

## ■ 展望・解説 ■

## 大型放射光施設SPring-8と利用研究

Synchrotron Radiation Facility SPring-8 and the Applied Research

林 田 敏 明\*

Toshiaki Hayashida



## 1. 放射光とは

## 1.1 放射光の発生と特徴

1947年、米国GEでシンクロトロンを試作していたが、電子のエネルギーがなかなか理論通りに上がらなかったため、その原因を追及したところ、電子は軌道周回中に発光してエネルギーを失っていることがわかった。この光がシンクロトロン軌道放射光、略して放射光と呼ばれている。放射光はシンクロトロンの性能の点からは邪魔物であるが、当時可視光とX線付近の光しか発生手段がなかった研究者たちは、可視光からX線迄の光を含むこの明るい放射光を研究に利用しようと考えた。最初は原子核研究用のシンクロトロンで発生する放射光を利用していた。利用研究が盛んになるにしたがって放射光専用の施設が作られた。日本では筑波の高エネルギー物理学研究所のフォトンファクトリー（PF）をはじめとして、低エネルギーの小型施設を含めると10基以上が稼働中である。放射光による研究の分野は後述のように非常に広いが、これらの研究が進展すると、さらに高輝度高エネルギーの光を求めて大型放射光施設が建設されるようになった。現在欧州連合による ESRF、米国による APS、日本の SPring-8 の3計画が建設段階にある。

放射光は、ほとんど光速まで加速された電子が磁場等で偏向されるとき、軌道の接線方向に放射される光である。図-1は放射光施設の概念図である。電子源で発生した電子を、まず線型加速器で1 GeV程度まで加速し、さらにシンクロトロンで数GeV以上に加速して、蓄積リングに送り込む。蓄積リングには電子を周回させるために多数の偏向用磁石が設けられていて、電子はそこを通過するとき放射光を発生する。(図-2)電子の軌道の途中には加速空洞が設けられていて、

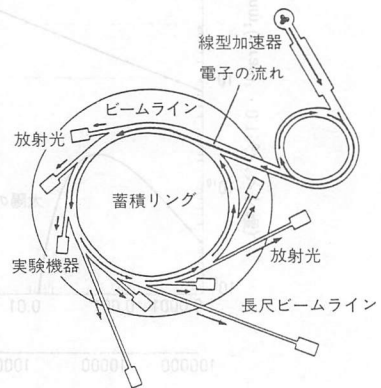


図1 放射光施設の概念図

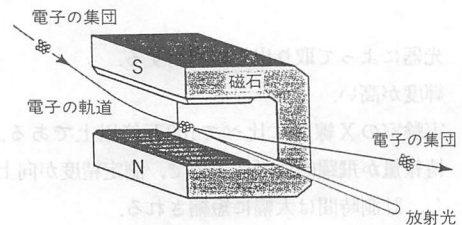


図2 放射光の発生原理

放射光として放出したエネルギーを補充する。

放射光を発生させるもう一つの方法に挿入光源とよばれるものがある。電子の軌道は厳密には偏向磁石を頂点とした多角形があるが、その直線部に磁石のNSを交互に並べたもので、電子はそこに通過するとき蛇行し、NやSを通過するたびに発光を繰り返す。これらの光が干渉して、特定の波長で強度が極端に強くなったり、より短波長の放射光を発生したりすることもできる。

放射光には次のような特徴がある。

- (1) 可視光からX線までのあらゆるエネルギーの光を含んでいる。

研究者はその中から必要なエネルギーの光を分

\* 勸高輝度光科学研究センター 理事  
〒650 神戸市中央区港島中町6-9-1

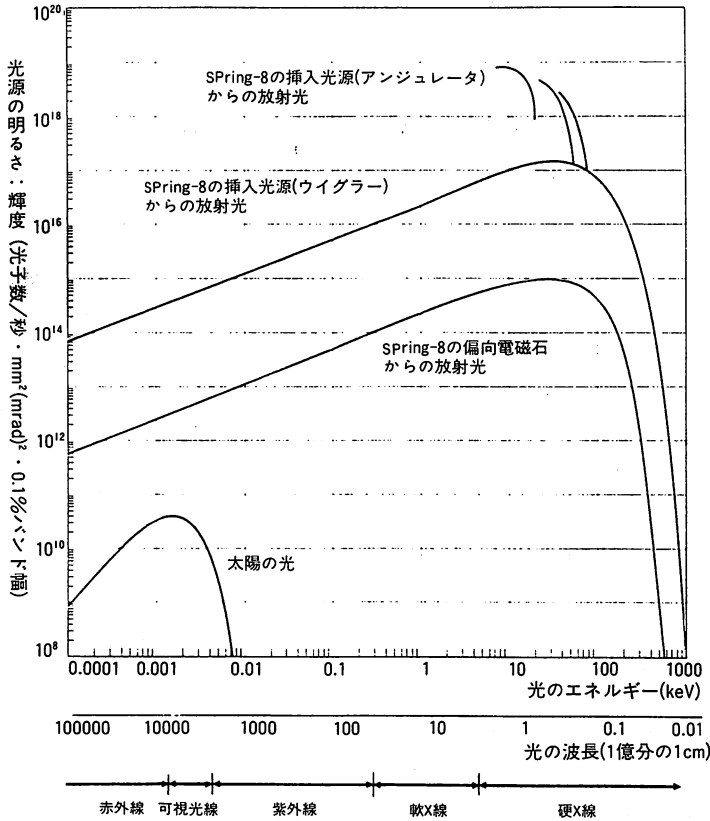


図-3 SPring-8の放射光の特性

光器によって取り出して利用する。

- (2) 輝度が高い。  
実験室の X 線管に比べて100万倍以上である。情報量が飛躍的に増えるので、測定精度が向上し、計測時間は大幅に短縮される。
- (3) 指向性がよい  
SPring-8 では60m先で1 mm程度広がる。
- (4) 直線偏向である。  
放射光の電気ベクトルは軌道面にある。放射光と物質の相互作用の方向性を探るのに適している。特殊な構造の挿入光源によって円偏光も発生できる。
- (5) パルス光であって、その間隔は可変である。  
光による反応の経時変化等を研究するとき有用である。
- (6) クリーンな光である。  
電子の流れによって発生するものであるから、電子流を止めれば放射光も止まる。したがって環境汚染はない。

図-3は SPring-8 の放射光特性である。挿入光源に

はその動作条件によってアンジュレーターとウィグラーがある。偏向磁石 (BM) やウィグラー (MPW) からの放射光は滑らかな特性を示すが、アンジュレーター (U) からの光は干渉によって特定エネルギーのところにピークが現れるが、動作条件を調整すればピークの位置は移動できる。

これらの特徴のうち、(1)の任意のエネルギーの光を利用できる点は、研究に新しい手法をもたらした。特定のエネルギーについては、レーザーはもっと強い光を提供できるが、一般にエネルギーの選択性がない。これに対して放射光では連続スペクトルの中から分光器によって任意のエネルギーの光が取り出せる。

放射光の高輝度性によって、今まで数ヶ月を要した測定も数時間で終了する。そのため研究の効率化が図られ、多数の成果が出るようになった。また従来強度不足のためノイズに埋もれてよく見えなかった現象がよく分かるようになった。

放射光の高指向性によって、測定の角度分解能が上がった結果測定精度や図形転写精度が向上した。

これらの実例については後述の利用研究の各論の項

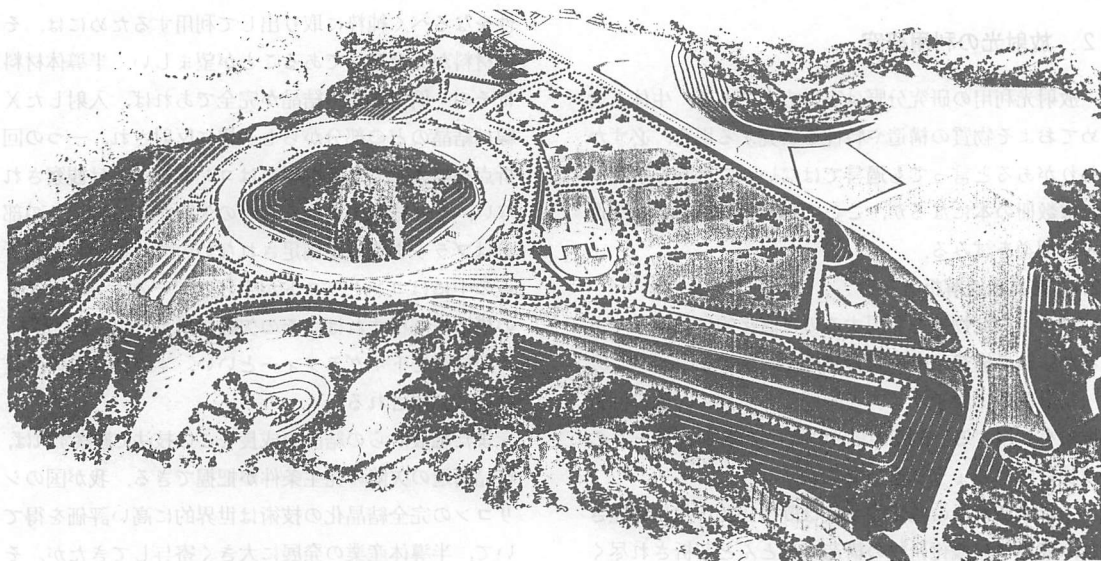


図-4 SPring-8の完成予想図

でそれぞれ紹介する。

## 1.2 SPring-8の構造と性能

'SPring-8'は、現在兵庫県西部の丘陵地帯にある播磨科学公園都市に、科学技術庁のサポートを得て、日本原子力研究所と理化学研究所が共同で建設中の大型放射光施設の愛称である。

図-4はSPring-8の完成予想図である。敷地は科学公園都市の中央に位置し、その面積は142haあり、堅固な岩盤からなっている。図中央の逆6字の直線部分は線型加速器で、全長が140mあり、電子を約1GeVまで加速し、それに接続した楕円形のブースターシンクロトロンを導入する。シンクロトロンは周長が約396mあって、電子は約8GeVまで加速された後蓄積リングに送られる。図中左の大きなリング状の建物は蓄積リング棟と呼ばれ、内周寄りの蓄積リング収納部と外周寄りの実験ホールとからなる。蓄積リングの周長は1,436mあり、電子は蓄積リングの中を毎秒約20万回周回することになる。蓄積リングの偏向磁石からの放射光が23本、挿入光源からの放射光が38本取り出されて、取り出し窓を通じて実験ホールに導かれる。実験ホールでは発光点から数十mの位置で測定が行われるほか、研究の内容によっては発光点から約300mで実験するための中尺ビームラインが8本と、約1,000mで実験するための長尺ビームラインが3本が蓄積リング棟の外に設けられる予定である。

これらの61本のビームラインを利用して行われる研究は、およそ次のようなものがある。

- (1) 公募によって採尺された研究課題を実施する一般的な共同利用研究
- (2) 特別の先端的、挑戦的な研究課題を選定し、一定の期間重点的に推進する特別研究
- (3) 民間企業、大学等がビームラインを保有して行う特定者研究
- (4) 施設者が行う分析や照射等のサービス

SPring-8は国内外の産官学の研究者に広く開放される研究施設として建設されるものであるから、利用者の中には外国特にアジア・オセアニアからの研究者も多数含まれると思われる。

SPring-8の設置は総予算額1,089億円が予定されていて、建設は既に1990年に始まっており、1998年度から一般の利用が始まる。そのため建設がピッチで進行するのに平行して、利用研究グループも多数発足してそれぞれの研究課題の提案を行うと共に、ビームラインの建設計画も次第に固まりつつある。ビームラインとは放射光のビームが発生してから消滅するまでに通過する部分、すなわち放射光を発生させ、絞ったり、分光したりして、実験設備を収納した実験ハッチに導入し、測定をしてデータを取り、これを処理するシステム全体を言い、システムの制御機能も含まれる。要するに放射光を利用して実験をする設備である。最終的には61本のビームが出る予定であるが、1998年の段階では十数本のビームラインが稼働していて、その後は毎年数本ずつ順次建設される予定になっている。

## 2. 放射光の利用研究

放射光利用の研究分野は実に広大である。生体も含めておよそ物質の構造や特性を研究する場合、必ずかわりがあると言っても過言ではない。これらを解説すれば数冊の本になるが、ここではその中から数件を選んで解説を試みる。

### 2.1 結晶構造解析

いろいろな物性を発現するのは直接的には電子であるが、結晶構造はその舞台装置を提供することになる。

結晶構造は原子サイズと同程度の波長のX線の回折現象を利用する。図-3のBMの特性で輝度のピークの波長程度がちょうど適当である。

結晶構造解析の基本的手法は既に1930年代に確立され、簡単な無機化合物の構造はほとんど解析され尽くして、最近の研究対象は原子の歪みや結晶の乱れといった高度な精密構造解析かまたは分子量が100万以上の生体高分子の構造決定が中心である。

精密構造解析では、回折強度を高精度で測定しなければならず、統計誤差を考慮すれば相当数の光子を計測する必要があり、測定時間も長くなる。放射光を利用すれば測定時間は大幅に短縮できるので好都合であるが、放射光は一般的には直線偏光であるから構造因子の計算に当たって偏光因子の取り扱いに注意を要する。また構造因子の位相角決定の決定などのために構成元素の吸収端付近の波長のX線を利用する場合には、異常散乱の偏光方向依存性を評価しておくことも重要である。精密構造解析によって結晶中の化学結合や電子の状態が明らかになり、新素材の開発の重要な指針となっている。

### 2.2 トポグラフィ

多くの無機物質は結晶質である。それらの結晶の物

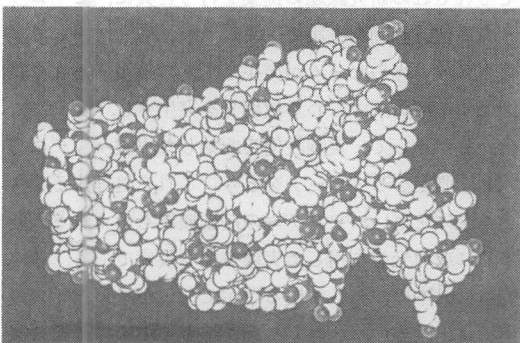


図-5 結晶構造解析によって決定された光合成細菌の膜蛋白質の立体構造

性をなるべく純粋に取り出して利用するためには、その材料が完全結晶であることが望ましい。半導体材料はその一例である。結晶が完全であれば、入射したX線は結晶のどの部分からも一様に反射され、一つの回折点を拡大してもその中にはコントラストは観察されない。もし結晶中になんらかの欠陥があると、その部分はブラッグ条件が満足されないで、拡大した回折点の中にはコントラストが生じる。そのコントラストの構造を解析すれば、その欠陥の構造も明らかになる。この技法をトポグラフィといい、半導体結晶の品質評価に利用される。

また融液からの結晶の成長をこの技法で観察すれば、結晶構造の欠陥の発生条件が把握できる。我が国のシリコンの完全結晶化の技術は世界的に高い評価を得ていて、半導体産業の発展に大きく寄与してきたが、その結晶技術の開発の指針となったのはトポグラフィであった。

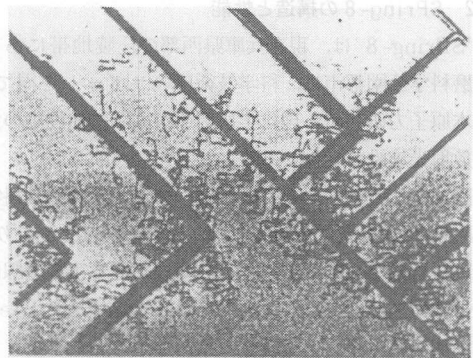


図-6 半導体デバイス結晶中の欠陥

### 2.3 蛍光X線分析

物質に光を照射すると、光を吸収した原子は固有のエネルギーの光を出す。光の吸収から発光までの時間が極めて短いものを蛍光といい、長いものを燐光という。可視光域の蛍光は原子の外殻電子によるものが多く、化学結合などの影響を受けるので解析も複雑になる。X線領域の蛍光は内殻電子によるので、周辺の影響が少なく、元素固有のエネルギーのX線が出てくる。これを利用して行う分析が蛍光X線分析である。

分析では、精度（目的元素の含有率などの数値の正確さ）と感度（検出可能な最少量）が重要であるが、放射光を利用した蛍光X線分析はいずれも高い。X線の強度は検出器に到達する光子数を数えて測定する。その精度は光子数の平方根に比例する。したがってX

線管に比べて100万倍の強度の放射光を照射すると、蛍光X線の強度も100万倍となり、精度は1000倍良くなる。測定時間を1/100に短縮しても、なお100倍の精度を確保できる。

蛍光X線の強度が100万倍になれば、検出感度も100万倍になる。さらに感度を上げるには雑音を極力抑える工夫が必要である。蛍光の励起に有効なエネルギーのX線を照射すればよい。放射光は任意のエネルギーの光が利用できるのが有利である。また偏光したX線はその電気ベクトルの方向には散乱しないので、電気ベクトルの方向では蛍光X線だけが検出される。さらに全反射を利用する。面にすれすれに入射したX線は全反射を起こすが、そのときX線のエネルギーは表面から5nm程度しか侵入しないので、試料支持台からのX線は極めて少なくなる。これらの工夫の結果Znについては検出感度100ppb、絶対量が0.03pgの検出が可能となった。これらの精度や感度はあらゆる分析法に比べて遙かに優れている。

最近では、放射光を1ミクロン径程度まで絞って、試料表面を走査して特定元素の分布を画像化することも行われている。このような蛍光X線分析の応用分野は実に広い。公害関係、宇宙塵、鉱物中の希少元素の分析に利用され、考古学や古美術の貴重な資料の検定手法ともなる。さらに工業的にも材料や工程の管理に有力な手法を提供する。

2.4 XAFS

吸収端の微細構造には、その原子周辺のミクロな電位分布が反映されていることが知られていて、吸収端の近傍で吸収係数を波長の関数として測定し、そのフーリエ変換から特定原子の周辺の近隣の原子の動径分布を知ることができる。この手法をX線吸収端微細構

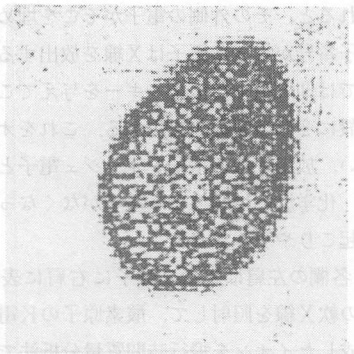


図-7 毛髪中の亜鉛の分布。表面付近の濃度が高い (PF 飯田厚夫先生提供)

造解析を略して「XAFS」と呼ばれている。従来は適当な白色X線光源がなかったが、放射光の実用化によって急速にXAFSの研究が進化した。

その研究例は多数あるが、二三の例を紹介する。まず第一は触媒反応の研究である。放射光は強いので、実験装置を工夫すれば、一つの測定に要する時間を1ミリ秒以下にすることができる。これによって触媒反応を動的に観察できる。第二の例はヘモグロビンの酸素の脱着の様子が鉄の吸収端を利用して測定された。酸素による生体反応の研究にも同様な方法が利用されている。第三の例は半導体中の不純物の吸収端の測定から、不純物原子周辺の結晶格子の歪みも測定されている。このようにXAFSは実に多くの分野に利用されており、利用例も極めて多い。試料は結晶である必要はなく、液体、アモルファス、溶液でもよい。XAFSによって溶液中の分子の形態を決定した例もある。

XAFSの研究に付随して、特に吸収端の極近傍の構造や吸収端の波長が、その原子の原子価によって変動する(ケミカルシフト)ことが知られている。これ

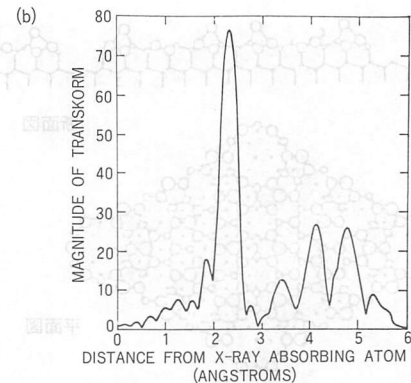
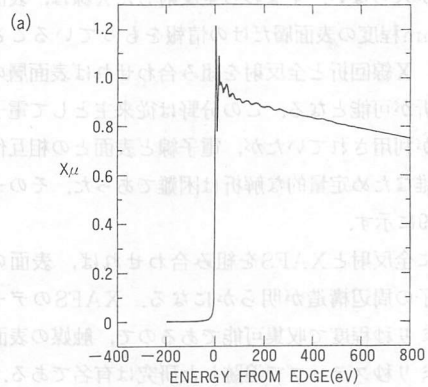


図-8 吸収端付近の吸収曲線 (a) とその解析例 (b)

を利用して、例えば2個の鉄原子と3個の鉄原子が区別できるので、試料中の鉄原子の原子価の分布を観察した例がある。

## 2.5 表面の研究

物質の表面の原子的・電子的構造は内部と異なった独特の構造や特性をもっている。この特徴は表面から10 nm程度の深さまで及んでいると考えられているので、微粉末や薄膜では表面の特徴が強く現れ、バルクでは見られない特性が見られる。例えば金属の微粉末は空气中で爆発的に燃焼する。またシリコンは薄膜状では暗赤色であるが、微粉末では緑色である。化学では触媒が大きな役割を演じているが、その表面での反応機構の研究は重要である。また半導体工業では、デバイス表面の制御が極めて重要であり、表面の研究がさかんに行われている。今後は表面処理や燃結に関連して、金属工業や窯業などでも重要となるであろう。

X線の屈折率は1よりわずかに小さい。そのため表面に $0.5^\circ$ 程度の入射角でX線が入射すると全反射を起こす。そのときX線のエネルギーは表面から5 nmまでしか入らない。すなわち全反射したX線は、表面から5 nm程度の表面層だけの情報をもっていることになる。X線回折と全反射を組み合わせれば表面層の構造解析が可能となる。この分野は従来主として電子線回折が利用されていたが、電子線と表面との相互作用が複雑なため定量的な解析は困難であった。その一例を図-9に示す。

同様に全反射とXAFSを組み合わせれば、表面の注目原子の周辺構造が明らかになる。XAFSのデータは1ミリ秒程度で収集可能であるので、触媒の表面反応をミリ秒ステップで追跡した研究は有名である。

表面の研究の第二の手法は定在波法である。X線を

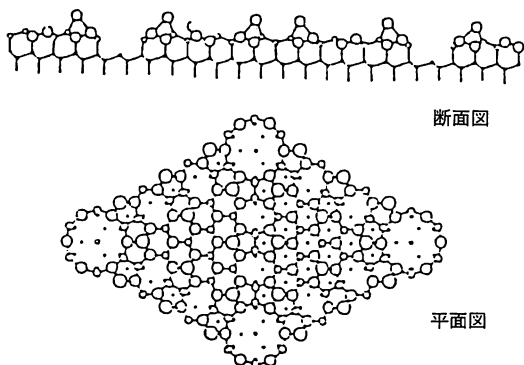


図-9 シリコン単結晶表面の特異構造

単結晶表面にブラッグ条件を満足するように入射したとき、入射波と反射波が干渉して定在波が発生し、X線のエネルギーは表面から深さ方向に周期的に分布する。X線のエネルギーの山にあたる部分にある原子はこれを吸収して蛍光X線を発する。X線の波長を変化させると、反射角が変わり、エネルギーの分布の周期も変わる。いくつかの周期について蛍光X線を測定すれば、種々原子の深さ方向の分布が求められる。半導体結晶の表面の不純物の分布を求めたり、接触表面の吸着の研究が行われている。

表面の研究の第三手法は光電子分光法である。極端紫外から軟X線領域の光を照射すると、比較的外殻にある電子が放出される。その光電子のエネルギーや放出方向などを測定すると、その電子のもとの状態が解析できる。表面の吸着状態や半導体の表面準位の解析に利用されている。

このように、放射光は利用技術が多様であるので、一つの研究対象に対していくつかの手法が利用できて、多角的な情報を与えてくれる。

## 2.6 放射光化学反応

これまで化学反応を促進するためには、例えば溶鉱炉や石油プラントにみられるように反応系を高温にしたり、苛性ソーダ工程のように溶液や熔融状態で電気化学的反応を利用している。これに対して、最近光化学反応が注目されている。利用される光のエネルギーは、通常の光合成や写真化学などの場合は電子ボルトのオーダーであるが、放射光が利用できるようになって高エネルギーの光化学反応（これを放射光化学反応と呼ぶ）の研究も始まっている。

放射光化学反応では、これまでの反応系のほとんどは最外殻電子を励起しているのに対して放射光で最内殻電子を励起する。内殻電子がX線のエネルギーを得て放出されると、その外側の電子がそこを埋める。このとき原子番号が大きな原子はX線を放出するが、小さな原子では他の電子にエネルギーを与えてこれを放出し、外殻に2個の空孔が発生する。これをオージェ効果といい、放出される電子をオージェ電子と言う。その結果、化学反応に関与する電子がなくなって分子の分解が起こりやすくなる。

図-10は各欄の左肩に表示の分子に右肩に表示のエネルギーの軟X線を照射して、酸素原子のK電子を励起し、生成したイオンを飛行時間質量分析法で分析した例である。ピークが分裂しているものが多いが、分解に際してイオンが前後に飛び散ったためである。そ

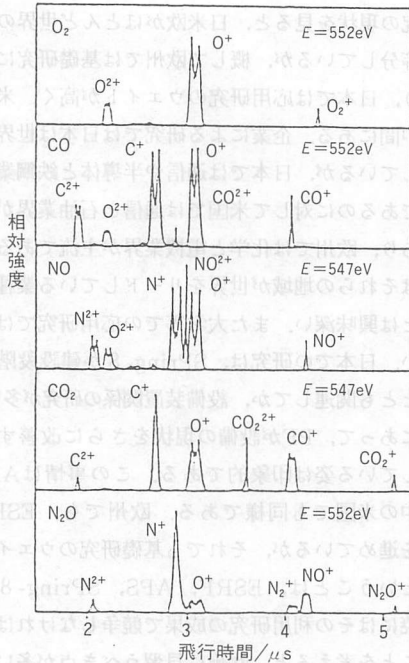


図-10 放射光による分子の解離 (横軸は質量数に比例)

その他  $\text{SiH}_4$  などでも試みられているが、Si の K 電子を励起すると X 線のエネルギーを適当に選べば、分子を完全に原子状態に分解できる。

これらの現象は、特定の元素だけを非常に高温においたのと同様であり、反応系全体を高温にして分子全体を励起する場合と異なる反応形式がとれる可能性がある。例えば多種の元素を含む分子では、特定の原子の周囲の結合だけを切断できると考えられ、PCB や フロンなどの分解処理が困難な有害物質の廃棄処理に適用できる可能性がある。

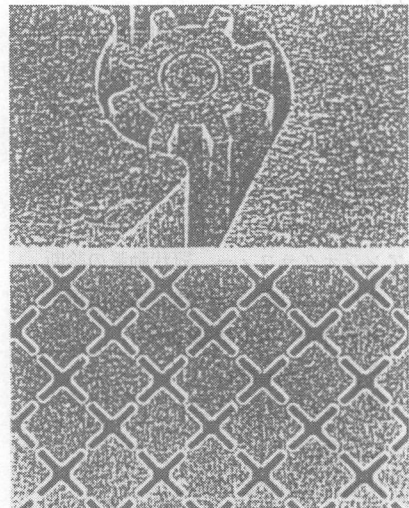
また半導体の製造工程の中には、シランを熱分解してシリコン単結晶の表面にさらに薄い結晶層を成長させる工程がある。これを CVD (化学的気相成長) 工程と呼んでいる。この工程をなるべく低温で行うために、熱分解に代えて放射光による光分解を導入する試みが研究されている。

2.7 X線リソグラフィー

半導体工業におけるムーアの法則の一つに「デバイスの最小寸法は4年で1/2になる」というのがあり、開発技術者はこれをガイドラインに技術向上を図ってきた。その結果、今世紀末には0.1ミクロンに到達することになるが、現在の技術の延長としてはその達成が危ぶまれていて、もっと短波長の高輝度光源として指向性がよい放射光が注目されるようになった。この

技術がX線リソグラフィーと呼ばれている。半導体工業では数年前から技術開発の努力が続けられていて、研究室レベルでは既に目標に達しつつあり、数年後には実用になると考えられている。

これと並行して、機械の分野にもその応用が拡大しつつある。数ミリ径のマイクロロボットを作るために、0.1ミリ径の歯車やその軸受を製作する技術として、X線リソグラフィーが利用された。この工程を LIGA プロセスと呼んでいる。図-11 はその一例である。写真の歯車の直径は約100ミクロンで、軸受けとの間のギャップは約1ミクロンである。その他アクチュエーターなどのミクロな電子部品にも展開されている。このようにLIGAプロセスの実力はミクロン程度に達して、今後の展開が期待される。



写真上は直径0.1ミリの歯車  
写真下は赤外線フィルター  
(巾3ミクロン、長さ30ミクロン)

図-11 LIGAプロセスによるマイクロ部品

2.8 X線トモグラフィー

1979年のノーベル生理学医学賞に輝くX線トモグラフィーは今や医学診断に広く利用されるようになったが、最近では産業分野でも研究や品質管理に活躍しつつある。金属鋳物中の空泡やタイヤの中の加硫剤の析出などに応用例が見られる。対象物にもよるが、その分解能は約1ミリであるが、光源に放射光を利用すると、指向性が優れているのでさらに分解能が向上すると期待され、技術開発が進められている。

X線トモグラフィーは、基本的に検査対象の内部のX線吸収能の分布を見ているのであるが、将来的には

エネルギー差分法の適用が期待される。X線の吸収係数は一般には原子番号に比例し、X線のエネルギーに反比例するが、そのほかに元素固有の吸収端があって、そのエネルギーで吸収係数が急に増加する。(図-8参照) 特定の元素の吸収端の上下でそれぞれX線トモグラフィ像を撮り、その差をとるとその他の元素の吸収はあまり変化がないので、特定元素の分布のみがクローズアップすることになる。

## 2.9 その他の利用技術

ここまで各種エネルギーの発生と利用デバイスや資源の有効利用のための技術の開発に利用できるであろうと考えられる放射光の利用技術の概略を紹介してきた。これは新聞で言えば見出しに相当するものであるから、興味をお持ちの読者は各利用技術の入門書をご覧いただきたい。

ここに挙げなかったその他の利用技術も少なくないが、主な利用技術を以下に列挙しておく。

- (1) 散漫散乱 結晶の乱れや熱振動の解析
- (2) 小角散乱 長周期の構造の解析
- (3) 磁気散乱 磁性体にスピンの構造の解析
- (4) コンプトン効果 電子状態の解析
- (5) アンジオグラフィー 冠状動脈の診断
- (6) メスバウア分光 原子核の状態解析
- (7) 光電子分光 電子状態の解析
- (8) 超高圧での構造解析
- (9) X線ホログラフィー
- (10) X線顕微鏡

など枚挙に暇がないほどである。

## 3. 放射光利用の現状と将来

JICSTに登録された最近の文献の数から世界の放

射光研究の現状を見ると、日米欧がほとんど世界の研究を三等分しているが、概して欧州では基礎研究に重点があり、日本では応用研究のウエイトが高く、米国はその中間にある。企業による研究では日本は世界をリードしているが、日本では通信や半導体と鉄鋼業界が中心であるのに対して米国では通信と石油業界が積極的であり、欧州では化学と電機業界が主流である。これらはそれらの地域が世界をリードしている業種であることは興味深い。また大学等での応用研究では米国が多い。日本での研究は、SPring-8が建設段階にあることとも関連してか、設備装置関係の研究が多い。その中であって、PFが設備の現状をさらに改善すべく努力している姿は印象的である。この事情はAPSを建設中の米国でも同様である。欧州でも、ESRFの建設を進めているが、それでも基礎研究のウエイトが高いということは、ESRF、APS、SPring-8が完成の暁にはその利用研究の成果で競争しなければならないことを考えると、欧州に見習うべき点が多いのではないかと思われる。

このような現状を考えると、日本の放射光研究の在り方、特に利用研究の在り方にもう少し根本的な反省が必要ではなからうか。放射光施設としては世界最高のレベルを目指しながら、その利用研究においては世界最高のレベルにあるかといういささか心もとない。今日世界最高の施設を持てるようになったことは、日本の経済力、ひいては産業界の努力を無視できない。しかし世界の産業界は21世紀の産業の姿を模索しているのである。SPring-8がぜひその指針を出す契機になることを切に祈って止まない。