

中型高輝度放射光源に期待する これからの科学・技術

日本学術会議“マスタープラン2014”に重点大型研究計画として採択された「新しい時代の科学技術立国を支える放射光科学の高輝度光源計画」は、中型高輝度放射光源の建設を提案し、高輝度放射光の実現により創出・牽引される科学・技術を計画するものであり、日本学術会議公開シンポジウム（2014年10月31日）において、関連コミュニティ、研究者から、意見・助言を広く求め、計画実現に向けての建設的・集中的な議論を行い、計画の早急な具体化に向けた合意形成を得た。本特集は、公開シンポジウムでの講演およびパネル討論で取り上げた課題を中心に、中型高輝度放射光源のコンセプトおよび高輝度放射光に期待するこれからの科学・技術について俯瞰するために企画された。

放射光は、物質科学、生命科学、工学から文化財研究に至る広範な学術分野で研究のフロンティアを切り拓いてきたツールである。これまでの放射光先端計測により物質の構造やダイナミクスに関する学術研究領域が切り拓かれ、物質や生命に対する理解を深めると共に、応用面や産業界での利用も広がってきた。放射光利用によるサイエンスの進歩は光源技術の発展に支えられており、我が国は放射光科学の分野において主に硬X線領域で世界を先導する成果を数多く挙げてきた。しかし、ここにきてその位置が脅かされてきている。世界では、硬X線と相補的な利用が期待される軟X線領域での利用に威力を発揮する中型（3 GeVクラス）高輝度光源に注目と期待が集まっている。放射光の需要は、科学技術の研究開発における拡大の一途を辿り、その利活用性能が国際競争における優位性を左右する状況となっている。放射光をツールとした科学技術の研究開発が世界的に激化している状況で、軟X線領域を中心とする中型高輝度光源は強力かつ必須のツールであり、今、我が国の優れた解析技術を中型高輝度光源と組み合わせなければその優位性は失われていくことは明白である。軟X線領域の回折限界光源である中型高輝度放射光源の建設が喫緊の課題となっている。

本特集により、中型高輝度光源計画でどのようなサイエンスが展開できるか、国の競争力を支えるイノベーションにどう貢献できるか、最先端最重要科学技術の重要性と魅力を専門外の方々に理解いただければと願っている。また、我が国の科学技術政策策定への提言として結果的に機能することを願っている。

日本学術会議連携会員、第21期第三部部長
電気通信大学特任教授、東京大学名誉教授
岩澤康裕

日本学術会議連携会員
東京理科大学総合研究機構長、東京大学名誉教授
福山秀敏

日本学術会議連携会員、第22期化学委員会委員長
東北大学教授
栗原和枝

日本学術会議連携会員、東北大学教授
高田昌樹

中型高輝度放射光源建設の 意義と期待

岩澤康裕

中型高輝度放射光源の建設にはどのような意義があり、それにより学界および産業界が期待する科学のフロンティアが創出・牽引されるのであろうか、日本学術会議公開シンポジウム（2014年10月31日）における議論とその背景を踏まえて概述したい。

1. 背景と現状

放射光は、物質科学、生命科学、エネルギー・環境科学、工学から文化財研究に至る広範な学術分野で研究のフロンティアを切り拓いてきたツールである。また、半導体デバイス、ソフトマテリアル、蓄電池・燃料電池、グリーン材料開発、科学捜査など、産業界イノベーションや安全安心社会に貢献してきたツールでもある。1982年（黒田・岩澤らの我が国初の放射光XAFSによる触媒研究）以来、30年を超える共同利用実績のある高エネルギー加速器研究機構（KEK）・PFや、1997年に共用を開始したSPRING-8では、14,000人にのぼる産学官の利用者が研究を行っている。これまでの放射光先端計測により物質の構造やダイナミクスに関する学術研究領域が切り拓かれ、物質や生命に対する理解を深めると共に、応用面や産業界での利用も広がってきた。最近では、実在機能材料の空間分解ナノ計測（例えば、唯ら（名大）のトヨタ自動車触媒一粒内部あるいは燃料電池触媒層空間の状態分布・構造解析@SPRING-8など）の

フロンティア学術研究領域が開拓されつつある。放射光利用によるサイエンスの進歩は光源技術の発展に支えられており、特に日本で開発された真空封止アンジュレーター技術は、今や世界中の放射光源で利用され光源の飛躍的な進歩をもたらしてきた。このように我が国は、放射光科学の分野において、特に硬X線領域で世界を牽引してきた。

ところが、硬X線と相補的な利用が期待される軟X線領域での高輝度光源は、21世紀に入っただけにその必要性和具体的な光源計画が策定されたが、未だに我が国では実現には至っていない。一方、世界では、スイス、フランス、英国、オーストラリア、中国、スペインなどで軟X線領域での利用に威力を発揮する中型（3 GeVクラス）高輝度光源が建設され供用が始まっている。台湾、米国、スウェーデンでは、低エミッタンス化を目指した光源性能の高い中型放射光源の建設が開始されている。放射光の需要は、科学技術の研究開発における拡大の一途を辿り、その利活用性能が国際競争における優位性を左右する状況となっている。

日本放射光学会では、今後の放射光科学のロードマップとして軟X線領域の回折限界光源である中型高輝度放射光源の建設を喫緊の課題とし、中期的には硬X線領域の回折限界光源である大型高輝度放射光源の建設を見据えた計画を、日本学術会議化学委員会、物理学委員会の関係者の協力を得て、日本学術会議マスタープラン

2014に応募し、重点大型研究計画に採択された。
選考基準：①研究者コミュニティの合意、②計画の実施主体、③共同利用体制、④計画の妥当性、⑤緊急性、⑥戦略性、⑦社会や国民の理解。

しかし、文部科学省科学技術・学術審議会の学術研究の大型プロジェクトに関する作業部会で審議・策定されたロードマップ2014の速やかに実施すべき大型計画10件には選ばれていない。それは、上記①～⑦に対して、関係研究機関、コミュニティ、研究者などの連携協力・具体化目標／戦略・ひっ迫感・アピールなどが不足していたためと思われる。

2. 中型高輝度放射光源の 必要性と緊急性

軟X線領域での回折限界光を発生させる中型高輝度放射光源により、エネルギー分解能10 meV、空間分解能10 nm、時間分解能10 psでナノ領域の構造と電子構造を解析することが可能になり、超伝導体、半導体量子ドット、磁性ナノ構造、燃料電池用触媒ナノ粒子、新型蓄電デバイス、光合成反応錯体などの機能と直結する構造と電子構造を解明し、ナノデバイスの性能向上に大きな貢献が期待できる。また、生命科学の基本として、今後解析すべき複雑なタンパク質複合体の構造、さらに細胞や分子レベルのイメージングとそれらの機能の解明にも大きな貢献が期待できる。特に、X線と赤外線の間



PROFILE

岩澤康裕
(いわざわ やすひろ)
日本学会会議連携会員、第21期第三部長、電気通信大学特任教授、東京大学名誉教授
専門：触媒化学、表面科学、X線分光学

方の利用が可能であり、限界まで高めたコヒーレンス性に基づき高い空間分解能が実現されることなど、中型高輝度放射光源を利用することにより新たな科学のブレークスルーが期待される。すなわち、中型高輝度放射光源は、広範な研究分野において新しいナノ領域サイエンスの構築とナノ構造を制御したイノベーション創出を可能とする強力なツールとなる。

放射光をツールとした科学技術の研究開発が世界的に激化している状況で、軟X線領域を中心とする中型高輝度光源は強力かつ必須のツールであり、今、我が国の優れた解析技術を中型高輝度光源と組み合わせなければその優位性は失われていくことは明白である。従って、一刻も早く中型高輝度光源施設を建設し、ナノ領域の放射光解析技術を立ち上げ、フロンティア科学を推進して国際競争力を高める必要がある。目標と戦略を明確にしたAll Japanの体制・協力のもと、計画の具体化を確実に加速させることが望まれる。関係コミュニティ、研究者らだけでなく、広範な分野・視点において学術と社会を結ぶ最先端研究基盤としての中型高輝度放射光に対する産官学界の期待は大きい。

中型高輝度放射光源の コンセプト

濱 広幸

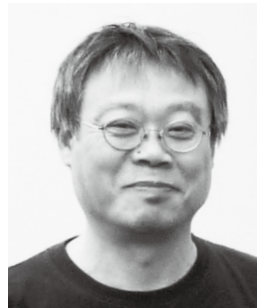
基礎や応用に関わらず産業利用も含めた科学技術分野における放射光利用は世界各国で増々盛んになっている。2000年以降、汎用性が高く軟X線領域で高輝度な3GeVクラスの中型放射光源施設を各国が競って建設してきた。本邦の放射光施設は数多いが、世界最高レベルの第三代放射光施設は1996年に稼働したSPring-8が唯一である。SPring-8はAPS（米）やESRF（欧）と並ぶ硬X線に最適化した放射光リングであり、軟X線ビームラインも整備されているが輝度は世界レベルから2桁低い。東北地区7国立大学が2011年に立ち上げた東北放射光施設計画は日本に欠如している軟X線領域高輝度光源を出来るだけ早期に実現することを目指す、国内唯一の中型放射光施設計画である。提案しているコンパクトな中型放射光リングは1～5 keV付近に世界の最先端光源に肩を並べる輝度を持ち、また、真空紫外から硬X線までの広い波長領域をカバーすることができる。東北放射光計画は関連研究機関や広い科学分野の放射光ユーザーおよび産業界が一体となって放射光科学研究の一層の前進とともに東北地域が持つ高い産業ポテンシャルを最大限引き出し、我が国のものづくりの国際優位性維持と次世代のイノベーションに貢献することを目指している。

単位立体角辺りの光束（光束密度）を光源の面積で割った単位投影面積あたりの光子数を光源の明るさ、即ち輝度（brilliance）と呼ぶ。輝

度が高いほど光束を損なわずに小さな面積に集光することができるため、例えばナノビームアプリケーションでは輝度が高いほど光子数が多くなり有利である。電子ビームサイズとその発散角は、電子が占める横方向位相空間の大きさを意味するビームエミッタンスと呼ぶリング固有の物理量が支配する。幾つかのビーム光学パラメータによって多少変化するが、基本的に放射光輝度は電子ビームエミッタンスの二乗に反比例する。第一世代と呼ばれる放射光実験が寄生していた頃の素粒子研究用シンクロトロンのエミッタンスは概ね500 nmradであったが、放射光専用の電子蓄積リングが建設されるようになってからは100 nmrad程度になった。初期の第三代リング（1990年代）は10 nmradまでにエミッタンスは小さくなり、高輝度光源施設として各国に建設された。その後、リングの低エミッタンス化によって増大するビーム不安定性を抑制するためにビーム運動の非線形性が詳細に研究された。その結果、2000年以降の高度第三代リングでは数nmradまでになり、放射光輝度は 10^{20} photons/s/mrad²/mm²/0.1%b.w. という、レントゲン写真撮影に使われるX線管の10兆倍という途方も無い明るさになった。現在、建設あるいは立ち上げ中のNSLS-II（米）、TPS（台湾）やMAX-IV（スウェーデン）といった最先端3GeVリングは、1 nmradあるいはそれ以下の低エミッタンスを目指しており、更に1桁高い放射光輝度が期待されている。電子蓄積

リングのビームエミッタンスは、理論的には一つの偏向磁石の偏向角の三乗に比例することから、数多くの偏向磁石でリングを構成することで低エミッタンス化が可能になるが、リングが巨大化することは必定である。TPSやMAX-IVの周長は約520 m、NSLS-IIは800 mもある。一つの鉄塊から複数の異なる磁石の磁極を削りだす独自の技術を導入したMAX-IVの偏向磁石数は120にもなり、エミッタンスは0.33 nmradという超低エミッタンスを目指している。

後発の東北放射光計画は3 GeVリングとして世界最高レベルの光源性能を目指すべきではあるが、早期実現には冒険的な開発要素が多いリングや巨大な超低エミッタンスリングはハードルが高い。最近では回折限界リングという呼称で超低エミッタンスを追求する設計コンセプトが話題であるが、現実的にはすでに垂直方向のエミッタンスはkeV領域の回折限界にかなり近づいているので、軟X線領域に限って言えば、放射光輝度がエミッタンスの二乗に反比例しない域に達している。従って、リングを巨大化して低エミッタンス設計を指向しても、建設経費や運転経費から見た利得は少ない。東北放射光計画における3 GeV光源リングの設計では水平エミッタンス1 nmrad程度を目標とし、周長を300 m程度に抑えてコンパクト化によるコストダウンと約3年という短い建設期間を掲げてきた。現在案の蓄積リングは、周長340 mでセル数が14、エミッタンスは1.1 nmradである。2



PROFILE

濱 広幸
(はま ひろゆき)
東北大学電子光物理学研究センター教授、
東北7国立大学東北放射光施設計画
推進会議推進室長
専門：ビーム物理、自由電子レーザー
物理

カ所の長直線部にはビーム入射部と高周波加速空洞を置くので、4 m程度の長いアンジュレータを挿入できる直線部は12カ所である。また、すべてのセルの中央には1 m程度の挿入光源を置くことができる。1～5 keV付近の輝度は 10^{21} に届き、現在建設されている最先端3 GeV光源と比べて遜色はない。Spring-8がカバーしきれない数十eVから10 keVのエネルギー領域の高輝度放射光をアンジュレータで供給し、多極ウイグラーによる連続光で60 keV程度までカバーできる。

3 GeV中型高輝度放射光施設の実現には、東北のみならず全ての放射光研究者が一体となった全国的な支援が必須であると考えている。とりわけ、放射光の産業利用は世界的にも重要視されるようになった今日、産業界や自治体等とともに強い協力関係を築く必要がある。東北放射光施設の実現によって失われつつある国際競争力も回復されることを期待している。

ソフト・ナノ界面科学と 中型高輝度放射光

君塚信夫

1. はじめに

軟X線領域の高輝度放射光は、表面・界面科学、固体物理、ナノ科学（量子デバイス、触媒ナノ粒子など）、生命科学（生体膜、タンパク質やその組織体）、分子組織化学から高分子科学にわたる広範なサイエンスとその学際領域に革新をもたらすとともに、その応用は新たな産業利用に結びつくものと期待される。本稿では、現在、我が国で需要が高まっている軟X線領域

の高輝度放射光が、水の関わるソフトマテリアル・ナノ界面科学分野にもたらす可能性と期待について述べたい。

2. 軟X線の特徴と研究分野

硬X線は波長0.2 nm以下の短波長（高エネルギー）の光であり、原子レベルのイメージングや結晶構造解析など微視的構造解析に利用されている（表1）^[1]。一方、波長0.2 nm～10

nmの軟X線は軽元素の電子束縛エネルギー領域と重複することから、分光測定（光電子分光、吸収分光（XANES）、発光分光）により元素特有の電子状態に関する情報が得られることが特色である（図1）^[2]。ここで、軟X線の光子エネルギーは約100 eV～4 keVと低く、透過能が小さいため薄い空気層によっても容易に吸収される（例えば、1 keV以下の軟X線は薄い空気層（1 cmの空気）でさえほとんど通過しない）。固体中において、電子の非弾性散乱平均自由行程は電子の運動エネルギーが小さくなると短くなるため、1 keV以下のエネルギーの電子は数nm程度しか進めない。このため、軟X線領域の放射光を利用する光電子分光は表面から数nmの深さ領域における微細な電子状態に関する情報を得るため

表1 エネルギー領域毎の主要な研究分野^[1]

(光子エネルギー)	10 eV	100eV	1keV	10keV	100keV
	真空紫外線		軟X線	硬X線	
回折・散乱			・共鳴散乱	・構造解析 ・散漫散乱 ・小角散乱 ・応力計測	
イメージング			・軟X線顕微鏡 ・軟X線CT	・ラジオグラフ ・トポグラフ ・X線顕微鏡 ・X線CT	
分光	・吸収分光 ・発光分光 ・光電子分光		・吸収分光 ・発光分光 ・光電子分光	・EXAFS ・X線蛍光分析 ・光電子分光	
非弾性散乱			・共鳴非弾性	・Compton ・非弾性散乱 ・共鳴非弾性	

科学技術・学術政策局 次世代放射光施設検討WG資料（H26.6.10）より抜粋

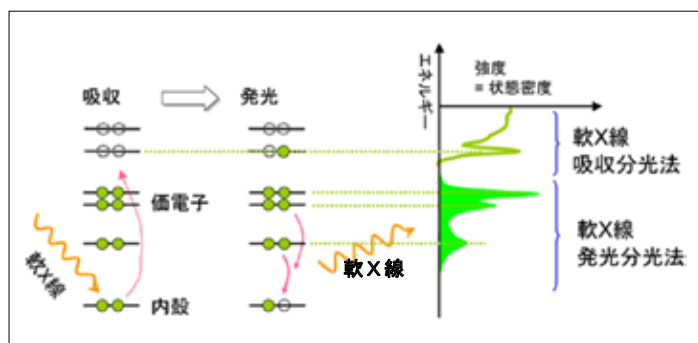


図1 軟X線吸収ならびに発光分光の原理^[2]

に用いられる。

3. 軟X線発光分光による水の構造評価

地球上でもっとも普遍的であり、かつ、生命の維持に必須な液体である水は、その小さな分子量にも関わらず異常な物性（融点0℃、沸点100℃）を示す。これが水素結合によるものであることは知られているが、純水の密度が4℃で最大になる理由も含め、そのイメージは均一な描像で捉えられてきた。近年、(独) 理化学研究所の徳島、辛らは、SPring-8 (BL17SU) の高輝度軟X線を用いて水の構造解析を行った。先に述べたように、軟X線は物質中での透過性が低いため、液体の軟X線発光実験は装置の開発を含めて多くのハードルがある。ここでは、軟X線の透過度が高く強度もある厚さ150 nmの金蒸着Si₃N₄薄膜を窓材に用いた特殊な液体フローセルが新しく開発されている。軟X線発光分光装置軟X線を水分子に照射すると、酸素原子の1s軌道の電子が弾き出される。これによって電子が空位になった正電荷部分（正孔）へ、外側の軌道にある電子1個が数フェムト秒（10⁻¹⁵秒）という短い時間で移動し、その際に、外側軌道の電子と内側軌道の電子の保有エ



PROFILE

君塚信夫
(きみづか のぶお)
日本学術会議連携会員、九州大学工学研究院応用化学部門・分子システム科学センター (CMS) 主幹教授
専門：分子組織化学

ネルギーの差に相当するエネルギーが軟X線となって放出される（図1）^[2]。この軟X線のエネルギー分布の違いを調べることによって、水分子の状態が調べられた結果、水素結合に関係している孤立電子対のピークが二つに分かれて観測された（図2左）^[3,4]。X線小角散乱分析法やX線ラマン散乱法による構造解析結果とあわせて、水には比較的大きな密度の不均一性（濃淡）があり、平均サイズ約1 nmの「水によく似た秩序構造（低密度）」が「水素結合のゆがんだ水分子（高密度）」の中に「水玉模様」のように散在した微細構造をとることが明らかにされた（図2右）^[3,4]。これは、水が従来考え

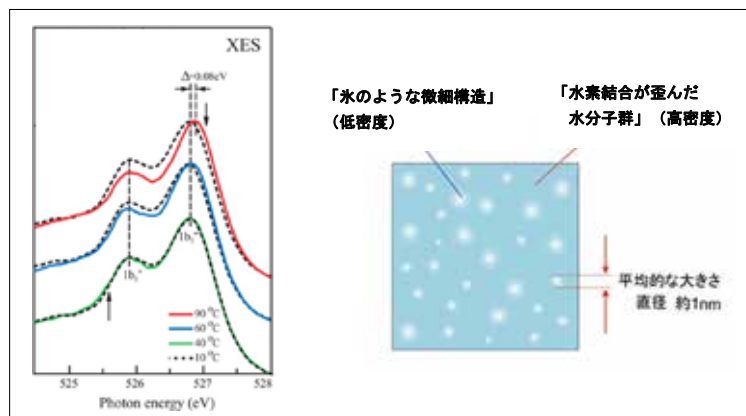


図2 純水の軟X線発光スペクトル(左)ならびに水の瞬間的な構造の想像図(右)^[3,4]

られていた均一な構造ではないことを示した画期的成果であり、溶液を研究対象とでき、また、水素結合の組み替え（1～2ピコ秒）よりも早いフェムト秒以下の情報が得られる軟X線発光分析の特徴が遺憾なく発揮されている。

4. ナノレベル界面と水

一般に、固一液あるいは気一液界面におけるナノメートルスケールの厚みにおける水の構造や物性は、界面の性質の影響を大きく受ける^[5]。ナノレベル界面における水の構造・物性研究は、界面の種類や測定手法（観測するタイムスケール）、実験装置に依存するが、細胞内における生命化学現象やホスト・ゲスト化学における分子包接現象、生体膜、ミセルのような分子組織体の自己組織化現象から逆浸透膜による水分離

の例をあげるまでもなく、サイエンスのフロンティアは様々なスケールの界面に充ち満ちている（図3）。

ナノレベルでみた界面（ナノ界面）の構造は、水、有機分子（集合体）、高分子などの各構成因子ともバルク（あるいは単独）状態のそれとは異なり、疎水性水和、疎水性相互作用は溶質分子を取り囲む水分子の構造がバルクの水と異なることに由来し、これはホスト・ゲスト化学における分子の包接現象の駆動力を与える。タンパク質のフォールディングにおいては、水分子との界面形成が一次構造から二次、三次構造（ひいては四次構造）の形成を導く。細胞膜の特異な機能を担う生体膜と膜蛋白質の自己組織化構造も生体膜—水ナノ界面により規定されている。また、細胞内の環境は、様々な生体分子・生体高分子が大量に存在しているため、希薄水

溶液に比べて分子の拡散速度が著しく異なるにも関わらず、細胞内シグナルネットワークや遺伝子発現など、細胞の重要な機能が極めて効率よく進んでいる。これら様々なナノ界面の関わる現象を、界面水の構造・ダイナミズム、ならびに分子の自己組織化・システム化によるナノ界面構造の形成・機能と結びつけて理解することは、本質的な課題である。ナノレベル界面の構造と機能を理解することの重要性と意義は生命科学に

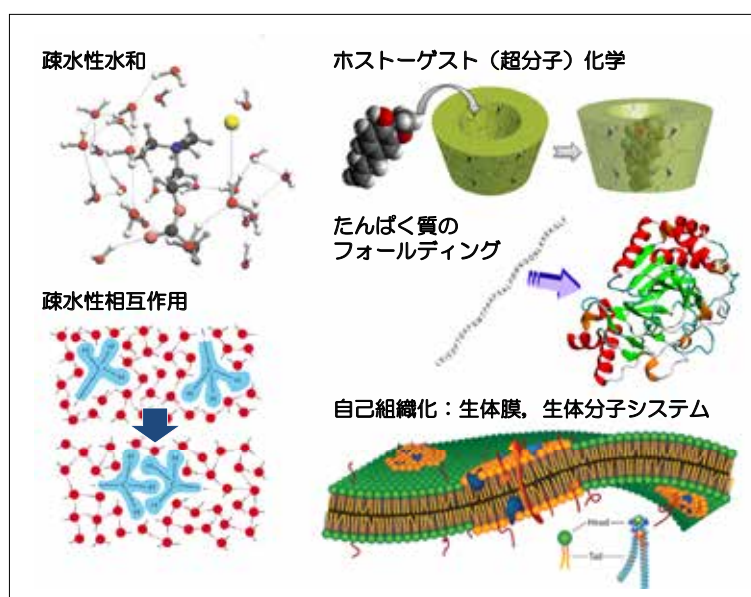


図3 水をつくるナノ界面と分子組織化現象

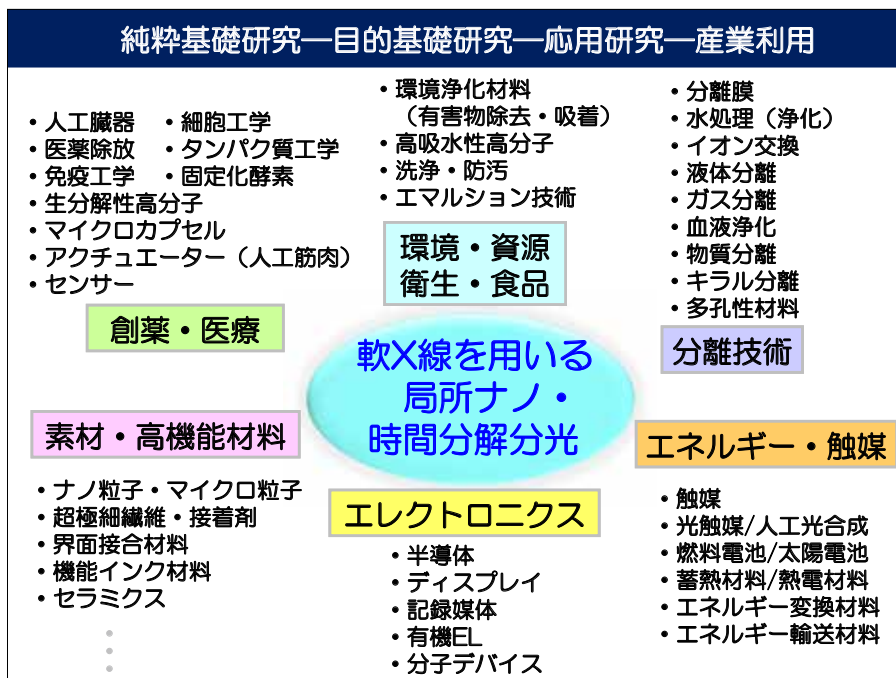


図4 軟X線の局所ナノ・時間分解分光と関わる様々な研究分野の例

とどまらない。例えば、イオン液体—水ナノ界面、逆浸透膜や医用高分子における高分子—水ナノ界面など、産業科学的に重要な多くの基盤技術に繋がるものと期待される（図4）。

はじっくり取り組むことのできる軟X線ビームラインの資源と環境が必要であり、学際的な利用が可能な中型高輝度放射光源施設が望まれる所以である。

5. おわりに

放射光ならではの軟X線分光技術を駆使してこれらの学際的な研究を展開することは、我が国における物質機能、生命科学の新しい基盤を与えると期待される。高真空系を必須とするがゆえに難しい実験系を、ナノレベル界面の研究に応用し、時間分解分光や局所イメージングも含めた新しい方法論を開拓することは多くのチャレンジを必要とするであろう。このために

文献

- [1] 科学技術・学術政策局研究開発基盤課 次世代放射光施設検討ワーキンググループ資料（H26.6.10）
http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chousa/gijyutu/022/shiryo/_icsFiles/afiedfile/2014/07/01/1348612_01.pdf
- [2] 独立行政法人理化学研究所、財団法人高輝度光科学研究センター 報道発表資料
<http://www.riken.jp/pr/press/2009/20091001/>
- [3] 独立行政法人理化学研究所、財団法人高輝度光科学研究センター 報道発表資料
<http://www.riken.jp/pr/press/2009/20090811/>
- [4] C. Huang et.al. *PNAS*, **2009**, 106, 15214-15218.
- [5] 例えば K. Kurihara et.al, *J. Phys. Chem. C.*, **2013**, 117, 20738-20744., *Langmuir*, **2012**, 28, 14284-14290.

放射光の利用がIGZO-TFTの開発に果たした役割

細野秀雄

課題の背景

薄膜トランジスタ (Thin Film Transistor, TFT) は、3極の真空管に相当する電子デバイスである。すなわち、図1のようにソース (S)、ドレイン (D) とゲート (G) から構成され、半導体薄膜の上に形成した二つの電極SとDの間に流れる電流を、その間に堆積した絶縁体薄膜上に形成したゲート電極に電圧を印加して、大きく変調する素子で、電子回路でスイッチ機能を担う。フェルミレベルをゲート電圧によって、バンド端の方に移動させることでS-D間に流れる電流を制御するのである。ブラウン管のテレビには多くの真空管が使われていたが、液晶テレビや有機ELディスプレイのような現

在のフラットパネルディスプレイは、膨大な数のTFTで駆動されている。画面を構成する各ピクセルには最低でも二つのTFTが使われており、その特性がディスプレイの性能のかなりの部分を規定している。

TFT用の半導体薄膜としては、水素化アモルファスシリコン (a-Si:H) がもっぱら使われてきたが、2000年ごろから、より高精細で有機ELも駆動できる、より高い移動度でしかも低温で作製可能なTFT用の新しい半導体材料の研究が立ち上がった。有機半導体や酸化物半導体がそれである。TFT用の酸化物半導体としては、古くから研究されているZnOやSnO₂が主であったが、結晶粒界の影響で電流がゲート電圧の履歴を強く受けてしまうなどTFTとしては大きな課題があった。筆者らのグループは、電子移動度の大きな透明なアモルファス酸化物の半導体 (Transparent Amorphous Oxide Semiconductors, TAOS) の物質設計を行い、1996年にその実例とともに発表していた。それは、空間的に広がりが大きく、かつ、等方性のs軌道で繋がった伝導帯の底 (CBM) を有するアモルファス酸化物が適しているというものである。このような物質系ではアモルファスに固有の結合角の分布があっても、上述のs軌道の繋がりはあまり影響を受けないはずだという単純な発想から生まれた。この設計指針を満足する物質の一つとしてInGaZnOx (以下IGZO) がある。この物質は、キャリア濃度が

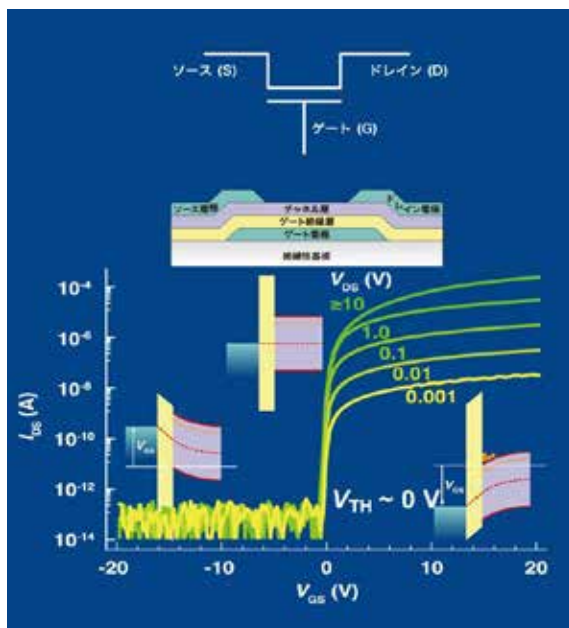


図1 TFTの構成図とa-IGZO-TFTの特性

容易に低減でき、しかも TFTとして最もキーとなるフェルミレベルの付近と CBMの間に、電子のトラップとなる欠陥などの乱れた状態の密度が小さい。さらに応用上では極めて重要となる大型のスパッタリング用のターゲットとなる緻密で単相の焼結体が容易に合成できる。

アモルファスの IGZO の TFT は、汎用のスパッタリング法で容易に作製でき、その TFT 移動度は $\sim 10 \text{ cm}^2 / (\text{Vs})$ が得られる。この値は、a-Si:H の TFT のそれよりも一桁大きく、狙い通りの性能であった。この成果を報告した 2004 年以降、世界中で IGZO-TFT の研究が一挙に立ち上った。特に韓国のディスプレイ企業は、実装を想定し、いろいろな条件でその性能を安定性の観点からを詳細に検討し、学会で積極的に発表してきた。そこで大きな課題となったのが、ゲートにマイナスの電圧をかけて、同時に光照射を行うと、TFT の閾値がかなりマイナス側にシフトするという現象 (Negative Bias Illumination Shift, NBIS) で、2009 年ごろに論文が発表された。液晶ディスプレイの動作中は、99.9% の時間はこの状態で、残りの 0.1% 程度の時間が TFT のゲートに正の電圧がかかって画面が変わるのである。よって、NBIS の原因の解明とその抑制は IGZO-TFT のディスプレイ応用のために是が非でも乗り越える必要のある課題となった。



PROFILE

細野秀雄
(ほその ひでお)
日本学術会議第三部会員・材料工学
委員会、東京工業大学応用セラミック
研究所教授
専門：材料科学

高エネルギー X線源の 光電子分光の結果

NBIS による閾値のシフトは $\sim 460 \text{ nm}$ (2.7 eV) よりも短波長の光で生じることが分かった。IGZO のバンドギャップは 3.2 eV ($\sim 395 \text{ nm}$) なので、物質に本質的な原因ではなく、プロセスに依存する構造の不完全性に起因すると考えられる。実際、光学吸収スペクトルをよく眺めると、2.7 eV 付近から弱い吸収が立ち上がるということが確認される。しかし、これだけではエネルギー図が描けないので困っていた。その時、偶然にも SPring-8 におられた小林啓介さんから、高エネルギーの X 線を光源とする光電子分光 (XPS) を測ってみたいかと誘いを受けた。薄膜試料ではバルクと異なり、清浄表面を出すのにヤスリ掛けなどの汎用の方法が使えず、ラボにある光電子分光の装置で測定した結果を有していたが、とても外部発表する勇気は持ち合わせていなかった。高エネルギーの XPS は表面から数 nm の領域をプローブし、かつ、s 軌道のイオン化断面積が他の軌道に比べて増大するという特徴がある。実際に測定した結果を図 2 に示す。

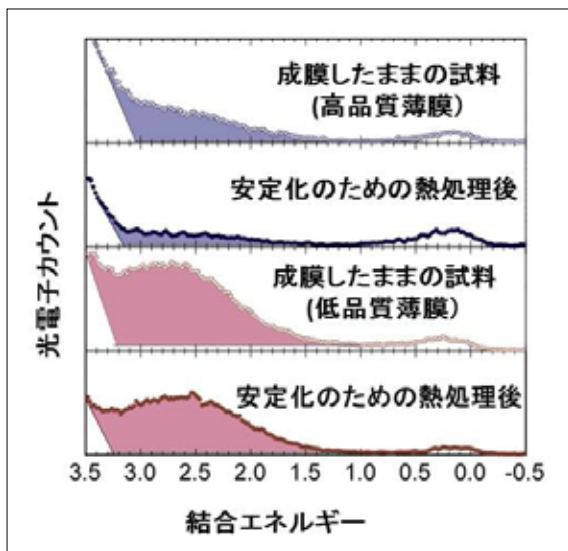


図2 8 keVの放射光X線を光源とするa-IGZO薄膜の光電子分光の測定結果。価電子帯(左端)の直上に大きな状態密度がみられる。

驚いたことに価電子帯の頂上から0.8 eV程度の位置にピークをもつブロードな状態密度が明瞭に観察された。その濃度を見積もると試料の作製条件に依存するが 10^{20}cm^{-3} 以上にもなった。測定に用いた試料はチャージアップを避けるために縮退状態になっているものを意図的に作製したものであるが、TFTとして動作する程度のキャリア濃度の試料でも 10^{19}cm^{-3} レベルの状態密度が観察された。このピークからCBMへの遷移が2.7 eV程度から生じるので、NBISの生じる光の閾値と合致する。

このピークはTFTの安定性を改善するための熱処理を施すと半減するが、未だはっきり観測される。TFT用の薄膜ではフェルミレベル(E_F)は、VBMから ~ 2.7 eV上に存在する。よって、この状態密度の存在は、ゲート電圧を

正にして E_F をCBMの上までシフトさせ、TFTをオン状態にする際には障害ならない。しかし、 ~ 2.7 eVよりも大きなエネルギーの光を照射すると、CBに励起された電子は移動度が大きいので直ぐに拡散してしまうが、残った正孔は負のゲート電圧によってドリフトし、半導体/ゲート絶縁体の界面に蓄積される。これによってTFTの閾値が負電圧側にシフトすると説明される(図3)。光励起がなければこの過程は生じないことも合致する。また、シリコンのTFTでは、ゲート電圧の正負で、電子と正孔が支配的なキャリアとなる反転が生じるが、酸化物TFTではゲートに正の電圧をかけた時のみS-D間に大きな電流が流れ、負側では流れないという現象も、このVBM直上に存在する大きな状態密度のためであることが理解でき

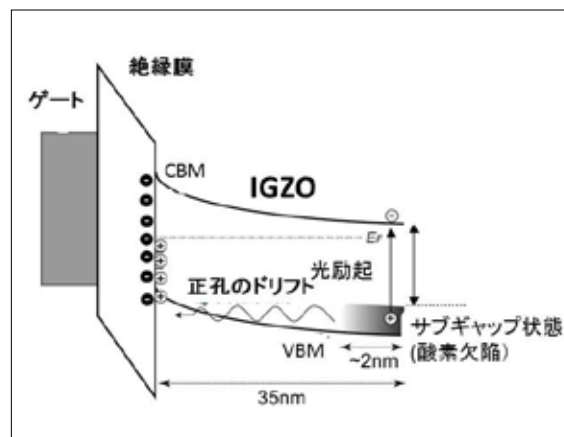


図3 a-IGZO-TFTの負バイアス下でサブバンドギャップ光を照射したときに生じる変化。表面から2 nm程度の領域に存在する酸素欠陥が光で励起され、生じた正孔がゲート絶縁体/半導体の界面まで負電圧によってドリフトし、そこで蓄積される。これによってTFTの閾値がマイナス側にシフトする。

る。この酸化物TFTでは電子がキャリアとなるゲート電圧でしかTFTがオンしないという特徴は、負のゲート電圧時（大部分の時間はこの状態）には電流が流れないということであり、これがシリコン系のTFTと比べるとかなりの省電力化が図れる理由である。

一つの解決法

それでは検出されたVBM直上のピークの起源は何であろうか？ 試料はスパッタ法で気相から堆積されるので、酸素欠損が生成するはずである。また、このピークは成膜時の酸素分圧を下げると強度が増大し、結晶薄膜でも明瞭に存在する。また、高エネルギーのX線を光源とすると明瞭に観察されることから、酸素欠損に捕獲された高いs軌道性をもつ電子がその主な起源と考えられる。

次は、いかにしてこのピークを低減するかである。そこで、ビームの薄膜への入射の角度を変えて、欠陥の深さ方向の分布を測定してみた。その結果、表面から2～3 nmの領域に集中していることが分かった。実装のTFTは雰囲気の影響を遮断するため素子を安定な絶縁体で覆ってしまう。その操作をパッシベーションと呼んでいるが、その際に原子価の安定な酸化物をスパッタ法で製膜する際に、少し酸素過剰の条件で行えば、表面層の酸素欠陥は活性な酸素によって埋められてしまうのではないかと考えた。そこで Y_2O_3 でパッシベーションを

行ったところ、素子の閾値シフトの生じるエネルギーは2.3 eVから3.0 eVまで大幅に改善された。もちろん、 Al_2O_3 でも同様なことが期待できることはこれまでの議論から明らかであろう。

終わりに

ここで紹介したNBISの起源の解明と抑制法は、“高エネルギー X線を光源とする光電子分光の測定ができたからこそ”の成果といえる。当初は基礎的知見を得るのが目的であったが、ちょうど実用化を睨んだ展開の際の最大の障害としてクローズアップされたNBISの解明にキーとなる役目を果たしたようだ。実際の生産プロセスでは、いろいろな処理が施されるので、ここで示した抑制法だけで解決できるかどうかは、筆者には残念ながらわからないものの、考える道筋は確りと示せたはずである。本稿で紹介した内容は、野村研二（現Qualcomm）、神谷利夫（東工大）両氏との共同研究で得られたものである。また、測定の機会を提供いただいた小林啓介氏（JASRI前グループリーダー）に感謝する。

ナノデバイスの科学技術から放射光に期待すること

大野英男

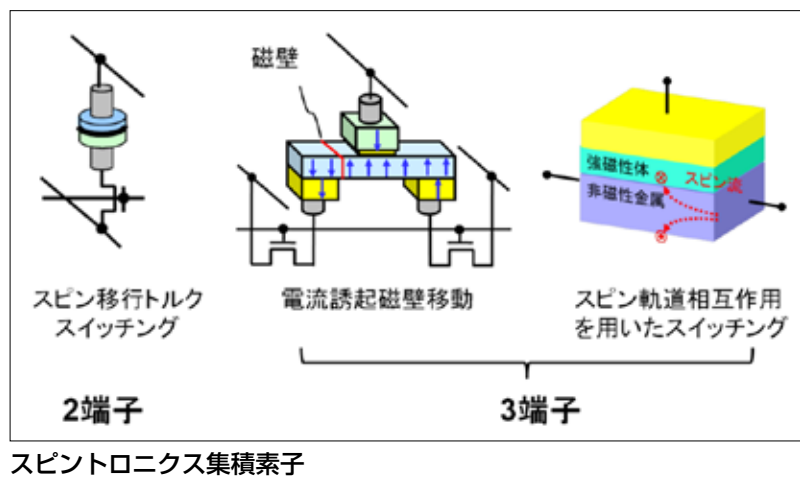
ナノデバイスの科学と技術を一層発展させるためには、微細素子中の界面における化学結合の分布や、動作下の化学結合や磁化分布のダイナミクスなど、これまでの手法ではアクセスできなかった情報が必要となる。次世代の抵抗変化型メモリでは微細領域における化学反応が素子の抵抗や速度、書き換え回数を決定するので、積層スタック界面の実時間解析が求められる。開発が進められている電圧制御型の相変化メモリにおいても、微細領域の分析が欠かせない。先端CMOSにおける埋もれたヘテロ接合界面の理解も求められている。これらの情報は放射光でなければアクセスできないといっても過言ではなく、放射光の進展がナノデバイスの科学と技術にもたらすインパクトは計り知れない。

以下では、スピントロニクス集積素子を研究開発する立場から、その背景を解説して、スピントロニクスの科学と技術に放射光、特に、3d遷移金属に適した中型高輝度放射光源が必要であることを述べたい。

現在、最も活発に研究開発が活発に進められているスピントロニクス集積素子は、磁気トンネル接合と呼ばれる二枚の磁石（金属磁性体）で薄い絶縁膜を挟んだ構成の2端子素子である（図左）。トンネル効果により薄い絶縁膜を通して電流が流れるが、二枚

の磁石の磁化が平行か反平行かで素子の抵抗が異なる。熱擾乱が無視できれば磁化の方向は維持されるため、本素子は抵抗の高低を1、0にマップした不揮発性のメモリ素子として動作する。読み出しは素子抵抗を測定する。書き込みは金属磁性体からスピン偏極電流を流し、磁化スイッチングを起こす。電流の方向によって磁化配置が平行あるいは反平行になる。

本素子は、微細化が可能であり、スイッチング時間もナノ秒オーダーと不揮発性メモリ素子としては高速である。また、書き換え回数が事実上無限回と予想されており、現在使われている揮発性のDRAM（dynamic random access memory）やSRAM（static random access memory）（これらのメモリは書き換え回数が事実上無限回である）を代替可能な唯一の不揮発メモリ素子である。Internet of Things（IoT）時代の集積回路には大幅な消費電力の低減が求められることから、情報の維持に電力を要しな



い高速、かつ、書き換え回数に制限のない不揮発性メモリが強く求められている。スピントロニクス集積素子が活発に研究開発されているのはこのためである。

最近の研究では、素子寸法が既に10 nmレベルに達している (H. Sato, et al. Applied Physics Letters, **105**, 062403 (2014))。スピン偏極電流によるスイッチング速度もナノ秒を切っている。しかし、本素子における磁化スイッチング過程の直接観測はできていない。このため電気的な信号と、磁化のダイナミクスを記述するランダウ・リフシッツ・ギルバート (LLG) 方程式を数値的に解いた結果をつきあわせて、磁化の時間的空間的变化を推定する。スピントロニクス素子の場合、形状と磁化分布が静磁氣的エネルギーを決めるので、半導体素子に比べて形状が重要となるが、電極や絶縁膜で保護されているナノメートル素子の形状を測定するのは容易でない。また、素子中で磁気異方性が一様であるという保障もない。加えて磁化分布に対応して素子内に抵抗分布が生じ、電流が不均一に流れ発生するエルステッド磁界も不均一になるなど、仮に形状などが分かっていたとしてもLLG方程式を無撞着に解くことは容易ではない。ナノメートル級の素子動作の理解が隔靴搔痒の状態であることがおわかりいただけよう。

より高速動作にむけては3端子素子が研究されている。これには、スピン偏極電流により磁壁を駆動するもの (図中央) や、スピン軌道相



PROFILE

大野英男
(おおの ひでお)
日本学術会議第三部会員、東北大学
電気通信研究所教授
専門：電子工学、スピントロニクス

相互作用により非磁性金属中に生成されるスピン流を用いるもの (図右) など、いくつかのバリエーションがある。しかし、スイッチング機構から予測される高速スイッチング特性と実験結果が必ずしも一致しておらず、基礎的な理解が不足しているのが現状である。また、電界による界面磁気異方性の変調を用いた磁化スイッチングにも不明な点が多い。

これらナノデバイスの理解には放射光、特に、中型高輝度放射光源が威力を発揮する。標準的な磁性元素である3d遷移金属のL殻に光子数のピークを有し、多くの技術開発が必要であるとはいえ、1 nm集光と1 psの時間分解能が期待できる放射光により、これまでアクセスできなかったナノデバイスにおける磁化の時空間分布を観測することができる。さらに、磁気円二色性を用いた測定により、元素別に時空間分解でダイナミクスをアクセスすることもできる。

以上、スピントロニクス集積素子の例を挙げたが、ナノデバイスの科学と技術を飛躍させるには、放射光による1 nm、1 psの時空間イメージング技術が必要不可欠である。その実現に大きな期待を寄せている。

産業開発のツールとしての放射光

— 大阪大学大型教育研究プロジェクト支援室

高尾正敏

放射光が産業界の研究開発に利用され始めたのは、KEK/PFでいくつかの先進的な企業が専用実験装置を設置したことに始まる。それ以前でも、大学研究室への依頼や共同研究などでの取組はなされていた。専用装置で測定されたのは、主に当時の時勢を反映して半導体や、そのデバイスの物性を計測するのが大半であった、その他、タンパクの構造を決定することも徐々に始まった。ここで、放射光の産業利用に焦点を当てるが、ストックスの基礎研究と応用実用研究のフェーズについて、ボーア的、パスツールの、エジソンのという区分、いわゆる4象限モデル参考にする¹⁾。表1で産業利用における放射光利用の位置づけについて示した。表中、アカデミアも企業インダストリーも基礎・基盤研究では研究のオリジナリティを究めることが中心であり、それぞれの立場で多少の差はある

ものの、個人研究が中心である(表中①)。最近では、イノベーションへ向けた国家的課題解決のために、アカデミアでも物質・材料科学分野でも開発要素が加わって、研究者コミュニティ全体へ活動が要請されるケースが増えている(表中②)。真に、放射光が産業分野で活用されている状態とは、企業の研究部門だけでなく、表中③に示す、より事業に近い開発設計部門、生産現場の技術者が再現性・信頼性確保で日常的に使用していることである。

産業利用の測定対象は、上記の半導体やタンパク質から、(1) 自動車の排ガス処理用、燃料電池用、合成化学用などの種々の触媒、(2) 二次電池、太陽光発電デバイス、永久磁石、高強度・高延性の構造材、タイヤなどのマイクロとマクロの両方のスケールが重要な材料、(3) 農産物・食品等安全安心が求められるものなど、ここ20

年ほどで一気に多様化してきた。また、時間応答、ナノスケールのイメージング、元素マッピング、動作時(オペランド)測定など、アカデミアでの最先端の計測技術が、即産業界の利用に展開されつつある。まさに放射光を用いた最先端計測が、アカデミアと産業をつなぐツールになっている。一方、いろいろなことができるようになった分、産

表1 産業界における放射光利用の位置づけ

	基礎・基盤	開発	
	人に研究テーマがつく 多様性の確保	研究テーマに人がつく 選択と集中	② 最近始まった
アカデミア 大学	オリジナリティ サイエンスを見せる	研究者コミュニティとして 実現性を見きわめる	
コラボ (相互利用)	サイエンスとエンジニアリングをつなぐ		
企業 インダストリー	オリジナリティ 本物かどうかの見きわめ 企業の利用は殆どここ	再現性・信頼性 コストパフォーマンス 産業利用はここが本命	日常活動が イノベーションへ 繋ぐ
①、② 従来のマネー ジメント	① 現在はほとんど ここに溜まっている マネアック?		③ ここにならない と本当の産業 活用にならない
③産業応用に適したファシリティマネジメント			

業界でも付いていける企業とそうでない企業の格差が広がる可能性が大きくなっている。

放射光利用は、現在は個々の産業分野の国際競争力獲得のベースになるものであり、将来はその役割は更に高まると予想される。産業利用の観点から継続的な成果を出すために、ファシリティマネジメントとして、様々な仕掛けが用意されている必要がある。それらを順不同で列挙すると、機密保持（実験手段、実験用試料、専用試料調製室・・・）、ビームタイム（24時間365日測定可能）、ユーザービリティ（測定自動化、メールインサービス、リモート解析・・・）、ユーザーインターフェースの標準化（施設間の差を、GUIなどで吸収する、国際化への対応）、要素技術、BL毎に訓練シミュレーター設置（大学院生、企業ユーザーの実習時間確保）、企業内利用者プロの養成とオペレーター確保、BLスペシャリストのライセンス化、公開された測定値データベースの共用化と利用技術開発（インフォマティクス）、放射光利用手段の多様化対応、共用施設間の自然な連携の恩恵、等々である。

別の視点では、「地の利」がある。例えば、播磨のSPring-8での利用者数は、全国の利用者への供用が目的とはいえ、大阪大学と京都大学が群を抜いている。大阪大学では、専用BLを運用するほか、播磨研究拠点を開設して全学での活用を進めて



PROFILE

高尾正敏
 (たかお まさとし)
 大阪大学未来戦略機構次世代研究型
 総合大学研究室・特任教授
 専門：固体物理

いる。さらに、大学院での教育連携も推進している。地の利は、つくばのPF、中部のUVSORなどでも同様である。各地に立地している小型施設も地の利を生かしている。今後、放射光の利用者数が増大すること、さらに、産業界のJUST in TIMEの観点で、地の利は最重要な視点である。まとめとして、放射光の産業界現場での利活用を進めるためには、様々な促進策のほか、地の利も重要な視点である。

注

- 1) "Pasteur's Quadrant: Basic Science and Technological Innovation," Donald E. Stokes, Brookings Institution Press, 1997. p.97.

参考 ストークスによる研究開発の4象限分類¹⁾

		Considerations of use? 用途考慮?	
		No	Yes
Quest for fundamental Understanding? 基礎的な理解探究?	Yes	Pure basic Research (Bohr) 純粋基礎研究 ボーアの	Use-inspired Basic research (Pasteur) 基礎研究からの発展 パスツールの
	No		Pure applied Research (Edison) 純粋応用研究 エジソンの

科学・技術の広範な分野の 研究基盤としての放射光

— パネルディスカッション総括

福山秀敏

はじめに

日本学術会議が、“マスタープラン2014”の重点大型研究計画に「新しい時代の科学技術立国を支える放射光科学の高輝度光源計画」を採択した。このことは、フォトンファクトリーからSPring-8へと進化を遂げた“放射光”が、学術研究のみならず産業界まで幅広い分野にわたって“科学技術の発展に役に立つ”強力な研究開発ツールとしての地位を確立したことを意味している。公開シンポジウムでは、物理学、化学、材料科学、総合工学、生物学、医学分野のコミュニティを代表する委員及び産業界代表の講演を受け、科学技術の発展に対する放射光の役割と必要性について総括の議論を行った。

その結論は、
『化学・物理・材料・工学分野および産業界は中型高輝度放射光源の一刻も早い建設を求める。』



シンポジウムが開催された日本学術会議講堂

提言であった。その議論の経過についてここに纏める。

放射光の学術利用の多様化

議論の背景として、まず、放射光の科学技術における位置づけの変遷について述べる。

放射光科学は、他の学術研究と同様Curiosity-Driven Researchから始まり、Technology-Driven Researchへ進化を遂げたという特異性を有している。このことは、「真空封止アンジュレーター」という、我が国の独自技術の開発成功とその後の発展に象徴される。この技術は、放射光施設の概念を大きく転換し、3 GeVリング光源の建設の世界的な潮流を創り上げ（図1）、X線自由電子レーザーの発振を、世界に類を見ないコンパクトな施設「SACLA」で成功に導いた。加えて、放射光の産学利用の進展にも大きく貢献し、Social-Needs Researchへの扉も開いた。この経緯は、我が国が誇るべき歴史的事実であり、このことが今回のマスタープランの中核をなす。

放射光科学は、物理学、化学、工学、材料科学等の通常の科学分野と異なり、放射光施設という大型研究施設の建設・運営・利用という、切り離すことのできない固有の課題と対峙しながらTechnology-Driven Research及びSocial-

Needs Researchへと発展してきた研究分野である。ここでは、光源性能の発展がもたらす科学技術の進歩が、次の進化した光源性能へ転成するという輪廻の仕組みが、サイエンスコミュニティとの相互作用で、放射光を必要とする学術分野の拡大と、産業界への展開を加速している。しかし、この歴史的流れを創り出した我が国が、放射光科学での光源性能の先端性の議論を優先した結果、3 GeVリング光源がカバーすべき学術分野に対して、光源供給の空白を創ったことは極めて残念である。



PROFILE

福山秀敏
 (ふくやま ひでとし)
 日本学術会議連携会員、東京理科大学
 研究推進機構総合研究院長・教授
 専門：物性理論

このことは、従来の大型研究計画マスタープランが、各施設の将来計画調査を基とし、施設の次期計画を日本放射光学会が追認するケースが多くあったことに起因する。一方で、光源性能の多岐にわたる発展とユーザーコミュニ



図1 日本の独自技術が基点となり建設ラッシュとなった中型放射光施設

ティの急速な拡大が、放射光科学固有のコミュニティが主張する“オールジャパン”と、放射光を必要とする多様な学術分野をカバーする“オールジャパン”との間の乖離を大きくしてしまった。その結果、必要不可欠な施設の建設という科学技術の視点に立った最適解の追求を遅らせ、SPring-8に利用が殺到する深刻な現実を作りだしている。「新しい時代の科学技術立国を支える放射光科学の高輝度光源計画」は、もはや特定コミュニティ内で“オールジャパン”を自認する放射光科学の一分野に付託し、自己完結的な検討を期待する状況ではなくなった。拡大と多様化の一途をたどる利用分野が共有する課題について、関連分野から構成される“ナショナルチーム”が、施設の建設主体や運営とは独立に、放射光科学のグランドビジョンについて提言を行っていく時代への転換が、今、求められている。そのような状況をうけ、放射光と関わりのある学術・産業の分野を代表する日本学術会議会員、連携会員に参加を求め、科学技術にとって必要な放射光とはなにかをパネルディスカッション形式で会場の参加者と活発な議論を行った。パネリストは、豊島近（東大・基礎生物学、連携会員）、常行真司（東大・物理学、連携会員）、財満鎮明（名大・総合工学、連携会員）で、北川進（京大・化学、会員）については用意された資料をモデレーターの福山が紹介する形で、又、平野俊夫（阪大・基礎医学、会員）は、講演者でもある高尾正敏が資料を紹介する形で、参加した。

これからの放射光に求めるもの

パネルディスカッションにおける、これからの放射光のポートフォリオについてのパネリストの意見を整理すると以下のようになる。

- 構造生物学に最適な放射光とは、特別なものではなく小型で十分。計測の効率化スピード化はSPring-8で十分に達成されており、試料の損傷を招くこれ以上の光源の強さは不要；豊島近
- 機能をデザインするメソケミストリーの構築のため、これからの放射光には、ナノからメソまでマルチスケールに可視化を期待；北川進
- 学術と社会を結ぶ役割。世界トップレベルの学問分野の育成と創成に大学と連携。SPring-8サイトに、大阪大学未来戦略光科学連携センターを設置；平野俊夫（代、高尾正敏）
- 高分解能で観察可能な高輝度・極微集光ナノマイクロ回折（～1 nm）の実現が3次元逆格子マップの取得によるひずみ成分の詳細分解により、次世代の超低消費電力・高速・多機能デバイスの創出；財満鎮明
- 元素戦略プロジェクト、先端デバイス科学、分子機能と物質変換、エネルギー変換等をテーマとして、計算機シミュレーションとの協奏による、不均一系、複合系の機能解明からデザインへ、構造可視化のプロロー

パネルディスカッション

資料による参加



注)平野俊夫は高尾正敏が代理

ブとしての役割；常行真司

- 放射光は、研究開発のテーマの位置づけにおいて、サイエンスとエンジニアリングをつなぐツール；高尾正敏
- 「科学技術のテーマに基礎・応用の区別なし。大事なものは瑣末か瑣末でないかの区別；久保亮五（1979）」放射光は物質・材料（バイオ系を含む）において瑣末でなく本質的な意義を持つ事実を、学問分野を超えてつなぐ；福山秀敏

会場からの意見は、物質科学と生命科学の間での放射光との関わりかたの違いについての議論があったが、結論として、「生命科学においても、中型放射光施設の有効性が世界的にも認識され、総合的な観点から、今、日本に必要な放射光源としての最適解は3 GeVリング光源である（雨宮慶幸）」との意見が出された。また、

デバイス科学における軟X線分光実験の立場として、「数ナノの空間分解能の実現が切迫した課題であり、SLiT-Jのような3 GeV光源計画の実現は必須（尾嶋正治）」であるとの意見が出された。さらに、求める放射光のあるべき姿として、「大型計算機における“京”を核にした計算機群の階層性があるように、日本にある多種多様な放射光施設の中で階層性を考え、今の日本に欠如しているものをつくるべき（栗原和枝）」や、「ニーズに基づき第三世代の施設を東日本に急いで作ることが必要（兵頭俊夫；日本物理学会長）」といった意見が寄せられた。そして、「血税を使うからには、サイエンスのフロンティアを開拓するためのものでなくてはならない。そのためにも急ぐ必要がある（岩澤康裕）」という意見で、会場の総意がまとめられた。

結論

物理、化学、工学、材料の分野の有識者が中型放射光の必要性について議論し、『学術は、化学、物理、工学にわたる幅広い分野が、3 GeV放射光リングの必要性を認識し、緊急性を持って、3 GeV施設の建設を切望する。』

という結論を得た。ここで、大型施設にとって重要な「組織」についての検討は、日本学術会議での議論ではなく、次のステージで行われるべきものであるという認識を共有できたことも、大きな収穫であったことを付言して、本報告を締めくる。