

应用于动态核极化核磁共振的太赫兹回旋管

宋韬^{1,2}, 王维^{1,2}, 刘頔威^{1,2*}, 刘盛纲^{1,2}

¹电子科技大学电子科学与工程学院太赫兹科学技术研究中心, 四川 成都 610054;

²太赫兹科学技术教育部重点实验室, 四川 成都 610054

摘要 太赫兹波驱动的动态核极化核磁共振波谱技术能将信号灵敏度提高几个数量级, 太赫兹回旋管可实现高功率输出, 并有一定的频率调谐范围, 符合核磁共振波谱系统对太赫兹辐射源的需求。介绍了应用于核磁共振波谱系统的频率可调太赫兹回旋管的发展, 研究了多段式腔体结构以及频率可调太赫兹回旋管中工作电压和磁场与电子注质量的关系。在应用于动态核极化核磁共振的太赫兹频率可调回旋管工作时, 多段式腔体结构明显优于传统三段式谐振腔。在设计太赫兹频率可调回旋管时, 不仅要考虑改变工作电压或磁场导致的电子横纵速度比的变化, 而且还要考虑改变工作电压或磁场导致的电子速度离散和引导中心半径离散的变化。

关键词 太赫兹; 频率连续可调回旋管; 多段式腔体结构; 电子注质量

中图分类号 TN129

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0614001

Terahertz Gyrotron Used for Dynamic Nuclear-Polarization-Enhanced Nuclear Magnetic Resonance

Song Tao^{1,2}, Wang Wei^{1,2}, Liu Diwei^{1,2*}, Liu Shenggang^{1,2}

¹Terahertz Research Center, School of Electronic Science and Engineering, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu, Sichuan 610054, China;

²Key Laboratory of Terahertz Technology, Ministry of Education, Chengdu, Sichuan 610054, China

Abstract The technology of terahertz wave-driven dynamic nuclear-polarization-enhanced nuclear magnetic resonance (DNP-NMR) spectroscopy can improve signal sensitivity by several orders of magnitude. The terahertz gyrotron can realize a high power output and has a certain frequency-tunable range, which meets the terahertz radiation source requirements of a NMR spectroscopic system. Herein, the development of a frequency-tunable terahertz gyrotron used for the DNP-NMR spectroscopic system was introduced. The structure of a multi-section gyrotron cavity and the variation of the electron beam quality in the frequency-tunable terahertz gyrotron with the operating voltage and the operating magnetic field were also investigated. The results show that the multi-section cavity is better than the conventional three-section cavity when the terahertz frequency-tunable gyrotron used for the DNP-NMR is operating. In the design of a frequency-tunable terahertz gyrotron, not only the variation of the velocity pitch factor but also the variation of the velocity spread and the guiding center radius spread of the electron beam related to the operating voltage or the operating magnetic field should be taken into account.

Key words terahertz; frequency-tunable gyrotron; multi-section cavity; electron beam quality

OCIS codes 300.6495; 300.6320; 230.0250

1 引 言

自 1945 年以来,核磁共振 (NMR) 技术飞速发展,其在物理学、化学、生物学等领域已经成为非常重要的工具。然而,与其他光谱学方法相比,常温下的

核自旋能级粒子数之差(极化率)很小^[1],导致 NMR 灵敏度低,这限制了它的进一步发展和应用。由太赫兹波驱动的动态核极化(DNP)核磁共振(DNP-NMR)利用固体内微量顺磁中心,在强磁场下用太赫兹波激发自由电子跃迁,通过自由电子与核的相互作用,使

收稿日期: 2019-01-24; 修回日期: 2019-02-27; 录用日期: 2019-03-25

基金项目: 国家重点研发计划(2017YFA0701000)、中央高校基本科研业务费(A03018023601003)

* E-mail: dwliu212220@163.com

相关核的自旋能级分布发生极化,核自旋能级粒子数之差大幅增加,克服了 NMR 灵敏度低的缺陷,拓宽了 NMR 的应用范围^[1-3]。为最大限度提高 DNP-NMR 的灵敏度,DNP-NMR 系统需要太赫兹辐射源连续波输出功率不小于 20 W,且具有一定的频率调谐范围,对于 300~1000 MHz 的高场 DNP-NMR,所需的太赫兹波的频率范围为 200~650 GHz。

回旋管是一种基于自由电子在纵向磁场中回旋谐振受激辐射机理的快波器件,不需要传统微波、毫米波电真空器件所必需的慢波系统,在太赫兹频段不仅具有高功率而且具有高的能量转换效率,可实现高频率、大功率电磁波输出。太赫兹回旋管实现宽带连续可调的方法是通过改变工作电压或磁场,激发谐振频率相近的工作模式。由于在回旋管谐振腔中纵向波数比横向波数小很多,实现频率连续可调只需要通过改变工作电压或磁场,激励纵向指数 q 不同的模式即可,这种工作机制已经应用于工作在基波模式的脉冲回旋管、连续波回旋管和工作在二次回旋谐波的连续波回旋管^[4-6]。在这些回旋管中,频率调谐范围为 1~2 GHz,能满足 DNP-NMR 系统对太赫兹辐射源频率调谐范围的要求。

本文介绍了应用于 DNP-NMR 系统的太赫兹回旋管的国内外发展现状,指出频率连续可调太赫兹回旋管激发不同纵向指数模式时面临的问题,并

针对这一问题研究了多段式腔体结构,同时还研究了频率可调太赫兹回旋管工作时改变工作电压或磁场对电子注质量的影响。

2 应用于 DNP-NMR 系统的太赫兹回旋管国内外发展现状

图 1 为固态器件与真空电子器件的发展现状。图 1 中,FET 为场效应晶体管,BJT 为双极性晶体管,SIT 为静电感应晶体管,CFA 为正交场放大管,IMPATT 为碰撞电离雪崩渡越时间二极管,BWO 为返波管,TWT 为行波管。由图可见,回旋管是目前唯一满足 DNP-NMR 系统所需要的高功率高频率电磁波器件,且在使用寿命、输出功率和工作频率的稳定性上均能满足 DNP-NMR 的要求^[1]。由于太赫兹回旋管在 DNP-NMR 系统中具有独特优势,国外研究机构对应用于 DNP-NMR 系统中的太赫兹回旋管进行了大量的理论与实验研究。表 1 给出了各研究机构的实验研究进展^[3],其中 f 为频率,Cavity mode 为回旋管腔体模式,TE_{0,3} 为角向为 0 个半驻波、径向为 3 个半驻波的横电波,Harmonic number 为回旋管谐波次数,Voltage 为回旋管工作电压,Power 为回旋管输出功率,Current 为回旋管工作电流,DNP-frequency 为 DNP-NMR 波谱仪的频率。

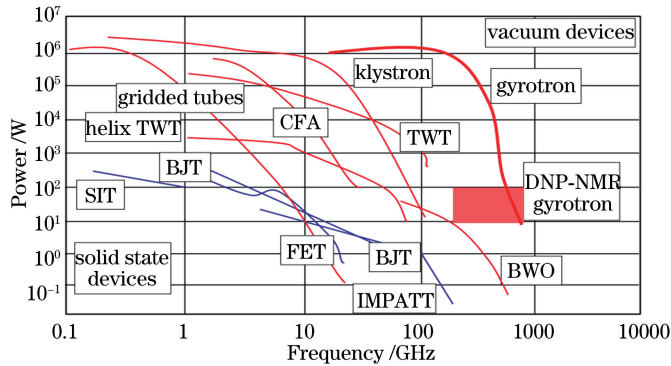


图 1 固态器件与真空电子器件的发展现状

Fig. 1 Development status of solid-state devices and vacuum electronic devices

美国麻省理工学院(MIT)一直在研究应用于 DNP-NMR/EPSP(电子顺磁共振)的多个频段的太赫兹回旋管^[4-10];美国通信与电力公司(CPI)为 Bruker 公司研制了应用于 400、600、800、900 MHz DNP-NMR 波谱仪 4 个频段的太赫兹回旋管^[11-14];Bridge12 公司研制了应用于 300、600 MHz DNP-NMR 波谱仪的太赫兹回旋管,该 DNP-NMR 系统已商用^[15];日本福井大学(FU)远红外研究中心(FIR)研制了 4 个系列的连续波频率可调太赫兹回

旋管,分别用于日本 Osaka 大学 600 MHz DNP-NMR 实验、英国 Warwick 大学 300、600 MHz DNP-NMR 实验以及 FU 的 200 MHz DNP-NMR 实验^[16-18]。

德国的 KIT^[19]、俄罗斯应用物理研究所(IAP)^[20]、乌克兰国家科学中心^[21]等研究机构也开展了相关的研究。在国内,包括电子科技大学在内的多家单位^[3,22]也在开展相关的研究工作。

表 1 用于 DNP-NMR 系统的太赫兹回旋管实验研究进展

Table 1 Experimental research progress on THz gyrotron used for DNP-NMR system

Institute	f /GHz	Cavity mode	Harmonic order	Voltage /kV	Power /W	Current /mA	DNP frequency /MHz
MIT	140	TE _{0,3}	1	12.3	14	25	211
	250	TE _{5,2}	1	9.82	>10	137	380
	330	TE _{-4,3}	2	10.1	18	190	500
	460	TE _{11,2}	2	13	16	100	700
	527	TE _{11,3}	2	<15	>20	<190	800
CPI	263	TE _{0,3}	1	13.4	>75	70	400
	395	TE _{10,3}	2	14.3-15.8	5-57	160	600
	527	TE _{15,3}	2	18.4	40	180	800
	593	-	-	17.6-18.8	1-50	158-214	900
Bridge12	198	TE _{1,2}	1	2-3	>5	30	300
	395	TE _{0,3}	2	15	>20	200	600
FU	394.6	TE _{0,6}	2	12	10-50	250	600
	393-396	-	-	-	50-100	-	600
	203.7/395	-	-	-	200/50	-	300/600
	131/139	-	-	-	5-60	-	200

3 多段回旋腔体结构

回旋管一般采用三段式回旋谐振腔,其冷腔场幅值与谐振腔结构如图 2 所示。对于三段式回旋谐振腔,根据衍射品质因数 Q_d 与谐振模式纵向指数 q 之间的关系 $Q_d \propto 1/q^2$, 衍射品质因数 Q_d 会随纵向指数 q 的增大急剧减小,这将会使高 q 腔体模式的起振电流远大于低 q 腔体模式,在激励不同纵向指数腔体模式时,工作电流需大范围调节,带来输出功率不稳定和模式竞争等问题,影响连续频率调谐范围。

为解决这一问题,Shcherbinin 等^[21] 提出一种

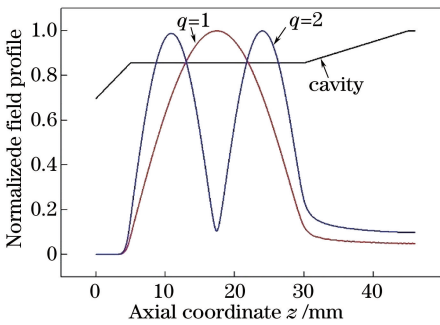


图 2 三段式谐振腔结构与冷腔场幅值

Fig. 2 Structure of three-section cavity and amplitude of cold cavity field

多段回旋谐振腔体结构,该腔体结构如图 3 所示。该多段式腔体在传统三段式谐振腔的基础上,在截止段与相互作用段中间增加了一连接段,该连接段的长度为 L_2 , 角度为 θ_2 ; 在相互作用段增加了微小倾斜角度 θ_3 ; 在相互作用段与输出段增加了一连接段,连接段的长度为 L_4 , 角度为 θ_4 。

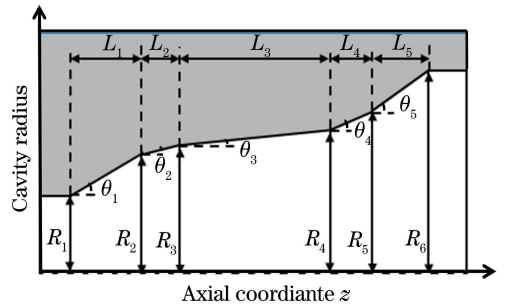


图 3 多段式腔体结构

Fig. 3 Structure of multi-section cavity

以 500 GHz 回旋管为例,多段回旋谐振腔的几何参数如表 2 所示。归一化衍射品质因数 Q_d 随相互作用段角度 θ_3 的变化如图 4 所示,当 θ_3 增大时, $q=7$ 时的 Q_d 越来越大,同时,随着纵向指数 q 的增大, Q_d 减小的幅度越来越小,解决了 $Q_d \propto 1/q^2$ 这一问题。

表 2 500 GHz 频率可调回旋管参数

Table 2 Parameters of 500 GHz frequency-tunable gyrotron

Frequency /GHz	Operation mode	L_1 /mm	θ_1 /($^\circ$)	L_3 /mm	L_5 /mm	θ_4 /($^\circ$)	Cavity radius /mm
500	TE _{8,5,q}	5	5	25	20	1.5	2,345

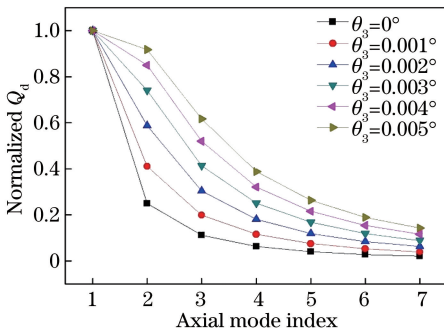


图 4 衍射品质因数 Q_d 随角度 θ_3 的变化关系

Fig. 4 Diffractive quality factor Q_d versus angle θ_3

频率调谐范围随相互作用段倾角 θ_3 的变化如图 5 所示,当 θ_3 为 0 时,频率调谐从 500.65 GHz ($q=1$)变化到502.21GHz($q=7$),频率调谐范围为

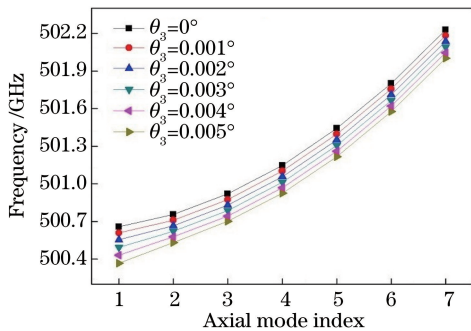


图 5 谐振频率 f_0 随角度 θ_3 的变化

Fig. 5 Resonant frequency f_0 versus angle θ_3

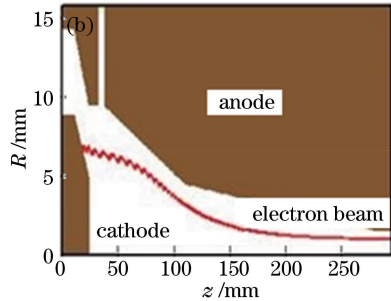
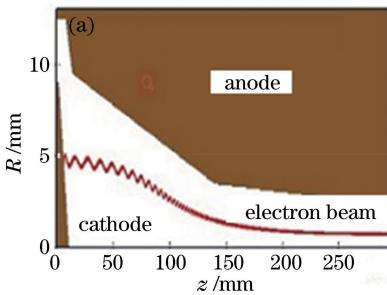


图 6 电子枪结构。(a) 单阳极电子枪;(b) 双阳极电子枪

Fig. 6 Structures of MIG. (a) Single-anode MIG; (b) double-anode MIG

当工作电压固定时,电子注质量随工作磁场的变化如图 7(a)所示。由图 7(a)可以看出,当工作磁场从 9.12 T 增加到 9.20 T 时,横纵速度比从 1.42 减小到 1.32,速度离散从 5.80%变化到 4.72%,引导中心半径离散从 2.14%变化到 2.09%。当工作磁场固定时,电子注质量随工作电压的变化如图 7(b)所示。由图 7(b)可以看出,当工作电压从 9 kV 增加到 12 kV 时,横纵速度比从 0.78 增长到 1.43,速度离散从最大 7.84%变化到最小 4.49%,引导中心半径离散从 1.79%增长到 2.38%。

1.56 GHz;当 θ_3 增大到 0.005° 时,频率调谐从 500.38 GHz($q=1$)变化到 502.00 GHz($q=7$),频率调谐范围为 1.62 GHz。由图 5 可以看出, θ_3 越大,频率可调范围越宽。

由此可见,与传统的三段式谐振腔相比,多段回旋谐振腔体结构能使太赫兹回旋管在激发腔体模式纵向指数时, Q_d 减少的幅度变小,解决 $Q_d \propto 1/q^2$ 这一问题,进而激发更多的纵向指数腔体模式,频率调谐范围更宽,更能满足 DNP-NMR 系统对太赫兹回旋管连续频率调谐的要求。

4 频率可调太赫兹回旋管电子枪

作为太赫兹回旋管的“心脏”,磁控注入式电子枪 (Magnetic Injection Gun, MIG) 的性能直接决定了回旋管的工作状态。电子枪通常分为单阳极和双阳极,结构如图 6 所示。由于电子枪阴极发射带具有一定的宽度,因此发射出的电子会遇到不同的静电场,进而影响电子注的质量。此外,空间电荷效应对速度离散和引导中心半径离散也会有一定的影响,因此,在频率连续可调太赫兹回旋管工作时,改变工作磁场或电压,电子注质量如横纵速度比、速度离散、电子回旋半径离散等参数会不可避免地发生变化。而电子注质量的变化,会影响频率可调回旋管的工作频率、工作效率及频率连续可调的带宽^[22]。

由此可见,通过改变工作电压或磁场来调谐回旋管的工作频率时,工作电压或磁场的变化会引起电子注质量的明显变化,在频率可调谐回旋管的实际设计中必须考虑这一因素。

5 结 论

与传统核磁共振波谱技术相比,太赫兹波驱动的动态核极化核磁共振波谱技术的灵敏度大幅提高。太赫兹回旋管是目前在工作频率和输出功率方面可以满足太赫兹波驱动的动态核极化核磁共振波

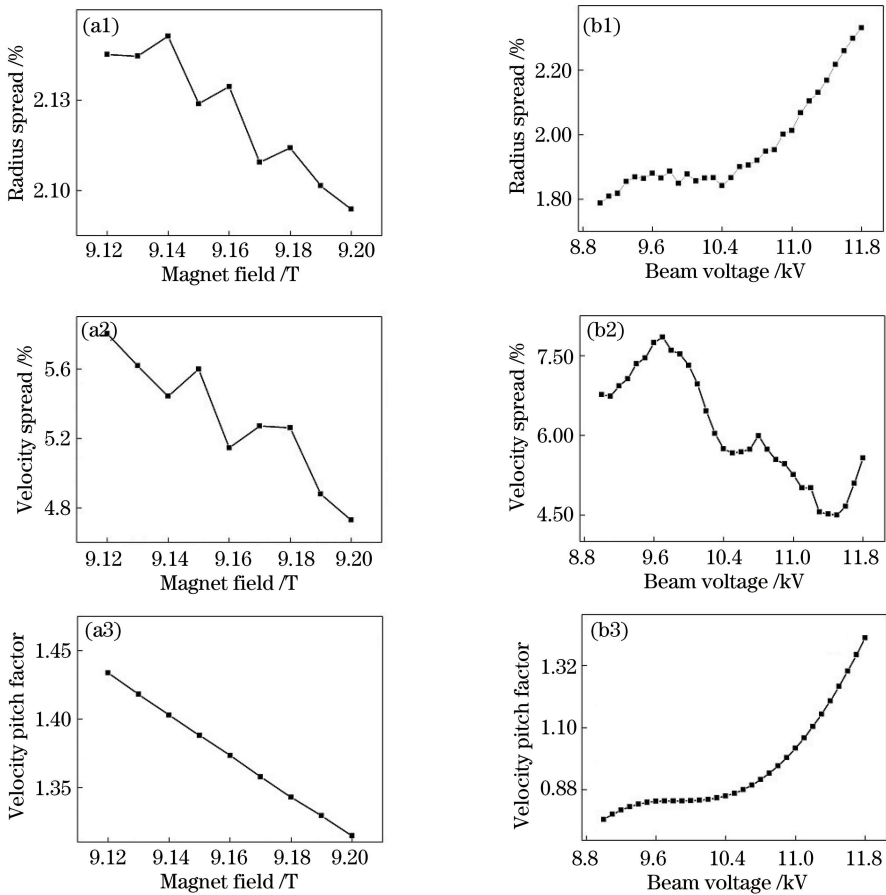


图 7 电子注质量的变化情况。(a1)~(a3)电压固定时,电子注质量随工作磁场的变化;
(b1)~(b3)磁场固定时,电子注质量随工作电压的变化

Fig. 7 Variation of electron beam quality. (a1)-(a3) Electron beam quality versus operating magnetic field at fixed voltage;
(b1)-(b3) electron beam quality versus operating voltage at fixed magnetic field

谱技术的太赫兹辐射源。在太赫兹回旋管工作时,为了激励更高纵向指数 q 的腔体模式,实现输出功率的稳定并改善模式竞争,多段回旋谐振腔明显优于传统的三段式回旋谐振腔。同时,通过改变工作电压和工作磁场来实现太赫兹回旋管的频率调谐时,工作电压和磁场的变化会引起电子注的质量的变化,包括横纵速度比、速度离散和引导中心半径离散的变化,在频率可调谐回旋管的实际设计中必须考虑这一因素。

参 考 文 献

[1] Nanni E A, Barnes A B, Griffin R G, *et al.* THz dynamic nuclear polarization NMR [J]. IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, 2011, 1(1): 145-163.
[2] Jaudzems K, Polenova T, Pintacuda G, *et al.* DNP NMR of biomolecular assemblies [J]. Journal of Structural Biology, 2019, 206(1): 90-98.
[3] Li Z L, Feng J J, Cai J, *et al.* Latest progress of

THz gyrotron and dynamic nuclear polarization enhanced nuclear magnetic resonance [J]. Chinese Journal of Vacuum Science and Technology, 2015, 35 (6): 744-751.

李志良, 冯进军, 蔡军, 等. 太赫兹回旋管和动态核极化核磁共振的研究发展 [J]. 真空科学与技术学报, 2015, 35(6): 744-751.

[4] Hornstein M K, Bajaj V S, Griffin R G, *et al.* Continuous-wave operation of a 460-GHz second harmonic gyrotron oscillator [J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2006, 34(3): 524-533.
[5] Torrezan A C, Han S T, Shapiro M A, *et al.* CW operation of a tunable 330/460 GHz gyrotron for enhanced nuclear magnetic resonance [C] // 2008 33rd International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, September 15-19, 2008, Pasadena, CA, USA. New York: IEEE, 2008: 4665733.
[6] Torrezan A C, Han S T, Mastovsky I, *et al.* Continuous-wave operation of a frequency-tunable 460-GHz second-harmonic gyrotron for enhanced

- nuclear magnetic resonance [J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2010, 38(6): 1150-1159.
- [7] Joye C D, Griffin R G, Hornstein M K, *et al.* Operational characteristics of a 14-W 140-GHz gyrotron for dynamic nuclear polarization [J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2006, 34(3): 518-523.
- [8] Jawla S, Ni Q Z, Barnes A, *et al.* Continuously tunable 250 GHz gyrotron with a double disk window for DNP-NMR spectroscopy [J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2013, 34(1): 42-52.
- [9] Torrezan A C, Shapiro M A, Sirigiri J R, *et al.* 10.6: operation of a tunable second-harmonic 330 GHz CW gyrotron [C] // 2010 IEEE International Vacuum Electronics Conference (IVEC), May 18-20, 2010, Monterey, CA, USA. New York: IEEE, 2010: 199-200.
- [10] Jawla S K, Guss W C, Shapiro M A, *et al.* Design and experimental results from a 527 GHz gyrotron for DNP-NMR spectroscopy [C] // 2014 39th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), September 14-19, 2014, Tucson, AZ, USA. New York: IEEE, 2014: 6956164.
- [11] Rosay M, Tometich L, Pawsey S, *et al.* Solid-state dynamic nuclear polarization at 263 GHz: spectrometer design and experimental results [J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2010, 12(22): 5850-5860.
- [12] Blank M, Borchard P, Cauffman S, *et al.* High-frequency CW gyrotrons for NMR/DNP applications [C] // 2012 IEEE International Vacuum Electronics Conference (IVEC), April 24-26, 2012, Monterey, CA, USA. New York: IEEE, 2012: 327-328.
- [13] Felch K, Blank M, Borchard P, *et al.* First tests of a 527 GHz gyrotron for dynamic nuclear polarization [C] // 2013 IEEE 14th International Vacuum Electronics Conference (IVEC), May 21-23, 2013, Paris, France. New York: IEEE, 2013: 6571048.
- [14] Blank M, Borchard P, Cauffman S, *et al.* Demonstration of a 593 GHz gyrotron for DNP [C] // 2018 43rd International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), September 9-14, 2018, Nagoya, Japan. New York: IEEE, 2018: 8510010.
- [15] Sirigiri J, Maly T, Tarricone L. Compact gyrotron systems for dynamic nuclear polarization NMR spectroscopy [C] // 2012 IEEE International Vacuum Electronics Conference (IVEC), April 24-26, 2012, Monterey, CA, USA. New York: IEEE, 2012: 333-334.
- [16] Agusu L, Idehara T, Ogawa I, *et al.* Detailed consideration of experimental results of gyrotron FU CW II developed as a radiation source for DNP-NMR spectroscopy [J]. *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 2007, 28(7): 499-511.
- [17] Idehara T, Ogawa I, Mori H, *et al.* A THz gyrotron FU CW III with a 20T superconducting magnet [C] // 2008 33rd International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, September 15-19, 2008, Pasadena, CA, USA. New York: IEEE, 2008: 4665652.
- [18] Idehara T, Kosuga K, Agusu L, *et al.* Continuously frequency tunable high power sub-THz radiation source: gyrotron FU CW VI for 600 MHz DNP-NMR spectroscopy [J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2010, 31(7): 775-790.
- [19] Kartikeyan M V, Borie E, Thumm M. A 250 GHz, 50 W, CW second harmonic gyrotron [J]. *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 2007, 28(8): 611-619.
- [20] Bratman V L, Fedotov A E, Kalynov Y K, *et al.* Numerical study of a low-voltage gyrotron ("gyrotrino") for DNP/NMR spectroscopy [J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2017, 45(4): 644-648.
- [21] Shcherbinin V I, Tkachova T I, Tkachenko V I. Improved cavity for broadband frequency-tunable gyrotron [J]. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 2018, 65(1): 257-262.
- [22] Song T, Shen H, Huang J, *et al.* Study on the effect of electron beam quality on a continuously frequency-tunable 250-GHz gyrotron [J]. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 2018, 65(4): 1572-1577.