

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 18 日現在

機関番号：13401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630142

研究課題名(和文) ジャイロトロンの周波数変調と動的核偏極によるNMR分光の超高感度化への応用

研究課題名(英文) Frequency modulation of gyrotrons and its application to high sensitivity NMR spectroscopy using dynamic nuclear polarization

研究代表者

出原 敏孝 (Idehara, Toshitaka)

福井大学・遠赤外領域開発研究センター・特任教授

研究者番号：80020197

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)： 高出力サブテラヘルツ光源- ジャイロトロンを用いて、電子スピン分極を核スピンの移行する(動的核偏極)ことにより、NMR分光の感度を600倍以上向上することに成功した。さらに、本研究において、ジャイロトロンに以下の3機能を持たせることにより、NMR 分光の感度を高め、10000倍以上を達成することを目指す。

1) 電子ビームのエネルギーを変調することにより、周波数を変調して、電子スピン共鳴(ESR)の幅を広げることにより、動的核偏極に寄与する電子スピンの数を増やすこと。2) PID制御により、電子ビームを安定化して、出力を長時間安定化すること。3) ジャイロトロンシステムをコンパクト化すること。

研究成果の概要(英文)： By irradiation of high power sub-THz radiation from gyrotrons, magnetic polarization of electron spin is transferred to nuclear spin which results in the high sensitive NMR spectroscopy by use of dynamic nuclear polarization (DNP) effect. In this work, we will achieve further enhancement of NMR sensitivity by add following three functions on the gyrotrons,

1) By the modulation of an electron beam energy, we will achieve the frequency modulation of gyrotron output in order to extend the ESR resonance width and increase the number of electron spin which contribute to DNP. 2) By stabilization of the electron beam current, we will achieve the long-term stable gyrotron operation. 3) By making the gyrotron system compact, we can access the gyrotron system to big scale NMR spectrometer system.

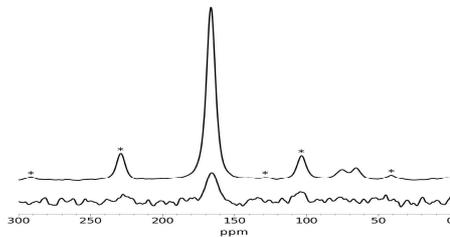
研究分野：テラヘルツ理工学

キーワード：ジャイロトロン DNP-NMR サブテラヘルツ 周波数変調 長時間安定動作 ESR NMR

1. 研究開始当初の背景

本研究の対象となる DNP を用いた NMR 分光は、感度を 1,000 倍以上向上させ、複雑蛋白質分子の解析に要する時間を 1,000 分の 1 に短縮することのできる画期的な技術である。ESR 周波数 W_0 から NMR 周波数 W_n だけ異なる周波数 $W_0 \pm W_n$ のサブミリ波をジャイロトロンから照射することにより、エネルギーレベルの遷移が起こり、核スピンによる分極が 1,000 倍増加し、NMR 分光の感度が向上する。

この方法は、NMR の感度向上に関して、他の追随を許さない画期的な方法であり、感度の向上値も 1,000 倍と桁外れに大きい。下図に、われわれが行った感度向上の実験結果を示す。



ジャイロトロン出力を照射しない場合(下のトレース)に比べて照射した場合(上のトレース)には約 60 倍の感度向上が得られている。本プロジェクトでは、さらにジャイロトロンの周波数を変調することにより、周波数変調幅内に存在する電子スピンの分極をすべて活用することにより、NMR 分光の感度を 1 桁向上させ、10,000 倍以上の感度向上を実現する技術の開発を行う。

2. 研究の目的

テラヘルツのブレイクスルーの達成に成功した周波数固定の高出力光源「ジャイロトロン」から出力される高出力サブミリ波を用いて極低温高磁場下での巨大な電子スピン分極を核スピンに移行する(動的核偏極(DNP))ことにより、すでに固体 NMR 分光の感度を 1,000 倍以上高める初の実験を試み、約 600 倍の感度向上を達成した。本研究では、さらに、本来、周波数固定のテラヘルツ高出力光源である「ジャイロトロン」に周波数変調の画期的な機能を装備することにより、電子スピン共鳴の周波数に幅を持たせて、DNP の対象となる電子スピン共鳴の周波数幅を拡張して、核スピンへ移行する電子スピン分極を一桁増強することを可能にし、その結果として、NMR 分光の感度をさらに一桁高め 10,000 倍以上の感度向上を可能とする NMR 分光の極限的技術を開発する。

3. 研究の方法

平成 25 年度は、本研究の本来の目標である「ジャイロトロンの周波数変調により広い周波数

領域にわたる電子スピンの共鳴(ESR)を励起して、大強度の電子スピンの磁気分極を核スピンに移行することにより、NMR 分光の感度を 10,000 倍増強する実験的研究を行うため、これに最適化した高出力テラヘルツ光源 - ジャイロトロンの高機能化を行う。即ち、(1)本来周波数固定の光源であるジャイロトロンに後進波相互作用を取り入れる画期的試みにより、変調幅 100MHz に亘って周波数変調を達成し、また、(2) 感度向上にも関わらず、長時間を要する計測に対応するために、ジャイロトロンの長時間にわたる安定化を PID 制御によって達成する。

平成 26 年度以降は、遠赤外領域開発研究センターに設置されている 200 MHz DNP-NMR 装置と大阪大学蛋白質研究所の 600 MHz DNP-NMR 装置の実機に、開発した高機能周波数変調ジャイロトロンを設置して NMR 分光の感度向上の実験的検証を行う。

4. 研究成果

平成 25 年度

1. ジャイロトロンの高機能化

周波数変調 ジャイロトロンは、磁場中で旋回運動する電子の旋回エネルギーを電磁波のエネルギーに変換することにより、サブテラヘルツ光源として動作する。動作周波数は電子の回転周波数(即ち、電子のサイクロトロン周波数)に等しく、従って、磁場の強度に比例し、電子の質量に反比例する。磁場強度の変調による周波数変調の方法が可能であるが、この方法は磁場変調の速度が遅いため、高速の変調は不可能である。本プロジェクトでは、高速の周波数変調が必要であることから、電子ビームのエネルギーを変調することにより、相対論効果で電子の質量を変調して周波数変調を実現する方法を用いた。電子ビームの加速電圧の変調幅を 1kV まで変えることにより周波数変調幅約 100 MHz を達成した。

2. 1 日以上長時間安定化動作

ジャイロトロン出力は、電子ビーム電流の変化によって変化する。従って、出力をモニターし、その変化を電子銃のフィラメント電源にフィードバックして、ヒーターに供給される電力を PID 制御することにより、電子ビーム電流を安定化して、出力の安定化を達成した。1 日以上長時間に亘る安定動作のためには、実験室の温度制御により、実験室の環境を一定に保持することも必要であるので、空調機使用の範囲内で室温制御を実施した。一方、周波数については、ジャイロトロンが本来周波数固定の光源であることから、フリーラ

ニングの状況でも、 10^{-8} 程度の安定化は容易に得られるので、あえて制御の必要はない。

3. ジャイロトロン・システムのコンパクト化

通常、600MHz を超える高周波の NMR 装置は、15 テスラを超える強磁場を必要とし、大規模装置の一つである。このため DNP-NMR 分光のために NMR 装置の近辺に設置するジャイロトロンは、アクセスが容易なように、コンパクト化する必要がある。超伝導マグネットと高電圧電源をコンパクト化することにより、全高 1m、床専有面積 3m^2 のコンパクトなジャイロトロンシステムを完成させた。

平成 26 年度

DNP による NMR 分光の超高感度化の実証実験

遠赤外領域開発研究センターに設置されている 200 MHz DNP-NMR 装置と大阪大学蛋白質研究所の 600 MHz DNP-NMR 装置を用いた共同研究により、感度向上の実験を行い、ジャイロトロンの周波数変調による NMR 分光の感度向上を確認した。

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 12 件)

- 1) A.Miyazaki, T. Idehara, 他
First millimeter-wave spectroscopy of ground-state positronium, Progress of Theoretical and Experimental Physics, 011C01, 1/10 10/10 (2015).
- 2) T. Idehara, A Kuleshov, K. Ueda, E.Khutoryan
Power stabilization of high frequency gyrotron using a double PID feedback control for application to high power THz spectroscopy, Journal of Infrared, millimeter and Terahertz Waves, 36, 150-168 (2014).
- 3) G.S. Nusinovich, T. Idehara, 他
Effect of atmospheric conditions on operation of terahertz systems for remote detection of ionizing materials, Phys. Plasmas 21, 013108 (2014).
- 4) E. Khutoryan, T. Idehara, 他
Theoretical study of the effect of electron beam misalignment on operation of the gyrotron FU VW IVA, IEEE Transactions on Plasma Science, 42, 1586-1593 (2014).
- 5) T. Idehara, Y. Tatematsu, -他

The Development of 460 GHz gyration's for 700 MHz DNP-NMR spectroscopy, Journal of Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, DOI: 10.1007/s10762-015-0150-z. (2014)

- 6) R. Ikeda, T. Idehara, 他
Broadband continuously frequency tunable gyrotron for 600 MHz DNP-NMR spectroscopy, Plasma and Fusion Research: Rapid Communication, 9, 1206058-1 3 (2014).
 - 7) E Khutoryan, T. Idehara, 他
Gyrotron Output Power Stabilization by PID Feedback Control of Heater Current and Anode Voltage, Journal of Infrared, Millimeter and Terahertz Waves 35, 1018-1029 (2014).
 - 8) R. Ikeda, T. Idehara, 他
Broadband Continuously Frequency Tunable Gyrotron for 600 MHz DNP-NMR Spectroscopy, Plasma and Fusion Research: Rapid Communication, 9, 1206058-1 3(2014).
 - 9) A.. Miyazaki, T. Idehara, 他
The Direct Spectroscopy of Positronium Hyperfine Structure Using a Sub-THz Gyrotron, Journal of Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, 35, 91-100 (2013).
 - 10) Yoh Matsuki, K. Ueda, T. Idehara
Application of continuously frequency-tunable 0.4 THz gyrotron to dynamic nuclear polarization for 600 MHz solid-state NMR, J. Infrared, Millimeter and Terahertz Waves 33, 743-755 (2012).
 - 11) T. Idehara, J. C. Mudiganti
Development a compact sub-THz gyrotron FU CW CI for application to high power THz technologies J. Infrared, Millimeter and Terahertz Waves 33, 724-744 (2012).
 - 12) F. Horii, T. Idehara, Y. Fujii
Development of DNP-enhanced high-resolution solid-state NMR system for the characterization of the surface structure of polymer material, J. Infrared, Millimeter and Terahertz Waves 33, 756-765 (2012)
- [学会発表] (計 11 件)
- 1) T. Idehara, Y. Tatematsu, 他
Applications of high frequency gyrotron to high power THz spectroscopy, 9th International Workshop on Strong Microwave and Terahertz Waves: Sources and Applications (招待講演) 24 July 2014 – 30 July 2014.

- 2) O. Dumbrajs, T. Idehara, 他
Optimization of operation of the gyrotron FU CW GO-II for DNP-NMR spectroscopy, 9th International Workshop on Strong Microwave and Terahertz Waves: Sources and Applications (招待講演) 24 July 2014 – 30 July 2014.
- 3) M. Petelin, T. Idehara, 他
Plans of quasi-optical experiment at JAEA and NIFS, 9th International Workshop on Strong Microwave and Terahertz Waves: Sources and Applications (招待講演) 24 July 2014 – 30 July 2014.
- 4) T. Idehara, Y. Tatematsu, 他
Sub-THz Gyrotrons with Special Functions of Frequency Control for Application to DNP-NMR Spectroscopy, 49th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, 14 Sep. 2014 – 19 Sep. 2014, Tucson, USA.
- 5) J. Sirigiri, T. Idehara, 他
Corrugated Transmission Line Systems for 395 GHz/600 MHz and 460 GHz/700 MHz DNP-NMR Spectroscopy, 49th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, 14 Sep. 2014 – 19 Sep. 2014, Tucson, USA.
- 6) T. Idehara, Y. Tatematsu, 他
Development of Gyrotron FU CW Series for Application to High Power THz Spectroscopy, The 5th International Workshop on Far Infrared Technology, 5 March 2014 – 7 March 2014, Fukui, Japan.
- 7) T. Idehara, Y. Tatematsu, 他
Applications of high frequency gyration's to high power THz spectroscopy, 9th International Workshop on Strong Microwaves and Terahertz Waves: Sources and Applications (招待講演) 24 July 2014 – 30 July 2014, N. Novgorod, Russia.
- 8) T. Saito, T. Idehara, 他
Development of a High Power 300 GHz Band Gyrotron for Collective Thomson Scattering Diagnostics in LUD, International Workshop on Strong Microwaves and Terahertz Waves: Sources and Applications (招待講演) 24 July 2014 – 30 July 2014, N. Novgorod, Russia..
- 9) O. Dumbrajs, T. Idehara, 他
Optimized operation of the gyrotron FU CW GO II for DNP-NMR spectroscopy, International Workshop on Strong Microwaves and Terahertz Waves: Sources and Applications (招待講演) 24 July 2014 – 30 July 2014, N. Novgorod, Russia.
- 10) T. Idehara, Y. Tatematsu, 他

460 GHz Second Harmonic Gyration's for 700 MHz DNP-NMR Spectroscopy, 38th Int. Conf. on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (招待講演) 2013年9月6日, Mainz, Germany.

- 11) T. Idehara
Development of high power THz technologies opened by gyrotrons, The Second International Conference "Terahertz and Microwaves" TERA 2012, 2012年6月22日, モスクワ州立大学

(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:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
取得年月日:
国内外の別:

(その他)
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

出原敏孝 (IDEHARA, Toshitaka)
福井大学・遠赤外領域開発研究センター・
特任教授
研究者番号: 80020197

(2) 研究分担者

小川 勇 (OGAWA, Isamu)
福井大学・遠赤外領域開発研究センター・
教授
研究者番号: 90214014

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