科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6月 27 日現在

機関番号: 13401
研究種目:基盤研究(C)(一般)
研究期間: 2015~2017
課題番号: 15K05144
研究課題名(和文)高出力THz波ジャイロトロン光源を用いた高周波パルスESR装置の開発と応用
研究課題名(英文)Development and application of a high frequency pulsed ESR system by using high power THz gyrotron as light source
四 <u>空</u> 公主者
WICTURA目 光藤 誠大郎(Seitaro Mitsudo)
福井大学・遠赤外領域開発研究センター・教授
研究考悉是:60261517
交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文):ミリ波パルスESR測定を実現するために,高出力ミリ波源として154GHzのジャイロトロン発振器を用いたパルスESRシステムを開発した.ジャイロトロンの出力を数ナノ秒の高出力超短パルスに切り出す光駆動半導体スイッチの開発した.また,この超短パルスを励起光としてパルスESR信号を取り出す準光学伝送系の開発を行った.このシステムを用いてBDPAラジカルのFID信号を測定することに成功した.これにより,高周波領域では高出力の励起光源の不足から高周波化が困難であるとされていたパルスESR測定において,高周波ジャイロトロン発振器を用いることで可能になることを示し,さらなる高周波化が可能であることを示した.

研究成果の概要(英文): In order to realize millimeter wave pulsed ESR measurement, a pulsed ESR system using a 154 GHz gyrotron oscillator as a high-power millimeter wave source had been successfully developed. Intense and short excitation millimeter wave pulses by using a gyrotron output, a high-power millimeter wave pulse forming system has been developed by using light controlled semiconductor shutters. Quasi-optical transmission system that obtains pulsed ESR signal by using this ultrashort pulse as excitation light. This system was successfully applied to measure the FID signal of BDPA radicals. As these results, it shows that in the high frequency region, it can be achieved by using a high frequency gyrotron oscillator in pulsed ESR measurement, which was considered to be difficult to increase the frequency from the lack of the high-power excitation light source, further higher frequency can be achieved, respectively.

研究分野:磁気共鳴法を用いた磁性や量子計算デバイスに関する研究

キーワード: 高周波ESR パルスESR ミリ波 強磁場 BDPAラジカル FID ジャイロトロン 準光学

1.研究開始当初の背景

ジャイロトロン光源は数十 Wから数kWの THz 電磁波を発生できる点を特徴とするメ ーザー発振器であり、我々のグループは高周 波のジャイロトロン光源の開発応用で世界 をリードしてきている. 高周波電子スピン共 鳴(HF-ESR)計測へのジャイロトロン光源を 応用することで低温やパルス強磁場等の極 限環境での測定を可能とした.次にジャイロ トロン光源の高周波・高出力特性を利用する ことで、これまで高周波化が困難であったパ ルス ESR の計測の実現を目指した. 本研究 の実施するにあたり 154 GHz 100 W クラス のジャイロトロンを開発するとともに、パル ス ESR に必要なパルス幅が数十ナノ秒程度 のミリ波パルスを成型する光駆動半導体シ ステムを開発した.

2.研究の目的

本件研究では、高出力のミリ波発振器であ るジャイロトロンを用いることにより、これ まで実用化が遅れている、高周波のパルス ESR 測定装置を世界に先駆けて開発するこ とを目的にしている.

電子スピン共鳴(ESR)分光法は、物質中の 微視的特性を調べる最も重要な方法の1つで ある. さらに、パルス ESR 法は、CW- ESR 法 と比較して、電子スピンの緩和時間を直接測 定する利点がある.最も一般的なパルス ESR 法の1つは、スピンエコー法であり、 遅 延時間 の間隔を持つ2つの励起パルス(/2および パルス)がサンプルに照射され、 エコー信号は、2番目のパルスから 遅れ て観測される.一般に、パルスESR分光法は、 ー定のパルス持続時間 t が必要であり.さ らに必要な励起マイクロ波強度 PRF は t~ PRF⁻¹となる.より高いパワーの励起パルス PRFを用いることは、より短い tの測定が可 能であることを意味し、パルス ESR 法をよ り速い緩和を持つ現象への適用に拡張する ことができる. これまでに, 市販の X バンド パルス ESR システムは、多くの研究者によ って広範囲に使用されてきた. ミリ波および サブミリ波領域のパルス ESR による強磁場 (高周波)化は分解能の増強や大きなゼーマン 分裂状態での電子スピンの緩和といった近 年注目を集めているスピンダイナミックス を明らかにできると考えられてる. しかしな がら、その開発には、高出力発振および高出 力・高周波電磁波の制御デバイスやそれらを 用いた技術の開発が必要であり,現在はまだ 多くの困難を伴う.ジャイロトロンは、サブ ミリ波領域の高出力発振源であり、これは短 パルス ESR システムの電磁波の発振源に適 している. 高出力ジャイロトロンからの数 kW のミリ波は、上記の出力とパルス幅の関 係からナノ秒オーダーのパルス持続時間 t を可能にする. このようなシステムは、特に 短い緩和時間を有する測定対象においての 測定を可能とし、材料科学やライフサイエン

ス, 量子コンピューターデバイスの発展に寄 与できる.

3.研究の方法

(1) ジャイロトロンを用いたパルス ESR 装置 の開発

これまでに、高出力ミリ波源としてジャイ ロトロン発振器を用いてパルス ESR 測定を 実現するために、154 GHz ジャイロトロン (Gyrtron FU CW VIIA)を開発した.ジャ イロトロンの出力は、光駆動半導体シャッタ ーシステムによって、任意の遅延時間 τ の間 隔を持つ2つの高出力ナノ秒ミリ波パルスに スライスされる.これらの短パルスを ESR 測定プローブに導く準光学的伝送システム の開発を行った.準光学伝送路は、電磁波の 偏光特性の維持や、ミリ波およびサブミリ波 領域の低電力伝送損失などの利点を有する。 この準光伝送路は、3 つの特徴的な部分から なる。図1にこの擬似光伝送システムの概略 図を示す.



図 1 は、開発したジャイロトロンを光源とし たパルス ESR システムの準光伝送システム の概略図である。

このジャイロトロン発振器の出力は円形導 波管モードで出力されるが、本システムはブ ラソフアンテナからなるモード変換器によ リガウシァンモードの出力が得られるよう になっている.まず、このジャイロトロンか らのガウシァンモードの数ミリ秒のパルス 電磁波は二台の Nd-YAG レーザー光により 制御される光駆動半導体スイッチによる準 光学パルス形成システム (PFS) により数十 ナノ秒の超短パルスのガウスビームに成形 される.この数十ナノ秒のパルスは、準光学 結合器 I(MOU-I)により、長距離伝送に適 したビーム形状に変換される。その後、4つ の楕円ミラーと4つの平面ミラーとからなる 準光学伝送路 (QOT) により ESR のマグネ ット近くまで伝送される.次にコルゲート導 波管からなる ESR プローブとの結合に適し たビームウエストサイズに変換するのが MOU-IIである. また、MOU-IIはワイヤーグ リッドとファラデーローテーターにより構 成されるスイッチャーやデュプレクサとし ても機能する. またパルス ESR 用のジャイ ロトロンからのパルス波とcw-ESR 用のベク トルネットワークアナライザー(Gunn 発振 器)から連続波を平面ミラーの回転で変更す ることができるシステムになっている. ESR プローブからの出力は、ワイヤグリッド (WG)を90度回転させることで異なる方向 に反射され,ショットキーダイオード検出器 またはヘテロダイン検出器を切り替えるこ とができる.

非常に弱いパルス ESR 信号 (FID およびス ピンエコー)および ESR プローブから反射 された高出力の励起パルスは同様に, MOU-II で送り返され, ワイヤーグリッドに よるデュプレクサによって受信器側に切り 替えて送られる. パルス ESR の測定では強 い励起電磁波を取り除いて, 微弱な ESR 信 号のみを受信器に送る必要がある. そのため, 受信システムでは, 励起パルスと ESR 信号 は, 励起パルスに同期した光駆動半導体スイ ッチによって時系列で分離され, ESR 信号の みが高速ショットキーバリアダイオードま たはヘテロダイン検出器によって検出され る.

(2) BDPA ラジカルの測定

最初に, BDPA ラジカルの FID (Free Induction Decay)信号の測定を行った. 図 2 に,高出力ミリ波源としてジャイロトロンを 用いたこのパルス ESR システムによる BDPA の FID 信号を示す.測定は,cw-ESR で測定した BDPA の共鳴磁場である 5.530T を行った中心に磁場を上下に 10 ガウスずつ 変化させて測定を行った. 上側は高磁場側 に対応し励起パルス幅は 40 ns である.また, 測定は 10 K に冷却して行った.



図 2 測定された BDPA ラジカルの FID 信号

共鳴磁場から約 30 Gauss (0.003 T)の範囲 で FID を観測された.また,励起パルス幅を 10 ns まで減少して測定を行うと,FID 信号 は減少した.このことは,40 ns の励起バルス では 90 度条件までの励起が行えていないこ とを示している.現在のジャイロトロンによ る試料部での励起パルスの出力は 30 W 程度 と見積もられる.また光駆動半導体スイッチ に用いているシリコンのホットエレクトロ ンの緩和時間から 40 ns より長いパルスでは, 成形したパルスの波形が方形からかなり崩 れてくることより,これ以上の長いパルスで の実験は行わなかった.今後より高出力のジ ャイロトロンによる測定が望まれることが 分かった.

4.研究成果

ミリ波パルス ESR 測定を実現するために, 高出力ミリ波源としてジャイロトロン発振 器を用いたパルス ESR システムを開発した. このシステムを用いて BDPA ラジカルの FID 信号を観測することに成功した.本装置 は国内で最高周波数のパルス ESR 測定装置 であり.またジャイロトロン発振器を用いた パルス ESR 装置としては世界で初めての装 置である.この成果により,ジャイロトロン がスピンダイナミクスを測定できるパルス ESR 測定に有効であることを初めて示した. また現在の 100 W 程度のジャイロトロンで は出力が不十分であり,より多くの測定に適 応するためには,kW クラスのジャイロトロ ンを用いる必要があることが示唆された.

5.主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に は下線)

〔雑誌論文〕(計3件)

(1) <u>Mitsudo S.</u>, Hiiragi K., Khono K., Narioka M., Fujii Y, Application of a millimeter wave gyrotron for the pulsed ESR spectroscopy, 2017 42nd International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), 査読なし, 1, 2017,1-1.

DOI: 10.1109/IRMMW-THz.2017.8066855

(2) <u>S. Mitsudo</u>, C. Umegaki, K. Hiiragi, M. Narioka, Y. Fujii, Y. Tatematsu, Development of a millimeter wave pulsed ESR system by using a gyrotron as a light source, 2016 41st International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz), 査読なし, 1, 2016,1-1.

DOI:10.1109/IRMMW-THz.2016.7758476

(3) <u>S Mitsudo</u>, C Umegaki, Y Fujii, Y Tatematsu, Quasi-optical transmission system for a pulsed ESR system by using a gyrotron as a light source, 2015 40th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz), 査読なし, 1, 2015,1-2. DOI: 10.1109/IRMMW-THz.2015.7327943

[学会発表](計17件)

柊木健志、河野海志、堂野壱暉、藤井裕、 <u>光藤誠太郎</u>, 154GHz ジャイロトロン高原を用 いたパルス ESR 装置の開発 , 日本物理学会 第 73 回年次大会, 2018 年 3 月 22 日~3 月 25 日,東京理科大

堂野壱暉,三浦俊亮,大矢健太,柊木健志, 河野海志,<u>光藤誠太郎</u>,可変Fabry-Perot共 振器を用いたミリ波帯多周波ESR装置の開発, 日本物理学会北陸支部定期公演会,2017年 12月2日,福井大学

柊木健志,河野海志,堂野壱暉,<u>光藤誠太郎</u>, 154 GHz ジャイロトロン光源を用いたパルス ESR 計測,電子スピンサイエンス学会,2017 年11月2日~4日,東京工業大学

河野海志・柊木健志・堂野壱暉・<u>光藤誠太</u> <u>郎</u>,ミリ波帯パルス ESR のためのスピンエコ ー検出系の開発,2017年11月2日~4日,電 子スピンサイエンス学会,東京工業大学

柊木健志、河野海志、成岡夢有、<u>光藤誠太</u> <u>郎</u>,ジャイロトロン光源を用いたミリ波帯パ ルス ESR 装置の開発,日本物理学会 第72 回年次大会,2017年9月21日~24日,岩手 大

<u>S Mitsudo</u>, K Hiiragi, K Khono, M Narioka, Y Fujii, Application of a millimeter wave gyrotron for the pulsed ESR spectroscopy, 42th IRMMW-THz 2017, カンクン(メキシ コ)2017年9月9日~14日

柊木健志,河野海志,成岡夢有,<u>光藤誠</u> <u>太郎</u>,ジャイロトロン光源を用いたミリ波 帯パルス ESR 装置の開発,日本物理学会第72 回年次大会,大阪大学,2017 年 03 月 17 日~ 2017 年 03 月 20 日

柊木健志,成岡夢有,河野海志,<u>光藤誠</u> <u>太郎</u>,立松芳典,ジャイロトロン光源によ るミリ波帯パルス ESR のための準光学整合 器の開発,第 55 回電子スピンサイエンス学 会年会(SEST2016),大阪市立大学,2016 年 11月10日~2016年11月12日

<u>S. Mitsudo</u>, K. Hiiragi, K. Khono, M. Narioka, Y. Fujii, Application of a millimeter wave gyrotron for the pulsed ESR spectroscopy, 41th IRMMW-THz 2016,2016 年 9 月 25 日-30 日, コペンハーゲ $\mathcal{V}(オ = \mathcal{V} \mathcal{I})$

柊木健志,成岡夢有,<u>光藤誠太郎</u>,立松 芳典,河野海志,ミリ波帯パルス ESR のため の準光学整合器 Ⅱ の開発,日本物理学会 2016 年秋季大会,2016 年 09 月 21 日 ~ 2016 年 09 月 24 日,金沢大学

<u>S. Mitsudo</u>, K. Hiiragi, M. Narioka, C. Umegaki, Y. Fujii, Application of millimeter wave gyrotron to pulsed ESR measurement, Asia-Pacific EPR/ESR Symposium 2016, 2016 年 8 月 28 日 -9 月 2 日, イルク-ック(ロシア)

<u>光藤 誠太郎</u>,梅垣知弘,柊木健志,成 岡 夢有,立松 芳典,ジャイロトロン光源 を用いたミリ波帯パルスESR装置の開発III, 日本物理学会第71回年次大会,2016年3 月19日 ~ 2016年3月22日,東北学院大

<u>光藤誠太郎</u>,ジャイロトロン光源を用いた最近の応用研究,第二回西日本強磁場科 学研究会,2015年11月24日,神戸大学

梅垣知弘,成岡夢有,柊木健志,<u>光藤</u> <u>誠太郎</u>,立松芳典,ジャイロトロン光源を 用いた強磁場パルス ESR の開発,第二回西日 本強磁場科学研究会,2015 年 11 月 24 日,神 戸大学

梅垣知弘, 成岡夢有, 柊木健志, <u>光藤誠</u> <u>太郎</u>, 立松芳典, ジャイロトロン光源を用 いたミリ波帯パルス ESR のための準光学伝送 系の開発, 電子スピンサイエンス学会 2015, 2015 年 11 月 02 日 ~ 2015 年 11 月 04 日, 新 潟朱鷺メッセ

梅垣知弘,成岡夢有,柊木健志,<u>光藤誠</u> <u>太郎</u>,立松芳典,ジャイロトロン光源を用 いたミリ波帯パルス ESR 装置の開発 II,日本 物理学会 2 0 1 5 年秋季大会,2015 年 09 月 16 日,関西大学

<u>S.Mitsudo</u>, C. Umegaki, Y. Fujii and Y. Tatematsu, Quasi-optical transmission system for a pulsed ESR system by using a gyrotron as a light source, 40th Int. Conf. on Infrared, Millimeter, and THz Waves, 2015年08月23日~2015年08月25日,上 海(中国)

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称: 発明者: 権利者: 番号: 出願 外の別:

取得状況(計 0件) 名称: 発明者: 権利者: 種類: 番号: 取得年: 国内外の別: 〔その他〕 ホームページ等 http://fir.u-fukui.ac.jp 6.研究組織 (1)研究代表者 光藤 誠太郎(MITSUDO SEITARO) 福井大学・遠赤外領域開発研究センター・ 教授 研究者番号:60261517 (2)研究分担者 () 研究者番号: (3)研究協力者 藤井 裕 (FUJII YUTAKA) 福井大学・遠赤外領域開発研究センター・ 准教授 立松 芳典(TATEMATSU YOSHINORI) 福井大学・遠赤外領域開発研究センター・

教授