

解説

立命館大学小型放射光源の活動 —特徴ある施設を目指して—

岩崎 博

立命館大学理工学部*

Present Status of SR Center at Ritsumeikan University

Hiroshi IWASAKI

Faculty of Science and Engineering, Ritsumeikan University

Compact superconducting synchrotron radiation source was installed in the campus of Ritsumeikan University in 1996 and has been operated successfully since then. It is open not only for users in the University but also for researchers in industries and other institutions. Eleven beamlines are in use which fully utilize high photon flux available at a short distance from the source point. Interferometric measurements have shown that the radiation beam size is as small as $17 \mu\text{m}$ in the vertical direction, showing that the compact ring is a useful radiation source for spectroscopic, diffraction and microscopic measurements.

1. 立命館大学放射光施設 (SR センター) の現状

立命館大学では研究・教育水準の飛躍的向上を図るための方策の一つとして放射光源を導入することを決め、1996年4月に理工学部の置かれている「びわこ・くさつ」キャンパスに設置した。放射光が科学・技術の先端を切り開くための強力な武器であることは万人の認めるところであるが、それを利用するには国が設置した全国共同利用施設に出かけ、ビームタイムを割り当ててもらわなければならないという一般的状況であり、その施設を大学独自の研究のために自由に利用することなどは考えることさえできなかった。放射光源の設置に要する費用は巨額であるから、仮に大学が単独で光源を持ちたいと思っても、簡単に実現するものではなかった。この意味で立命館大学の決定は各方面から注目を浴びた。導入の目的、経緯などについてはすでに本誌に紹介した¹⁾。

導入以来2年9ヵ月が経過したが、この間、光源はいくつかのトラブルが発生したものの、おおむね順調に稼働を続けている。一方、ビームラインについては建設が継続的に行われ、利用可能なビームポートは3箇所を残して埋めつくされるという状況になっている。立命館大学では放射光の円滑な利用を図るため「SR センター」という組織を作り、運営に当たらせている。

導入された放射光源は超伝導の偏向磁石を持つ小型光源オーロラ I (住友重機械工業(株)製)であり、その主なパラ

メータは **Table 1** に示すとうりである。この光源の特徴は、3.8 T の強い磁場によって蓄積リングを周回する電子ビームの軌道直径を 1 m という小ささにしていることであり、放射線シールド壁の厚さを入れても円筒型の光源装置の外径は 3 m にすぎない。したがって光源点に数 m の近距離において光利用が可能である。さらに、電子ビームは単一の偏向磁石の中だけを運動するという単純さがあるためにその軌道が安定しており、光源装置の運転が容易という特徴もある。オーロラ I は元来放射光リソグラフィ用の光源として開発されたものであるが、立命館大学に導入

Table 1. Main parameters of the radiation source at Ritsumeikan University

電子ビームエネルギー	575	(MeV)
蓄積電流	300	(mA)
磁場強度	3.8	(T)
電子軌道直径	1.0	(m)
光の臨界波長	1.5	(nm)
RF 周波数	190.86	(MHz)
バンチ数	2	
ビーム寿命	5	(hour)
ビームサイズ (水平)	1.3	(mm)
(垂直)	0.14	(mm)
入射エネルギー	150	(MeV)

* 立命館大学理工学部 〒525-8577 草津市野路東 1-1-1
TEL 077-561-2719 FAX 077-561-2663 e-mail iwasaki@se.ritsumeikan.ac.jp

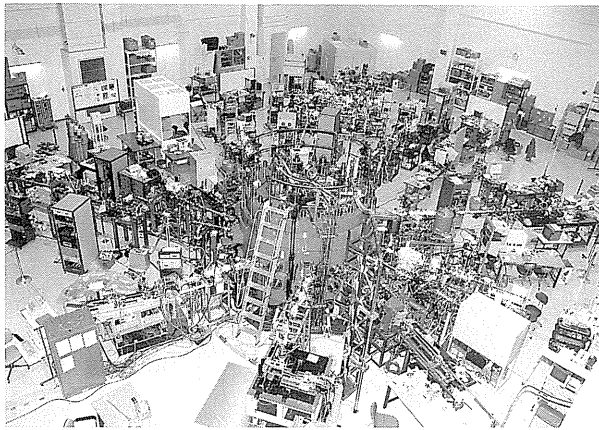


Figure 1. Photograph showing the compact synchrotron radiation source and the arrangement of beamlines in the experimental hall at SR Center at Ritsumeikan University.

されてから種々のマシンスタディを実施した結果、この光源は分光、回折などの実験にも十分使用できる性能を有していることが判明した。このことから、Table 2 に示すように種々の目的のためのビームラインが設置されたのである(1998年12月現在)。Fig. 1 に SR センターの実験ホールの全体を写した写真を示す。光源装置とビームライン、そして研究活動の詳細な紹介については論文^{2,3)}、ならびに SR センターが発行している Activity Report⁴⁾ を参照していただくことにして、以下では「大学に設置された放射光源」がいかにしてその特徴を出そうとしてきたか、その結果どのような成果が生まれたかについて述べることにする。さらに、これからのわが国における放射光利用の展開において、小型光源の持つ意義についても触れることにする。

2. 「大学の放射光源」の特徴

わが国において大学が単独で放射光源を持つのは立命館大学が初めてである。したがって光源装置の選定、ビームラインの整備方針の決定、運営方式の策定などはすべて大学の責任において行った。これは、PF, UVSOR などが行っているように、広くユーザーの意見を徴し、専門家の意見を聞いて、多くの人が満足するように物事を決めるという手続きと異なっている。結果として、判断が機動的にかつスピーディに行われ、きわめて短期間に施設が動き出した。放射光利用が広がり、経験が蓄積されている今日では、このようなプロセスを経てもうまく行くことを実証したわけである。

さて、立命館大学が意図したのは、放射光源を単に大学の研究のために用いることだけではなく、理工学部の学生の教育に積極的に役立てること、関西地方の公立機関、企業などの研究者の利用にも開放して産学共同の場を作り出すことである。施設運営の経済的基盤は大学にあることから、これらの目的を達成するための組織を大がかりに作る

Table 2. List of beamlines at SR Center at Ritsumeikan University (December, 1998)

			(eV)
BL-1	軟 X 線分光	円筒ミラー, 湾曲結晶分光器	1250—2850
BL-2	真空紫外線分光	円筒ミラー, 斜入射回折格子	50—600
BL-3	X 線反射率測定	トロイダルミラー, 2 結晶分光器	3000—10000
BL-4	X 線-XAFS	2 結晶分光器	3400—10000
BL-6	LIGA 露光		2000—10000
BL-8	光電子分光 (イオン散乱)	円筒ミラー, 不等間隔回折格子	5—700
BL-10	軟 X 線-XAFS	トロイダルミラー, 2 結晶分光器	1000—4000
BL-12	軟 X 線顕微鏡	平面ミラー	280—540
BL-13	蛍光 X 線分析		3000—10000
BL-14	白色光照射	円筒ミラー	50—2000
BL-15	X 線回折・散乱	2 結晶分光器	4000—8000

余裕があるわけではなく、SR センターには光源の運転、施設の管理、放射光利用事務などのための少数の専任職員を置くだけにし、各ビームラインの操作、維持などの仕事は理工学部の教授および助教授が当たることにした。全国共同利用の義務がないとは云え、このような体制で施設を運営するのは容易ではないけれども、試行錯誤を重ねながら次第に独自の方式を確立しつつある。

小型光源による放射光利用の3本柱として、分析・解析、プロセッシング、観察を決めた。その具体的内容は Table 2 を見ればわかるであろう。分析・解析に関してはいままでも理工学部で行われていた研究を放射光を取り入れることにより飛躍的に発展させることを狙っている。全国共同利用施設ではこの分野の利用者が多く、ビームタイムの獲得に四苦八苦しているのが実情であるが、大学のキャンパス内で光利用ができるようになったことにより、研究中に浮かんだアイデアをすぐに、そして繰り返し試して、新しい研究法を開発することに成功した(詳細については3参照)。第2の柱、放射光プロセッシングは理工学部にとって新しい研究分野であると同時に他大学にはない分野であり、また産学共同の場を確立する上に大きな力となった。第3の柱、観察は軟 X 線顕微鏡であるが、これはわが国で活発に動いている分野でありながらもいままでもどの施設にも専用ビームラインがないという不利な状況であった。この問題の解決につながるとともに、理工学部の研究に新しい刺激を与えることになった。

さて、立命館大学の理工学部には1996年に光工学科が新設された。この学科は光通信、光デバイス、光知能などに加えて放射光を主要なカリキュラムとしている。キャンパス内に放射光源を持つ利点を生かし、講義による座学だけではなく、3年生の実験テーマに放射光を取り入れている。この実験では学生をグループに分け、SR センターに1グループずつ集合させ、まず SR センターの概要を説明

し、ついで実験ホールに入り放射光源を見学する。そして既設のビームラインにおいて放射光の干渉縞の記録、蛍光 X 線スペクトルの測定などを大学院学生の補助の下に行い、それらの結果の初歩的解析をする。3年生の学力を考えると、これらのことを通して放射光とはどんなものか、どのようにして利用するのかということの理解が得られれば十分であり、最先端科学の象徴である放射光への入門となれば目的は達せられる。本とかテレビを通じて放射光を知ると実際に自分の目と手で経験するのでは大違いであり、学生達は目を輝かせて実験に参加している。4年生になると、光工学科だけではなく、物理、化学、電気、機械などの学科の学生も卒業研究を行う。これは放射光利用研究をしている教授、助教授の研究室の学生に限られてはいるが、その総数はかなり多い。大学院学生となれば放射光の本格的利用に入り、それによって学位論文をまとめる。立命館大学ではこれら学生のための放射線安全教育、健康診断にも力を入れている。このようにして学生達に他大学では得られない貴重な経験をさせている。学生にとっては単に放射光の知識が増えることだけに留まらず、ビームラインでの実験を通して「協力」ということの重要性を悟り、また専門の異なる学生と親しくなるなどして人間形成にも役立つ教育となっている。Fig. 2 は実験風景を示す写真である。

さらに立命館大学が力を入れているのは学外の研究者、とくに企業などの研究者、の放射光利用による産学共同の推進である。現在のところ、外部機関専用のビームラインは設置されていないので、この利用は大学のビームラインにおいて、(1)ビームタイムを学外の研究者にも割り当てて実験してもらう、(2)大学と外部機関とが共同研究協定を結び、協力して実験を行う、(3)外部機関からの受託研究として大学の研究者が実験を行う、の3方式で実施している。この2年9ヶ月の実績を見てみると、学外からの利用希望が特定のビームラインに集中する傾向があり、その著しいのがマイクロマシーニング (LIGA) であり、それに次ぐのが光励起プロセッシング、XAFS である。これらは技術的に云って、ビームタイムの中に外部利用を取り込むことが比較的やさしいという事情もあり、利用はかなり進捗している。一方、光電子分光のように試料槽の清浄度保持の問題から簡単にサンプルを交換することができない場合には、学外の希望に応じるには考慮が必要となる。一般的に云って企業における研究と大学における研究とは異なる面を有しているもので、両者を混じえながら同一のビームラインで放射光利用を行うのは難しいとされているが、立命館大学の経験では、大学の研究者が企業の最前線で行われている研究の一端に触れ、大学の中だけに閉じ籠っているとは得られないような刺激を受けるという利点を見出した。それに加えて、企業が利用することにより得られる利用料は施設の運営にとって貴重である。SR センターでは外部からの利用に関する照会、申し込みなどの手続きを簡



Figure 2. Photograph showing students doing preparation for synchrotron radiation measurements at SR Center at Ritsumeikan University.

素化し、利用に際してのバリエーションをできるだけ低くするように努めているが、外部利用者がセンターに来て実験する際のサービスの向上は今後の努力目標として残っている。

3. 研究成果の例

3.1 放射光干渉計によるビームサイズの測定

立命館大学の光源リングには電子ビーム収束用の磁石が備えられていない。そのため光ビームサイズはかならずしも小さくはないと考えられていた。事実、レンズ結像方式によって測定したところによれば、垂直方向で0.14 mm、水平方向で1.3 mm という値になっている。しかしながら、リングのマシンスタデイを行っているうちに電子ビームの寿命が主として Touschek 効果によって決まっていると考えざるを得ない結果が得られ、そうするとビームサイズはかなり小さくしなければならないことになった。このことは上記の値、とくに垂直方向の値、が真の値ではないことを示している。ところがレンズ結像方式では分解能に限界があり、小さなビームサイズの測定には不適である。

そこで放射光干渉計方式と呼ばれる新しい方法でビームサイズの測定が行われた。この方法は最近物質構造科学研究所の三橋氏によって開発されたもので⁵⁾、レンズ結像方式よりは分解能に優れている。この方法の原理は、光源からのビームを二重スリットを通過させて干渉を生じさせ、その結果生じた干渉縞の強度プロファイルに含まれている光源の形と大きさの情報を解析によって導き出すというものである。Fig. 3 は立命館大学の光源においてこの方法によって記録した干渉縞を示す⁶⁾。この測定では可視光成分が用いられており、スリットの間隔 D を変えながら記録したもので、もし光源の大きさが無限小であれば、 D を大きくしてもいぜんとして鮮明な縞模様が観察されるはずである。図からわかるように、 D が19 mm の場合でもはっきりとした縞が記録されており、光ビームサイズがかな

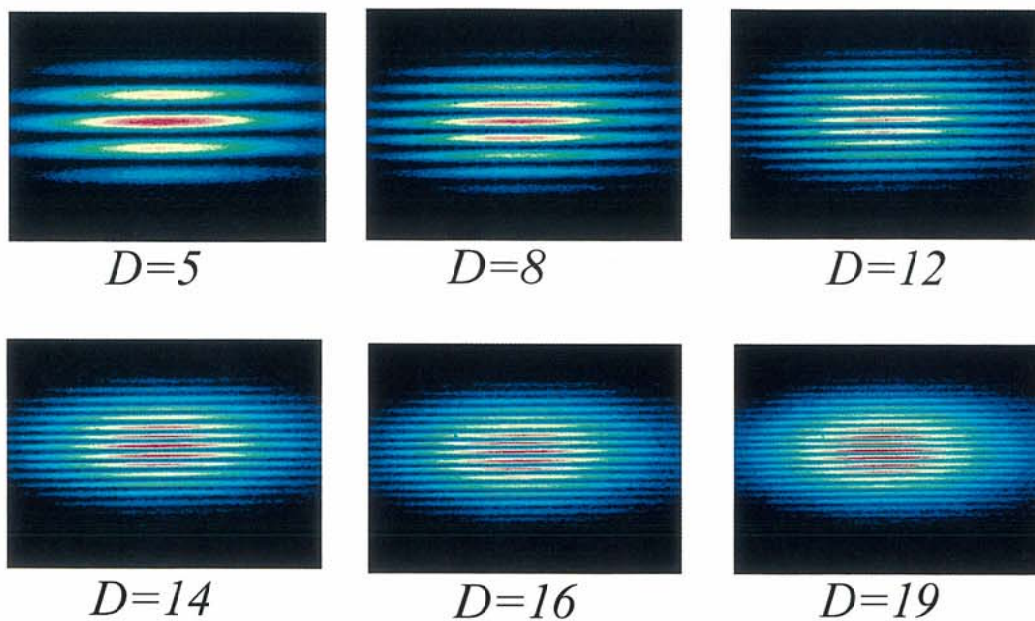


Figure 3. Fringe patterns obtained by the synchrotron radiation interferometer in the measurement of the radiation beam size⁶⁾. D is the distance between the slits expressed in mm.

り小さいことを示唆している。この場合、光源の形がガウス関数で表わされることがわかり、解析の手続きがきわめて簡単になって、垂直方向のビームサイズが $17\ \mu\text{m}$ という結果が得られた。この値はPFにおける値よりずっと小さく、SPring-8における値に近い。このことはオーロラIの偏向磁石で発生される磁場の構造と精度がきわめてよく、電子ビームをうまく収束していることを示している。したがって超伝導小型光源でも高分解能分光実験、微小領域分析実験が可能であることを意味する。ただここで問題となるのは、Touschek効果が強く効いているので電子ビーム寿命が1時間半程度の短さであることである。Table 1に示した寿命は電子ビームを広げて運転しているときの値である。ビームサイズとビーム寿命の両立をいかにして実現するかを研究中である。

3.2 放射光によるマイクロファブリケーション技術の展開

放射光リソグラフィが次世代高密度演算素子の開発を目指し、放射光の産業応用の目玉として発展したことは良く知られている。わが国においては1980年代からPFにおいて4つの企業が専用ビームラインを設けて研究を開始し、ついで自社内に小型光源を建設して同様の研究を行う企業も現われている。一方、放射光リソグラフィの基礎となる技術を応用して金属、セラミックスなどの超微細製品を作る技術、いわゆるマイクロマシーニング、が生まれ、LIGAという名称で知られている。立命館大学では放射光プロセス研究の中心としてLIGAを取り上げ、露光用ビームラインを設置した。しかし特色を出すため、これに加えて学内に露光用マスク製作用の電子描画装置、露光

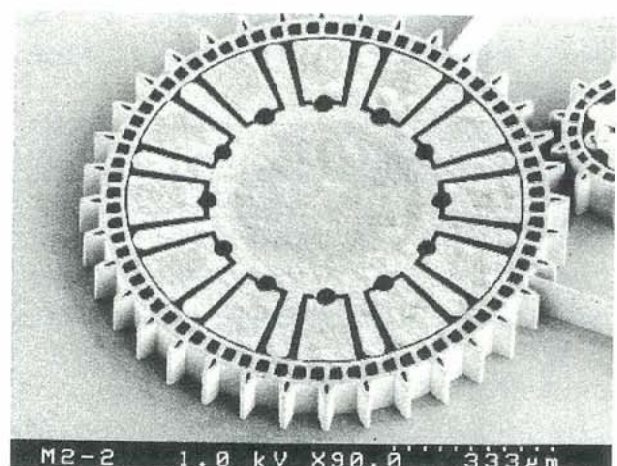


Figure 4. Nickel microstructure for a wobble motor fabricated by SR microfabrication technique⁷⁾. The diameter of the motor is 1 mm and the thickness is $100\ \mu\text{m}$.

後の化学処理、電鍍などのための諸装置を備えたマイクロプロセスラボラトリーを建設した。これらによってマイクロセンサー、マイクロアクチュエータの開発研究が学内に生まれ、根付いて行った。Fig. 4は理工学部杉山研究室で製作されたニッケルを素材とする静電マイクロモーターの写真である⁷⁾。21世紀に向けての新技术、新製品を模索していた企業がこの技術に着目し、大学と共同で種々の試作を開始した。キャンパス内で設計から製作にいたる工程が一貫してできることが学外の多くの人の関心を引き付ける原因となった。この経験から云えることは、施設において新しいビームラインを企画する場合、放射光実験に直接関係する設備・備品のみではなく、いわゆる周辺機器

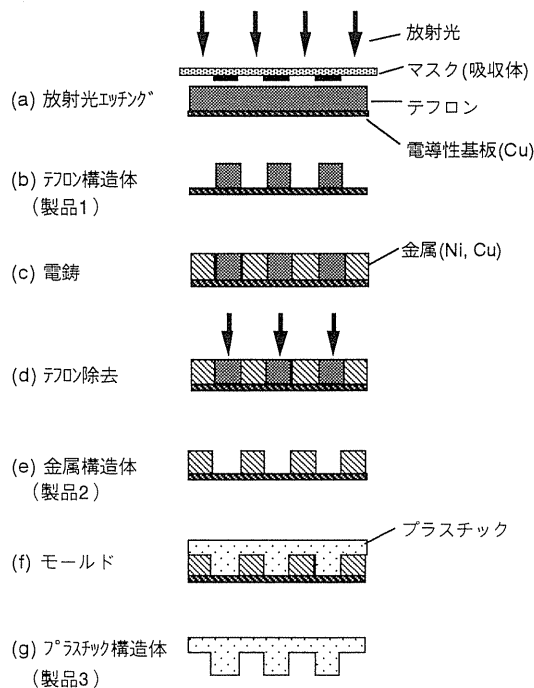


Figure 5. Illustration showing the process of TIEGA (Teflon Included Etching Galvanicforming)⁹⁾.

ならびに施設の設置もきわめて重要であるということである。

最近、住友重機械工業(株)の加藤氏らによって高分子のテフロンが放射光照射によって直接加工できることが見出された⁸⁾。ここで直接という意味は、リソグラフィにおいては光によって加工されるのは感光剤(例えばPMMA)であって、そこに形成された型を基にして半導体、金属の微細構造の製品が得られるのに対して、テフロンそのものにマスクの影を刻印して製品とすることができるということである。つまり通常の工程にはウエットな現像処理が含まれるのに対して、そのないドライな工程である。そこでテフロンをベースとして金属などの微細構造の物品を作ろうとするアイデアが加藤氏らによって生み出された。これはTIEGA (Teflon Included Etching Galvanicforming)と名付けられている⁹⁾。その工程を示したのがFig. 5であり、この方法で得られたニッケルの微細構造の写真をFig. 6に示す。アスペクト比は通常の感光剤をベースにした場合を上回っており、工程がより簡単ですむという優れた点を持っている。TIEGAはわが国から発信された先進技術として世界に広まって行くものと期待される。

3.3 新しい放射光回折法 (Wavelength Modulated Diffraction) の開発

放射光が白色スペクトルを持ち、高輝度であることから、結晶に含まれる原子の異常散乱現象を利用して複雑な結晶構造の解析を進めようとする研究が盛んに行われている。立命館大学の光源は電子ビームエネルギーは大きな

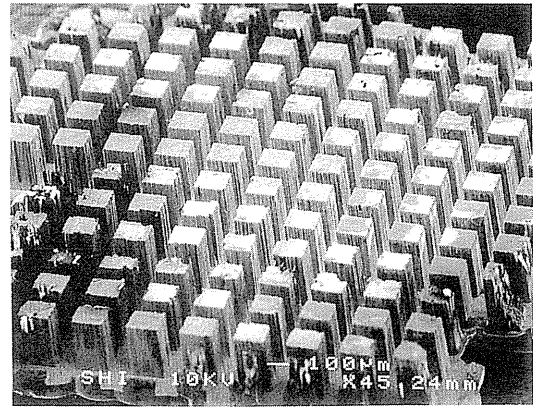


Figure 6. Photograph showing the nickel microstructure fabricated by TIEGA⁹⁾.

いけれども電子の軌道直径が小さいためにスペクトルにX線成分が含まれており、X線回折・散乱実験に十分利用できることが示されている¹⁰⁾。この特徴を生かし、異常散乱現象を用いる新しい回折法、Wavelength Modulated Diffraction法が開発され¹¹⁾、結晶構造因子の位相の決定に威力を発揮することになった。

この方法では結晶に入射する単色放射光の波長を原子の吸収端近傍で一定の範囲で振動させながらBragg反射を記録する。するとBragg反射は伸びた形になるが、原子散乱因子が波長とともに急激に変化しているため、反射強度のプロファイルに勾配が現われる。これに位相の情報が含まれているのである。すなわち、Bragg反射の強度(結晶構造因子の自乗)の吸収端近傍における波長に対する微分をとると、正常散乱する原子からの寄与の大部分が消え去って、異常散乱する原子からの寄与と原子散乱因子の波長微分の積を係数とする結晶構造因子の実部と虚部の1次式になる¹¹⁾。したがってBragg反射強度の波長勾配を二つの波長において測定すれば、連立1次方程式を解くことによって実部と虚部を求めることができ、結晶構造因子の位相がわかるのである。結晶に対称中心がある場合は事情は簡単になり、一つの波長勾配から直ちに結晶構造因子の位相、この場合は符号、が求められる。この方法では強度を絶対スケールで測る必要がなく、従来の異常散乱利用の構造解析法にはない利点となっている。Fig. 7はX線プリセッションカメラを用いて記録したフェロセン誘導体のWavelength Modulated Diffraction図形である。この結晶(対称中心あり)にはFe原子が含まれており、そのK吸収端近傍の波長の放射光が用いられている。Fig. 8は006反射の強度プロファイルであり、正の勾配を持っていて、これから結晶構造因子の符号が正という結果が導かれる。同様の測定が各Bragg反射について行われ、この実験とは独立に行われた通常の構造解析の結果から計算される符号と良い一致を示し、Wavelength Modulated Diffraction法の有用性が実証された。この方法は有機物

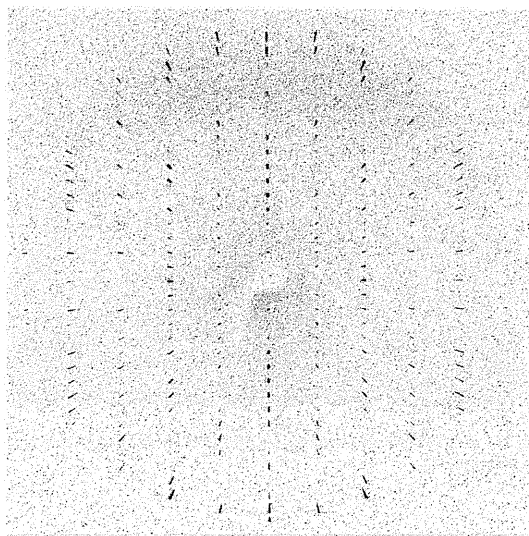


Figure 7. Wavelength-Modulated-Diffraction pattern of a ferrocene-derivative single crystal¹¹⁾. A band of wavelength in the vicinity of the K absorption edge of the iron atom is used.

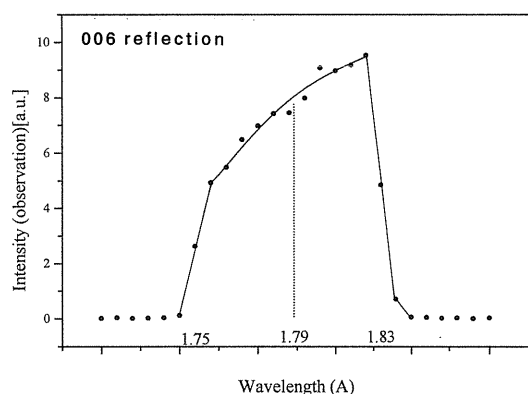


Figure 8. Intensity profile of the Bragg reflection 006 of the ferrocene-derivative single crystal, showing the presence of the intensity gradient including information on the phase of the crystal structure factor.

質、生体物質の結晶構造解析に大いに役立つことになるであろう。

ここに述べた研究は、大学の中に放射光源があり、新しい試みがすぐに実行できるような環境が整えられていたことによって成功したもので、大学が光源をもつことの重要性を認識させた。

4. 放射光利用における小型光源の意義

SPring-8 が活動を始め、わが国の放射光利用の新世紀が明けた感を受ける。この施設の利用方法には既存の共同利用施設での経験を踏まえて一層の合理化がなされており、毎期多数の利用申し込みがある。しかしながら世界最大の光源であるので、そこで行われる実験は光源に見合うような優れた内容のものであることが要求される。すなわち、利用にあたってはそれなりの心構えが必要である。と

ころで、放射光利用がここまで広がった今日、放射光利用実験のすべてがそのようなものではなくており、放射光の特性を生かした基礎から応用にいたる幅広い利用があることも事実である。それほど放射光は身近な存在になったのである。このような光の需要を SPring-8 などで満たすことはなく、利用者の近くで気軽に利用できる光源で満たせば十分である。各地方の主要大学、研究機関、企業にこのような光源が設置されることが望ましい。放射光源は高価なもの、運営に多額の費用がかかるものというイメージが定着しているけれども、小型光源ならこのような定説を破って普及型の光源となることができる。放射光源の設計・製作技術が進歩して、光源の仕様に必要以上の多様性を要求しなければ、価格が reasonable なレベルに近づいているし、運転、維持、管理を容易にするような設計は可能である。管理の面を取り上げてみても、ビームラインの数と種類が多く、ユーザーも多数いる共同利用光源に比べて、小型光源ではそれが単純で、もの事の決定に時間と人手を必要とせず、経済的であることは立命館大学で経験済みである。ビームラインの製作費用も小型光源の場合は放射線シールドが簡単ですみ、著しい高額とはならない。全国に設置される小型光源はすべて同型である必要はなく、設置する機関によって特徴あるものであってよい。ただし、一般の利用者にとってアクセスしやすい施設という条件がなければならない。

「放射光の使い分け」ということが云われて久しいが、それは光の波長範囲による使い分けだけでなく、研究の内容によって SPring-8 や PF と各地小型光源を使い分けるということをも意味するようにならねばならない。

Fig. 4 の写真を提供された立命館大学の杉山進教授、Fig. 6 の写真を提供された住友重機械工業株式会社の加藤隆典博士に謝意を表する。

参考文献

- 1) 中山康之, 岩崎 博, 山田広成: 放射光 8, 98 (1995).
- 2) H. Iwasaki: *Proc. 3rd Asian Forum Synchrotron Radiation*, ed. J. Mizuki, (1997) p. 113.
- 3) H. Iwasaki, Y. Nakayama, K. Ozutsumi, Y. Yamamoto, Y. Tokunaga, H. Saisho, T. Matsubara and S. Ikeda: *J. Synchrotron Rad.* 5, 1162 (1998).
- 4) *SR Center Activity Report*, Ritsumeikan University (1997).
- 5) T. Mitsuhashi: *Proc. Particle Accelerator Conf.* (1997), to be published.
- 6) 山本安一, 中山敏則, 三橋利行, 岩崎 博: 日本物理学会年会 (1998).
- 7) S. Sugiyama, Y. Zhang, H. Ueno, M. Hosaka and R. Kondo: *SR Center Activity Report*, Ritsumeikan University (1997) p. 59.
- 8) 加藤隆典, 張 延平: 電気学会論文誌 116-C, 1341 (1996).
- 9) 加藤隆典: 精密工学会誌 64, 1008 (1998).
- 10) H. Iwasaki, N. Kurosawa, S. Masui, S. Fujita, T. Yurugi, Y. Yoshimura and N. Nakamura: *J. Synchrotron Rad.* 5, 333 (1998).
- 11) H. Iwasaki, T. Yurugi and Y. Yoshimura: *Acta Cryst. A*, in press.