探测器。本文将介绍 SNSPD 的探测原理和性能指标, 并系统地阐述 SNSPD 在生物领域中的应用现状和发展前景。

关键词 超导纳米线单光子探测器; 共聚焦显微镜; 单线态氧检测; 漫反射光谱; 荧光寿命成像

中图分类号 O436

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP232429

Superconducting Single-Photon Detector and Its Applications in Biology (Invited)

Lü Chaolin^{1†}, You Lixing^{1,2*†}, Qin Jian¹, Xu Guangzhao¹, Jiang Yanyang¹, Shi Jinghao¹¹Photon Technology (Zhejiang) Co., Ltd., Jiaxing 314100, Zhejiang, China;²National Key Laboratory of Materials for Integrated Circuits, Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China

Abstract Since its invention in 2001, superconducting nanowire single-photon detector (SNSPD) has rapidly grown into a star photon detector in the near-infrared band. Up to date, its system detection efficiency has exceeded 95% at the wavelength of 1550 nm, dark count rate less than 1 cps (counts per second), timing jitter better than 10 ps, detection rate higher than 1 GHz, and it is widely used in the field of quantum information. Recently, limited by the low signal-to-noise ratio and afterpulsing of semiconductor single-photon detectors in the near-infrared band, researchers began to introduce SNSPDs into biology. This article introduces the detection principle and performance of SNSPD, and review the application status and development prospects of SNSPD in the field of biology.

Key words superconducting nanowire single-photon detector; confocal microscope; singlet oxygen detection; diffuse correlation spectroscopy; fluorescence lifetime imaging microscopy

1 引言

近年来, 超导纳米线单光子探测器(SNSPD)的发展令人振奋, 其核心性能已全面超越传统的半导体单光子探测器, 如光电倍增管(PMT)和雪崩光电二极管(SPAD)等, 在很多前沿研究领域特别是在量子信息领域中得到了广泛应用。虽然低温的使用和相对较高的成本在一定程度上限制了其大规模应用的可行性, 但是在科研机构 and 商业化公司持续不断的努力推动下, 其系统成本在不断降低, 操控性和人机交互页面友

好化, 使得越来越多的弱光探测领域如生物成像、激光雷达、集成电路检测、深空激光通信等, 也开始逐步尝试使用 SNSPD, 以进一步提高应用系统性能。

在此背景下, 本文从 SNSPD 的发展历程出发, 围绕 SNSPD 的探测原理, 介绍 SNSPD 的重要性能参数。着眼于 SNSPD 在生物领域的应用案例, 重点总结共聚焦显微镜、荧光寿命成像、荧光相关光谱测量、单线态氧检测、漫反射光谱等相关应用的最新进展, 并对生物成像应用需求驱动下的 SNSPD 发展趋势进行展望。

收稿日期: 2023-11-02; 修回日期: 2023-11-17; 录用日期: 2023-11-27; 网络首发日期: 2023-12-07

基金项目: 浙江省级重点研发计划(2021C01188)

通信作者: *cllv@cnphotec.com; **lxyou@mail.sim.ac.cn

† 共同第一作者

2 SNSPD 的发展与研究现状

1911 年,荷兰科学家 Onnes 发现纯汞在温度低于 4.2 K 时,其电阻突然降到 0,并将这种新奇状态命名为超导态。零电阻是当材料温度低于某个临界温度时,材料里的自由电子不再互相排斥,而是在晶格的作用下两两配对(Cooper pair,库珀对),形成的一种特殊凝聚态。超导体也存在能隙,常见低温超导材料如 Nb、NbN、NbTiN、MoSi、WSi 等,能隙均在 meV 量级,相比近红外波段光子能量(~ 1 eV 左右)低接近 3 个数量级。1971 年,激光首次用于超导实验研究,被用来破坏铅薄膜的超导电性导致电阻态的出现,且无法用简单的热效应解释^[1]。1996 年,Kadin 等^[2]提出一种新型的光子探测机制:当光子照射在超薄金属薄膜上时,对于 1 eV 能量的光子,在纳米空间尺度和皮秒时间尺度上激发的非平衡弛豫态中,瞬态温升可以达到 10 K 或更高,进而引起金属薄膜电阻发生变化。2001 年,Gol'tsman 等^[3]制备出宽度为 200 nm、厚度为 5 nm 的 NbN 超导纳米线,率先验证了 810 nm 波段的单光子探测能力,并展现了其低暗计数率、高计数率、低抖动等潜在优势,这就是超导纳米线单光子探测器的最初形态。

2003 年左右,SNSPD 的低暗计数率、无后脉冲、

极低抖动等独特性能和高探测效率、高计数率等潜在性能率先引起了 20 世纪末兴起的量子信息领域的青睐,随后蓬勃发展的量子信息领域进一步引发了 SNSPD 的研究热潮和性能快速迭代。目前国际上有 20 余家 SNSPD 研究单位,国外有:美国的麻省理工学院、国家标准与技术研究所、喷气动力实验室、耶鲁大学;日本的国立情报与通信研究所;俄罗斯的莫斯科师范大学;荷兰的代尔夫特理工大学;瑞士的日内瓦大学;英国格拉斯哥大学等。国内的研究单位包括中国科学院上海微系统与信息技术研究所(简称上海微系统所)、南京大学、天津大学等。在产业化方面,SNSPD 也呈现出较好的发展态势,目前全球已经出现 7 家以 SNSPD 为核心产品的中小型高科技公司,包括 Photon Spot(美国)、Quantum Opus(美国)、Scontel(俄罗斯)、Single Quantum(荷兰)、ID Quantique(瑞士)、Pixel Photonics(德国)和赋同量子(PHOTEC,中国),表 1 列出部分生产商的 SNSPD 产品性能参数。可以看出,在核心性能指标方面,SNSPD 在近红外波段已经远超半导体同行,其系统探测效率超过 95%@1550 nm^[4],暗计数率低至 1 cps(counts per second)以下^[5],时间抖动优于 20 ps^[6],计数率高于 1 GHz^[7]等。据不完全统计,截至 2023 年,全球 SNSPD 探测系统累计出货量接近 1000 台套^[8]。

表 1 全球 SNSPD 生产商 SNSPD 产品一览
Table 1 Performance of global SNSPD companies

Parameter	Quantum Opus	Single Quantum	Photon Spot	Scontel	ID Quantique	PHOTEC
Detection efficiency / %	90%	90%	95%	90%	95%	95%
Dark count rate / cps	<100	<100	<100	~ 1	<100	~ 1
Maximin count rate / MHz	100	600	100	100	100	~ 1000
Timing jitter / ps	20	15	50	50	20	20

Note: the parameters in the table are all optimal and cannot be achieved simultaneously.

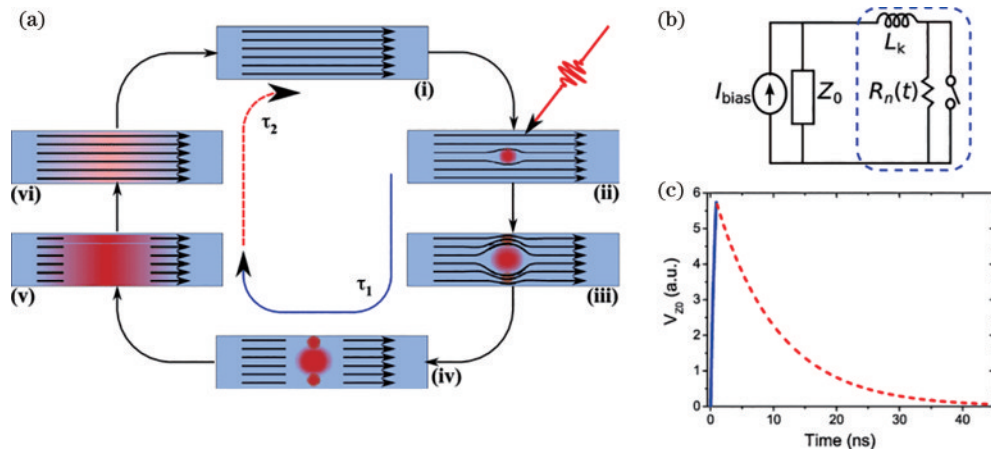
3 SNSPD 的探测原理和核心性能参数

3.1 SNSPD 探测原理

SNSPD 一般是由一根超薄、超细的纳米线条蜿蜒曲折构成,其典型厚度在 5~10 nm 之间,与超导 Ginzburg-Landau 相干长度相当,典型宽度在 50~100 nm 之间,是厚度的 10 倍或以上,从几何上可以描述成一个准二维系统,从电路结构上可以描述为一个动态电感 L_k 和一个时变电阻 $R_n(t)$ 的串联,如图 1(b) 所示。SNSPD 主要是基于光子破坏超导库珀对进而使得器件从超导态跳变到正常态实现光子探测,研究人员先后提出了多种光子探测机理模型,主要有热点模型、扩散热点模型、涡旋成核模型、涡旋穿越模型、超导相位滑移模型等,但迄今为止没有哪一种单一的模型能解释所有的实验现象^[9]。本文主要介绍最为经典和通俗易懂的唯象模型——热点模型^[10]。

如图 1(a) 所示,首先给处于超导态的纳米线提供

恒定的偏置电流,准备探测光子(i)。当光子被超导纳米线吸收时,部分库珀对吸收光子能量后被拆散,并在吸收局域位置形成一个初始的正常导通区域,称为“热点”(ii)。然后“热点”在焦耳热的作用下快速增长,直到横跨整根纳米线,纳米线局部转变到正常态,形成 k Ω 量级的大电阻[(iii)和(iv)]。然后,纳米线中的电流迅速流向图 1(b) 中的负载 Z_0 导致纳米线电流显著减小,焦耳热和“热点”也随之减小直到消失,超导纳米线恢复到超导态[(v)和(vi)]。之后纳米线中的电流在电感 L_k 作用下逐渐恢复到初始值,并准备下一个光子的探测(i)。上述光电转换过程在外电路中便生成图 1(c) 中的类双指数形状的电脉冲,图 1(a) 中的 τ_1 和 τ_2 分别代表图 1(c) 中上升沿和下降沿的特征时间。而且,光电转换过程中 SNSPD 电阻由 0 转变到 k Ω 量级,形成强烈非线性的类开关效应,SNSPD 原始响应脉冲的信噪比非常高,采用常温区的射频放大器便可实现信号的放大和探测。

图 1 SNSPD的“热点模型”探测机理^[10]Fig. 1 “Hotspot” model detection mechanism of SNSPD^[10]

3.2 SNSPD 系统性能指标

3.2.1 系统探测效率

系统探测效率(SDE)是单光子探测器最核心的指标,即实际探测到的由光子引起的输出响应脉冲数与入射光子数之间的比值,是一个无量纲单位。系统探测效率受很多因素的影响,主要包括光耦合效率、光吸收效率和光响应效率等。其中,光耦合效率主要是光子入射到探测器光敏面上的概率,与入射光场与探测器光敏面阻抗、模式匹配等相关。通过优化工艺流程制备更大光敏面器件或者利用透镜[图 2(a)]等手段聚焦光场可以将光耦合效率提升至接近 100%^[11]。光吸收效率主要是耦合后的光子与光敏面中的纳米线结构相互作用进而被吸收的概率。通过提高纳米线的厚度和占空比、制备高质量光学腔如布拉格反射镜[图 2(b)]等技术可以有效提高光吸收效率至 100%^[12]。光响应效率主要是光子在被吸收后破坏库珀对进而在外电路产生光响应脉冲的概率,通过更换更低能隙的超导材料[图 2(c)]^[13]或者薄膜调控技术降低已有超导材料能隙^[14]、降低纳米线厚度和宽度等手段可以实现接近 100%的光响应效率。2020 年和 2021 年,上海微系统所、美国国家标准与技术研究所和荷兰代尔夫特理工大学等在前期技术的积累下,进一步解决光吸收效率和光响应效率在纳米线宽度和厚度等方面的权衡问题,先后在 1550 nm 工作波段实现 98% 的系统探测效率^[4,15-16]。

3.2.2 暗计数率

暗计数率(DCR)指没有光子入射情况下器件产生的和光子响应类似的输出信号,是一种误发信号,一般包括器件在电路偏置以后自发产生的计数及系统杂散光引起的计数,以每秒产生的个数来表达,单位为 cps。如图 3(a)所示,SNSPD 器件的暗计数率曲线随着偏置电流增加首先缓慢增加,接近临界电流时,迅速呈指数形式增加。前者主要与光纤引入的黑体辐射相关,称为“背景暗计数”。后者与纳米线条的缺陷、工作

温度等因素相关,称为“本征暗计数”。从图 3(a)插图中可以看到,当去除接在器件端的光纤时,器件仅存在“本征暗计数”。

相比半导体单光子探测器,SNSPD 的噪声水平一般较低,常规器件在每秒几十个。通过引入低温光学窄带滤波器,滤除光纤带来的宽谱黑体辐射后,可以降低到每秒 1 个以下^[17-18]。目前,商用产品已经可以在 1550 nm 工作波段同时实现大于 90% 的探测效率和 0.5 cps 左右的暗计数率,如图 3(b)所示。

3.2.3 时间抖动

时间抖动(TJ),又称仪器响应函数(IRF),是指从光信号输入到电信号输出的间隔时间的不确定性,一般以半峰全宽(FWHM)来定义,在特殊应用场景下需要考虑 1/10 高全宽(FWTM)。时间抖动越小,意味着探测器的时间分辨率和精确度越好,对探测器在时间精度相关领域的应用有着决定性的影响。

如图 4 所示,SNSPD 时间抖动呈高斯分布,而 SPAD 的时间抖动存在拖尾。常规 SNSPD 的 FWHM 与特殊设计的 SPAD 相当,而在 FWTM 方面一般可减小 1/3~1/2^[20]。SNSPD 系统抖动一般在 50 ps 左右,主要由几何抖动和读出电路抖动两部分构成。其中,几何抖动是指光子入射到纳米线不同位置引起的抖动,可以通过减小器件光敏面或者采用差分读出电路降低。读出电路抖动主要与放大器的噪声相关,可以利用极低噪声系数的低温放大器来降低。2020 年,麻省理工学院的科学家通过将百微米长度的 NbN 纳米线缩短到 5 μm 减小几何抖动,并采用极低噪声的低温放大器降低读出电路抖动,最终实现了小于 5 ps 的系统时间抖动^[6]。

3.2.4 计数率/死时间

计数率是指 SNSPD 器件在单位时间内光子触发并响应的电脉冲数量。而基于“热点”模型,SNSPD 接收一个光子并产生响应后,将有一段从无法探测光子到探测效率逐渐恢复的过程,这段时间被称为 SNSPD

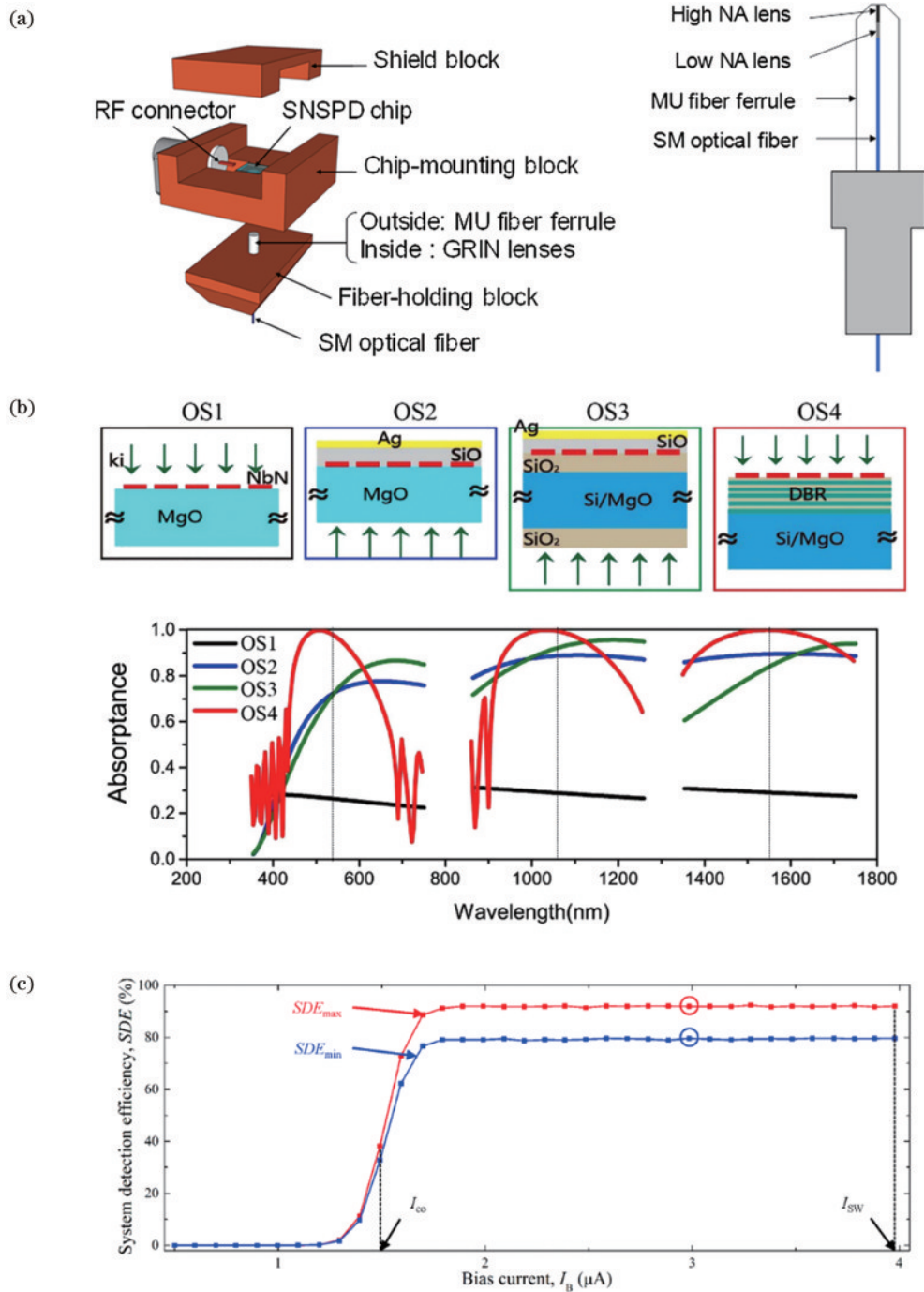


图 2 三种提高系统探测效率的方法。(a) 采用透镜光纤有效提高光耦合效率^[11]；(b) 不同光学结构的吸收率，利用分布式布拉格反射镜可以实现近 100% 吸收率^[12]；(c) 利用低能隙的 WSi 材料实现近 100% 的光响应效率^[13]

Fig. 2 Three methods to improve system detection efficiency. (a) Effectively improving optical coupling efficiency by using lens fibers^[11]; (b) absorption efficiency with different optical structures and can be improved to 100% with distributed Bragg reflector^[12]; (c) response efficiency is improved to 100% by WSi material with lower energy gap^[13]

的死时间。计数率通常与死时间成反比，主要影响因素有器件自身的动态电感、外部的偏置读出电路等。通过优化读出电路和器件设计，比如将多根纳米线进行并联或者制备更小的有效光敏面降低动态电感，SNSPD 的计数率可以达到百 MHz 甚至更高。目前比较主流的提升计数率的方案是将多根纳米线互嵌并行工作，对应 SNSPD 的最大计数率可以达到 GHz 以上，

对应死时间小于 1 ns^[7,21]。

3.2.5 光谱响应范围

单光子探测器一般只能对一定光谱范围内的光子产生响应，常规的半导体单光子探测器一般采用半导体材料如 Si、InGaAs 等，其能隙在 1 eV 左右，与近红外波段光子能量相近，最远探测波段只能到 1700 nm。而 SNSPD 是基于能隙在几个 meV 的超导材料制备而

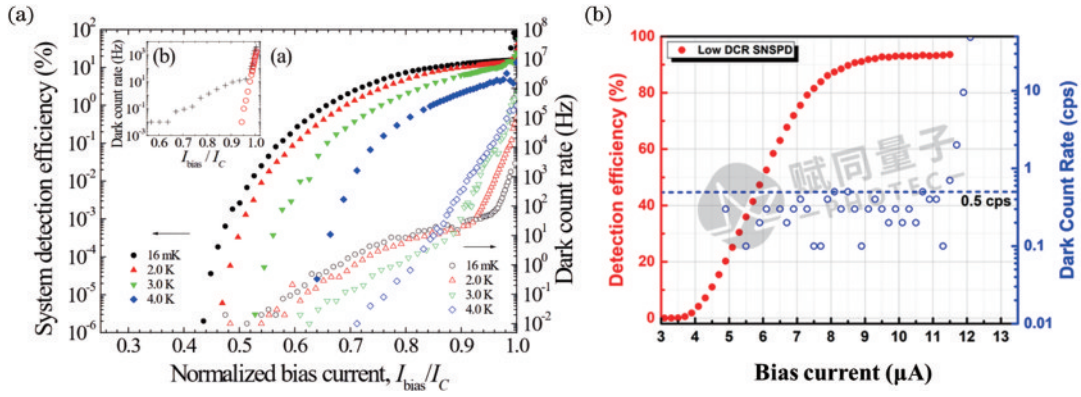


图3 暗计数率。(a) 不同温度下 SNSPD 暗计数率随偏置电流变化曲线[插图:带光纤(黑色十字)和不带光纤(红色圆圈)的暗计数率随偏置电流变化曲线]^[19]; (b) 低暗计数率和高探测效率的商业化 SNSPD 器件

Fig. 3 DCR. (a) Variation curves of SNSPD dark counting rate with bias current at different temperatures [inset: curves of DCR with (black cross) and without fiber optic (red circle) as a function of bias current]^[19]; (b) commercial SNSPD device with high SDE and low DCR

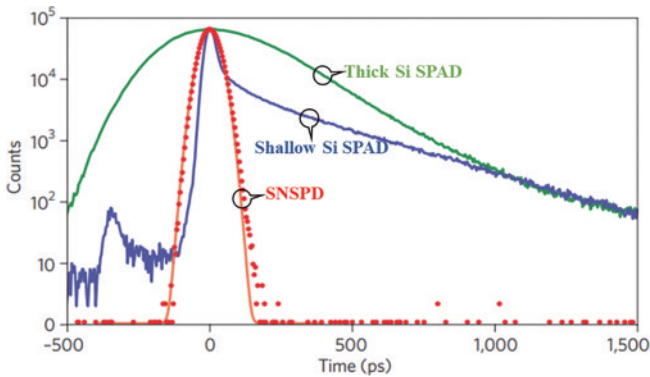


图4 SNSPD与SPAD抖动对比图^[20]

Fig. 4 Comparison of timing jitter between SNSPD and SPAD^[20]

成,相比近红外波段的光子能量要低近3个数量级,因此 SNSPD 的光谱响应范围可以从 X 射线延展到中红外波段,目前最远可以探测到 $10\ \mu\text{m}$ ^[22-23]。具体到 $2\ \mu\text{m}$ 波段,多个研究小组已经实现单光子探测效率大于 60%,暗计数率低于 5000 cps 的 SNSPD 器件^[24-26]。

4 SNSPD 在生物领域的应用

按照成像原理,生物成像可以分为光学方法和非光学方法。光学方法是指利用生物体的特定光学特性如透射、反射、吸收、荧光等的空间、时间变化来获得光学图像,主要包括宽场荧光显微镜、共聚焦显微镜、多光子显微镜、荧光寿命成像、漫反射光谱等方法。相较于非光学方法,如计算机层析成像(CT)、核磁共振成像(MRI)等,光学成像方法具有较多优势,如不存在电离辐射、分辨率较高、可实现特异性标记等。

探测器是生物光学成像中的核心部件,目前常用的探测器一般为半导体探测器,包含少光子灵敏的 CMOS 和 CCD 以及单光子灵敏的 PMT、SPAD、SiPM 等。相比上述探测器, SNSPD 的主要优势如下: 1) 在近/中红外波段具有单光子灵敏度,且具有高达

90% 以上的系统探测效率和低至 1 cps 的暗计数率,信噪比相比半导体探测器可以提高 2~3 个数量级,在荧光激发效率较低的应用中有明显优势; 2) SNSPD 无后脉冲和低时间抖动,在荧光寿命成像、荧光相关光谱等时间相关应用中具有明显优势。依托上述优势,近年来部分研究小组将 SNSPD 引入到生物成像领域。

4.1 近红外 II/III 区荧光共聚焦显微镜

荧光共聚焦显微镜由于屏蔽了非焦平面的背景,有效提高了成像的信噪比,是生物领域的常见仪器。然而生物组织的异质性和复杂成分会导致严重的光散射和组织自发荧光,限制了成像穿透深度和信号背景比,导致共聚焦显微镜长期以来被限定在细胞及薄片组织中。通过将波段从可见光扩展到近红外 II 区 (1000~1700 nm) 和 III 区 (1800~2300 nm),可以有效降低光散射和自发荧光背景影响,进而在牺牲一定分辨率的条件下实现深层成像,以较低的成本提供多光子显微镜的替代方法。

2009 年,斯坦福大学戴宏杰院士团队^[27]利用具有近红外发射特性的单壁碳纳米管和 InGaAs 相机首次实现大于 1000 nm 波段的活体生物成像,掀起近红外 II 区光学生物成像技术的研究热潮。随着波长的进一步红移,研究人员开始将 SNSPD 引入到共聚焦显微镜中。2021 年,康奈尔大学的 Xu 团队^[28]利用激发波长为 1310 nm 和发射波长为 1700 nm 的量子点探针和 SNSPD 展示了深达 1.7 mm 的小鼠大脑的单光子共聚焦荧光成像。2022 年,戴宏杰团队^[29]展示了激发波长为 1650 nm 和发射波长约为 1880 nm 的生物相容性核壳硫化铅/硫化镉量子点和 SNSPD 单点探测器,实现 1700~2000 nm 范围内的单光子激发荧光成像窗口,并在完整的小鼠头部中实现约 $1100\ \mu\text{m}$ 的成像深度(图 5)。与 PMT 相比,成像深度提高了近 2 倍,信噪比高了一个数量级。

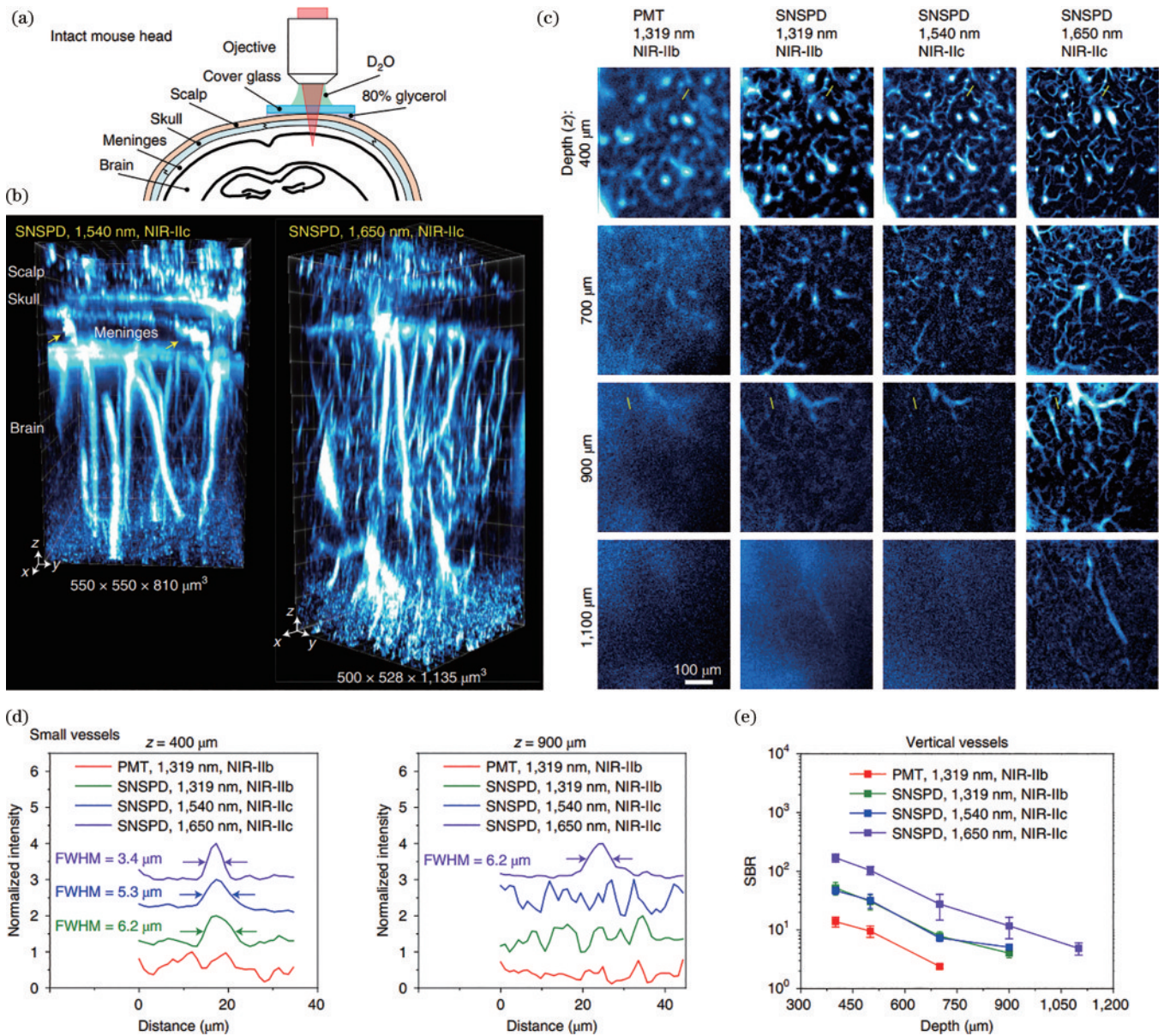


图 5 NIR-II 窗口中完整小鼠头的非侵入性体内共聚焦显微镜^[29]

Fig. 5 Non-invasive *in vivo* confocal microscopy of intact mouse head in NIR-II window^[29]

4.2 荧光寿命成像

除了强度, 荧光过程还提供了另外一个用于成像的测量参数, 即荧光寿命。荧光寿命是指分子停留在激发态的时间, 范围一般在 0.2~20 ns 之间。通过测量图像中所有像素的典型寿命, 就可以实现荧光寿命成像 (FLIM)。荧光寿命与荧光染料的浓度无关, 因此一方面不易受光漂白的影 响, 另一方面与强度成像随深度增加图像变暗不同, FLIM 可以保持类似的清晰度。另外, FLIM 可以与共聚焦显微镜和多光子显微镜兼容, 实现多维成像。

早在 2006 年, 美国标准技术与研究所的 Stevens 团队^[30] 便对比 SNSPD 和 SPAD 在荧光寿命测量中的性能优劣。相比 SPAD, SNSPD 的时间抖动没有拖尾, 呈标准的高斯形状, 可直接观察到干净的荧光指数级衰减特性。2019 年, 德国 Becker & Hickl 公司进一

步利用时间抖动低至 4.4 ps 的 SNSPD, 精确测量红外染料 IR 1061 的荧光寿命为 43.7 ps, 证明 SNSPD 在皮秒量级超快过程中的应用潜力^[31]。2020 年, 中国科学院深圳先进技术研究院的郑炜团队率先使用 SNSPD 实现近红外 II 区的共聚焦荧光寿命成像显微镜, 并对小鼠耳朵进行了多色的三维荧光寿命成像^[32]。2023 年, PicoQuant 公司利用 SNSPD 替代商用共聚焦荧光寿命显微镜 MicroTime 100 的 PMT, 并应用在太阳能电池材料 CIGS 的发光光谱和寿命表征测试中。与 PMT 相比, 利用 SNSPD 可以将信噪比提高两个数量级, 时间分辨率提高 3 倍^[33], 如图 6 所示。

4.3 荧光相关光谱

1972 年, 康奈尔大学的 Magde、Elson、Webb 首次提出荧光相关光谱方法 (FCS), 通过测量反应产物荧光的时间自相关来监测化学反应系统中的热力学波动进

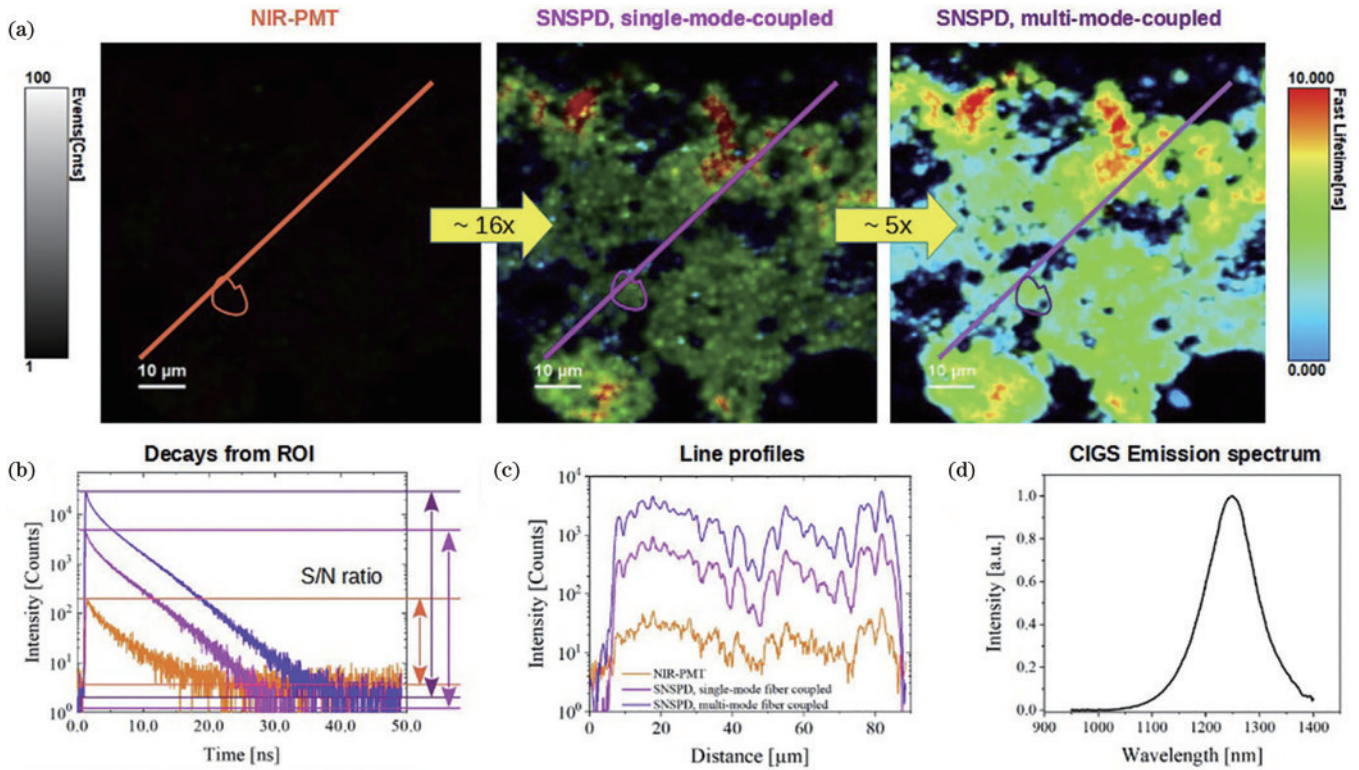


图 6 基于 PMT 和 SNSPD 荧光寿命探测系统性能对比^[33]

Fig. 6 Performance comparison of FILM based on PMT and SNSPD^[33]

而实现分子扩散系数和化学反应速率的测量^[34]。目前, FCS 可以量化单个分子的扩散系数、目标分子浓度和亮度, 成为研究溶液或者细胞中荧光分子动力学的有力工具。一般情况下, 硅雪崩光电二极管 (SPAD) 被用作 FCS 系统中的单光子探测器。然而, SPAD 在光子检测后几百 ns 内会出现后脉冲, 导致产生假的自相关分量, 使得无法确定亚微秒范围内的自相关函数。因此, 在亚微秒时间尺度内研究分子中的快速物理/化学动力学时, 一直需要无后脉冲的高效率单光子探测器。

相比 SPAD, SNSPD 效率更高, 且无后脉冲。2014 年, 日本国立情报与通信研究所的 Yamashita 等^[35]首次利用无后脉冲的 SNSPD 搭建 FCS 系统, 进而观察到自相关函数中的亚微秒区域, 为揭示活细胞中生物分子的超快动力学开辟新的可能性, 如图 7 所示。2015 年, 进一步采用单通道 SNSPD 搭建偏振依赖荧光相关光谱。相比传统采用双通道 SPAD 的互相关去除后脉冲的检测方法, 新系统中的光路更加简单, 信噪比也得到一定的提高^[36]。

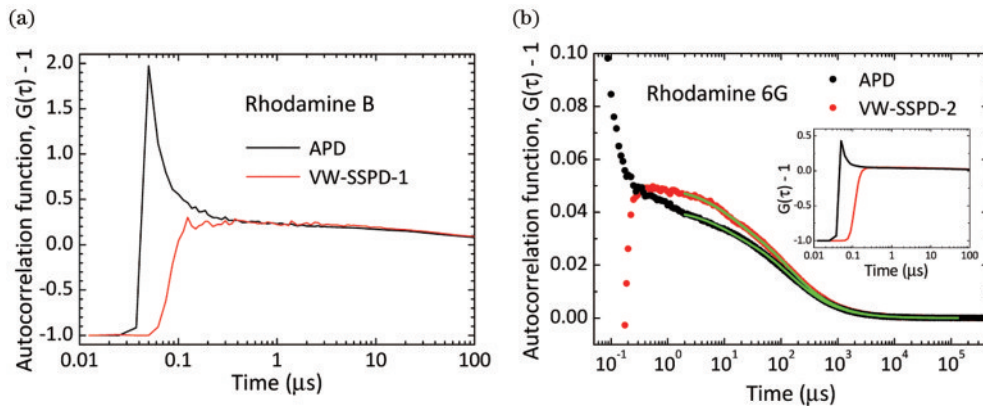


图 7 自相关函数^[35]。(a) Rhodamine B; (b) Rhodamine 6G

Fig. 7 Autocorrelation functions^[35]. (a) Rhodamine B; (b) Rhodamine 6G

4.4 单线态氧检测

单线态氧是最低激发态的分子氧, 作为一种活性氧可以选择性地氧化有机物或者诱导癌细胞凋亡, 在

化学合成、聚合物降解、光动力疗法和光动力抗菌等方面具有重要的应用。其中, 光动力疗法 (PDT) 是一种针对癌症和其他疾病的微创治疗方式, 而单线态氧 1O_2

被认为是参与光动力疗法的主要细胞毒性物质。但是 $^1\text{O}_2$ 在溶液或者细胞中的寿命较短(小于 $1\ \mu\text{s}$),发光量子产率极低($10^{-6}\sim 10^{-8}$),且发射波长处在红外波段的 $1270\ \text{nm}$,因此直接检测单线态氧发光是一项具有挑战性的任务。

2002年,加拿大多伦多大学的Wilson团队^[37]使用红外敏感的PMT在生物环境中直接检测到 $1270\ \text{nm}$ 波段的单线态氧 $^1\text{O}_2$ 发光,但PMT效率较低,实验相对比较困难。2013年,英国赫瑞-瓦特大学的Hadfield团

队^[38]首次利用SNSPD实现单线态氧探测系统,并将传统的自由空间光路系统扩展到光纤光路,有效扩大系统应用范围(图8);2018年,英国格拉斯哥大学的Tsimvrakidis等^[39]通过低于 $1\ \text{cps}$ 暗计数的SNSPD改进了单线态氧发光剂量测定系统(SOLD),实现了单线态氧的定量检测。2021年,俄罗斯Scontel公司和德国的Becker & Hickl公司合作,结合共聚焦显微镜和SNSPD探测器开发一套新的测量仪器,实现细胞中单线态氧磷光信号的寿命成像^[40]。

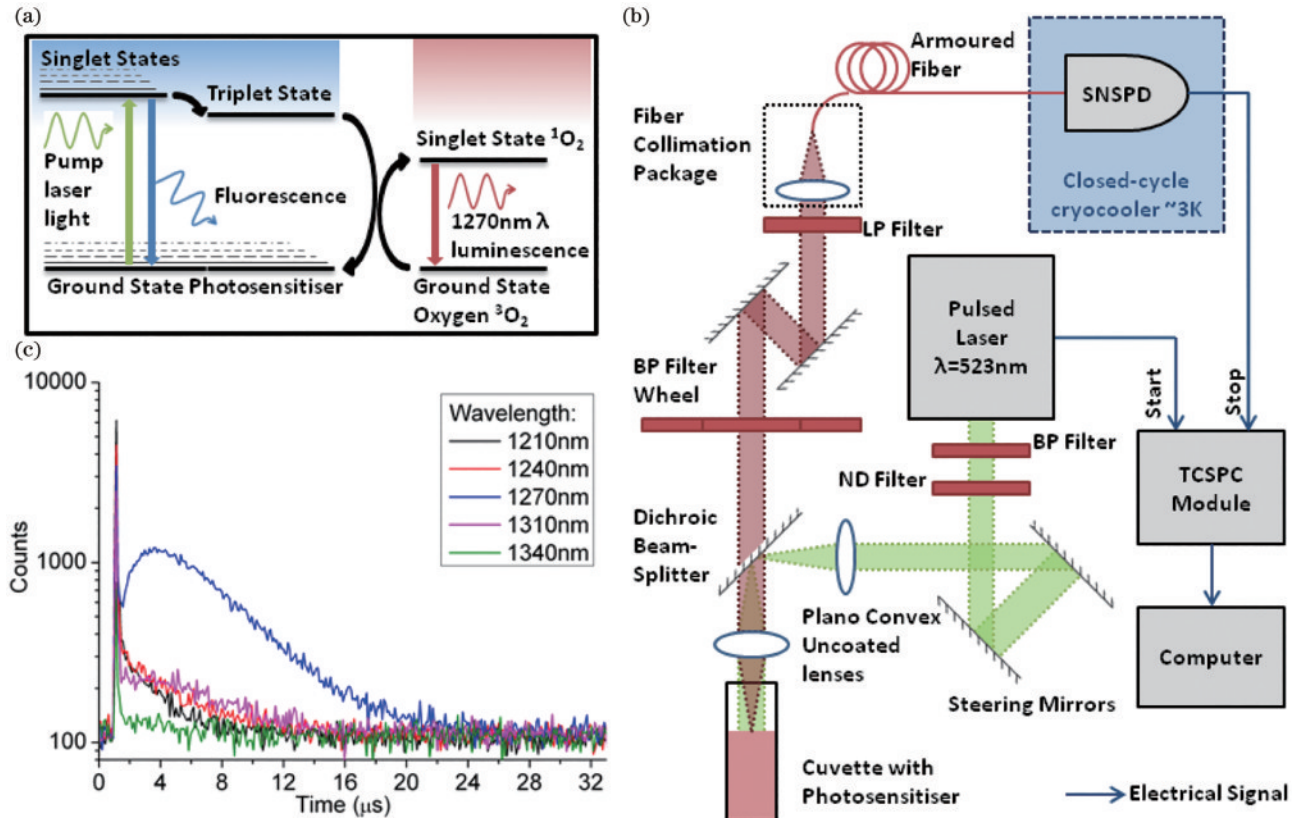


图 8 基于 SNSPD 的单线态氧荧光探测系统^[38]

Fig. 8 Single line oxygen fluorescence detection system based on SNSPD^[38]

4.5 漫反射光谱

1977年,杜克大学的Jöbsis^[41]首次证明在近红外光窗口($700\sim 1000\ \text{nm}$)内可以进行无创脑监测,即利用近红外光在组织中的透射、反射等时空变化来获得大脑中的生理特性,包括血液氧合、血流速、脑灌注压、水浓度、光散射等。目前主流的方法包括近红外光谱(NIRS)和漫反射相关光谱(DCS)等。其中DCS方法率先引入SNSPD,其原理如图9(a)所示,用长相干长度的近红外激光照射组织,组织中的散射体如红细胞等调节入射光并被探测器接收,随后测得的时间强度自相关函数的衰减曲线便可以反映血流速等血液参数。目前采用的SPAD探测器和波长为 $700\sim 850\ \text{nm}$ 激光源的DCS设备通常受限于低信噪比,只能在 cm 量级的源-探测器距离和 $1\ \text{Hz}$ 的采集速率下运行。

相对于传统的 $700\sim 850\ \text{nm}$ 的激发光源,当把波

长拓展至 $1050\sim 1100\ \text{nm}$ 时,较多的光子数量和较慢的自相关函数衰减有助于大幅提高信噪比和采集速率^[42]。2021年,美国哈佛医学院的Ozana研究小组^[43]使用 $1064\ \text{nm}$ 波段的SNSPD搭建DCS系统,实现了16倍的信噪比增益,并实现了 $20\ \text{Hz}$ 的检测速率。随后,进一步实现 $5\ \text{mm}$ 源-探测器距离的时域漫反射光谱系统(TD-DCS)系统,测量了血流对屏气和功能任务的反应^[44]。2022年,美国莱特州立大学的Sunar研究小组^[45]利用 $1064\ \text{nm}$ 波段的SNSPD首次对神经重症监护病房收治的严重创伤性脑损伤患者的案例展示了时间门控漫反射光谱(TG-DCS),证明了其在临床中的实用性。2023年,西班牙巴塞罗那科学技术学院的Mora研究小组^[46]对比了 $785\ \text{nm}$ 波段的SPAD和SNSPD的时域漫反射相关光谱方法。如图9(b)所示,相比SPAD,SNSPD仪器响应函数减少了一半以

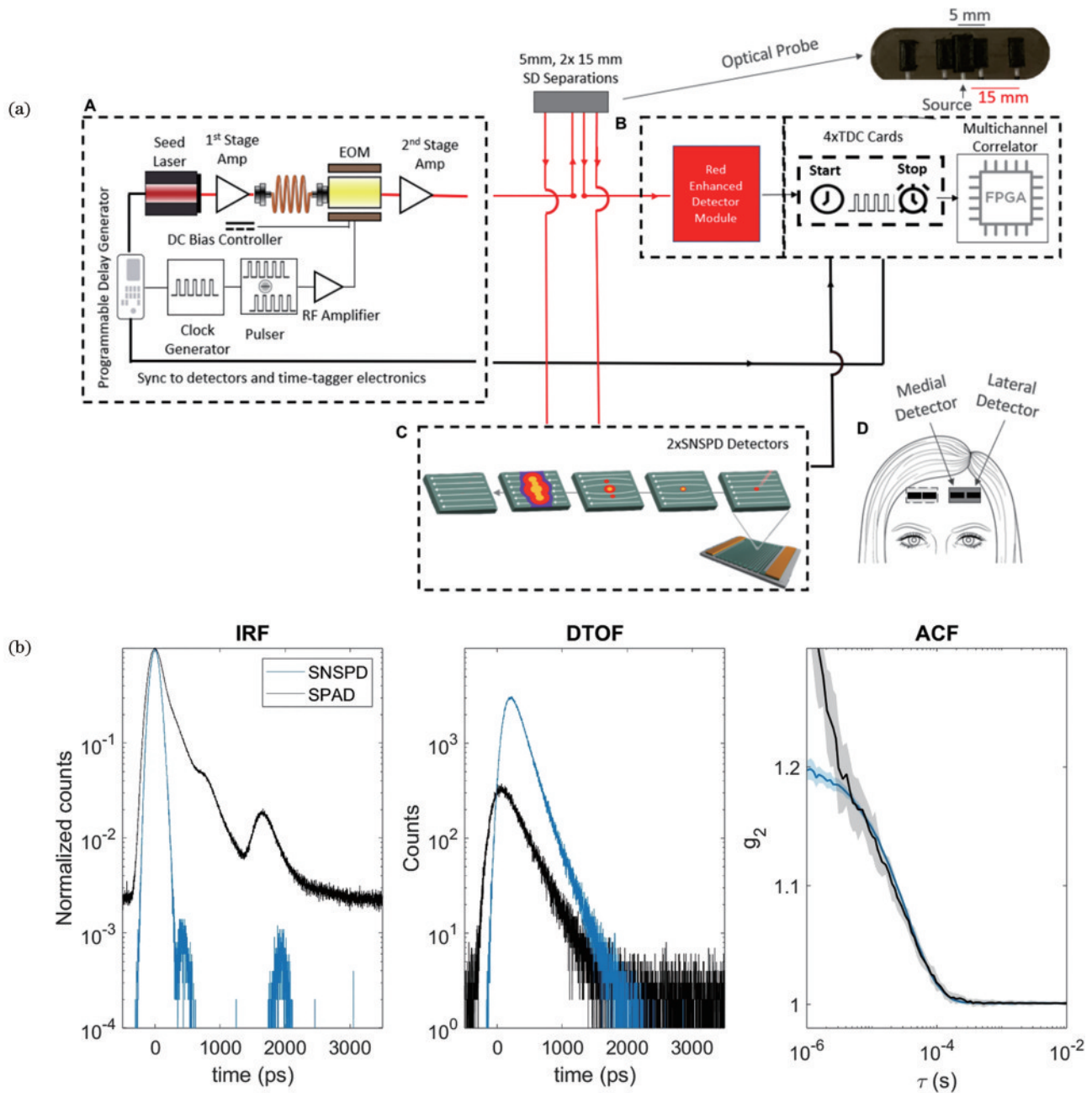


图 9 基于 SNSPD 的漫反射相关光谱系统。(a) 示意图^[44]; (b) SNSPD 与 SPAD 的仪器响应函数、飞行时间、自相关函数的对比^[46]
 Fig. 9 Diffuse reflectance correlation spectroscopy system based on SNSPD. (a) Schematic diagram^[44]; (b) comparison of instrument response function, time-of-flight, and auto-correlation function of SNSPD and SPAD^[46]

上且没有拖尾,有效增加了自相关曲线 $g^{(2)}$ 的信噪比和探测深度。另外, SNSPD 的引入还有望助力实现零或短源-探测器距离,进而提高空间分辨率。

5 SNSPD 未来发展趋势

尽管 SNSPD 有诸多出色的优势,但至今尚未广泛用于生物成像领域。主要限制如下:相对 PMT 探测器, SNSPD 有效光敏面小,一般直径在 15~50 μm 之间,导致光学对准困难;相对 CCD、CMOS、SPAD 等探测器,其阵列像元数较少,无法实时成像等;另外,其工作温度较低($\sim 2\text{ K}$),需要体积庞大的低温冷却系

统等。针对以上问题,逐一介绍 SNSPD 的解决方案和发展趋势。

5.1 大光敏面 SNSPD

SNSPD 的核心结构是由数十至百纳米宽的超导线条蜿蜒而成,纳米线缺陷数量会随着纳米线长度增加而增加,导致大光敏面 SNSPD 器件制备成品率极低。随着对超导纳米线中光子与非平衡态准粒子相互作用研究的逐渐深入,2017 年,俄罗斯科学家 Vodolazov^[47] 预测,当一根微米级的“脏”超导导线偏置到接近拆对电流的状态时,有可能实现单光子探测,由此开启了超导微米线单光子探测器(SMSPD)的研究。

随后,多个研究团队基于 NbN、MoSi、WSi 等材料实现 SMSPD 探测原型。2021 年,上海微系统所利用 $1\ \mu\text{m}$ 宽的 NbN 微米线实现直径为 $50\ \mu\text{m}$ 的大光敏面 SMSPD,且系统探测效率在 $1550\ \text{nm}$ 工作波段达到 92% ^[48]。2023 年,进一步基于紫外曝光工艺,实现有效面积为 $1\ \text{mm}\times 1\ \text{mm}$ 的 SMSPD,且系统探测效率在 $1550\ \text{nm}$ 工作波段达到 7% ^[49],实现了光敏面从 $100\ \mu\text{m}^2$ 到 $1\ \text{mm}^2$ 的跨越。

基于上述技术进步,SMSPD 有望在未来实现 cm^2 尺度的超大光敏面,不过其实用化的主要问题在于为了使临界电流接近拆对电流,SMSPD 工作温度需要更低,一般在 $1\ \text{K}$ 以下,下一步发展趋势是提高 SMSPD 的工作温度。

5.2 SNSPD 相机

红外探测器的发展一般沿着单元器件、小规模多元探测器、线列和小规模二维面阵、大规模焦平面阵列的路线。与常规的面探测器不同,SNSPD 是线探测器,其阵列结构可以更加多样化,比如常规的具有空间位置分辨的 $N\times M$ 结构^[50]、多根线并行缠绕结构^[21]、基于延时线的阵列结构^[51]等(图 10)。目前 SNSPD 还停留在小规模多元探测器阶段,阵列数量一般小于 100,在激光雷达^[52]、量子通信^[53]等研究中得到初步应用。

由于 SNSPD 器件工作在低温端,但信号读出和分析一般在常温端,因此更大规模 SNSPD 相机的应用将面临读出电路庞大和制冷系统复杂等问题^[54]。目前,已经发展出热耦合读出架构等手段,且初步实现 400000 像素 SNSPD 阵列^[55]。

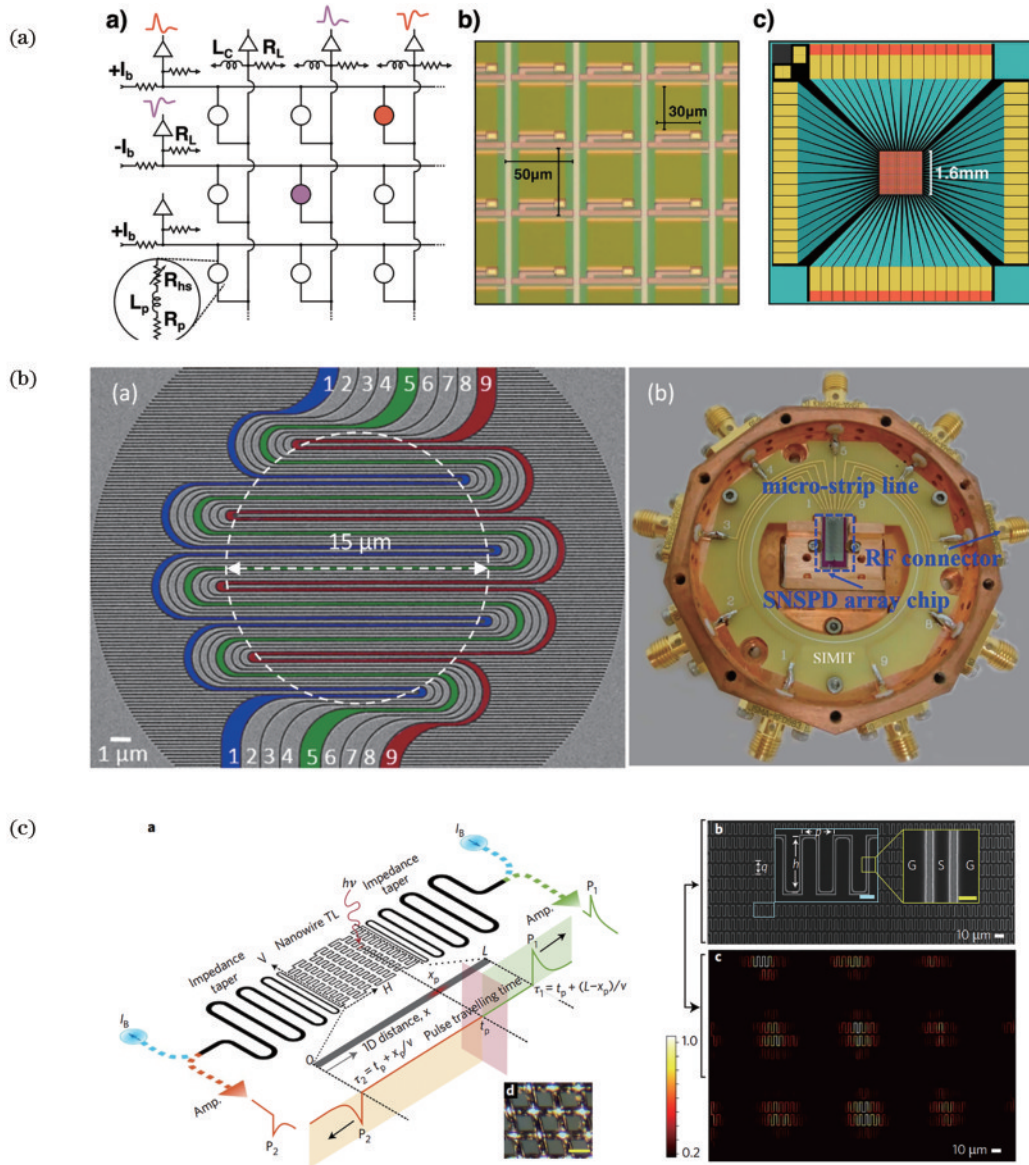


图 10 红外探测器阵列结构。(a) $N\times M$ 阵列^[50]; (b) 并行纳米线阵列^[21]; (c) 基于延迟线的超导单光子成像阵列^[51]

Fig. 10 Infrared detector array structure. (a) $N\times M$ array^[50]; (b) parallel nanowire array^[21]; (c) superconducting single-photon imaging array based on delay line^[51]

5.3 集成化 SNSPD 探测系统

SNSPD 一般采用低温超导材料,如 NbN、NbTiN 等,需要工作在液氮温区以下,因此 SNSPD 探测系统主要包括制冷系统、真空系统和电子学系统三大部分。过去十余年,全球多家公司针对实验室环境,采用可靠稳定的 Gifford-McMahon(G-M)型闭合循环制冷机实现了高性能 SNSPD 的商业化,消除了 SNSPD 对液态制冷剂如液氮的依赖。G-M 制冷机一般采用风冷压缩机,功耗约为 1 kW,在降温完成后可以实现 7×24 h 连续工作,商业化系统效果图如图 11 所示。



图 11 商业化 SNSPD 探测系统 QEye 实物图(长、宽、高分别为 600 mm、600 mm 和 1250 mm)

Fig. 11 Commercial SNSPD detection system QEye physical image. (length is 600 mm, width is 600 mm, and height is 1250 mm)

但在实验室环境之外的应用受到可用低温制冷机的尺寸、质量和功率(SWaP)的限制。因此,研究人员一直在探索更加紧凑的低温制冷机实现方式以及研究更高临界温度的超导材料来实现单光子探测。过去 5 年,英国、美国和中国的多个研究团队通过混合类型的制冷机组合来实现更低 SWaP 的原理样机^[56-58]。2021 年,上海微系统所采用两级高频脉冲管冷却器和一个焦耳-汤姆孙回路,实现最低温度为 2.4 K、功耗为 320 W 的制冷机,功耗相比 G-M 制冷机低了近一个数量级,质量减轻了一半左右^[59]。在更高工作温度的 SNSPD 方面,研究人员也取得突破,2023 年,麻省理工学院的 Berggren 团队^[60]制备出 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 高温超导纳米线,并在 25 K 温度下观察到 $1.5 \mu\text{m}$ 电信波长下的单光子响应,将 SNSPD 技术的材料家族扩展到液氮温度限制之外。

6 结束语

21 世纪初兴起的 SNSPD 技术有效助力了我国量子信息领域的快速发展。与半导体单光子探测器如 PMT 和 SPAD 相比,SNSPD 在近红外波段具有更高的效率、更低的噪声、更高的计数率、更低的抖动且无

后脉冲。近年来,SNSPD 逐步迈出量子信息领域,成为生物成像、激光雷达、深空通信等弱光探测应用的选择之一。以 SNSPD 的基本工作原理为基础,讨论了重要性能指标的影响因素,着重介绍 SNSPD 在生物成像方面的最新应用进展。

当前,我国在 SNSPD 方面具备较好的技术储备和商业化公司,但依然处于发展的黄金上升期。预计未来 SNSPD 会在生物成像领域驱动下朝着大光敏面、小规模阵列、更高工作温度、更远工作波段等方向发展,而探测器性能的提高将进一步拓展 SNSPD 在生物成像领域中的应用范围,并且有望助力近红外 III 区生物成像的首次实现。

参 考 文 献

- [1] Testardi L R. Destruction of superconductivity by laser light[J]. *Physical Review B*, 1971, 4(7): 2189-2196.
- [2] Kadin A M, Johnson M W. Nonequilibrium photon-induced hotspot: a new mechanism for photodetection in ultrathin metallic films[J]. *Applied Physics Letters*, 1996, 69(25): 3938-3940.
- [3] Gol'tsman G N, Okunev O, Chulkova G, et al. Picosecond superconducting single-photon optical detector [J]. *Applied Physics Letters*, 2001, 79(6): 705-707.
- [4] Hu P, Li H, You L X, et al. Detecting single infrared photons toward optimal system detection efficiency[J]. *Optics Express*, 2020, 28(24): 36884-36891.
- [5] Liu Y, Zhang W J, Jiang C, et al. Experimental twin-field quantum key distribution over 1000 km fiber distance [J]. *Physical Review Letters*, 2023, 130(21): 210801.
- [6] Korzh B, Zhao Q Y, Allmaras J P, et al. Demonstration of sub-3 ps temporal resolution with a superconducting nanowire single-photon detector[J]. *Nature Photonics*, 2020, 14(4): 250-255.
- [7] Craiciu I, Korzh B, Beyer A D, et al. High-speed detection of 1550 nm single photons with superconducting nanowire detectors[J]. *Optica*, 2023, 10(2): 183-190.
- [8] You L X. Superconducting nanowire single-photon detectors for quantum information[J]. *Nanophotonics*, 2020, 9(9): 2673-2692.
- [9] 张彪, 陈奇, 管焰秋, 等. 超导纳米线单光子探测器光子响应机制研究进展[J]. *物理学报*, 2021, 70(19): 198501.
Zhang B, Chen Q, Guan Y Q, et al. Research progress of photon response mechanism of superconducting nanowire single photon detector[J]. *Acta Physica Sinica*, 2021, 70(19): 198501.
- [10] Natarajan C M, Tanner M G, Hadfield R H. Superconducting nanowire single-photon detectors: physics and applications[J]. *Superconductor Science and Technology*, 2012, 25(6): 063001.
- [11] Dauler E A, Grein M E, Kerman A J, et al. Review of superconducting nanowire single-photon detector system design options and demonstrated performance[J]. *Optical Engineering*, 2014, 53(8): 081907.

- [12] You L X, Li H, Zhang W J, et al. Superconducting nanowire single-photon detector on dielectric optical films for visible and near infrared wavelengths[J]. *Superconductor Science and Technology*, 2017, 30(8): 084008.
- [13] Marsili F, Verma V B, Stern J A, et al. Detecting single infrared photons with 93% system efficiency[J]. *Nature Photonics*, 2013, 7(3): 210-214.
- [14] Zhang W J, Jia Q, You L X, et al. Saturating intrinsic detection efficiency of superconducting nanowire single-photon detectors via defect engineering[J]. *Physical Review Applied*, 2019, 12(4): 044040.
- [15] Reddy D V, Nerem R R, Nam S W, et al. Superconducting nanowire single-photon detectors with 98% system detection efficiency at 1550 nm[J]. *Optica*, 2020, 7(12): 1649-1653.
- [16] Chang J, Los J W N, Tenorio-Pearl J O, et al. Detecting telecom single photons with $(99.5^{+0.5}_{-2.07})\%$ system detection efficiency and high time resolution[J]. *APL Photonics*, 2021, 6(3): 036114.
- [17] Yang X Y, Li H, Zhang W J, et al. Superconducting nanowire single photon detector with on-chip bandpass filter[J]. *Optics Express*, 2014, 22(13): 16267-16272.
- [18] Zhang W J, Yang X Y, Li H, et al. Fiber-coupled superconducting nanowire single-photon detectors integrated with a bandpass filter on the fiber end-face[J]. *Superconductor Science and Technology*, 2018, 31(3): 035012.
- [19] Yamashita T, Miki S, Qiu W, et al. Temperature dependent performances of superconducting nanowire single-photon detectors in an ultralow-temperature region [J]. *Applied Physics Express*, 2010, 3(10): 102502.
- [20] Hadfield R H. Single-photon detectors for optical quantum information applications[J]. *Nature Photonics*, 2009, 3(12): 696-705.
- [21] Zhang W J, Huang J, Zhang C J, et al. A 16-pixel interleaved superconducting nanowire single-photon detector array with a maximum count rate exceeding 1.5 GHz[J]. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, 2019, 29(5): 2200204.
- [22] Verma V B, Korzh B, Walter A B, et al. Single-photon detection in the mid-infrared up to 10 μm wavelength using tungsten silicide superconducting nanowire detectors [J]. *APL Photonics*, 2021, 6(5): 056101.
- [23] Pan Y M, Zhou H, Zhang X Y, et al. Mid-infrared Nb_4N_3 -based superconducting nanowire single photon detectors for wavelengths up to 10 μm [J]. *Optics Express*, 2022, 30(22): 40044-40052.
- [24] Zhou H, Pan Y M, You L X, et al. Superconducting nanowire single photon detector with efficiency over 60% for 2- μm -wavelength[J]. *IEEE Photonics Journal*, 2019, 11(6): 6804107.
- [25] Chang J, Los J W N, Gourgues R, et al. Efficient mid-infrared single-photon detection using superconducting NbTiN nanowires with high time resolution in a Gifford-McMahon cryocooler[J]. *Photonics Research*, 2022, 10(4): 1063-1070.
- [26] China F, Yabuno M, Mima S, et al. Highly efficient NbTiN nanostrip single-photon detectors using dielectric multilayer cavities for a 2- μm wavelength band[J]. *Optics Express*, 2023, 31(12): 20471-20479.
- [27] Welscher K, Liu Z, Sherlock S P, et al. A route to brightly fluorescent carbon nanotubes for near-infrared imaging in mice[J]. *Nature Nanotechnology*, 2009, 4(11): 773-780.
- [28] Xia F, Gevers M, Fognini A, et al. Short-wave infrared confocal fluorescence imaging of deep mouse brain with a superconducting nanowire single-photon detector[J]. *ACS Photonics*, 2021, 8(9): 2800-2810.
- [29] Wang F F, Ren F Q, Ma Z R, et al. In vivo non-invasive confocal fluorescence imaging beyond 1, 700 nm using superconducting nanowire single-photon detectors [J]. *Nature Nanotechnology*, 2022, 17(6): 653-660.
- [30] Stevens M J, Hadfield R H, Schwall R E, et al. Fast lifetime measurements of infrared emitters using a low-jitter superconducting single-photon detector[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 89(3): 031109.
- [31] Becker W, Korzh B, Berggren K. 4.4 ps IRF width of TCSPC with an NbN superconducting nanowire single photon detector[EB/OL]. [2023-06-05]. <https://www.photonicsolutions.co.uk/upfiles/jpl-nbn-nanowire05.pdf>.
- [32] Yu J, Zhang R L, Gao Y F, et al. Intravital confocal fluorescence lifetime imaging microscopy in the second near-infrared window[J]. *Optics Letters*, 2020, 45(12): 3305-3308.
- [33] Buschmann V, Ermilov E, Koberling F, et al. Integration of a superconducting nanowire single-photon detector into a confocal microscope for time-resolved photoluminescence (TRPL) -mapping: sensitivity and time resolution[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2023, 94(3): 033703.
- [34] Magde D, Elson E, Webb W W. Thermodynamic fluctuations in a reacting system: measurement by fluorescence correlation spectroscopy[J]. *Physical Review Letters*, 1972, 29(11): 705-708.
- [35] Yamashita T, Liu D K, Miki S, et al. Fluorescence correlation spectroscopy with visible-wavelength superconducting nanowire single-photon detector[J]. *Optics Express*, 2014, 22(23): 28783-28789.
- [36] Yamamoto J, Oura M, Yamashita T, et al. Rotational diffusion measurements using polarization-dependent fluorescence correlation spectroscopy based on superconducting nanowire single-photon detector[J]. *Optics Express*, 2015, 23(25): 32633-32642.
- [37] Niedre M, Patterson M S, Wilson B C. Direct near-infrared luminescence detection of singlet oxygen generated by photodynamic therapy in cells in vitro and tissues in vivo[J]. *Photochemistry and Photobiology*, 2002, 75(4): 382-391.
- [38] Gemmell N R, McCarthy A, Liu B C, et al. Singlet oxygen luminescence detection with a fiber-coupled superconducting nanowire single-photon detector[J]. *Optics Express*, 2013, 21(4): 5005-5013.
- [39] Tsimvradidis K, Gemmell N R, Erotokritou K, et al. Enhanced optics for time-resolved singlet oxygen

- luminescence detection[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2018, 25(1): 7000107.
- [40] Morozov P, Lukina M, Shirmanova M, et al. Singlet oxygen phosphorescence imaging by superconducting single-photon detector and time-correlated single-photon counting[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(7): 1217-1220.
- [41] Jöbsis F F. Noninvasive, infrared monitoring of cerebral and myocardial oxygen sufficiency and circulatory parameters[J]. *Science*, 1977, 198(4323): 1264-1267.
- [42] Carp S A, Tamborini D, Mazumder D, et al. Diffuse correlation spectroscopy measurements of blood flow using 1064 nm light[J]. *Journal of Biomedical Optics*, 2020, 25(9): 097003.
- [43] Ozana N, Zavriyev A I, Mazumder D, et al. Superconducting nanowire single-photon sensing of cerebral blood flow[J]. *Neurophotonics*, 2021, 8(3): 035006.
- [44] Ozana N, Lue N, Renna M, et al. Functional time domain diffuse correlation spectroscopy[J]. *Frontiers in Neuroscience*, 2022, 16: 932119.
- [45] Poon C S, Langri D S, Rinehart B, et al. First-in-clinical application of a time-gated diffuse correlation spectroscopy system at 1064 nm using superconducting nanowire single photon detectors in a neuro intensive care unit[J]. *Biomedical Optics Express*, 2022, 13(3): 1344-1356.
- [46] Parfentyeva V, Colombo L, Lanka P, et al. Fast time-domain diffuse correlation spectroscopy with superconducting nanowire single-photon detector: system validation and in vivo results[J]. *Scientific Reports*, 2023, 13: 11982.
- [47] Vodolazov D . Single-photon detection by a dirty current-carrying superconducting strip based on the kinetic-equation approach[J]. *Physical Review Applied*, 2017, 7(3): 034014.
- [48] Xu G Z, Zhang W J, You L X, et al. Superconducting microstrip single-photon detector with system detection efficiency over 90% at 1550 nm[J]. *Photonics Research*, 2021, 9(6): 958-967.
- [49] Xu G Z, Zhang W J, You L X, et al. Millimeter-scale active area superconducting microstrip single-photon detector fabricated by ultraviolet photolithography[J]. *Optics Express*, 2023, 31(10): 16348-16360.
- [50] Wollman E E, Verma V B, Lita A E, et al. Kilopixel array of superconducting nanowire single-photon detectors [J]. *Optics Express*, 2019, 27(24): 35279-35289.
- [51] Zhao Q Y, Zhu D, Calandri N, et al. Single-photon imager based on a superconducting nanowire delay line [J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(4): 247-251.
- [52] Yu S F, Zhang Z, Xia H Y, et al. Photon-counting distributed free-space spectroscopy[J]. *Light: Science & Applications*, 2021, 10: 212.
- [53] Li W, Zhang L K, Tan H, et al. High-rate quantum key distribution exceeding 110 Mbs⁻¹[J]. *Nature Photonics*, 2023, 17(5): 416-421.
- [54] McCaughan A N. Readout architectures for superconducting nanowire single photon detectors[J]. *Superconductor Science and Technology*, 2018, 31(4): 040501.
- [55] Oripov B G, Rampini D S, Allmaras J, et al. A superconducting-nanowire single-photon camera with 400, 000 pixels[EB/OL]. (2023-06-15) [2023-08-07]. <https://arxiv.org/abs/2306.09473>.
- [56] Kotsubo V, Radebaugh R, Hendershott P, et al. Compact 2.2 K cooling system for superconducting nanowire single photon detectors[J]. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, 2017, 27(4): 9500405.
- [57] Gemell N R, Hills M, Bradshaw T, et al. A miniaturized 4 K platform for superconducting infrared photon counting detectors[J]. *Superconductor Science and Technology*, 2017, 30(11): 11LT01.
- [58] 党海政, 张涛, 赵帮健, 等. 以氦-4为唯一工质的1.8 K复合制冷机及其应用验证[J]. *科学通报*, 2022, 67(9): 896-905.
- Dang H Z, Zhang T, Zhao B J, et al. A hybrid cryocooler achieving 1.8 K with He-4 as the only working medium and its application verification[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2022, 67(9): 896-905.
- [59] Hu P, Ma Y X, Li H, et al. Superconducting single-photon detector with a system efficiency of 93% operated in a 2.4 K space-application-compatible cryocooler[J]. *Superconductor Science and Technology*, 2021, 34(7): 07LT01.
- [60] Charaev I, Bandurin D A, Bollinger A T, et al. Single-photon detection using high-temperature superconductors [J]. *Nature Nanotechnology*, 2023, 18(4): 343-349.