

シンクロトロン放射光による科学技術の発展

Advances in Science and Science Technology by Synchrotron Radiation

北川 通 治*

Michiharu Kitagawa

高速で走る電子の進行方向を磁場で曲げると極めて強い光が発生する。この光はシンクロトロン放射光と呼ばれ、原子核実験用シンクロトロン加速器で電子を加速する際の、エネルギー損失の原凶であった。しかしながら、一旦この光が研究用の光源として優れた多くの特徴を持っていることが認識されるや、爆発的に需要が増加し、物理、化学、生物、医学の基礎科学から、産業、工業、医療に到るまで、数えきれないほどの研究ニーズが発生し、わが国ではこれらの研究需要に応えるために、いくつかの光源専用のシンクロトロン放射光施設が建設されている。

1. 科学技術研究における放射光の果たす役割

わが国が科学技術の先端的、基礎的分野において、先導的役割を果たすためには独創的研究と創造的な科学技術の育成に取り組まなければならないと考えられる。しかしながら、半導体製品などを筆頭に、きわめて評価の高い工業製品などを造りだしているわが国の先端技術においても、重要な部分には他国の基本特許の制約があるなど、一般の人たちが、マスコミの報道で教えられているほどには、残念ながら日本の優越性があるわけではない。このことは、民生機器としては世界第一級の日本製品が数多くあるということは認めた上で、一転して特殊な製品、たとえば人工衛星への搭載機材などを見れば、特に重要な部分には、まだまだ多くの米、英、仏の製品がその位置を占めていることに気が付く。これらの製品には各所に大量の基礎研究の成果が織り込まれており、彼らの持つ広い技術基盤の質を思い知らされることが少なくない。基礎研究、基礎技術の重要さが叫ばれるようになって久しく、その間、国立研究所や大企業の基礎研究への取り組みの成果が徐々にあがってきているとはいえ、その差はいまだに小さくはない。このような現状の中であって、

「光科学」の領域では早くから基礎研究に高い成果を挙げ、世界の指導的立場にある分野もいくつかある。これらの優れた光科学の研究の発展に、シンクロトロン放射光が大きな貢献をしていることは衆目の一致するところである。

このシンクロトロン放射光が、物性研究のためのきわめて重要なツールとして世界的に注目されることになったのは、1960年代前半における東京大学原子核研究所のシンクロトロンを利用した施設、INS-SOR、による日本の研究グループの数々の研究成果によるところが大きいということが出来る。

自然科学者達に大きなインパクトを与えたこのシンクロトロン放射光には、大まかに考えても次のようないくつかの特徴がある。

- i) 遠赤外領域からX線領域に至るまでの非常に広い波長域にわたって滑らかなスペクトルを持つ光源である。
- ii) 光の輝度がきわめて高く、真空紫外やX線域においてもほかの光源にくらべて桁違いの輝度を持つ。
- iii) 性質のよい平行光源であり、強い指向性を持つ。
- iv) パルス発光である。
- v) 電子の周回軌道面内に電気ベクトルを持つ直線偏光である。

これらの特徴は、研究者にとってそれぞれ重要な意味を持つものであるが、中でもとりわけ重要なことは、「広い波長域で滑らかなスペクトルを持つ光源である」ということ、及び「きわめて強い輝度を持つ」ということである。このことは遠赤外から、X線にいたるあらゆる波長の光を同程度の強度で得られることを意味しており、これによって、従来はいろいろな線スペクトルの光源を組み合わせで行っていた研究や、物質との相互作用が大きいことが分かっているにも係わらず、適当な光源が存在しなかった波長域での研究に、劇的な変化を与えることとなった。また、その強度は、最

*大阪府立放射線中央研究所第1 部部長
〒593 堺市新家町174-16

も強力なX線管球から得られる特性X線のピーク強度に較べても、さらに2~3桁強力である。

当初、研究者がこの施設に大きな期待を寄せたのは、物性研究のための真空紫外光(VUV)から軟X線(SX)領域の光源としてであり、従来、どのような方法によっても得られなかった波長領域の、強い、そして連続のスペクトル光を得た研究者達の興奮は、次々と発表された当時の研究論文の内容からも伝わってくるのを感じ取ることが出来る。たとえそれが原子核実験のための施設からのこぼれ落ちた光ではあっても、放射光が貴重な光源として認識され、使いこなされるようになって以来現在に至るまで、固体の表面、界面の物性や構造、精密なエネルギー帯構造の決定、原子分子における光電離現象の解明、光化学の幅広い応用や基礎課程の研究など、さまざまな研究分野で急速な進展がみられたことは、放射光が計り知れないほどの大きなインパクトを我々に与えたことを雄弁に物語っている。

一方、高エネルギー物理学研究所のフォトンファクトリ(PF)に代表されるような高エネルギーの電子蓄積リングの実用化が世界各国で進み、挿入光源などの技術が開発されるにしたがって、利用できる波長がX線領域にまで広がり、従来までのX線源で行ってきた様々なX線分光学の方法などにも大きな影響を与えることになった。即ち、特性X線と同程度、あるいはそれ以上の強度を持つ白色(連続スペクトル)X線光源の出現によって、物質研究は新しい展開を示し始めている。きわめてX線強度が高く、構造解析が短時間に行えるために、構造相転移や、結晶成長時の転位の動きなどの動的観察も可能となり、動物の生体構造の状態観察も行われ、一気にその利用範囲は拡大した。

このようにシンクロトロン放射光は、ほかの方法では得ることの出来ない波長領域の貴重な光源として重要な意味を持つとともに、既存の科学技術であったX線分光学などの技術領域をさらに大きく進展させるという、きわめて大きな二つの役割を同時に果たしつつあるということが出来よう。たかさんの興味ある研究成果を詳しく紹介することは、紙面の都合上不可能なことであるので、実験結果の図も省略し、ごく簡単にいくつかの研究分野について述べ、シンクロトロン放射光利用による科学技術発展の現状に触れることとし、詳細の紹介については別の機会にゆずる。

2. 真空紫外・軟X線光源としての放射光

真空紫外(VUV)、及び軟X線(SX)域の光源としてのシンクロトロン放射光は最も貴重な存在である。放射光の連続スペクトルと高輝度という特徴は、それまで我々が手にすることが出来なかった波長域での研究はもちろんのこと、その周辺波長域の線スペクトル光源で行っていた研究にも画期的な進展を促すこととなった。

たとえば、2電子励起などを含めた原子分子の光電離の研究¹⁾、内殻励起を利用した電子遷移に伴う吸収スペクトル^{2~3)}や原子ポテンシャルの研究^{4~6)}、内殻電離に伴う分子の解離過程の誘発の研究などは急速に密度の濃い研究が進んでいる。とりわけ後者は、分子物理、物理化学の問題として興味深いものがあり、例えば、SiH₄の軟X線励起の際に明瞭にみられる励起波長と発生フラグメントイオン種との関係などは、光CVDなどの化学反応制御の根幹に関わる研究成果とみられ、放射光利用によって初めて可能になる研究とすることが出来る。

また、強度の揃った任意の波長の光が使えるという特徴を利用して、光電子や放出イオンの運動エネルギーの励起スペクトルを詳細に調べることが出来るうえ、高輝度を利用して時間相関の測定も可能となり、電子過程の研究では大量の情報が得られている。同様に、オージェ電子分光においても光電離の衝突後効果の励起エネルギー依存性などの精密な測定が行われている^{10~12)}。

光電子分光ではシンクロトロン放射光の連続波長可変の特徴に加え、偏光性のよい光の得られることが、固体物性研究の飛躍的發展を促した。角度分解光電子分光法は、強力な放射光と連続可変な波長を用いることにより、広い範囲にわたって、物質の電子エネルギー構造の精密測定を可能にし、固体(表面)物性の理解の上で最も基本的な価電子帯構造^{13~15)}や表面吸着相の構造研究に決定的な役割を果たしている^{16~18)}。

さらに、スピン偏極光電子分光では放射光固有の偏光を巧妙に利用して、光電子をスピン状態まで含めて測定可能であり、近接エネルギー帯の分散情報についても得ることが出来るようになった。

この他にも、強力光による固体の高速励起に続いて起こる緩和過程の詳細な測定などが行われており、物性物理学上きわめて重要、かつ興味深い研究が着実に進められていて、もはや物性研究上、あるいは化学反

応の研究分野においても、放射光の利用という手段は無くしてはならないものとなっている。

この波長領域における放射線生物学の研究もまた重要である。真空紫外光による生体分子の高い励起状態がどのような効果をもたらすのか¹⁹⁾内殻励起はDNAの主鎖切断にどう関係しているか²⁰⁾などの研究の進展は今後ますます加速されることになる。

以上、ほんのわずかな部分について触れただけであるが、物理、化学、生物などの基礎研究の分野における真空紫外光、および軟X線領域の価値は、ほとんど計り知れないほどのものがある。

これらの基礎研究の成果に裏づけられた技術手法として、産業界に現在最も注目されているのが、半導体ICの超高集積化のための微細加工、リソグラフィ用光源としての利用である。現在実用化されている高集積素子としては、紫外線露光による4 Mbit DRAMがあるが、さらに集積度を上げて16 Mbit以上の集積度にするためには、0.5 μm 以下の線幅加工を、低温度、低損傷プロセスで達成する新技術の開発が不可欠である。半導体ICの高集積化のために、LSI製作のためのパターン寸法は3~4年で1/2に微細化されてきたといわれるが、ここに至って現在の水銀灯光の波長を使った方法による集積化技術は限界とみられており、電子ビームを使った直接描画技術、エキシマレーザーや、放射光の極端紫外域から軟X線域を用いた微細加工、露光技術が着目され、サブミクロン加工のための技術開発研究が進められている。微細加工のための解像度を定める因子はフレネル回折によるぼやけと光電子発生によるじみであり、両者の波長依存性から軟X線領域の波長が有利と考えられている。放射光は、産業界が生産ラインに乗せるための条件であるスループット、解像度、合わせ精度の3点についての総合評価で、エキシマレーザーなども含めた光リソグラフィ、電子線またはイオン線による線描画法を上回っており、超LSI製造技術の本命と見られている。

3. X線光源としての放射光

上にも述べたように、シンクロトロン放射光の当初の需要はVUVとSXにあったわけであるが、急速な技術の進展によって、高エネルギーの電子蓄積リングにおいても従来までとは桁違いのビーム安定性が実現し、高強度の連続X線源として使用可能になったことにより、この波長領域を利用するきわめて大きな研究需要分野が出現した。ほぼ完成に近い形で集大成され

ていたX線科学を、より高度に活用するために多くの努力を重ねて実現を目指してきた高輝度X線源が、一気に、それも連続スペクトルを持つ光源として得られたという事実は、予想していた以上の大きな影響をこの分野に与えることとなった。改めて述べるまでもなく、X線利用技術は科学の進展に量り知れないほどの大きな貢献をしてきた。例えば、X線回折、散乱、X線散漫散乱、X線非弾性散乱、X線小角散乱、EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure) XANES (X-ray Absorption Near Edge Structure)、蛍光X線分析、X線干渉、回折を利用したX線トポグラフィ、X線ラジオグラフィなどが重要な役割を果たしてきたことは衆目の一致するところである。

シンクロトロン放射光の高輝度で連続のスペクトルという特徴は、これらの研究技術の全てにわたって、大きな影響と新たな意味を与えた。きわめて短時間に行えるX線構造解析は、結晶の構造相転移や結晶成長過程の転位の成長消滅などの動的観察、生体構造の生きたままの観察などを可能にした。さらに、EXAFS、XANES測定の高速度のおかげで、結晶、非晶質化合物などの局所構造の解析、溶液中の化学種、生体関連の化学種などからも、静的、動的情報が得られるようになった。例えば、EXAFS、XANES等のX線吸収法の最大の特長は、対象物質に長距離秩序を要求しないことであり、非晶質、溶液等までが、その対象試料となり得ることにある。しかしながら、解析すべき微細構造の信号量がきわめて少ないため、測定に長時間を必要とするのが通常である。到底動的観察などの研究は困難であり、放射光の出現は大きなインパクトとなった。触媒などを含む固体の表面吸着状態、それに伴う表面構造変化^{21~23)}溶液分子構造の時間変化²⁴⁾の研究などは特に興味深い。

また、高速X線トポグラフィ^{25~27)}や、準禁制反射の解析による結晶欠陥の研究²⁸⁾は高速デバイス素材として注目されているGaAs基板の構造欠陥撮像技術として大きな成果をあげている。

蛍光X線分析による微量元素分析は、放射光の特長を有効に利用できる方法として注目される。①偏光による散乱X線の減少、②信号強度の増大(測定時間の短縮)、③任意のX線波長による特定元素の選択励起、重畳ピークの分離・定量、化学シフトによる状態分析、④高指向性による、微少領域、微量試料分析、などが特長であり、利用、適用領域は大きく拡大した。

さらに、内容は省略するが、X線異常散乱による各

種物質の構造解析や、よう素のX線吸収端前後の波長を使った高速・高感度血管造影技術の開発、タンパク質などの巨大分子の構造解析、高圧下での構造相転移の観察、X線顕微鏡技術の開発、生体物質の動的構造解析等々、現在のX線を用いる研究分野において、シンクロトロン放射光はもはや無くしてはならない光源として定着しているということができる。

4. 放射光スペクトル, 挿入光源

上にも述べたように、放射光に対しては、VUV, SX光源としての期待と、強いX線源としての期待がある。よく絞れた強いVUVやSXを必要とする研究にはエミッタンスの低いリング設計が、また、波長の短い(エネルギーの高い)強いX線源として利用しようとする人達からは、高い電子エネルギーの蓄積リングが要求される。高エネルギーリングのためには大きな径のリングが必要であり、低エミッタンス光源の要求を満たすためには、リングを構成する偏向磁石の数を増し、さらにリングの直線部分に挿入光源を設けることが必要であって、ともにリング径は巨大化する。

放射光スペクトルにおいては、円軌道放射の臨界波長 λ_c (Å)と電子エネルギーE(GeV)、偏向磁石の磁束密度B(T)、磁場によって曲げられる電子軌道の曲率半径 ρ (m)との関係は、よく知られているように、

$$\lambda_c = \frac{18.6}{E^2 B} = 5.59 \frac{\rho}{E^3}$$

と表される。得られる光強度は、臨界波長近傍が最大で、これより長波長側では緩やかに、短波長側では急速に減少する。従って、波長の短い硬いX線、すなわち高エネルギーの光源を得るためには、磁束Bを大幅に上げることは困難であるから、蓄積電子のエネルギーEを大きくとる必要があり、 ρ が大きくなってリング径は巨大化する。現在稼動中の施設である東大物性研究所のSOR-RING、岡崎共同研究機構分子科学研究所のUVSOR、高エネルギー物理学研究所のPF、電子技術総合研究所のTERASのそれぞれの放射光スペクトルの概要を図-1に示す。

実際には蓄積電流値とエミッタンスによって、スペクトル強度は全体に上下する。第1図のスペクトルの様子からも分かるように、 λ_c より長波長側(低エネルギー側)では光子数の減少が緩やかで、放射光の特徴である強い輝度を有効に利用することが可能であるが、短波長側(高エネルギー側)の減少は急激であって、放射光の利用可能な波長域はこれによって決まる。また、たとえば λ_c がX線領域であるような高エネルギーリングの放射光で真空紫外の波長域を利用しようとするれば、分光器でX線成分を取り除くことが必要となるが、これにもかなりの高度な技術が要求される。したがって、一つの蓄積リングで λ_c を変化させることは容易でないから、当然、もっとも研究目的に適した放射光施設というものが存在する。目的の波長が臨界波長近傍の光であるのは最も都合がよいことは勿論である。例えば、臨界波長 λ_c が1Åであるようなリングを造るためには、 $B \sim 1$ Tであれば、4GeV以上

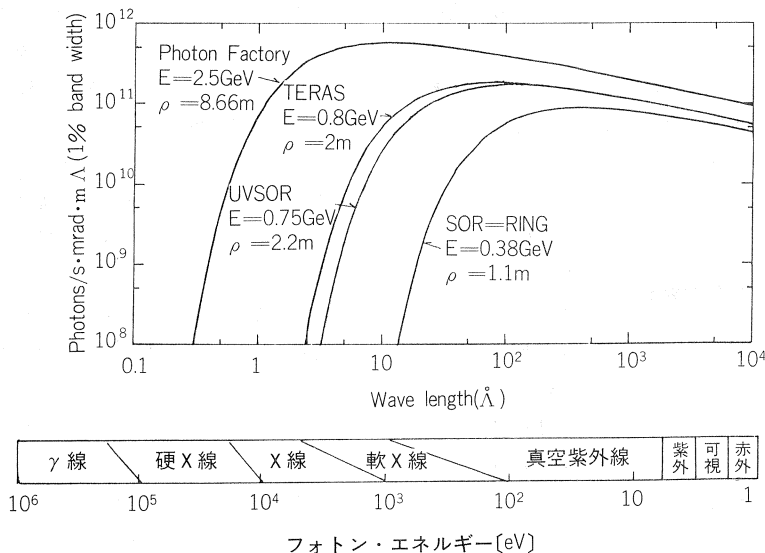


図-1 現在稼動中の施設の放射光スペクトル

の電子エネルギーが必要となり、偏向曲率半径は約14 m、リングの直径は100mをはるかに越える大型施設となる。

蓄積電子のエネルギーを変えずに、スペクトルを高エネルギー側（短波長側）にシフトさせる技術としては挿入光源（ウイグラ）がある。これはリングの直線部に、永久磁石や超伝導磁石によるSN交互の強い周期磁界を入れて電子を蛇行させるもので、きわめて有効である。挿入光源では磁極の周期を λ_w (cm) とすると、単位のない重要なパラメータKが、

$$K = 0.934B\lambda_w$$

と定義されて、 $K \geq 1$ の条件の場合は放射光が高調波の列となり、多線スペクトルの重ね合わせとなって、ほぼ偏向磁石の場合と同様の連続光が得られる。この場合がウイグラに相当し、磁極数をNとすると、その光強度は近似的に2N倍となる。

$K \leq 1$ の場合はアンジュレータと呼ばれ、蛇行電子の出射放射光の干渉効果により、指向性が鋭く、且、バンド幅の狭い光が得られる。その結果、この光源の

輝度は、通常の偏向磁場によるものに比べて $10^2 \sim 10^5$ 倍にも達する。しかしながら、この場合、それによって得られる高輝度放射光の波長は、通常の偏向磁場による場合の臨界波長に比べ10~20倍程度、長波長領域に移動する。今後の放射光利用の目的は、さらに測定時間の高速化を目指すとともに、微細試料の測定や高分解能化への技術開発が大きな課題とされ、いずれも光源の高輝度化を必要としている。高輝度化のためにまず対応することは、①発散の少ない点光源に近づけること（低エミッタンス化）、②電子エネルギーを上げること、③蓄積電流を十分に保持して光子数を増加させることなどであり、その上で、挿入光源を巧みに利用することになる。フォトンファクトリの放射光はこの挿入光源の巧みな利用によって、1 Tの偏向磁石からは得られない波長の短い高輝度X線と超高輝度の真空紫外光を得ている極めて利用領域の広い施設である。

これらの要求が拡大して、短波長X線であって、しかも超高輝度であるという両条件を満たす光源を必要

表1 国内のシンクロトロン光施設の概要

放射光施設	所在地 状 況	電子エネルギー (GeV)	偏向磁場強度 (T)	偏向曲率半径 (m)	特性波長 (Å)	特性放射 エネルギー (keV)
東大物性研 SOR-RING	田 無 稼動中	0.38	1.15	1.10	112	0.111
高エネルギー研究所 PHOTON FACTORY	つくば 稼動中	2.	0.96	8.66	3.1	4.0
高エネルギー研究所 TRISTAN-AR	つくば 稼動中	6.5	0.86	23.3	0.47	26.4
分子科学研究所 UVSOR	岡 崎 稼動中	0.75	1.14	2.2	29.1	0.43
電 総 研 TERAS	つくば 稼動中	0.7	1.17	2.0	32.5	0.38
電 総 研 NIJI-I	つくば 稼動中	0.27	0.76	0.7	198	0.06
電 総 研 NIJI-II	つくば 建設中	0.6	1.2	1.4	36	0.34
電 総 研 NIJI-III	つくば 計画中	0.62	4.1	0.5	11.7	1.06
NTT-LSI研 NTT-I	厚 木 稼動中	0.8	1.5	1.85	20	0.61
NTT-LSI研 NTT-II	厚 木 建設中	0.55	3.7	0.5	17	0.74
基盤技術研究促進セ ンター(SORTEC)	つくば 建設中	1.0	1.2	2.8	16	0.80
科学技術庁 大型放射光施設	兵庫県 計画中	8.0	1.1	24.5	0.27	46

とするならば、さらに高エネルギー化、リング径の巨大化に進むことになり、世界各国の新しい大型放射光施設計画の設計もこの方向に進んでいる。現在計画が進められようとしている8 GeVの関西SRの設計概念はまさにこの方向を目指しているものといえ、その主力は挿入光源による高輝度X線光源になるものと思われる。

上述したように、現在、電子蓄積リングのサイズに関する考え方からいえば、三つの異なった方向に技術の進展が図られようとしている。一方では産業界、医学界などからの強い要望に応え、単一目的のためのリングの小型化、高性能化に技術の結集が図られようとしており、また一方では、基礎・応用研究の進展のために、貴重な真空紫外や軟X線領域の光源としての利用し易さに重点を置いた中型放射光施設を多目的汎用施設に注目して高度化のための開発を進めつつあり、さらにこれに加えて、中型施設では実現が難しい特殊な超高輝度X線源を得るために、益々の高輝度化と短波長スペクトル発生への努力が続けられつつあるということが出来よう。

5. わが国のシンクロトロン放射光施設概要

1988年現在、わが国において稼働中、もしくは建設中のシンクロトロン放射光施設は、表1に示す通りであり、現在わが国の施設のうち光源専用のものとして最も大きな規模のものは、高エネルギー物理学研究所のフォトンファクトリ (PF) である。この蓄積リングの平均直径は、長径が68m、短径が50mの、研究用光源としては誠に巨大なスケールのものである。さらに短い波長で高輝度化を進めようとする第3世代の放射光施設では、低エミッタンスリングを狙って益々大きなサイズが要求される傾向にあり、これに応えるかたちで、科学技術庁が先端科学的使用目的を追求する施設として、兵庫県に建設を計画している蓄積電子エネルギー8 GeVの大規模放射光施設がある。

しかしまた一方では、半導体のリソグラフィなど単一目的を狙った超小型蓄積リングへの要望も高い。さらに同時に真空紫外 (VUV) や軟X線 (SX) の波長領域で使用し易い1~2 GeVクラスの中型施設に対する要望も多方面の研究者から上がっている。とりわけ、計画中のものも含めると10基にもものぼる放射光施設を持つことになる関東地域に対し、現在は一つの施設も持たない関西以西の地域にこの要望が強く、産

官学一体となった建設実現への努力が続けられている。もしもこれが実現することになれば、8 GeV大型施設の利用とあいまって、ほぼ完璧な、全波長領域にわたる放射光利用研究体制ができあがることになり、わが国における基礎、応用の科学研究分野全域へのインパクトは計り知れないものがあると思われる。

参考文献

- 1) T.Watanabe and S.Nishikawa, Chem. Phys. **11**, (1975) 49
- 2) M.Yanagihara et al, KEK Report 84-17 (1984) p19
- 3) C.C.King et al, J.Phys. **B10**, (1977) 2479
- 4) V.Schmidt, Appl. Opt. **19**, (1980) 4080
- 5) T.B.Lucataronto et al, Phys. Rev. Letters **47**, (1981) 1124
- 6) J.L.Dehmer, J.Chem. Phys. **65**, (1976) 5327
- 7) Y.Sato et al, Photon Factory Activity Report 1986, p.228
- 8) T.Hayashi et al, Chem. Phys. **116**, (1985) 151
- 9) 上田, 佐藤「放射光」vol. 1, no. 2 (1988) 1
- 10) H.Hanashiro et al, J.Phys. **B12**, (1979) L775
- 11) V.Schmidt et al, Phys. Rev. **A24**, (1981) 1803
- 12) T.Hayashi et al, J.Phys. **B17**, (1984) 3511
- 13) J.A.Knapp, F.J.Himpsel and D.E.Eastman, Phys. Rev. **B19**, (1979) 4952
- 14) S.D.Kevan, Phys. Rev. Lett. **50**, (1983) 526
- 15) Y.Sakisaka et al, Phys. Rev. **B38**, (1988) 1131
- 16) S.D.Kevan, Phys. Rev. **B32**, (1985) 2344
- 17) R.J.Smith, J.Anderson and G.J.Lapeyre, Phys. Rev. Letters **37**, (1976) 1081
- 18) D.Heskett et al, Surface Sci. **164**, (1985) 490
- 19) K.Hieda et al, Photon Factory Activity Report **5**, (1988) 286
- 20) M.S.Sasaki et al, Photon Factory Activity Report **5**, (1987) 129
- 21) J.J.Boland et al, Phys. Rev. **B28**, (1983) 2921
- 22) J.H.Sinfelt et al, Catal. Rev. **26**, (1984) 81
- 23) D.R.Denley et al, J.Catal. **87**, (1984) 414
- 24) G.Tourillon et al Phys. Rev. Letters **57**, (1986) 603
- 25) J.Chikawa and I.Fujimoto, Appl. Phys. Letters **21**, (1972) 295
- 26) T.Ishikawa et al, Jpn. J.Appl. Phys. **24**, (1985) L968
- 27) T.Kitano et al, Jpn. J.Appl. Phys. **25**, (1986) L282
- 28) I.Fujimoto, "Defects and Properties of Semiconductors" p71, ed. J.Chikawa, KTK Science Publishers, Tokyo, 1987