

準備された偶然としての研究開発

Research and Development as Prepared Serendipity

閻 紀旺

Jiawang YAN

Key words: prepared serendipity, research and development, exploration.

1. はじめに

研究における発見は、しばしば「偶然」や「幸運」という言葉で語られる。確かに、研究の過程では予期せぬ出来事や想定外の現象に遭遇することがある。しかし実際には、そうした出来事の背後には、長い時間をかけて蓄積された知識や経験、専門に対する洞察、さらには分野を越えた人との対話が存在している。これらが重なり合って初めて、偶然は意味をもつ発見や発明へと昇華される。筆者はこのような偶然を、単なる幸運とは区別し、「準備された偶然」と捉えている。

本稿では、筆者が長年にわたり取り組んできた単結晶シリコンの加工に関する 2 つの研究事例を紹介する。これらの事例を通じて、セレンディピティがどのように準備され、どのような思考や判断の積み重ねを経て新たな研究展開へと結び付いたのかを明らかにする。とくに、研究者としてのテーマ探索や研究の過程における試行錯誤、着想の背景など、いわば研究の裏舞台に焦点を当てて述べる。

2. ラマン測定の実験から生まれたレーザ修復の発想

筆者は、博士課程(1997-2000)において、指導教員から与えられたテーマとして、単結晶シリコンの切削加工の研究を行っていた。その後、大学教員として研究の道を歩み始めたが、研究テーマをどう決めるべきか、長い間迷っていた。新テーマを探すうちに、博士課程の研究の延長として、シリコン加工でできた加工変質層の構造と特性を調べることにした。ナノインデンテーション法で加工面に圧痕を付け、また圧痕を集束イオンビームで切断し透過電子顕微鏡で観察した¹⁾²⁾。その結果、加工面表層がアモルファス化し、優れた塑性をもつことがわかった。しかし、これらの方法は破壊的手法であり、多条件で形成した加工変質層を比較するには、莫大な費用も必要であり、当時の筆者にとっては大きな難関であった。そこで、より簡便で安価な非破壊的な評価方法がないかと思い、調査と模索を行ってきた。

そうした中で、レーザラマン分光法によって材料相変態を検出できるとする文献が見つかり、それを参考に切削面のラマン分光実験を行った。その結果、切削によるシリコンの相変態を検出でき、興味深い結果を得た³⁾。ところが、文献記載の測定条件では、レーザが試料表面で大きく減衰し、内部までレーザが届かないことがわかった。レーザ強度を上げて試した結果、散乱光強度をある程度まで増加させることができたものの、強すぎるレーザ光が表層のアモルファスシリコンを加熱

してしまい、アニール効果によってアモルファス相の結晶化が起きるという問題が生じた。そのため、アモルファス層が検出できなくなった。この出来事をレーザラマン測定の実験論文で測定失敗例として述べていた⁴⁾。

測定の実験として扱っていたが、あるアイデアが頭の中に浮かんできた。もし、ラマン測定で起きたレーザアニールの効果を生かせば、加工変質層の主要構成であるアモルファス層を単結晶構造に修復することができるのではないか、という発想であった。すなわち、レーザ照射によって加工変質層を溶融させた後、再凝固させる。再凝固の際、完全結晶のバルク領域を種としてエピタキシャル結晶成長が行われるため、バルク領域と同様な単結晶構造が得られるのではないかと考えた。この発想に基づいて継続的に研究を展開させた結果、単結晶シリコン加工変質層の完全修復を実現し、一連の成果が論文として公表することができた^{5)~7)}。その後、企業との共同研究プロジェクトとして、シリコン非球面レンズやウエハエッジの高品質化などに応用した⁸⁾⁹⁾。

加工変質層は従来、研磨やエッチングによって除去される対象であり、「修復する」という発想は一般的ではなかった。しかし、このラマン測定の実験の失敗は、レーザアニールという手法を別の視点から捉え直す契機となった。単なる失敗として切り捨てなかった背景には、シリコンの結晶構造や相変態の挙動、そしてレーザ照射に関する基礎的な理解があった。長年シリコンを扱ってきた経験が、レーザアニールを加工変質層修復という仮説を自然に導いたのである。

偶然得られた成果は、もちろん、すぐに技術へと結実したわけではない。レーザ修復を技術として使えるようにするには、さまざまな工夫を重ねた。ラマン測定で使った連続波レーザの代わりに、変質層のみを効率よく加熱するためにパルスレーザを使用し、加工変質層の推定厚さからパルス幅の選定を行った。また、溶融後の液相に応じて表面緩和時間と凝固時間のバランスをとるため、レーザ走査速度や走査方式の最適化も行った。このように、レーザ照射条件を一つずつ検討する地道な試行錯誤が数年にわたり続いた。

3. シリコン切りくずの処理から電池負極製作への展開

2 つ目の研究事例も、シリコン加工に関わっている。2010 年のある日、加工変質層のレーザ修復について打ち合わせに訪れてきた半導体メーカーの方から、ワイヤソーでできた大量なシリコン切りくずで困っているという相談を受けた。当時シリコ

ンウエハの薄化が急速に進み、ウエハ厚みとワイヤ線幅がほぼ等しくなったため、切断時に半分程度のシリコンが粉になって排出され、廃棄されていた。切りくずには砥粒などの不純物が含まれていたため、インゴットの結晶成長にリサイクルすることは極めて困難であり、捨てるしかなかったという。莫大なエネルギーを消耗して作られたシリコン結晶の半分程度も廃棄されてしまうということに、大きな問題意識を抱いた。これを何とか再利用できるようにしなければならないと思った。

当時は電動自動車が普及し始め、大容量のリチウムイオン電池に対する要求が急増していた。しかし、従来の炭素負極のリチウムイオン電池は容量が低く、安全性の問題も指摘されていた。そのため、炭素負極からシリコン負極への移行に関する研究が世界中で展開されていた。ところが、そのほとんどは粉砕法などで作られた高純度のシリコン微粒子や化学的手法によって生成されたナノ粒子、ナノワイヤが原料として使用されていた。これらの原料を作ることに、当然ながら莫大なエネルギーが必要であった。そこで、もしシリコン切りくずをリチウムイオン電池負極の製造に使えるようになれば、一石二鳥ではないかと考えた。シリコン切りくずは汚泥状で排出されるため利用困難と見なされがちであるが、実際には粒径のそろった微粒子であった。また、半導体デバイス分野で懸念されていた不純物の影響についても、電池に対して大きな悪影響はないことがわかった。ただ一つの課題として、充電時のシリコンの体積膨張による電極割れを防ぐ必要があったため、割れにくいシリコン負極の製作について研究を重ねてきた。

まず、シリコン切りくずに導電性バインダーを混ぜてプレス成形により厚膜電極を作り、膜内部に体積膨張を吸収するための気孔を形成させた¹⁰⁾¹¹⁾。次に、シリコン切りくずにカーボンナノファイバーを混ぜてレーザーで焼結することで導電性ネットワークとポーラス構造を併せ持った複合膜を製作した¹²⁾。そして焼結効率を上げるために、赤外線ランプ照射を用いた焼結技術を開発し、シリコンと銅粒子からなる多孔質の複合膜を作った¹³⁾。さらに、シリコン切りくずにカーボンブラックを混ぜてレーザー照射によって銅箔表面に結合されたシリコンマイクロピラーの形成に成功し、高い電極性能を確認した¹⁴⁾。最近、負極性能をさらに向上させるため、シリコン切りくずのナノサイジングや炭素との複合の研究を行っている。例えば、レーザー照射によりシリコン切りくずからナノ粒子とナノファイバーの生成に成功した¹⁵⁾。シリコン切りくずと黒鉛粉末を混合した固体ターゲットに対してレーザー照射を行い、炭素シェルを持ったシリコンカーバイト系ナノ粒子およびナノワイヤの生成に成功している¹⁶⁾¹⁷⁾。これらの研究は、資源循環型ものづくりや脱炭素社会の実現に向け、産業廃棄物から先端電池材料を生成する可能性を示している。

本研究が進化した背景には、異分野研究者や企業技術者との交流があった。電池分野の研究者や材料メーカーとの議論を通じて、電極性能のみならず、コスト、量産性、信頼性といった産業ニーズを強く意識するようになった。こうした対話を通じて、シリコン切りくずが実用的な意味をもつ材料として再定義され、各種ナノ材料生成技術の導入などの発想も、加工プロセスの理解と産業ニーズの接点から生まれたものであった。

4. おわりに

以上の2つの研究事例に共通しているのは、一見すると偶然に生じた出来事がその場限りで終わるのではなく、長年にわたって蓄積されてきたシリコン材料に対する理解と、さまざまな立場の研究者や技術者との対話を通じて、意味のある発見へと変わっていった点である。偶然そのものは誰の前にも起こり得るが、それを新たな研究の芽として認識し、掘り下げることができるかどうかは、それまでに積み重ねてきた経験と知識、そして洞察力に大きく依存している。セレンディピティは、単に幸運を待ち受ける受動的な姿勢から生まれるものではない。材料やプロセスと長く向き合い、その特性や振る舞いを理解し続けること、さらに異分野の研究者や産業界の技術者と積極的に交流し、自らの研究を多角的に捉えることで、初めて準備されるものである。視野を広げ、異なる要求に触れる過程そのものが、偶然を発見へと変える土壌となり、結果として新たな研究テーマが生まれることにつながると思う。

5. 参考文献

- 1) J. Yan, H. Takahashi, J. Tamaki, X. Gai, H. Harada, and J. Patten: Nanoindentation tests on diamond-machined silicon wafers, *Appl. Phys. Lett.*, 86, 5 (2005) 181913.
- 2) J. Yan, H. Takahashi, J. Tamaki, X. Gai, and T. Kuriyagawa: Transmission electron microscopic observation of nanoindentations made on ductile-machined silicon wafers, *Appl. Phys. Lett.*, 87, 11 (2005) 211901.
- 3) J. Yan: Laser micro-Raman spectroscopy of single-point diamond machined silicon substrates, *J. Appl. Phys.*, 95, 4 (2004) 2094.
- 4) J. Yan, T. Asami and T. Kuriyagawa: Nondestructive measurement of the machining-induced amorphous layers in single-crystal silicon by laser micro-Raman spectroscopy, *Prec. Eng.*, 32, 3 (2008) 186.
- 5) J. Yan, T. Asami and T. Kuriyagawa: Response of machining-damaged single-crystalline silicon wafers to nanosecond pulsed laser irradiation, *Semi. Sci. Tech.*, 22, 4 (2007) 392.
- 6) J. Yan, F. Kobayashi: Laser recovery of machining damage under curved silicon surface, *CIRP Ann. Manuf. Technol.*, 62, 1 (2013) 199.
- 7) J. Yan, S. Sakai, H. Isogai, and K. Izunome: Recovery of microstructure and surface topography of grinding-damaged silicon wafers by nanosecond-pulsed laser irradiation, *Semi. Sci. Tech.*, 24, 10 (2009) 105018.
- 8) K. Niitsu, Y. Tayama, T. Kato, J. Yan: Laser recovery of grinding-induced subsurface damage in the edge and notch of a single-crystal silicon wafer, *Surf. Topo.: Metro. Prop.*, 7 (2019).
- 9) K. Niitsu, J. Yan: Effects of deep subsurface damages on surface nanostructure formation in laser recovery of grinded single-crystal silicon wafers, *Prec. Eng.*, 62 (2020), 213.
- 10) 城所貴博, 閻 紀旺: 高精度プレス焼結によるシリコン・炭素複合厚膜の創製, *砥粒加工学会誌*, 59, 1 (2015) 23.
- 11) 砂場勇輝, 立川直樹, 片山 靖, 閻 紀旺: シリコン切りくずと金属微粒子の高圧焼結によるポーラス複合構造体の創製, *砥粒加工学会誌*, 62, 11 (2018) 584.
- 12) Y. Iwabuchi, J. Yan: Laser sintering of silicon powder and carbon nanofibers for porous composite thick films, *Appl. Phys. Express*, 8 (2015) 026501.
- 13) J. Yan, K. Okada: Fabrication of silicon-based porous nanocomposite films by focused infrared light sintering, *CIRP Ann. Manuf. Technol.*, 65 (2016) 217.
- 14) J. Yan, J. Noguchi, Y. Terashi: Fabrication of single-crystal silicon micro pillars on copper foils by nanosecond pulsed laser irradiation, *CIRP Ann. Manuf. Technol.*, 66 (2017) 253–256.
- 15) K. Momoki, K. Takahashi, K. Kobinata, Y. Kobayashi, A. Kawai and J. Yan: Generating Silicon Nanofiber Clusters from Grinding Sludge by Millisecond Pulsed Laser Irradiation, *Nanomaterials*, 10, 4 (2020) 812.
- 16) K. Minami, K. Kobinata, J. Yan: Generation of Si@C/SiC@C core-shell nanoparticles by laser irradiation of silicon grinding waste, *Nano Select*, 3, 7 (2022) 1192.
- 17) K. Minami, K. Shimazu, Y. Hattori, J. Yan: Generation of high-aspect-ratio 3C-SiC nanowires and evaluation of their potential as battery materials, *Materials & Design*, 259 (2025) 114872.



【閻 紀旺】(やん・じわん)

・慶應義塾大学 理工学部 機械工学科 教授

・e-mail: yan@mech.keio.ac.jp