

トピックス

高輝度放射光の産業応用

久保 佳実

日本電気(株)システムデバイス・基礎研究本部 基礎研究所*

Industrial Application of Synchrotron Radiation

Yoshimi KUBO

*Fundamental Research Laboratories
System Devices and Fundamental Research, NEC Corporation*

The application of synchrotron radiation to industry over the past twenty years is briefly reviewed, and some recent results of industrial application at SPring-8 are reported.

1. はじめに

SPring-8には、電機、金属、輸送、電力といった基幹産業13社(グループ)¹⁾が共同出資して建設した「産業用専用ビームライン」(サンビーム)²⁻⁴⁾があり、1999年10月から各社利用が始まった。本稿では、そこにおける最新成果の詳しい紹介が期待されているのかもしれないが、実質的にまだ半年の利用実績であり本格的な成果紹介が出来る段階ではない。そこで本稿では、過去20年近くに渡る放射光の産業利用の歴史を振り返りつつ、今後に向けた幾つかの提言を行なうことを主眼として、最新成果についてはサンビームを含めたいくつかの例を紹介するに止める。

2. 第一次放射光ブーム

産業界が放射光利用に本格的に参入したのは、1980年代になって高エネルギー物理学研究所(KEK, 現高エネルギー加速器研究機構)に放射光実験施設(PF)が設置されてからである。1983年から85年にかけて、電電公社(現NTT)、日立、NEC、富士通の専用ビームラインが相次いで開設された。専用ビームラインの建設には10億円規模の資金が必要であり、その後の維持管理、ビーム使用料、10人規模の人員投入などを考えると各社において莫大な投資がなされたことになる⁵⁾。このような莫大な投資が80年代半ばに相次いでなされた背景にはいくつかの理由があるが、その最大のものはX線リソグラフィへの大

きな期待であった。当時、DRAMは1Mビット時代を迎え設計ルールは1 μm になっていた。光の回折限界を考えると、従来の可視~紫外光による露光技術はもはや限界に達しており、より短波長の光であるX線を用いたリソグラフィに対する期待が急速に膨らんでいたのである⁶⁾。

更に言えば、80年代の日本は米国に追いつき追い越したとまで言われ、その中でも半導体産業は周期的な不況を繰り返しながらも世界の座を確保して繁栄の極みにあった。従って、その将来を左右する技術限界は、自らの手で突破しなければならぬという強い自負と危機感に溢れていたといえよう。この自負と危機感の賜物はなにも放射光に限ったことではなかった。当時、海外からは「基礎研究ただ乗り論」が言われ、それに対抗する形で産業界では基礎研究ブームが巻き起こっており、放射光への投資もその一環として捉えることが出来る。このように、放射光の産業利用は、X線リソグラフィを旗印に、基礎研究ブームという時代の追い風を受けて、1980年代の半ばに突如として大きく立ち上がったのである。

この第一次放射光ブームのその後の道のりは、しかしながら、決して平坦なものではなかった。当初の旗印であったX線リソグラフィについて言えば、いまだに実用化の確たるスケジュールは見えていない。従来の光学露光技術は多くのブレイクスルーによって延命を続け、いまや波長以下の微細加工が可能になっている。これは、リソグラフ

* 日本電気(株)システムデバイス・基礎研究本部 基礎研究所(産業用専用ビームライン建設利用共同体幹事長)
〒305-8501 つくば市御幸が丘34番地
TEL: 0298-50-1186 FAX: 0298-56-6137 E-mail: y-kubo@bc.jp.nec.com

ィに限ったことではないが、既存技術がいかに強いのか、既存技術と互換性のない新技術の導入がいかに難しいかを示す一つの好例である。こうして、大規模投資がその出口を見出せないままに、バブルが崩壊し10年に及ぶ不況の時代がやってきた。企業の基礎研究には一転して逆風が吹き、研究投資の効果が厳しく問われる時代になった。

リソグラフィという旗印が後退したこの時代には、産業応用の中心はいわゆる材料評価に移った。XAFS, X線回折, トポグラフィ, 表面分析などであり、それによって放射光が「役に立つ」ことを示すことが求められた。これらの分析評価技術はそれぞれに進歩を遂げ学術的な成果も得られたのであるが、「役に立つ」ことを十分に示し得たかという点には些か疑問が残る。それには二つの理由が考えられる。一つは、これらの分析評価技術は、良くも悪くもリソグラフィという旗に便乗する形で始まったものであるから、それ自体に大規模投資に見合うだけのニーズが想定されていたわけではなかったということである。そこには、先端技術を磨けばいつかは必ず役に立つだろう、という基礎研究ブームを支えたある種の楽観主義が伺える。

もう一つの理由は、この時代はまだ「放射光技術」が中心であったということである。放射光の専門家でなければ扱えない、という近寄りがたい雰囲気があった。分析技術以上に放射光技術が求められた時代である。研究者は機器の設計、製作、保守に追われながら最先端の分析手法を磨くことに専念した。しかしその一方で、何を分析すれば役に立つのかを把握することは必ずしも容易ではなかった。放射光分析技術は、まだ完全なツールにはなっていないのである。

3. 本格的な産業利用期を迎えた放射光

こうして第一次放射光ブームが終わり、第三世代（高輝度）放射光の時代がやってきた。1997年秋から供用開始された SPring-8 は、設立の経緯からもこれまで以上に産業界との係りが深く、産業利用を促進しようとする意欲がいくつかの点に伺える。まず、測定系のツール化が一層進んでいる。十数本の共用ビームラインにおいては、標準的な測定であれば比較的簡単な訓練を受ければ、一ユーザーとして試料を持参するだけでデータを取ることが出来る。放射光の非専門家に対する参入障壁が非常に小さくなった。あらゆる測定手法がそうであるが、一定期間の手法開発の歴史が終わるとツールとして広く世の中に普及し始める。電子顕微鏡も昔は部外者を寄せ付けない厳しさがあったが、今ではルーチンワークとして原子像が観察されている。放射光も、20年の歴史を経て漸くそういう時代に入ったと思われる。もちろん、手法の高度化や新手法開発の研究はいつまでも続く。しかし、裾野の広がりとともに、手法自体の研究とそれを利用した研究との分業は益々進むことになる。最初の段階ではこの両者は渾然一体であり、例えば同じ研究者が担っていた。第一次放射光ブーム

の時代は正にこの状態であった。しかし、周辺技術を含めた放射光技術全体が成熟しつつあるこれからは、手法開発と利用研究の分業を進めること、更に言えば両者を峻別することが不可欠である。すなわち、測定系の徹底したツール化であり、とりわけ産業応用の局面では極めて重要な前提条件であるといえる。このことは先端的な手法開発にとっても有益なことである。莫大な投資を伴う放射光においては、裾野の広がりなくして頂点を高め続けることは出来ない。裾野が広がることによって頂点が高まり、頂点が伸びることによって裾野が更に広がるという好循環に持ち込むことが肝要である。

SPring-8 のもう一つの特徴は、産業界を含めた全ユーザーに対して同じ条件で開放されているということである。とりわけ、成果を公開する場合には使用料が不要であるという現在のシステムは、新規ユーザーの参入障壁を著しく低めており高く評価できる。また、前述の産業用専用ビームライン（サンビーム）とともに、兵庫県専用ビームラインの存在も重要である。この両者は産業利用を目的とする専用ビームラインであり、施設側から共通部分の支援を受けて運営され、産業利用の促進に大きな役割を果たしている。更に、2001年度には産業用の共用ビームラインが供用開始される予定であり、産業利用が一層促進されることは間違いない。これにあわせる形で、新規ユーザーに対するコンサルテーションを担当するコーディネータ制度がまもなく発足する。測定系のツール化というハードウェアとコーディネータ制度というソフトウェアは、産業利用を推進する車の両輪であり今後の発展が大いに期待される。

以上のように、放射光の本格的産業利用のための素地は徐々に整いつつあるが、ここに来てバイオテクノロジーという大きな風が吹き始めた。周知のように、ポストゲノムは遺伝子の特定でありそれと結びつくたんぱく質の構造・機能の解明である。この分野はゲノム創薬を目指す個々の製薬会社の利害に止まらず、今や国家戦略とまで認識されている。たんぱく質の立体構造解析は放射光の独壇場であり、これから何万という膨大な数の解析が待ち受けている。わずか数年前にサンビーム構想への参加を見送った製薬業界では、今、新たな専用ビームラインの建設構想が持ち上がっているようである。

こうして、第二次放射光ブームが、バイオテクノロジーという新たな旗を掲げて急速に立ち上がりつつある。このブームは、しかし、完全なユーザー主導であるという点において第一次放射光ブームとは明らかに異なっている。たんぱく質の構造解析自体は枯れた技術であり、日々の改良はあるにしても手法開発自身が目的となることはありえない。放射光施設に設置された測定装置は、実験室に置かれた出来合いの装置と同様に全くのツール以外の何者でもない。ユーザーはルーチンワークによってひたすらデータを蓄積していく。この徹底したツール化と、従ってユーザー

主導こそが第二次放射光ブームを象徴するものであり、それを特徴づけるものである。

第一次ブームを主導したエレクトロニクス産業や素材産業においても、このツール化の流れを受けて、放射光に対する認識が変化していくであろう。XAFS と X 線回折結晶構造解析はほぼ完璧にツール化しており、サンビームの利用実績ではこの両者だけで7割以上を占める。また、共用ビームラインでも産業界からの課題の約半数が両者(BL01及びBL02)に集中している。(バイオ関係を除くと6割以上になる)。これらの分析技術はもはやツールとなった以上、材料・デバイスの広範な研究者層に「直接の」参入を呼びかけることが極めて重要である。私は逆説的な意味で、「社内に「放射光グループ」がある限り放射光に未来はない」と言うことがあるが、それは、「放射光」であることを意識しない「ツール」になって初めて、放射光グループ内に止まらない本格的な産業利用が始まるという意味である。

もちろん、新たな先端手法の開発が新たな産業利用を生み出すということも常にある。マイクロビームや位相イメージングは、高輝度放射光の特徴を生かした新技術でありツール化までにはまだ多少の時間が必要である。しかし、これらの新技術は、例えば兵庫県ビームラインでは産業応用と密接にかかわる形で開発が進められており、実効ある成果も出始めている。このようなニーズ志向の評価手法開発は、前述のツール化の流れと相俟って、第二次放射光ブームの非バイオ分野への浸透を確実に促進するものであると思われる。

4. 産業応用の最近の進展

サンビームと兵庫県ビームラインにおける最近の産業応用例をいくつか紹介する。サンビームには偏向電磁石(BL16B2)と挿入光源(BL16XU)の2本のビームラインがあり、前者ではXAFS、X線トポグラフィ、X線反射率測定を、後者ではX線回折、蛍光X線分析、マイクロビーム利用を行なうことが出来る。これらのビームラインと測定系は13社の共同作業によって建設され、完成後は各社ごとに利用されている^{3,4)}。サンビームの測定系は最初から使いやすいツールであることを目指していたので、特に変わった特徴があるわけではない。ただ、蛍光X線分析については元素分離を良くするために波長分散方式を採用したという特徴がある⁸⁾。これは、次に紹介する磁性薄膜のような試料の分析には不可欠なものであり、SPring-8の強い光と波長分散方式の組み合わせによって薄膜表面の高精度な分析が出来るようになっている。

蛍光X線分析(BL16XU)を用いた各社利用の成果としては、淡路らによるGMRヘッド用金属多層膜の評価が挙げられる⁹⁾。彼らは、いわゆるスピナルブとされる $\text{SiO}_2/\text{Ta}/\text{NiFe}/\text{CoFeB}/\text{Cu}/\text{CoFeB}/\text{PdPtMn}/\text{Ta}$ 多層膜について、構成元素であるCo, Ni, Cu, TaおよびPtの蛍光

X線強度を斜入射角度に対して測定した。周知のように、Co, Ni, CuのK線およびTa, PtのL線のエネルギーは接近しているため、それらを分離測定することは従来のエネルギー分散では不可能であり、今回サンビームで開発した波長分散蛍光X線分析によって始めて可能になったものである。彼らは、その蛍光X線データと反射率データを解析することにより各金属層のプロファイルを求め、界面の急峻さが熱処理によって弱くなっていることを明らかにした。

XAFS(BL16B2)の応用例としては、中山らによる鉄さびの分析がある¹⁰⁾。鉄鋼にTiを添加すると耐食性が改善されるが、その機構を解明するためにTi含有 FeOOH さびのTi周りのXANESスペクトルを測定した。その結果、Tiの状態はアモルファス型の TiO_2 に近いことが判明した。

X線回折(BL16XU)の例としては山口らによる高炭素鋼中のセメントイト(Fe_3C)の結晶性評価がある¹¹⁾。通常のX線回折では十分なピーク強度が得られないが、平行度が高く強度が大きい放射光を用いることによって、セメントイト相の回折ピークの半値幅を精度よく測定することが出来た。その結果、熱処理温度の上昇とともに半値幅が小さくなり結晶性が回復していることが判った。また、Si添加によって結晶性回復の様子が50~100°C高温側にシフトすることも判り、機械的強度との関係が示唆された。

反射率測定(BL16B2)では芳賀らによるGaAs基板上アモルファス SiN_x 膜の界面構造解析がある¹²⁾。種々のプラズマCVD条件で作製した SiN_x/GaAs 膜のX線反射率を入射角2.5度以下で測定し、構造モデルにフィッティングすることによって界面構造の違いを解明した。作製条件に応じて、 SiN_x/GaAs 界面に数nm以下のSi-rich層や Ga_2O_3 層が形成されることが判明した。

以上のほかに、サンビームでの実験テーマとしてはSi-LSI材料(ゲート酸化膜、高誘電率膜、強誘電体)、リチウム二次電池、燃料電池、触媒などがある。

産業利用を目的に兵庫県が設置した兵庫県専用ビームラインは、兵庫県立姫路工業大学のスタッフによって管理運営され、多数の企業が契約を結んで利用している。最近の成果をふたつ紹介する。川村らはInPのMOVPE成長のその場観察(斜入射X線回折)により、InP(001)再構成表面に(2×1)ドメインが存在することを見出した¹³⁾。また、最表面のPがダイマーを形成し第二層のInが変位していることが示唆された。このような大気圧付近の気相成長の場合には、電子線回折が使えず高輝度放射光が唯一の手段となる。SPring-8の特徴を生かした応用例であるといえる。

木村らは、姫路工業大学松井研究室と協力して、高平行マイクロビームを用いたデバイス評価を行なっている。松井研究室で開発されたマイクロビームは、放射光の平行性

を損なわないように非対称反射を使って絞り込んでいるのが特徴である。そのため高精度のX線回折(歪解析)が可能である¹⁴⁾。木村らはこの高平行マイクロビームを用いて、InGaAsP光デバイスにおける幅 $1.7\ \mu\text{m}$ の選択成長層の格子定数測定にはじめて成功した¹⁵⁾。この精密な測定によって、長年にわたり不明であったAs/P組成のマスク幅依存性が明確に示され、その知見をデバイス設計にフィードバックすることにより、レーザーの発光効率が40%向上したということである。これは、SPring-8での評価結果が生産現場に直接役立った(発表されている限り)初めての例である。

5. 産業応用の更なる発展のために

放射光の産業応用の歴史を振り返り、SPring-8における最新の成果をいくつか紹介した。ここに至るまでには第一次放射光ブーム以来の苦難の歴史があった。リソグラフィという最初の旗印が後退した後、「放射光は役に立つのか?」ということが常に問われ続けてきた。経済環境の激変もあった。だがその一方で、この20年の間に放射光技術は確実に成熟し多くの分野でツールと化した。今こそ、“放射光ピープル”の外に向かって参入を呼びかける時である。バイオテクノロジーの強大な追い風によって第二次放射光ブームが巻き起こるのは間違いない。その機を逃さず、あらゆる産業分野に放射光という強力なツールを浸透させようではないか。そのためにいくつかの提言をした。

何よりもまずツール化の弛まぬ努力が必要である。ハードウェアのみならず、コーディネータ制度のような支援体制の充実も不可欠である。また、時間がかかり過ぎるといった批判にも答えなければならない。SPring-8の課題申請は年2回であるから、思い立ってから測定できるまでには最短でも半年はかかる。通常は1年は覚悟しなければならない。これでは本当に重要な産業応用の役には立たないであろう。専任のコーディネータによる随時受付が望ましい。課題審査も産業応用については別枠として、別の基準に従って行なうべきであろう。来年度から産業用の共用ビームラインが稼動するというのは朗報であるが、産業利用促進のためには一定の枠を設けてスピーディな対応が出来るような、新しい仕組み作りが是非とも必要である。成果占有の取り扱いも重要である。産業界には、お金を払っ

ても内容(課題名すら)を公開したくないという研究課題が多くある。金額、手続き等の面でスピーディかつ柔軟な対応をお願いしたい。

以上の提言は産業界のためであって、放射光科学の発展には係りのないことだと思われるかもしれない。しかし前にも述べたように、放射光のような巨大科学は社会の強い支持なしには発展できない運命にある。人類の自然に対する探究心を掻き立てるような大発見と同時に、社会生活の中で役立っているという確かな手ごたえが必要である。そして、放射光はそれが出来る段階に達しているのである。産業応用の裾野を広げることと、サイエンスの高みに向かって集中することの両方が、放射光という一大科学技術の永続的な発展を保証するものであると信じている。

サンビームの利用に関し日頃からご指導ご協力いただいている、JASRIの上坪所長はじめ関係各位に御礼申し上げます。また、成果に関する情報をいただいたサンビーム共同体の関係各位にも感謝いたします。

参考文献

- 1) 神戸製鋼所, 三洋電機, 住友電気工業, ソニー, 電力グループ(関西電力, 電力中研), 東芝, 豊田中央研究所, 日本電気, 日立製作所, 富士通研究所, 富士電機総研, 松下電器産業, 三菱電機(五十音順)
- 2) 古宮 聡: SPring-8利用者情報 2, 18 (1997).
- 3) 平井康晴ほか: SPring-8利用者情報 4, 16 (1999); 泉弘一ほか: *ibid.* 4, 20 (1999).
- 4) 川戸清爾: 放射線と産業, No. 86, (2000).
- 5) 専用ビームラインを持たずにKEK-PFで積極的に研究活動する企業も多数あった。
- 6) 前山 智, 尾嶋正治: SR科学技術情報 5, 15 (1995); 古宮 聡: *ibid.* 6, 22 (1996).
- 7) 経団連, 関経連の呼びかけで45社の参加による「SPring-8利用推進協議会」が1990年に設立された。また、その下部組織である「研究開発部会」の参加企業数も年々増加し48社に達している。
- 8) N. Awaji et al.: *Jpn. J. Appl. Phys.* (submitted).
- 9) 淡路直樹, 武石俊作, 野村健二, 古宮 聡: 第47回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, p. 581 (2000).
- 10) 中山武典ほか: 材料と環境2000講演集, pp. 121-122, 社団法人腐食防食協会 (2000).
- 11) 山口浩司, 阿部 望: 材料とプロセス(日本鉄鋼協会講演論文集) 13, 534 (2000).
- 12) K. Haga and Y. Saito: SPring-8 User Experiment Report No. 5 (2000A), C00A16B2-420-N (to be published).
- 13) T. Kawamura et al.: *Appl. Phys. Lett.* 77, 996 (2000).
- 14) Y. Tsusaka et al.: *Jpn. J. Appl. Phys.* 39, L635 (2000).
- 15) S. Kimura et al.: *Appl. Phys. Lett.* 77, 1286 (2000).