

# Development of frequency continuous tunable gyrotron (Gyrotron FU CW VI) using 15 T superconductive magnet for 600 MHz DNP-NMR spectroscopy

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2010-11-12 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 池田, 亮介, 岩原, 宏樹, 山本, 真之, 小菅, 幸介, 出原, 敏孝, 小川, 勇, 印牧, 知廣, 斉藤, 輝雄, 松木, 陽, 植田, 啓介, 藤原, 敏道, CHANG, T.H., IKEDA, R., IWAHARA, H., YAMAMOTO, M., KASUGA, K., IDEHARA, T., OGAWA, I, KANEMAKI, T., SAITO, T., MATSUKI, Y., UEDA, K., FUJIWARA, T. メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10098/2737">http://hdl.handle.net/10098/2737</a>

600 MHz DNP-NMR測定のための15T超伝導マグネットを用いた

周波数連続可変ジャイロトロンGyrotron FU CW VIの開発

Development of frequency continuous tunable gyrotron (Gyrotron FU CW VI)  
using 15 T superconductive magnet for 600 MHz DNP-NMR spectroscopy

池田 亮介, 岩原 宏樹, 山本 真之, 小菅幸介, 出原 敏孝, 小川 勇,  
印牧 知廣, 斉藤 輝雄, <sup>1</sup>松木陽, <sup>1</sup>植田啓介, <sup>1</sup>藤原敏道, <sup>2</sup>T.H. Chang

R. Ikeda, H. Iwahara, M. Yamamoto, K. Kosuga, T. Idehara, I. Ogawa,  
T. Kanemaki, T. Saito, <sup>1</sup>Y. Matsuki, <sup>1</sup>K. Ueda, <sup>1</sup>T. Toshimichi and <sup>2</sup>T.H. Chang,

福井大学遠赤外領域開発研究センター

*Research Center for Development of Far Infrared Region, Fukui University, Fukui 910-8507, Japan*

<sup>1</sup>大阪大学蛋白質研究所

<sup>1</sup>*Institute for Protein Research, Osaka University, 3-2 Yamadaoka, Suita, 565-0871, Japan*

<sup>2</sup>国立精華大学

<sup>2</sup>*Department of Physics, National Tsing Hua University, Hsinchu, 300 Taiwan*

### Abstract

A dynamic nuclear polarization (DNP) method which improves the sensitivity of the nuclear magnetic resonance (NMR) spectroscopy by high power irradiation of sub-millimeter wave is expected to analyze the structures of complex proteins. Continuous frequency tunable gyrotron is required to obtain maximum enhancement of NMR sensitivity. We have developing fundamental oscillation gyrotron by using a 15 T superconducting magnet. The developed prototype gyrotron (Gyrotron FU CW VI) has the tunability of 1.6 GHz and the output power exceed about 10W. In addition, stable continuous wave operation for 10 minutes was achieved in low power operation.

## 1. はじめに

生体高分子構造を研究する手法として核磁気共鳴 (Nuclear Magnetic Resonance: NMR) 分光を用いた解析が主要な方法の一つとなっており、分子量1万以上の分子について構成分子の全座標決定が可能となっている。現在、生体分子の働きを原子分解能で知るためには、5万以上の蛋白質複合体の構造決定を行うことが必要とされている。しかしながら、測定には一定量の固体試料を用いるため、構成分子が大きくなるほど対象分子数が減少するためにNMR感度が低下し、より複雑な蛋白質複合体の構造決定を行うためには、NMR感度の向上が必要不可欠となる。そこで、試料に電磁波を照射して核スピンの比べて遥かに大きな電子スピンの分極を核スピんに移動させることで、NMR感度を向上させる動的核偏極 (Dynamic Nuclear Polarization: DNP) が注目されている。強磁場・極低温条件下で行うことにより室温でのNMR測定と比較して1000~3000倍程度の向上が見込まれる。この手法は、オーバーハウザー効果[1]と呼ばれる現象で1950年代から考えられてきたが、サブテラヘルツ帯の高出力光源が存在しなかったために実現されなかった。可視領域で高強度なレーザーでは、周波数の減少に伴いミリワット程度の微弱な出力となってしまう。後進波管やクライストロンなどの電子管は、共振器などは波長程度の微細な内部構造を必要とすることから製造が困難であり、また製作が可能であったとしてもその微細構造により電子ビームの入射が困難となりミリワット程度となる。ジャイロトロンはサイクロトロン共鳴メーザー作用を発振原理とするため、空洞共振器を単純な構造かつ十分な大きさを取ることが出来る。よって、高出力な電子ビームの入射が可能となり数10W以上の高出力動作を実現する。一方で、効果的にNMR感度向上を実現するためには、照射する周波数を電子スピン共鳴周波数 $\pm$ NMR周波数 (600MHz NMRの場合、 $394.6 \text{ GHz} \pm 0.6 \text{ GHz}$ ) となる最適周波数に一致させなければならない。ジャイロトロンの発振周波数は、共振器形状でほぼ決定されるが製作誤差等により周波数を最適周波数に完全に一致させることは難しい。過去に開発されたGyrotron FU CW II (600 MHz NMR) [2]やGyrotron FU CW VII (300/600 MHz NMR) [3]は、最適周波数からずれていた。最適周波数での照射を実現するためにも、ジャイロトロンの発振周波数を連続的に変化させ、試料に対して周波数挿引することが必要である。しかしながら、ジャイロトロンは磁場強度に対して発振モードを切り替えることで発振周波数を変化させることが可能であるが、モードを変えるたびに周波数が飛び上がる段階的な変化となるため、連続的な周波数挿引を行うには適さなかった。しかしながら、福井大学遠赤外領域開発センターでは1つの発振モードで連続的に周波数を変えられることを示した[4]。この先行研究 (Gyrotron FU CW IV) に基づき、本研究では600 MHz DNP-NMR分光測定のための周波数連続可変ジャイロトロン (Gyrotron FU CW VI) の開発を行った。

## 2. 実験装置および共振器設計

DNPによるNMR感度向上の実現のためには、電子スピン周波数 $f_{\text{ESR}} \pm \text{NMR周波数}$  $f_{\text{DNP}}$ において吸収および放射のピークを持つため、その前後で滑らかな周波数可変を実現することが望まれる。600 MHz DNP-NMRの場合では、 $394.6 \text{ GHz} \pm 0.6 \text{ GHz}$ の前後1 GHz程度の周波数可変を目指すこととなる。開発を行ったジャイロトロンは15 Tのヘリウムフリー超伝導マグネットを使用し、基本波発振での周波数連続可変の実現を目指した。基本波動作とすることで、隣り合うモードとの競合する可能性を少なくし、効率良く発振を得ることが出来る。

周波数連続可変性を有する空洞共振器の形状設計は、発振中に共振器形状を機械的に変化させるか、最初から特徴的な共振器形状とする必要がある。先行研究にて開発されたGyrottron FU CW IVでは、共振器長を共振器半径の10.5倍と一般的なジャイロトロンの空洞共振器と比較して長くすることで周波数連続可変を実現した。共振器長を長くすると、式(1) から分かるように軸方向モードの間隔が接近して発振周波数が連続的になる。

$$f_{\text{cal}} = c/2\pi \sqrt{(\chi'_{mn}/a)^2 + (\pi/L)^2} \quad (1)$$

ここで、 $c$ は光速、 $\chi'_{mn}$ は $m$ 次のベッセル導関数の $n$ 番目の根、 $a$ は共振器半径、 $L$ は共振器長、 $l$ は軸方向モード数である。加えて、高次軸方向モードの発振は共振器出口にて生じた後進波の電界と電子ビームとの相互作用を起こし、軸方向モード間の発振を途切れることなく生むと考えられている[4]。Gyrottron FU CW VIの共振器設計においても、同様の手法による周波数連続可変性の実現を目指す。本ジャイロトロンの空洞共振器形状はシンプルな円筒形で、共振器長及び共振器内径は25mmと

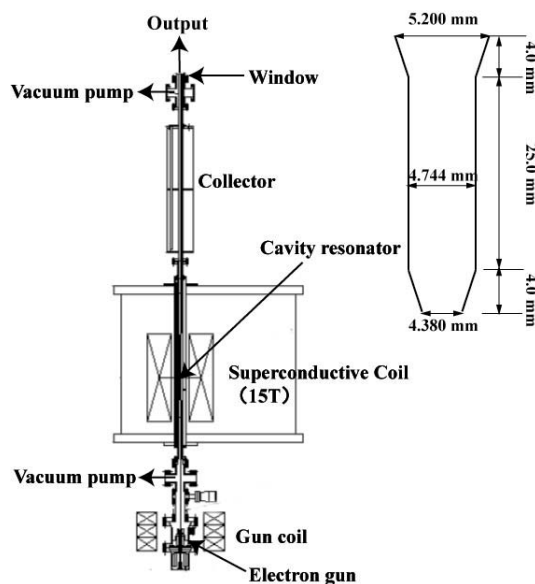


図1 Gyrottron FU CW VI と空洞共振器

4.744mmとした。

本ジャイロトロンは、マグネトロン入射型電子銃、空洞共振器、コレクター、ウィンドーの各部がフランジによって接合されたデマウント管となっている（図1）。ジャイロトロン管上部と下部には真空排気口があり、金属ベローズによって接続されたターボ分子ポンプにより、管内真空度は $10^{-6}$  Pa程度の高真空に保たれている。真空度や接合部での歪みといった点では封じ切り管にやや劣るものの空洞共振器形状の改良やモード変換器の内蔵化など改修のための有利性を持つ。補助磁場コイルは、最大300 Aにて中心磁場強度200 mTの発生が可能となっており、本研究ではコイル電流は150 Aで行った。

本研究では、焦電型検出器による実時間発振出力測定、水負荷による実効的な発振出力測定、スペクトラムアナライザー・20 GHz シンセサイザー・2通倍器とハーモニクミキサーを組み合わせたヘテロダイン受信システムでの高精度周波数測定を行った。

### 3. 共振器特性と周波数連続可変性

空洞共振器の発振特性を調べるために、磁場強度  $B_0 = 3 \sim 15$  T での焦電型検出器による発振出力測定を行った。図2に  $V_k = -12$  kV, ビーム電流  $I_b = 300$  mA, 補助磁場電流  $I_g = 150$  mA, 繰り返し周波数 5 Hz, デューティ比 20 % での測定結果を示す。数値計算によって得られた発振開始電流との比較を行うと、ほぼ期待された磁場強度での発振が得られていることが分かる。計算条件は、カソード電圧  $V_k = -12$  kV, ビーム半径 0.53 mm, ピッチファクタ 1.2 とした。また、二次高調波動作による発振についても同様に、発振出力と発振電流の比較を行った。基本波動作および二次

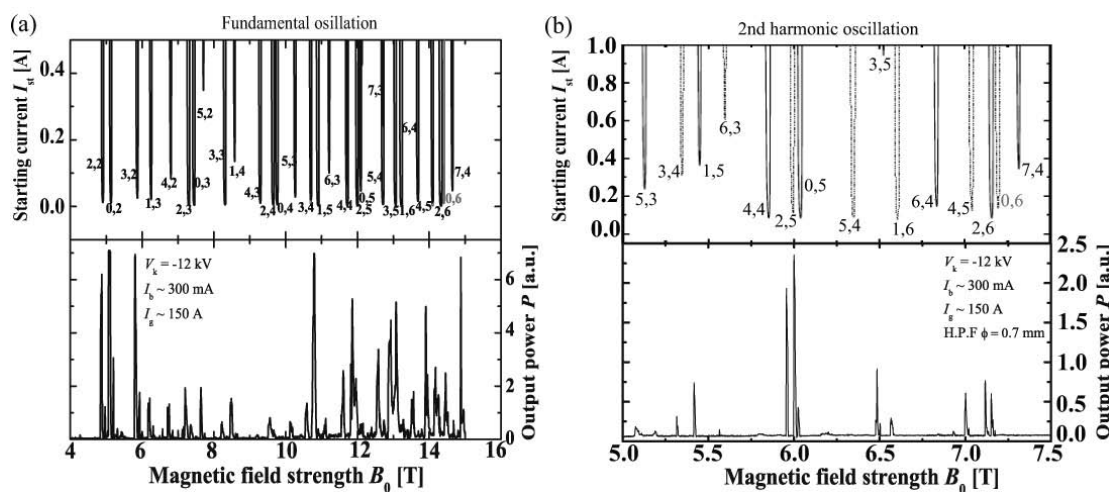


図2 基本波動作(a)及び二次高調波動作(b)における磁場強度に対する発振開始電流と発振出力の比較。

表 1 基本波発振の共振器モード

TE m,n,q	$B_{cal}$ [T]	$f_{cal}$ [GHz]	$B_{meas}$ [T]	$f_{meas}$ [GHz]	$\Delta R$ [ $\mu\text{m}$ ]
TE 0,2,1	5.134	141.35	5.1107	141.65	-5.1
TE 3,2,1	5.869	161.45	5.8299	161.34	1.6
TE 1,3,1	6.251	171.93	6.1881	171.71	3.1
TE 2,3,1	7.300	200.77	7.2312	200.78	-0.1
TE 0,3,1	7.449	204.87	7.3860	204.67	2.3
TE 5,2,1	7.709	211.84	7.6327	211.64	2.3
TE 3,3,1	8.309	228.46	8.2246	228.53	-0.7
TE 1,4,1	8.580	235.71	8.4701	235.86	-1.5
TE 4,3,1	9.293	255.35	9.2066	255.44	-0.9
TE 2,4,1	9.654	265.18	9.5510	265.12	0.5
TE 0,4,1	9.761	268.26	9.6849	268.21	0.5
TE 5,3,1	10.267	281.61	10.1863	281.63	-0.1
TE 1,5,1	10.910	299.25	10.7793	299.10	1.2
TE 6,3,1	11.210	307.39	11.1105	307.57	-1.4
TE 2,5,1	12.004	329.12	11.8576	328.87	1.8
TE 0,5,1	12.094	331.59	11.9515	331.39	1.5
TE 5,4,1	12.708	348.54	12.5779	348.33	1.5
TE 3,5,1	13.058	358.12	12.8883	357.96	1.1
TE 1,6,1	13.223	362.69	13.0643	362.30	2.5
TE 4,5,1	14.098	386.45	13.9467	386.15	1.8
TE 2,6,1	14.328	392.82	14.2209	392.32	3.0
TE 0,6,1	14.404	394.90	14.2398	394.45	2.7
TE 7,4,1	14.648	401.46	14.5000	401.18	1.6

表 2 2次高調波発振の共振器モード

TE m,n,q	$B_{cal}$ [T]	$f_{cal}$ [GHz]	$B_{meas}$ [T]	$f_{meas}$ [GHz]	$\Delta R$ [ $\mu\text{m}$ ]
TE 2,5,1	5.994	329.12	5.9164	329.07	0.3
TE 0,5,1	6.039	331.59	6.0035	331.55	0.3
TE 4,5,1	7.04	386.45	6.992	386.1	2.1
TE 2,6,1	7.157	392.82	7.1142	392.63	1.2
TE 0,6,1	7.195	394.90	7.1486	394.68	1.3

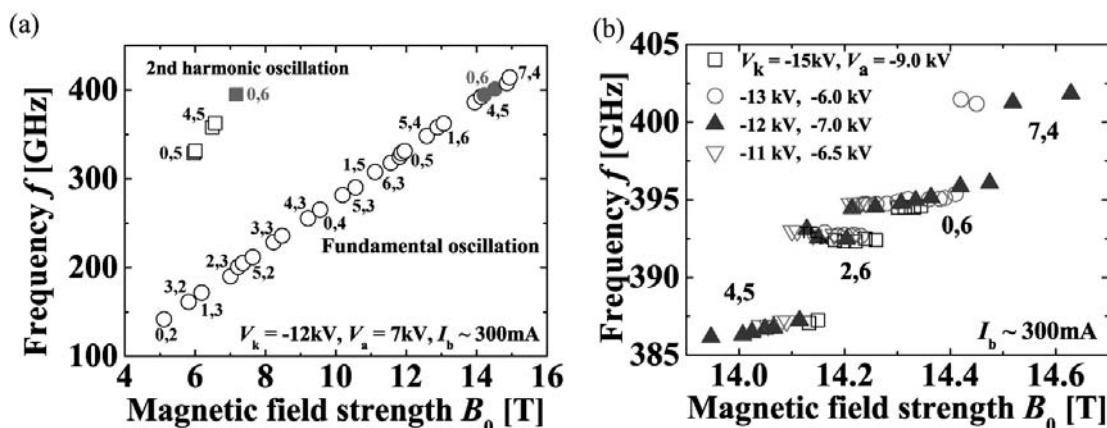


図 3 (a)磁場強度に対する基本波及び二次高調波動作の発振周波数 (b)14T 近傍での発振周波数のカソード電圧による差異

高調波動作における各発振モードでの発振出力のピークにて、ヘテロダイン受信システムによる周波数測定を行った。表 1 と表 2 に、発振モード  $TE_{m,n,p}$  のモードナンバー、計算した磁場強度を  $B_{cal}$ 、計算した発振周波数を  $f_{cal}$ 、実際に測定した磁場強度を  $B_{meas}$ 、実際に測定した発振周波数を  $f_{meas}$ 、発振周波数の計算値と測定値から求めた共振器の半径の設計値との誤差を  $\Delta R$  について示した。図 3(a)に見られるように、発振周波数は磁場強度に応じて発振モードを変えつつ段階的に変化させている。各モードの計算値との発振磁場強度のずれは、基本波動作で 0.5 ~ 1.5 % 程度、二次高調波動作で 0.5 % 程度である。また、測定された発振周波数  $f_{meas}$  は、計算によって予測された周波数  $f_{cal}$  とほぼ一致した。二次高調波動作での周波数測定の結果から評価した共振器径は製作誤差がおおよそ  $+2\mu\text{m}$  程度と非常に高精度であった。

次に、周波数連続可変性について調べるために、 $B_0 = 14\text{T}$  近傍での発振特性について調べた。まず、カソード電圧に対する発振周波数の変化を調べるために、 $V_k = -11 \sim -15\text{kV}$  にて測定を行った。図 3(b)に見られる周波数の各集団は、それぞれ  $TE_{4,5}$ ,  $TE_{2,6}$ ,  $TE_{0,6}$ ,  $TE_{7,4}$  のモードである。 $TE_{m,n}$  モードが変わるたびに周波数の大きなジャンプが起きているが、各モードにおいても周波数変化をしていることが分かる。これらは、軸方向のモード数  $q$  を変化させているためと考えられ、この間で発振が停止することなかった。発振周波数は、カソード電圧の大きさが大きいほど相対論効果による低下するがその変化は小さく、さらに  $V_k < -11\text{kV}$  の電圧では安定した発振が得られなかったことから、カソード電圧のみによる周波数連続可変性の制御は現状では難しいと考えられる。600 MHz DNP-NMR 測定のためには、395 GHz 近傍での周波数連続可変が必要とされており、これらの測定では設計モードである  $TE_{0,6,1}$  モードにて周波数の上昇が確認された。特に、 $V_k = -12\text{kV}$  において比較的幅広い周波数変化が得られたことから本ジャイロトロンの主動作条件とした。カソード電圧

$V_k = -12$  kV, ビーム電流  $I_b \sim 300$  mA における  $TE_{0,6}$  モードについて詳細な周波数測定と水負荷による実効的な発振出力について測定結果を図 4(a)に示す. 発振周波数は, 394.65 ~ 396.27 GHz に亘る約 1.6 GHz の連続的な周波数変化が得られた. また, 発振出力は磁場強度の変化によって 30 W から急激に低下しているものの, ほぼ全領域で 10W 以上の発振が得られた. この周波数連続可変性は, 軸方向モードが  $l=6$  の高次数まで連続的に発振することで実現している. これは, 共振器長が 25 mm と一般的なジャイロトロンで使用されている共振器よりも長いために, 高次数の軸方向モードが得やすくなっている. しかし, 軸方向モードが多く発振されただけでは各軸方向モード間の発振出力が停止する可能性もあるが停止することなかった. これは, Gyro-BWO の動作原理に似た現象が起きているためと考えられている. ジャイロトロンの共振器内で, 電子ビームとその進行方向に逆向きの後進波成分が相互作用しているときに, 磁場強度が変化することで異なる軸方向モードが密になって発振し, 1つの軸方向モードによる発振が終わる前に次の軸方向モードが発振され周波数も連続的に変化したと考えられる. 二次高調波動作での  $TE_{0,6}$  モードについても, 図 4(b)に示す. 二次高調波動作でも, 約 0.6 GHz の周波数可変が得られたが発振出力が 10W 以下と小さい. また, 軸方向モード数は  $l=4$  程度と基本波動作時よりも低次数となっている.

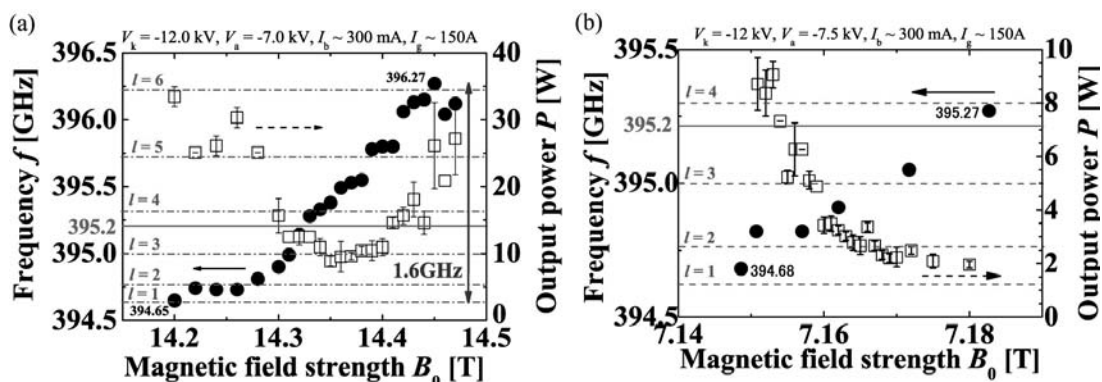


図 4 (a)基本波動作における周波数連続可変性と発振出力 (b) 二次高調波動作における周波数連続可変性と発振出力

#### 4. 発振出力の特性

Gyrotron FU CW VIは, 感度向上が最大となる395.20 GHzを含む1.6GHzの亘る周波数連続可変性を有することが確認された. しかしながら, 実際のDNP-NMR測定では, 数時間の発振出力・周波数の安定性も必要となる. そこで, まず焦電圧型検出器を用いて10分間における放射電力の安定性について調べた. 図5(a)は磁場強度 $B_0 = 14.20$  Tにおけるビーム電流 $I_b \sim 100$  mA, 300 mA, 400mAでの差異および,  $B_0 = 14.35$  Tのける $I_b \sim 300$  mAでの出力波形を示す. 測定は, カソード電圧 $V_k = -12$  kV, アノード



ド電圧 $V_a = -7$  kV, Duty比50%, パルス周波数10 Hzにて行った. 発振出力は, ビーム電流が大きいほど揺動振幅が20~30%程度と大きくなる. ただし, 発振出力が低い場合においてはビーム電流が300 mA程度あっても揺動振幅が極端に大きくなることはなかった. 図5(b)にビーム電流に対する水負荷測定による実効的な発振出力の結果を示す. ビーム電流量を制御し, 発振出力を10W程度とすることで発振出力

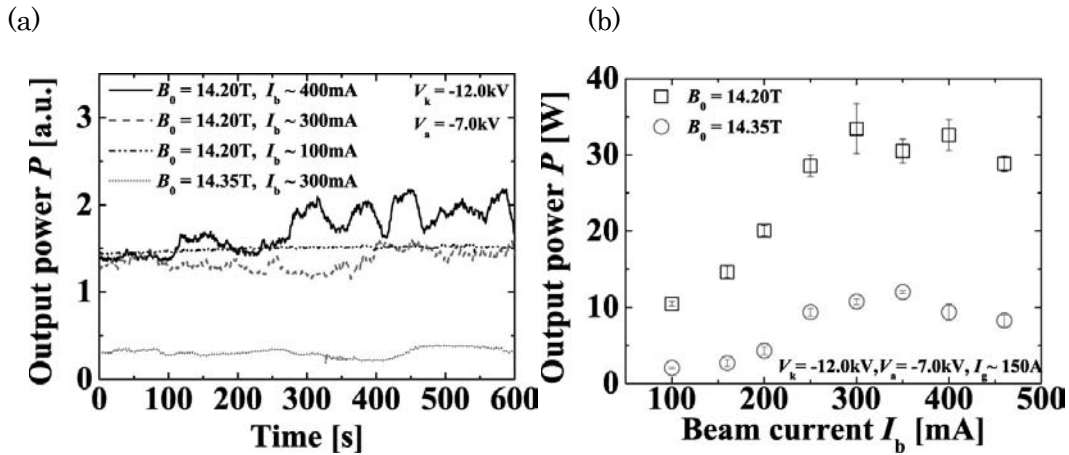


図5 (a)発振出力の時間発展 (b)ビーム電流に対する実効的な発振出力

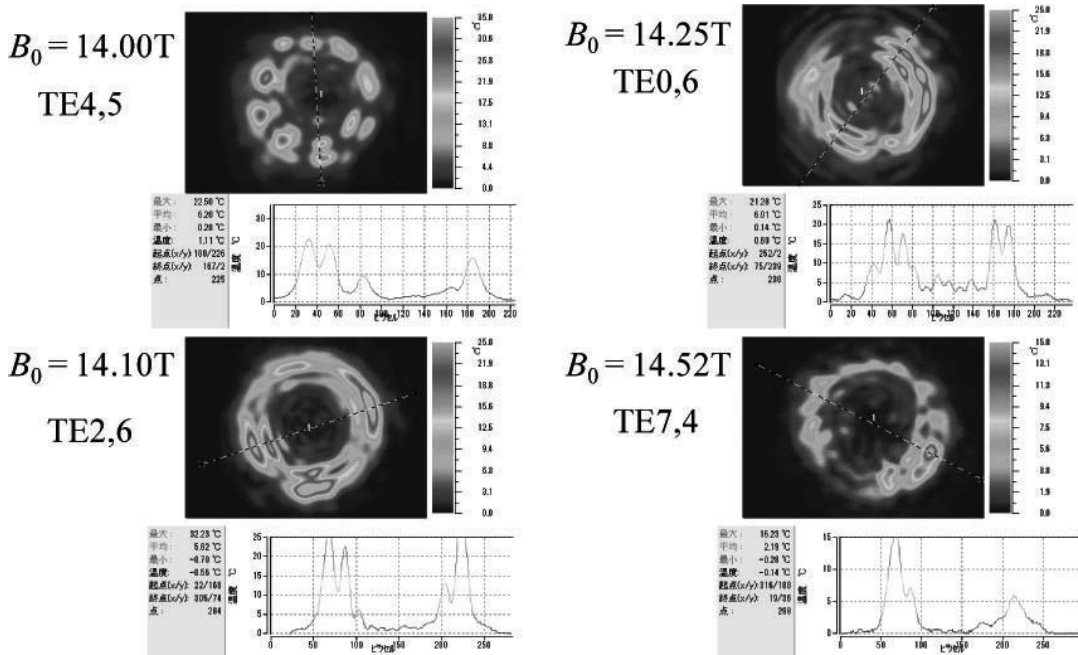


図6 赤外線カメラによるモードパターン測定

の揺動振幅を抑えた安定した発振が可能になると考えられる。一方で、安定性を重視することで試料に照射する出力が低下し、十分な感度向上が得られなければ意味が無い。伝送損失を極力抑えることも重要な課題である。本ジャイロトロンには、伝送損失に小さいガウスモードへのモードコンバーターは内蔵されていない。その為、モード変換するためには出力窓の上に設置することとなる。効率良くモード変換を行うには、窓から出力された放射モードパターンが歪んでいないことが重要となる。真空窓から塩化ビニル板を430 mmと1070 mmの位置に設置し、モードパターン測定を行った。図6にTE<sub>4,5</sub>, TE<sub>2,6</sub>, TE<sub>0,6</sub>, TE<sub>7,4</sub>の発振磁場にて測定した結果を示す。各々のケースにおいても局所的な温度上昇が見られ、放射方向の傾きがある可能性が高い。特にTE<sub>2,6</sub>とTE<sub>0,6</sub>の判別がつきにくくなっている。本ジャイロトロンはデマウント管であるため、共振器部とコレクター部で接合のズレや傾きなどによってモード純度が崩れた可能性が高い。今後は新たに開発を行う封じ切り管にて、モードパターンの測定とモードコンバーターの開発を行っていく。

## 5. まとめ

本研究では、600 MHz DNP-NMR測定のための周波数連続可変型ジャイロトロン Gyrotro FU CW VIの開発を行った。TE<sub>0,6</sub>モードにおいて394.65 ~ 396.27 GHzに亘る約1.6 GHzの周波数連続可変を実現した。これは、感度向上が期待される395.2 GHzを含んでおり、効果的なDNPの実現が期待できる。また、発振出力は周波数によって10 ~ 30W程度の幅はあるものの、試料への照射が5W程度あれば良いことから大凡の条件を満たしていると考えられる。ただし、長時間の安定した動作や伝送損失を減らしていくためには、ビーム電流やアノード電圧の制御、高純度なモード発振と



図7 大阪大学蛋白質研究所に設置したGyrotrotron FU CW VIと600 MHz NMR装置

ガウスビームへのモード変換などが必要とされる。今後は、現在開発を進めている

封じ切り管を用いて、更なる性能向上を目指していく。開発が完了したGyrotron FU CW VI は、周波数連続可変性によるDMR感度向上の最適化を実証するために大阪大学蛋白質研究所への移設を行った（図7）。現在、発振の調整を進めており世界初の周波数連続可変ジャイロトロンによる最大級のNMR感度向上を目指す。

#### 参考文献

- [1] A.W. Overhauser, “Polarization of Nuclei in Metals”, *Physical Review* **92**, 1953, pp. 411-415.
- [2] T. Idehara, I. Ogawa, La Agusu, T. Kanemaki, S. Mitsudo, T. Saito, T. Fujiwara and H. Takahashi, “Development of 394.6 GHz CW Gyrotron (Gyrotron FU CW II) for DNP/NMR at 600 MHz”, *Int. J. of Infrared and Millimeter Waves* **28**, No. 6, 433-442 (2007).
- [3] T. Idehara K. Kosuga, La Agusu, I. Ogawa, H. Takahashi, M.E. Smith and R. Dupree, “Gyrotron FU CW VII for 300 MHz and 600 MHz DNP-NMR Spectroscopy”, to be published in *J Infrared Milli Terahz Waves*, 10.1007/s10762-010-9637-9 (2010).
- [4] T.H. Chang, T. Idehara, I. Ogawa, L. Agusu and S. Kobayashi, “Frequency tunable gyrotron using backward-wave components”, *J. Appl. Phys.* 105, 063304 (2009).