領域略称名:ナノ界面プラズマ

領域番号:2109

平成26年度科学研究費補助金「新学術領域研究 (研究領域提案型)」に係る事後評価報告書

「プラズマとナノ界面の相互作用に関する学術基盤の創成」

(領域設定期間)

平成21年度~平成25年度

平成26年6月

領域代表者 (九州大学・システム情報科学研究院・教授・白谷正治)

目 次

1.	研究領域の目的及び概要・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
2.	研究組織(公募研究を含む)と各研究項目の連携状況・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
3.	研究領域の設定目的の達成度・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
4.	研究領域の研究推進時の問題点と当時の対応状況・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
5.	研究計画に参画した若手研究者の成長の状況・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
6.	研究経費の使用状況(設備の有効活用、研究費の効果的使用を含む)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
7.	総括班評価者による評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・12
8.	主な研究成果(発明及び特許を含む)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
9.	研究成果の取りまとめ及び公表の状況(主な論文等一覧、ホームページ、公開発表等)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
10.	当該学問分野及び関連学問分野への貢献度・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・22

1. 研究領域の目的及び概要 (2ページ程度)

研究領域の研究目的及び全体構想について、応募時に記述した内容を簡潔に記述してください。どのような点が「我が国の学術水準の向上・強化につながる研究領域」であるか、研究の学術的背景(応募領域の着想に至った経緯、これまでの研究成果を発展させる場合にはその内容等)を中心に記述してください。

① どのような点が「我が国の学術水準の向上・強化につながる新たな研究領域」であるか

本新学術領域研究『プラズマとナノ界面の相互作用に関する学術 基盤の創成』では、界面がナノサイズに縮小することにより顕在化 する相互作用の特徴に焦点を絞り、究極のナノプロセスの実現に必 要不可欠な、プラズマとナノ界面の相互作用に関する学術基盤を確 立することを研究目的としている。本領域の発展は、従来実現でき なかった高度なナノ構造の創成を通して、半導体、磁性体、フォト ニクス、オプティクス、環境、エネルギー、バイオ、医療等の極め て広範な分野において我が国の学術水準の向上・強化につながる。

② 研究の学術的背景

プラズマを用いたナノ材料・ナノ構造の創成は、ULSI作製等のトップダウンプロセス、カーボンナノチューブ作製等のボトムアッププロセスに広く用いられており、ナノ構造創成法として中心的役割を果たすと期待される。このようなプラズマナノテクノロジーでは、プラズマと材料のナノ界面における相互作用が本質的に重要である。

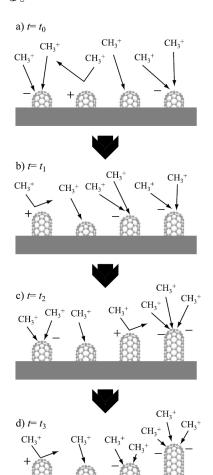


図2.ナノ界面の揺らぎで自己 組織化が生じる。

界面がナノサイズに縮小することにより、相互作用に従来にない次の4つの特徴が顕在化する。1)ナノ界面では物性がバルク界面と著しく異なることにより、相互作用にサイズ効果が発現する。2)相互作用の揺らぎが顕著となる。3)界面の寸法が相互作用長と同等以下になる.4)

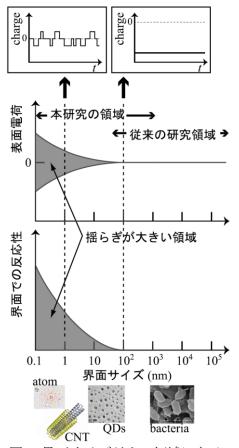


図1.界面サイズがナノ領域になると反応性の揺らぎが大きくなる。

ナノ界面がプラズマ反応場に構造を与える。

例えば、界面サイズがナノ領域になると、界面帯電状態が負だけでなく、 中性、正にもなり、ナノ界面の帯電状態は時空間的に大きく揺らぐように なる(図1)。プラズマとナノ界面の相互作用は、プラズマから界面に入 射するラジカル・正イオン・負イオン・電磁波が界面で反応することによ り生じるが、その反応は界面の帯電状態で大きく変化する。マクロ界面に 入射する正イオンエネルギーは、5eV以上と物質の結合エネルギーを上回 っており、界面ダメージを誘起する。一方、ナノ界面では極めて低速の正 イオン入射、電子入射、負イオン入射が生じ、これによりマクロ界面では 生じない反応を誘起できる(図2)。このプラズマとナノ界面の相互作用 の揺らぎは2つの視点から本質的である。一つは、揺らぎのない超高精度 のトップダウンプロセスを実現するという視点、もう一つは、揺らぎの結 果として生じる自己組織化を高精度に制御したボトムアッププロセスを 実現するという視点である。これら2種類のナノ材料・ナノ構造の究極の 創成プロセスを実現するには、プラズマとナノ界面の相互作用に関する学 術基盤を確立することが必要不可欠である。これまで組織的な研究展開が なされていないプラズマと界面の相互作用について、ナノ界面で初めて顕 在化する相互作用のサイズ効果を中心に組織的研究を実施することが、今 後のプロセス技術の発展に必要不可欠であるとの認識のもとに本領域を 企画した。

③ 本領域の全体構想

本領域研究では、図3に示すように、プラズマと界面の相互作用について、ナノ界面で初めて顕在化する相互作用のサイズ効果を中心に組織的研究を推進し、そこに内在する法則・原理・機構を解明し新しい学術基盤を体系化する。その基盤に基づき、界面サイズ縮小で顕著となる相互作用の揺らぎの抑制法と増幅法を確立し、それぞれ揺らぎの無いトップダウンプロセスと制御された自己組織化ボトムアッププロセスを実現することにより、ナノ材料・ナノ構造の創成に爆発的な発展をもたらすことを意図している。この共通の目的の下に、以下の3つの研究項目を設ける。

研究項目 A01: ナノ界面プラズマを作る

液相、超臨界状態等の高密度環境等の従来にない環境を含めた、ナノ界面とプラズマの相互作用を具現する。特に、臨界点近傍での密度揺らぎやミストプラズマにおけるプラズマ反応場とナノ界面の不均質性を導入して、界面サイズ縮小で顕著となる相互作用のサイズ効果、揺らぎを積極的に発現させる。

研究項目 A02:ナノ界面プラズマを見る

プラズマと界面の相互作用について、ナノ界面で初めて顕在化する相互作用のサイズ効果を中心にその観測と機構解明を行う。また、理論・シミュレーション担当の計画研究は、研究項目 A01-03 の対象を含めた理論解析等を実施する。

研究項目 A03:ナノ界面プラズマを 使う

界面サイズ縮小で顕著となる相 互作用の揺らぎの抑制法と増幅法 を確立し、それぞれ揺らぎの無い トップダウンプロセスと制御され た自己組織化ボトムアッププロセ スを実現する。例えば、液相、超 臨界状態等の高密度環境化でのよ ラズマとナノ界面の相互作用によ る超高効率高選択性を活かした新 規廃棄物処理・リサイクルプロセ ス等の応用を実現する。

それぞれが新しい学問領域を創成する3つの研究項目の下に合計10の計画研究を設けるとともに、プラズマとナノ界面の相互作用に関する学術基盤の創成に関する総括研究を行う総括班を設置して、各班の研究活動や運営の調整・研究成果の相互評価を行いつつ領域全体の研究活動を効果的に推進する。

また、計画研究では手薄である研究テーマについては、公募研究との連携によって研究推進する。公募研究には次の3つの役割を担わせる。

- 1)計画研究では手薄である界面理論の専門家の参画を推進する。
- 2) 特に将来を担う有望な若手研究者を参画させ、次世代を担う研究者として育成する。
- 3) 異分野の研究者を参画させ新たな融合領域の萌芽につなげる。

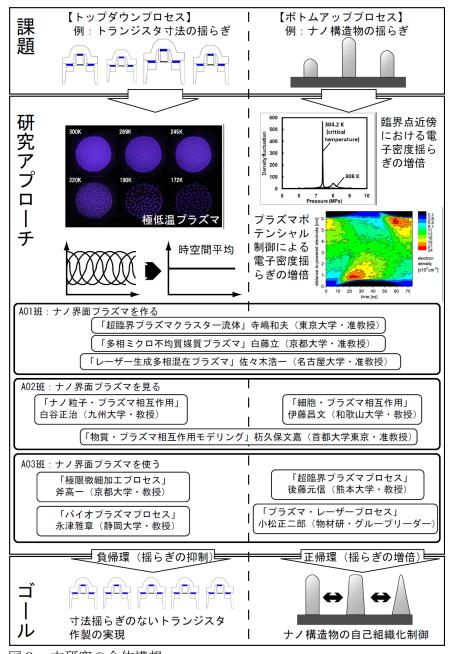


図3. 本研究の全体構想。 各計画研究代表者の所属・職名は申請当初のもの。

2. 研究組織(公募研究を含む)と各研究項目の連携状況(2ページ程度)

領域内の計画研究及び公募研究を含んだ研究組織と領域において設定している各研究項目との関係を記述し、どのように研究組織間の連携や計画研究と公募研究の調和を図ってきたか、組織図や図表などを用いて具体的かつ明確に記述してください。

【研究組織と各研究項目との 関係】

プラズマとナノ界面の相互作用に関する学術基盤を実現するためには以下の3つの研究課題を解決する必要がある。

- 1) プラズマと界面の相互作用 について、相互作用の揺らぎを 決めている要因と機構を解明す る。
- 2) 超高精度のトップダウンプロセスを実現するために、相互作用揺らぎを抑制する方法論を確立する。
- 3) 自己組織化を高精度に制御したボトムアッププロセスを実現するために、揺らぎを増幅する方法論を確立する。

本研究領域では、「A01:ナノ 界面プラズマを作る」、「A02:ナ ノ界面プラズマを見る」そして

AO1班 ナノ界面を作る 寺嶋·白藤·佐々木浩· 宮崎・末廣・波平・八田・川崎 研究課題2 研究課題3 和田·富田卓·石川·中野 超高精度 自己組織化を トップダウンプロセス 制御したボトムアップ の実現 プロセスの実現 プラズマとナノ界面 A02班 の相互作用ゆらぎ A03班 ナノ界面を見る ナノ界面を使う 白谷·伊藤·杤久保· 斧・後藤・永津・小松・ 高橋和·作道·北嶋·浜口·篠原· 堀田・金子・白井・佐々木品 研究課題1 光木·渡辺·村上·富田健· 野崎·高橋_憲·進藤·山田·武田· プラズマナノ界面 佐々木実 島田·加藤·石島· 相互作用ゆらぎの 須田・八ツ橋 要因と機構解明

図4.本研究領域の組織と研究目的を実現するための3つの研究課題の概要。上図で研究代表者名は、ブロック体が計画研究、明朝体が公募研究を示す。研究課題を解決するため、総括班が中心となり、領域横断的な研究連携を推進した。

「A03:ナノ界面プラズマを使う」という3つの研究項目に10件の計画研究を配置し、計画研究では手薄な研究テーマについて33件の公募研究を配置した。情報交換により効率的に研究遂行する場を設けた。また、総括班を中心として、3つの研究班の枠を超えた領域横断的な連携により課題解決を目指した(図4)。

【研究組織間連携と計画研究・公募研究の調和】

表2に領域横断的な連 携により得られた主な研 究成果を示す。

研究課題 1. プラズマナ ノ界面の相互作用ゆらぎ の要因と機構解明につい て、まず白谷らにより、ナ ノ粒子をナノ界面のモデ ルとして、ナノ粒子成長の 揺らぎを決定する要因が プラズマ中の化学活性種 (ラジカル) とナノ粒子の カップリングであること を明らかにして、ナノ粒子 成長ゆらぎの制御機構を 明らかにした。この結果は ナノ粒子という限られた 状況ではあるものの、プラ ズマナノ界面相互作用ゆ らぎ機構を明らかにした ものである。寺嶋らは、白

	連携研究者							
	A01班 作る	A02班 見る	A03班 使 う	成果				
1	寺嶋	白谷	斧	 ボトムアッププロセスとトップダウンプロセスにおけるプラズマナノ界面相互作用ゆらぎの機構を解明した。 得られた知見をボトムアッププロセスとトップダウンプロセスへ適用。 				
2	八田	浜口、 篠原	斧	 新規エッチングプラズマ創成一ナノ界面のモデリングと評価―LSI作製プロセスの応用の連携。 新世代超高精度LSIプロセスが実現。 				
3	寺嶋、 佐々木 _浩 、 宮崎		後藤	 超臨界プラズマプロセス科学と化学の連携。 超臨界プラズマプロセスを用いて従来の化学反応場では実現できなかったアラニン重合体やアルツハイマーの薬として期待されるダイヤモンド分子などの作製に成功。 				
4		白谷、 作道	永津	プラズマナノ粒子科学とウィルス学の連携。超高感度ウィルス検出法を実現した。				
5	白藤	杤久保、 村上	斧	 原子からナノシステムまでのマルチスケールプラズマシミュレーションによるプラズマプロセス解析に成功。 成果が英国Institute of Physicsのデータベースに採用。 				
6		白谷	小松	 プラズマナノ界面相互作用制御による新規構造BNの自己組織化に成功。 材料科学分野では権威ある論文誌(Journal of Material Research)の表紙を飾る。 				

表2. 領域横断連携による主な成果一覧。

谷らが得た成果を超臨界プラズマに適用し、ボトムアッププロセスにおける相互作用ゆらぎの増幅機構解析へ拡張した。また斧らはトップダウンプロセスにおける相互作用ゆらぎの制御法開発に白谷らの成果を活用した。これら3者の連携により、プラズマナノ界面の相互作用ゆらぎの学理基盤を確立した(表2の連携項目1)。

研究課題2. 超高精度トップダウンプロセスの実現について、半導体プロセスにおけるナノ構造形成では、プラズマとナノ界面の相互作用のモデリングが重要である。斧らは、エッチングプロセスの大規模な3次元シミュレーションを行い、この解析結果を基に超高精度エッチングプロセスを実現した。モデリングにおいて、八田らによるエッチングプラズマプロセス、篠原らによる基板表面における反応解析、浜口らのエッチングに関するモデリングについての研究成果は必要不可欠なものであった。本研究成果は、日本の半導体産業の発展に大きく寄与するものである(表2の連携項目2)。

研究課題3. 自己組織化を制御したボトムアッププロセスの実現について、寺嶋らは、後藤らの超臨界流体を化学反応場として用いる研究成果を超臨界プラズマプロセスによる自己組織化による新規物質創成に応用して、従来の化学反応場では実現不可能だったダイアモンドイドの作製に成功した。この際、佐々木浩らの超臨界プラズマ計測や宮崎の超臨界プラズマにおけるナノ構造の自己組織化のモデル化が、寺嶋らの超臨界プラズマの診断やモデル化に重要な役割を果たした。ダイアモンドイドはアルツハイマーなどに対する薬として期待されており、今後発展が期待できる(表2の連携項目3)。

上記3つの連携は、本研究領域で設定した研究課題に関する主要な連携の成果である。研究課題に関連

する研究連携の他の成果として、以下 に3つの主要な成果を示す。

連携項目4. 永津らは、プラズマプロセスによる磁気ナノ粒子をアミノ基で表面修飾することに成功した。この際、プラズマ中のナノ粒子観察が必須であるが、計測技術を持っていなかったためにプラズマ中のナノ粒子計測は困難であった。この課題を解決するため、プラズマ中ナノ粒子の計測では指導的立場にある自谷らとの連携により、こ

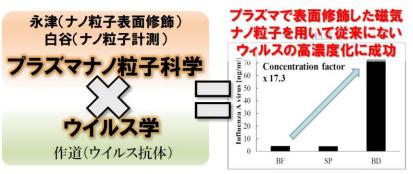


図5. 永津・白谷・作道による、プラズマナノ粒子科学とウイルス学の連携による成果。従来にないウイルスの高濃度化に成功。

の課題を解決した。本成果をバイオテクノロジーへ応用展開を目指して、日本でも数少ないウイルス・プリオンを扱うことのできる施設を持つ作道らとの連携により、ウイルス抗体を固定化した表面修飾磁気ナノ粒子により従来にないウイルスの高濃度化に成功した(図5)。この研究成果は、新学術領域を横断した連携によってはじめて実現できた成果であり、計画研究が手薄な研究テーマ(ここではウイルスに関する研究)を公募研究が補完した好例である。ここで実現した表面修飾磁気ナノ粒子は、ウイルスの超高感度検出技術への応用が期待され、ナノ・バイオテクノロジー分野への波及効果は大きい。

連携項目5.近年のコンピュータの計算能力の発達により、計測が困難なプラズマナノ界面をシミュレー

トしてその相互作用を理解することが研究遂行の重要な役割を担っている。本領域の設立以前、白藤、杤久保、村上、斧らはそれぞれ独立にプラズマのモデル化を原子分子オーダーからマクロ構造までさまざまな時空スケールでシミュレーションを行ってきた。プラズマナノ界面では、プラズマとナノ界面の相互作用ゆらぎが大局的なプラズマ構造とカップリングすることから、マルチスケールシミュレーションによる理解が必須である。本領域研究において、それぞれの研究が連携することでプラズマプロセスにおけるマルチスケールシミュレーションを実現した。本成果は、斧らによる超高精度トップダウンプロセスの実現に寄与し、また成果の一つが英国 Institute of Physics におけるデータベースに採用される快挙を達成した。

連携項目 6. 小松らは、プラズマ支援レーザアブレーションにより新規 BN ナノ構造が自己組織化することを明らかにした。自己組織化発現機構の解明においてナノ界面の計測や評価が必須であるが、これを補完するため、ナノ界面の高感度計測法を開発してプラズマナノ界面相互作用ゆらぎ機構を明らかにした自谷らと連携して、新規 BN ナノ構造の自己組織化機構を解明した。この成果に関する研究論文が材料科学分野で権威のある論文誌の表紙を飾った(図 6)。



図 6. 連携研究の成果が J. Mater. Res. vol. 29 (4) 2014.の表紙を飾った。

3. 研究領域の設定目的の達成度(3ページ程度)

研究期間内に何をどこまで明らかにしようとし、どの程度達成できたか、また、応募時に研究領域として設定した研究の対象に 照らしての達成度合いについて、具体的に記載してください。必要に応じ、公募研究を含めた研究項目毎の状況も記述してください。

【研究領域全体の設定目的達成度: A+】

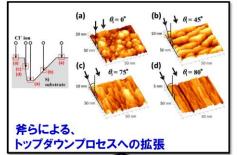
本領域では、ナノ材料・ナノ構造の究極の創成プロセスの実現に必要不可欠な、プラズマとナノ界面の相互作用に関する学術基盤を確立するため、5年間の研究期間内に以下の3つの研究課題を解決することを計画した。

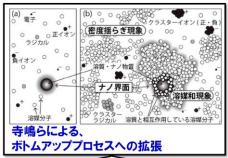
- 1) プラズマと界面の相互作用について、ナノ界面で初めて顕在化する相互作用のサイズ効果を中心に 組織的研究を推進し、そこに内在する法則・原理・機構を解明し新しい学術基盤を体系化する。特 に、相互作用の揺らぎを決めている要因と機構を解明する。
- 2) 揺らぎのない超高精度のトップダウンプロセスによりナノ構造を創成するために、揺らぎを抑制(負帰還) する方法論を確立する。
- 3) 揺らぎの結果として生じる自己組織化を高精度に制御したボトムアッププロセスによりナノ構造を 創成するために、媒質の密度揺らぎが顕著になる臨界点近傍を用いる等により、揺らぎを増幅(正 帰還)する方法論を確立する。

本研究領域では、計画研究・公募研究が領域を横断した連携により、上述した3つの研究課題については期待通りの成果を挙げるとともに、他分野への波及効果の高い予想以上の新しい研究成果を得た。以上から判断して、領域全体の設定目標達成度を「A+:研究目的に照らして予想以上の成果を得た」と判断した。以下にそれぞれの具体的な研究成果を示す。

【研究課題1の達成度:A】

プラズマナノ界面の相互作 用ゆらぎの要因と機構解明で は A01 班から A03 班までの各 班長が中心となって検討が行 われた。A02 班長の白谷は、ナ ノ粒子をナノ界面のモデルと して、プラズマの摂動により、 ナノ粒子サイズ分散が狭分散 化することを見出した。この結 果は反応性プラズマ中のラジ カルとナノ粒子成長が非線形 カップリングしていることが 原因と考えられ、セルフリミッ トによりナノ粒子成長ゆらぎ が抑制されていることを示唆 している。白谷らは、ラジカル 一ナノ粒子成長カップリング を定式化して、ナノ粒子成長ゆ らぎの抑制を理論的に説明し た。この結果はナノ粒子という 限られた状況ではあるものの、





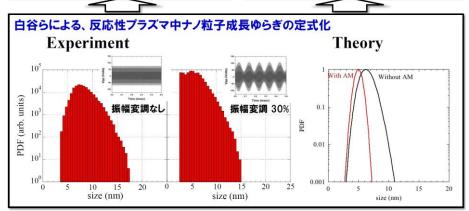


図7. プラズマナノ界面相互作用ゆらぎの機構解明。白谷らによる相互作用ゆらぎ機構の理論を斧、寺嶋らによりそれぞれトップダウン、ボトムアッププロセスに拡張し、汎用性のある理論に発展させた。

プラズマナノ界面相互作用ゆ

らぎ機構を明らかにしたものである。A03 班長の斧は、エッチングプラズマにおける、エッチングプロファイルの構造ゆらぎについて、トップダウンプロセスにおけるプラズマナノ界面相互作用ゆらぎ抑制機構にセルフリミットが重要な役割を果たすことを明らかにして、白谷らの理論をトップダウンプロセスに拡張することに成功した。A01 班長の寺嶋は、反応性プラズマにおけるラジカルとナノ界面のカップリングを、超臨界プラズマにおけるラジカル・イオン・クラスターラジカル・クラスターイオン・ナノ界面のカップリングに拡張して、超臨界プラズマ中での新規物質生成機構を明らかにした。これら3者の連携により、プラズマナノ界面の相互作用ゆらぎの学理基盤を確立した(図7)。以上から研究課題1の達成度を「A:研究目的に照らして期待通りの成果を得た」と判断した。

【研究課題2の達成度:A】

有効な計測法が少ないため、プラズ マとナノ界面相互作用ゆらぎの計測評 価から得られる情報は極めて少ない。 プラズマナノ界面相互作用ゆらぎの抑 制による超高精度トップダウンプロセ スを実現するためには、プラズマとナ ノ界面の相互作用のモデリングが重要 な役割を果たす。斧らはトップダウン プロセスの代表とも言える半導体エッ チングプロセスのシミュレーションに おいては指導的な立場にあるものの、 さらなるシミュレーション精度の向上 には、計測結果との比較が必要である。 特にナノ構造評価、表面の化学結合評 価、ナノ界面へ入射したイオン・ラジ カルの振る舞いの評価が重要である。 これらを補うために、八田、篠原、浜 口らの公募研究と連携して、それぞれ の研究者が持つ知見を斧らのシミュレ ーションモデルに統合して、エッチン グプロセスの大規模な3次元シミュレ ーションを行った。この解析結果を基 にプラズマとナノ界面相互作用ゆらぎ の抑制による超高精度エッチングプロ セスの実現を果たした (図8)。本研究 成果は、日本の半導体産業の発展に大 **きく寄与するものである**。以上から研 究課題2の達成度を「A: 研究目的に照 らして期待通りの成果を得た」と判断 した。

【研究課題3の達成度:A】

プラズマナノ界面相互作用ゆらぎの 増幅による自己組織化を制御したボト ムアッププロセスの実現に関する研究 について、本研究領域では、超臨界プ ラズマを新しい化学反応場として用い た。寺嶋らは、研究開始当初、超臨界 プラズマ中において密度ゆらぎが起き ることを明らかにしていた。超臨界プ ラズマを物質合成のための新規化学反 応場として用いることを検討していた 後藤らとの連携により、超臨界プラズ マ反応場による高次ダイアモンドイド 作製に成功した。アルツハイマーの薬 剤として期待されている高次ダイアモ ンドイドは、従来人工的に作製するこ とができず、本研究が世界で初めての 成功例である。超臨界プラズマプロセ スの今後の大きな発展が期待される。

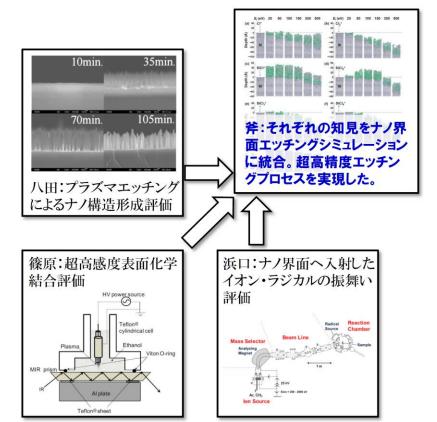


図8. 斧らによるプラズマナノ界面相互作用ゆらぎを抑制した超高精度エッチングプロセスの実現。シミュレーションやナノ界面評価の連携が重要な役割を果たした。

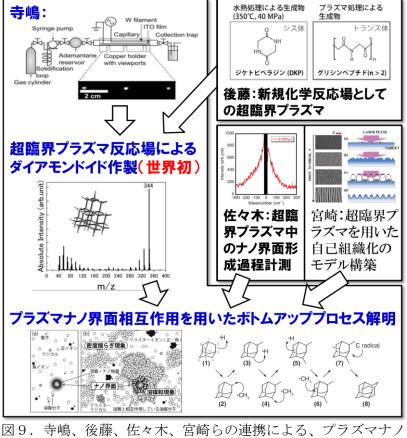


図9. 寺嶋、後藤、佐々木、宮崎らの連携による、プラズマナノ 界面相互作用ゆらぎの増幅による自己組織化を制御したボトム アッププロセスの実現。

また、高次ダイアモンドイドの生成機構の検討では、超臨界プラズマ中の構造形成についての知見が必要である。佐々木らは超臨界プラズマ中のナノ界面形成過程計測に成功し、宮崎らは超臨界プラズマにおけるナノ構造の自己組織化のモデル構築に成功している。寺嶋・佐々木・宮崎らの連携により、超臨界プラズマ中の密度ゆらぎの増幅から高次ダイアモンドイド合成への一貫したモデル構築に成功した(図9)。この結果はプラズマナノ界面相互作用ゆらぎの増幅による自己組織化を制御したボトムアッププロセスの実現とその機構解明に成功したことを示している。以上より、研究課題3の達成度を「A: 研究目的に照らして期待通りの成果を得た」と判断した。

【予想以上の進展が見られた成果】

本研究領域では、上述した3つの研究課題に関する成果の他に、申請当初に期待した研究成果の予想を 上回る進展が見られた成果がある。関連する主な研究成果を以下に示す。

- ・永津、白谷、作道らの連携により、ウイルス抗体を固定化した表面修飾磁気ナノ粒子の作製に成功。このナノ粒子を用いて従来比で17倍以上のウイルスの高濃度化に成功した。(図5) 本研究成果は、ウイルスの超高感度検出技術への応用が期待され、ナノ・バイオテクノロジー分野への波及効果は大きい。プラズマ科学とウイルス学という、大きく異なる2つの研究分野の研究者が連携することは、従来の枠組みでは実現しなかったものであり、本研究領域によって初めて成し遂げられたものである。
- ・白藤、杤久保、村上、斧らの連携により、プラズマプロセスを原子分子オーダーからナノ構造まで 統一的にシミュレートするマルチスケールシミュレーションを構築した。超高精度トップダウンプロセスをはじめとして、プラズマナノ界面相互作用ゆらぎの新しい解析方法を創成した。特に村上

らのシミュレーションは関連する 大気圧プラズマ実験(たとえば杤久 保ら)との比較検証を推進、その信 頼性が海外で高く評価されて英国 Institute of Physics のレポジトリ として登録され^{1,2}、大気圧プラズマ の反応系のデファクトスタンダー ドとなっている(図10)。大気圧 プラズマは、表面改質やプラズマ医 療など様々な分野で用いられてお り、その反応系を標準化した意義は 非常に大きい。

・小松、白谷らの連携により、超臨界 プラズマを用いた新規BNナノ構造 形成機構を解明した。この成果に関 する研究論文が材料科学分野で権 威のある論文誌の表紙に採用され た(図6)。

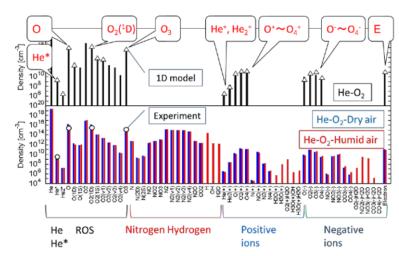


図10.村上らによる大気圧プラズマのシミュレーション結果。 実験結果との比較を行い大気圧プラズマの反応系の世界標準の 信頼性と汎用性を確立した。その信頼性が高く評価されて、 Institute of Physics のレポジトリに登録された。

以上、プラズマとナノ界面の相互作用に関する学術基盤の確立のために設定した3つの研究課題を解決するとともに、想定していた結果以上の成果を得たことより、研究領域全体の達成度を「A+:研究目的に照らして予想以上の成果を得た」と判断した。

参考情報

(登録された IOP レポジトリデータのアドレス。PSST とは Institute of Physics が発行する論文誌 Plasma Sources Science and Technology の略)

- 1. PSST22(2013)Dataset (URL: http://www.qub.ac.uk/research-centres/CentreforPlasmaPhysics/PSST222013Dataset/)
- 2. PSST23(2014)Dataset (URL: http://www.qub.ac.uk/research-centres/CentreforPlasmaPhysics/PSST232014Dataset/)

4. 研究領域の研究推進時の問題点と当時の対応状況(1ページ程度)

研究推進時に問題が生じた場合には、その問題点とそれを解決するために講じた対応策等について具体的に記述してください。 また、組織変更を行った場合は、変更による効果についても記述してください。

研究領域の研究推進時の問題点として、中間評価における評価者から指摘いただいた問題点とともに、 震災の影響、本領域の研究費を辞退する研究者が出た点が挙げられる。それぞれの問題点と対応状況を以 下に示す。

中間評価ヒアリングにおいて、総括班に対して以下の評価を受けた。

- 1. 個別の研究課題としては良い成果が得られているようであるが、連携の状況がよく見えない。 班を超えた連携でどのような具体的な成果が得られたのか。
- 2. A02 班の研究内容が、応用のように見える。
- 3. 領域全体としてどのように学理をまとめていくのかが見えない。
- 4. 他分野への波及効果が期待される成果としてどの様な結果が得られたのか。

上記の評価コメントに対する対応策等は以下の通り。

- 1. 班を超えた連携については、領域内での連携を一層進めるために、合宿型の**全体会議、班会議だけでなく班を横断するテーマ別会議を開催して、関連した研究テーマ間の深い議論と連携を推進した。** その結果、班の枠を超えて計画研究と公募研究が連携して、研究領域の目的を達成した。また、連携推進において、領域の目的以外に予想以上の成果を得ることができた。
- 2. A02 班の研究内容については、班会議などの A02 班の研究成果の検討の場で、ゆらぎ解析を中心議題に据えて議論を進めた。その結果、白谷らは気相中ナノ粒子量の計測結果からナノ粒子成長ゆらぎとプラズマゆらぎの相関について解析を進め理論の構築に成功した。この成果を A01 班や A03 班の研究結果解析に適用して、領域全体の目的の1つであるプラズマナノ界面相互作用ゆらぎの要因と機構を解明するに至った。 杤久保らは数値計算によるプラズマナノ界面相互作用ゆらぎ解析法を確立した。この成果は、プラズマナノ界面相互作用ゆらぎ解析の基盤プラットフォームとしての役割を期待されている。 伊藤らはプラズマ中のラジカル計測を実施して、ナノ領域で顕在化するプラズマと細胞の反応が、生体機能など細胞の階層構造に与えるダイナミクスを明らかにした。公募研究もいずれもプラズマナノ界面相互作用の計測や数値解析に関する研究テーマであり、計画研究が手薄な評価項目を補った。
- 3. 領域全体としての学理構築については、コメント1にも密接に関係しており、領域内における連携が重要である。そこで、全体会議、班会議、テーマ別会議において各計画研究・公募研究が得た研究成果を包括的に議論して、関連する研究テーマ間の連携や研究成果の汎用化を推進した。特に、研究全体としての学理構築で中心課題であるプラズマナノ界面の相互作用ゆらぎの要因と機構解明では、A01 班から A03 班までの各班長が中心となって検討が行われた。A02 班のプラズマナノ界面相互作用ゆらぎ解析結果を A01 班と A02 班の研究に適用して汎用化を進め学理構築に至った。
- 4. 他分野への波及効果が期待出来る主な成果を以下に示す。
 - ・白谷、永津、作道らの連携により、プラズマで表面修飾した磁気ナノ粒子の従来にないウイルス濃縮に成功した。この成果は、**医学分野への波及効果**として期待できる。
 - ・伊藤、作道らの連携により、プラズマによる殺菌メカニズムを原子分子レベルと細胞レベルで解明した。この成果は農業用水処理やポストハーベスト代替など、**農学分野への波及効果**が期待できる。

また、公募研究の研究者に研究費の辞退者が生じたが、その内、齋藤、野崎の2名が最先端・次世代研究開発支援プログラムに採択されたため、本領域の研究費を辞退することとなったことは、本研究領域が取り扱う研究テーマが他の研究分野への波及効果が広く理解されたことを示している。辞退者については、都合のつく範囲で本領域の全体会議、班会議等に参加して、関連する研究成果を報告頂くと共に議論に加わって頂いたが、研究費辞退後の成果は、本領域の成果とはしなかった。

震災の直接的な被害としては、公募研究に参加している金子俊郎(東北大学工学研究科)の居室のある建物が使用不能になるとともに、研究設備に支障が生じた。関係者の努力により、居室の他の建物への仮移設、および研究設備の修復が完了し、研究は無事に再開された。一方、震災の影響による計画停電による研究遂行へ支障が出ることが懸念されたが、班員相互の連携協力により特に問題にはならなかった。

5. 研究計画に参画した若手研究者の成長の状況(1ページ程度)

研究領域内での若手研究者育成の取組及び参画した若手研究者の研究終了後の動向等を記述してください。

【若手育成のための会合開催について】

次世代を担う若手研究者の育成のため、若手を中心とするワークショップや公開シンポジウム開催するとともに、若手育成の場となる学術集会を積極的に協賛、共催、後援した。これは、若手研究者間の連携推進や、若手研究者が海外研究者・熟練研究者と研究人脈を形成することを目的としている。

研究期間5年間に若手育成に関連する会合の合計件数は、主催:9件、共催:14件、協賛:10件、後援:12件であった。開催した主な会合の一覧を下表に示す。

区分	年度	日付	場所	名前
主催	H21	平成22年1月10日	長崎大学	新学術領域若手国際ワークショップ
協賛	H21	平成22年3月11日~12日	名城大学	IC-PLANTS2010
後援	H21	平成21年7月9日~11日	韓国・Kwangwoon University	第9回KJワークショップ
後援	H21	平成22年1月8日~10日	長崎大学	第10回KJワークショップ
主催	H22	平成23年3月1日~4日	スロベニア・ホテルラジュ	新学術領域若手国際ワークショップ
共催	H22	平成22年11月5日~6日	大分·山陽館	第26回九州・山口プラズマ研究会
協賛	H22	平成22年10月11日~14日	長崎全日空ホテル	第3回薄膜Si太陽電池国際ワークショップ
後援	H22	平成22年7月8日~9日	韓国 • Ramada Jeju Hotel	第11回KJワークショップ
後援	H22	平成23年1月5日~6日	九州大学	第12回KJワークショップ
共催	H23	平成24年3月10日	犬山国際観光センター	新学術国際若手ワークショップ
後援	H23	平成23年7月21日~22日	韓国・Daejeon Convention Center	第13回KJワークショップ
後援	H23	平成23年11月22日~25日	石山県立音楽堂	Plasma Conference 2011
後援	H23	平成24年1月7日~8日	九州大学	第14回KJワークショップ
協賛	H24	平成24年11月10日~11日	由布院倶楽部	第28回九州・山口プラズマ研究会
協賛	H24	平成24年12月7日~8日	核融合科学研究所	第13回微粒子プラズマ研究会
協賛	H24	平成25年2月2日~3日	下呂交流会館	IC-PLANTS2013
後援	H24	平成24年6月7日~8日	韓国•成均館大学	第15回KJワークショップ
後援	H24	平成25年1月25日~27日	岡崎コンファレンスセンター	第16回KJワークショップ
協賛	H25	平成25年11月2日~3日	クレドホテル臼杵	第29回九州・山口プラズマ研究会
協賛	H25	平成25年11月14日~15日	野依記念学術交流館	第五回薄膜太陽電池セミナー
協賛	H25	平成26年2月7日~8日	西新プラザ	2014 Japan-Korea Joint Symposium on Advanced Solar Cells
後援	H25	平成26年2月4日~7日	福岡国際会議場	8th International Conference on Reactive Plasmas
後援	H25	平成25年5月24日~25日	韓国·成均館大学	第17回KJワークショップ
後援	H25	平成26年2月7日~8日	西新プラザ	第18回KJワークショップ

【本領域研究に係わった若手研究者の昇任】

本新学術領域研究でポスドクや助教だった7名の若手研究者が昇任した。このことは、本新学術領域研究の重要性を示している。

シュタウス スベン 東京大学・特任研究員 → 東京大学・助教 (2009 年度)

富田 卓朗徳島大学・助教 → 徳島大学・准教授(2013 年度)内田 儀一郎九州大学・助教 → 大阪大学・准教授(2013 年度)

北崎 訓 九州大学・ポスドク → 福岡工業大学・助教 (2014 年度) 太田 貴之 和歌山大学・助教 → 和歌山大学・准教授 (2009 年度) 橋爪 博司 名城大学・ポスドク → 名古屋大学・特任助教 (2013 年度)

鷹尾 祥典 京都大学・助教 → 横浜国立大学・准教授(2014年度)

【本領域研究に係わった若手の人数】

本領域研究では、下表に示す学生を教育・指導して、次世代を担う若手研究者の育成に努めた。

	2009	2010	2011	2012	2013	合計
ポスドク数	15	11	13	11	11	61
博士課程学生数	30	46	48	38	41	203
修士課程学生数	138	182	210	194	176	920
学部学生数	128	138	159	159	157	741

6. 研究経費の使用状況(設備の有効活用、研究費の効果的使用を含む)(1ページ程度)

領域研究を行う上で設備等(研究領域内で共有する設備・装置の購入・開発・運用・実験資料・資材の提供など)の活用状況や研究費の効果的使用について総括班研究課題の活動状況と併せて記述してください。

【研究設備の有効活用】

限られた予算内で効果的に研究を進めるため、本研究領域では、それぞれの計画研究や公募研究で購入した設備・備品は原則的に領域内の全ての研究者に開放した。これを実現するために本研究領域では、総括班をプラットフォームとして、本領域研究内で購入した設備やその他の共用可能な設備を計画研究と公募研究間の領域内連携や領域外研究者の領域外連携で使用可能にした(図11)。

領域内連携では、まず学術会議や領域内の全体会議・班会議等において、公募研究または計画研究による研究連携が議論される。次に、研究遂行に必要な研究設備について研究代表者から総括班に問い合わせがある。問い合わせに対して領域代表者がイニシアチブを取って総括班内で意見交換を行う。その後、領域内研究者に設備使用許可・スケジューリングをお願いして、研究設備の共用を図った。具体例の1つとして

公募研究 領域内 ③研究設備共用 または 研究者 計画研究 ← ①研究設備につい ②研究設備使用のお願い、又は 総括班で購入した備品の貸与 ての問い合わせ 領域内の 総括班 連携 計画研究代表者が 領域外と 総括班の分担者 の連携 ②研究遂行に必 ③領域内の備品使用のお願 要な装置の要請 い、又は総括班で購入した 備品の貸与 領域内 領域外 ①共同研究 研究者 研究者

図11. 総括班をプラットフォームとした研究設備共用体制の概要。

は、白谷・永津・作道の3者による研究連携がある。永津らの研究では、ナノ粒子の表面修飾機構の検討のために、プラズマ中におけるナノ粒子の振る舞いを明らかにする必要があった。しかしながら、気相中のナノ粒子計測法のノウハウや計測装置を所有していなかった。そこで、気相中ナノ粒子計測法では指導的立場にいる白谷と連携し、レーザなどの計測装置の貸与や計測法についての指導受けた。この結果、より効率的なナノ粒子表面修飾が可能となり、作道との研究連携による表面修飾磁気ナノ粒子を用いた従来にない高濃度ウイルス濃縮の成功につながった。

領域外連携では、領域内研究者と領域外研究者の研究連携のために必要な備品の共用化を行うと共に、領域内にはない備品の場合総括班予算で購入して、これを貸与した。具体例の1つとしては、佐々木浩・白谷・仏グルノーブル大のサデギ教授との研究連携がある。白谷や佐々木の研究では、プラズマ中のラジカル計測など重要となる。そこで、プラズマ中ラジカルのレーザ計測の大家であるサデギ教授と連携して、レーザ計測のノウハウを指導いただいた。この際に用いたレーザ計測関連機器の一部(コヒレント製WaveMate Delux やインデコ製ファブリペローインターフェロメタ)については、総括班予算で購入し研究に使用した。その他の計測機器については、佐々木、白谷の持つ装置を相互利用した。この連携により、反応性プラズマ中のナノ粒子生成とラジカル密度揺動が相関している事を明らかにして、プラズマとナノ界面の相互作用ゆらぎの決定機構解明に貢献した。

【研究費の効果的使用】

領域外研究者を招聘し共同研究の遂行や研究についての深い議論を行う場合、個々の計画・公募研究の研究費で招聘すると、研究遂行に用いる研究費を圧迫する可能性を考えて、国内外からの研究者招聘費用については出来る限り総括班で支出した。研究期間内に総括班が招聘した日本人研究者はのべ24名、外国人研究者は8名であった。招聘した外国人研究者の一覧を下表に示す。

期間	氏名	所属	職名
平成 22 年 3 月 5 日~13 日	Alexander Fridman	Drexel University	Professor
平成 23 年 8 月 17 日~9 月 9 日	Harm Wulff	University of Greifswald	PD Dr.
平成 23 年 8 月 17 日~9 月 9 日	Sven Bornholdt	University of Kiel	Ph. D. Student
平成 24 年 1 月 5 日~10 日	Mau Chien Dang	Vietnam National University-Ho Chi Minh City	Professor
平成 24 年 1 月 5 日~9 日	Yap Seong Ling	University of Malaya	上級講師 Dr.
平成 24 年 1 月 6 日~9 日	Pradoong Suanpoot	Maejo University Phrae Campus	Assistant Professor
平成 24 年 9 月 21 日~10 月 3 日	Joanna Pawlat	Lublin University of Technology	Associate Professor
平成 25 年月 12 日~19 日	Francis F. Chen	University of California	Professor Emeritus

7. 総括班評価者による評価(2ページ程度)

総括班評価者による評価体制や研究領域に対する評価コメントを記述してください。

【総括班評価者による評価体制】

東北大 畠山力三教授、長崎大 藤山寛教授、名古屋大 堀勝教授の3名の先生方に評価者をお願いした。全体会議や班会議などに参加していただき、広い視野からのコメントを頂いたが、特に3名の先生方全員が全体会議・班会議にほぼ毎回に参加し、真摯に本領域の行く末を見つめて、コメントしていただいたことは特筆すべきことである。

本領域の研究活動を国際化するためには、外国人研究者による評価が重要であると考え、Prof. L. Boufendi (Universite d'Orleans, France)、Prof. K. Ostrikov (CISRO, Australia)、Prof. M. Mozetic (Stefan Instistute, Slovenia)の3名を評価者として迎えた。いずれの評価者もプラズマ科学やナノテクノロジー分野で指導的立場にいる。海外の総括班評価者の来日時、あるいは領域代表者が海外研究会等で、本領域の研究内容について説明し、評価と助言を頂いた。

良い意味での競争を刺激するために、平成23年度より「Nanointerface Innovative Award」を、全体会議の最後に総括班評価者の合議により領域参加者から選出することとした。

第1回目の受賞者は、平成23年5月の全体会議において、作道章一准教授(琉球大学医学部)の「プラズマとプリオンやウイルスのナノ粒子・構造体相互作用」が選出された。プラズマとプリオンやウイルスのナノ粒子・構造体相互作用のメカニズム解明に格段の進歩があったことが選出理由である。研究期間中、プラズマ分野の研究者との連携の中で、バイオ分野の反応解析におけるノウハウやウイルス・プリオンの知見を提供いただいたことは、プラズマバイオ科学が発展するのに大きな貢献をした。

第2回目の受賞者は、平成24年1月の全体会議において、伊藤昌文教授(名城大学理工学部)の「プラズマと菌細胞ミクロ構造体との相互反応ダイナミクス」が選出された。計測が困難な大気圧プラズマ中の酸素原子・分子計測に成功し、プラズマと生体相互作用の解析に道を開いたことが選出理由である。

第3回目の受賞者は、平成25年1月の全体会議において、寺嶋和夫教授(東京大学新領域)の「超臨界クラスタ流体の材料科学」が選出された。プラズマとナノ界面の相互作用ゆらぎの増幅の理論的検討が、研究領域全体の目標達成に資するものであったことが選出理由である。超臨界プラズマは新しい反応場として大きな期待が寄せられるとともに、プラズマ科学の将来的な発展のためのシーズである。

第4回目の受賞者は、平成26年1月の全体会議において、杤久保文嘉教授(首都大東京理工学研究科)の「粒子輸送と熱的作用を考慮したプラズマと物質の相互ダイナミクスの解析」が選出された。プラズマとナノ界面の相互作用に関する数値シミュレーションを著しく発展させたことが選出理由である。本研究により、相互作用ゆらぎの解析法としての数値シミュレーションは重要な解析手段となった。

【総括班評価者のコメント】

畠山、藤山、堀の各先生は全体会議・班会議において毎回、多くの評価と助言を頂いている。**評価委員全員から、研究領域が設定した研究課題に対して期待通りもしくは期待以上の成果を挙げたと評価して頂いている。**以下に、領域をさらに良くするために頂いたコメントを記載する。

1. 畠山力三(東北大学工学研究科・教授)

中間評価時のコメント

時間に関する揺らぎ、空間に関する揺らぎ、エネルギー分布等の分布に関する揺らぎの3種類の揺らぎを意識して相互作用の解明を進めて欲しい。個々の研究では、どの揺らぎに関係しているかを意識して研究を進めて欲しい。

コメントに対する対応

全体会議や班会議で各計画研究・公募研究の代表者が成果報告をする際、研究領域の設定課題に対する 貢献について説明して、どの揺らぎに関連しているかを明確に示すこととした。その結果、同じ揺らぎの 種類に関する研究同士の討論と連携研究が活発になり、領域を横断した研究連携が多く実現した。

最終評価:A

プラズマナノ界面相互作用ゆらぎの解明と揺らぎを制御したトップダウンプロセスとボトムアッププロセスの実現という領域研究の目標は充分に達成されたと考える。

総括班を中心として、研究領域内外の連携研究を推進し、ナノ界面の普遍性が浮かび上がるように、各研究課題を分析・組み合わせ纏め作業を丁寧に行ったことは評価できる。得られた領域全体としての成果を他分野の研究者が容易に受け入れられるようにさらなる情報発信や他分野の研究者との合同研究会を今

後も継続的に開催して欲しい。

またプラズマ科学とはかけ離れた、医学や農学などへの波及効果が期待出来ることは予想以上の成果であると評価できる。また、本研究領域の中心的な役割を果たした、「ナノ粒子含有プラズマによるナノ界面ボンドエンジニアリングの創生(白谷教授)」について、ナノ界面ボンドエンジニアリングについては今後のプラズマプロセスの発展を担う考え方であると考えられるので、より一層の研究推進を望む。

2. 藤山寛(長崎大学生産科学研究科・教授)

中間評価時のコメント

計測を中心とした研究をもっと推進すべきである。特に、A02 班との研究協力をより積極的に進めることが、領域全体の発展につながるはずである。

コメントに対する対応

プラズマナノ界面相互作用を理解する上で、計測についての研究は必須のものであり重点化するため、第2期の公募研究の採択について A02 班に重点を置いた措置を取った。その結果、計測・シミュレーション解析研究を活性化させ、Institute of Physics リポジトリデータベースに採択されるという快挙などを成し遂げた。また A02 班と他の研究班の研究協力をより積極的に進めるため、領域代表者主導で班会議の他にテーマ別会議を開催し、領域横断型の研究連携を強化した。

最終評価:A

第2期の公募研究採択の重点を計測・解析に関する研究に置いたことは有効な対策であり、新学術領域研究における公募研究の重要さを再認識した。

また、年に複数回、若手のための会議を開いたことは、若手育成に対する貢献として評価できる。

本領域のプラズマのナノ界面プロセス研究は、応用物理学会プラズマエレクトロニクス分科会で作成した応用物理分野のアカデミック・ロードマップが予想したプラズマエレクトロニクス研究を少なくとも数年は先に押し進めた。今後とも、「作る」「見る」「使う」を三位一体として研究推進することを望む。

3. 堀勝(名古屋大学工学研究科・教授)

中間評価時のコメント

A03 班においては、プラズマとナノ界面の相互作用の何を活かして応用を発展させるのかの視点が重要である。

コメントに対する対応

班会議での成果報告では、プラズマナノ界面相互作用との関連を明確にすることを各研究代表者に求めた。その結果、各研究におけるプラズマナノ界面相互作用の理解が深まった。斧らの超精密 LSI トップダウンプロセスの実現や、永津らの機能性ナノ粒子のバイオ応用実現などは、相互作用機構の理解の上に成し遂げられた成果である。

最終評価:A

プラズマナノ界面相互作用ゆらぎの制御を実現し、LSI 作製技術を発展させたことは評価に値する。ただ、相互作用ゆらぎ機構の研究については、当初の目標を達成したと思うがまだ不明な点も多く、相互作用ゆらぎに対する理解をより深化させて、これを応用に結びつけていただきたい。

本領域研究で明らかになったナノ界面プラズマの学理は、非線形統計物理学との結びつきを経て、電気化学や生化学、医学、農学分野へとすそ野を広げることが期待できる。成果を広く一般に還元するためには、得られた学理を如何に応用研究へと結びつけるかが重要である。プラズマと生体の相互作用に関する本領域における研究が、プラズマ医療へと応用発展したこと、半導体プロセスのより高精度な制御を可能にしたことは、応用研究の成功例と考えられる。

海外の総括班評価者である Prof. L. Boufendi、Prof. K. Ostrikov、Prof. M. Mozetic からは継続的に協力していただいている。さらに、国内外で開催している若手中心の国際研究集会に出席して頂き、示唆に富んだ助言により若手研究者の研究に対する熱意を高揚していただいている。領域全体に対する評価としては、世界に先駆けて重要な領域の研究を組織的に進めており、領域の基盤的な成果に加えて発展性に富む萌芽的な成果が得られた、高い評価を得ている。

8. 主な研究成果(発明及び特許を含む)[研究項目毎または計画研究毎に整理する]

(3ページ程度)

新学術領域研究(公募研究含む)の研究課題を元に発表した研究成果(発明及び特許を含む)について、現在から順に発表年次をさかのぼり、図表などを用いて研究項目毎に計画研究・公募研究の順に整理し、具体的に記述してください。なお、領域内の共同研究等による研究成果についてはその旨を記述してください。

【研究項目 A01:ナノ界面プラズマを作る】

プラズマとナノ界面の相互作用を理解し制御して使用するためには、この相互作用が顕著に表れる系を作ることが重要である。この視点から A01 班の計画研究では、寺嶋が超臨界クラスタ流体中のプラズマを、白藤が集積化マイクロソリューションプラズマを、佐々木(北大)が固・液・気・超臨界相が混在するプラズマを創成してきた。

寺嶋は、材料科学的な視点から超臨界クラスタ流体中のプラズマ生成法の確立を目的として研究を推進した。レーザアブレーション、誘電体バリア放電、ナノパルス放電の3つの方法で、超臨界クラスタ流体中のプラズマを生成した。これらのプラズマを用い、新規ダイヤモンド分子を含むダイヤモンドイドの人工合成(『世界初』)、臨界点付近の超臨界クラスタ流体領域で、各種のアダマンタン生成速度が極大を取ること(臨界異常)(図12)、合成プロセスがn次のアダマンタンを経てn+1次のアダマンタンが生成する逐次反応でよく記述できること、光プロセス、大気圧プラズマとの比較した本プロセスの優位性、などを明らかにした(業績21,22,50,51,75)。これらの成果について超臨界Xeプラズマにおける、高次ダイアモンドイドの形成機構を世界で初めて明らかにした論文(業績2)に対して掲載論文誌Jpn. J. Appl. Phys.の Spotlight に選定された。その他にも、2014年 Plasma Sources Sci. Technol.に投稿した論文(掲載予定)に対して同誌の

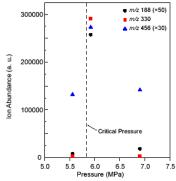


図12. 密度揺らぎに対応し た高次ダイアモンドイドの 合成速度の増大。

Lab Talk に、2011 年 J. Appl. Phys.に投稿した論文 (業績 76) に対して Research Highlight に選定されるなど、世界から注目を浴びている。超臨界クラスタ流体における高次ダイアモンドイド合成機構を解明するにあたり、白谷らと連携して、プラズマ摂動とナノ粒子生成の相関に関する考え方を取り入れたことが重要なステップとなった。

白藤は、気液ナノ界面の相互作用を解明することを主目的とし、気液二相が混在する媒質中でのプラズマ生成法を発展させた。具体的には、新しく液中の気泡サイズ、位置がそろった気液二層プラズマを直径 80mmの面内に集積した「集積化マイクロソリューションプラズマ」を実現した(『新しい着想』、業績 4, 23, 24)。気液ナノ界面における反応では、プラズマが電極の役割を担っているという見る事ができる(首都大東京・杤久保との連携の成果、業績 3)この考え方は電気化学の考え方と同じであり、電気化学分野への波及効果が期待される。また、気液界面反応の理解には、界面におけるシミュレーションが重要であり、東工大・村上の協力を得て実施することが可能となった。

佐々木は、液中レーザアブレーションにより固・液・気・超臨界相が混在するプラズマを生成し、その学理を探求するとともに材料創成への応用を目的として研究を進めた。液中アブレーションの創成により、ZnO 球状ナノ粒子の作製に成功した(業績 25)。この成果は従来作製が不可能だったワイドバンドギャップ半導体のような材料の球状化や、大量合成につながるものであり、液中アブレーション中でのナノ粒子生成反応場がキャビテーションバブルであることを突き止めた(『世界初』、業績 104, 105, 120)ことで初めて得られた成果である。

公募研究においては以下の研究を推進した。宮崎は fs レーザアブレーションによって固体表面に形成される周期構造の研究をすすめた。2013 年には周期構造の微細化に成功した(業績 32, 33)。これは、2010年に構造形成の主な物理過程が表面プラズモン・ポラリトンの励起であることを突き止めたことで発展した成果である(業績 111)。八田は、プラズマ CVD(第 2 期公募研究)、プラズマエッチング(第 1 期公募研究)による自己組織的ナノ構造形成過程に関する研究をすすめた。特にプラズマエッチングに関する研究(業績 88,)は、京大・斧との連携において、シミュレーションモデル構築で重要な知見を与えた。和田は、レーザ照射による固液界面でのプラズマ生成によるナノ粒子作製について研究した。白谷らとの連携により、レーザにより作製したナノ粒子を初めて太陽電池材料として評価することができ(業績 16)、従来のプラズマ CVD で作製した太陽電池と評価法を共通化することで、エネルギー分野への応用を目指した研究に発展した。

【研究項目 A02:ナノ界面プラズマを見る】

プラズマとナノ界面の相互作用を理解し制御して使用するためには、この相互作用に関係する諸量を計測することが必要不可欠である。この視点から A02 班の計画研究では、白谷がプラズマ・固体界面に関係する諸量を、栃久保がプラズマ・液体界面に関係する諸量を、伊藤がプラズマ・生体界面に関係する諸量を計測することを中心に研究を推進し、領域内連携において中心的な役割を果たした。

白谷は、反応性プラズマ中のナノ粒子をプラズマと固体ナノ界面相互作用のモデルとして研究を進め、ナノ粒子成長とラジカルの密度揺動がカップリングして、ナノ粒子成長揺らぎ(サイズ分散)を決定することを明らかにした(図13、業績 1)。これらの結果は、反応性プラズマ中のナノ粒子生成という限られた系ではあるが、相互作用ゆらぎの決定機構を明らかにした。斧との連携により、この成果を斧のモデル構築に活用した結果、ゆらぎを抑制したナノ構造のトップダウンプロセスを実現した(業績 129, 137)。寺嶋との連携により、揺らぎの増幅によるナノシステムのボトムアッププロセスを実現した(業績 130, 135)。成長揺らぎの検討においては、Ar 準安定原子密度の計測(Prof. Sadeghi との領域外連携)による気相中ラジカル密度の評価が重要な役割を果たした。本研究の成果を発表した論文(業績 74, 78)は月間ダウンロード数Top10 入りや、公表後2ヶ月で 250 回以上ダウンロードされ、本領域の研究が世界的に高い注目を集めて

いることを示している。また、ナノ界面とプラズマの相互作用の素過程を明らかにするため、世界で初めてプラズマ中の微粒子1個をレーザ光で捕捉することに成功し、捕捉微粒子とプラズマの相互作用その場計測に成功した(『世界初』、J. Phys. Conf. Seriesに掲載予定)。

杤久保は、プラズマ・液体界面の相 互作用解明を目的として、主として液 体電極と希ガス流を用いた大気圧直 流グロー放電の診断とシミュレーシ

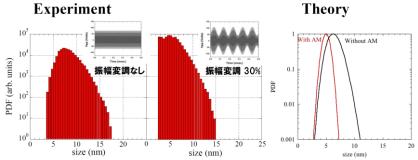


図13. プラズマ中ラジカル密度摂動によるナノ粒子サイズ分布の 狭分散化(成長揺らぎの制御)。ナノ粒子成長とラジカルのカップリ ングを考慮に入れた理論計算結果は、実験結果とよく一致している。

ョンを行った。プラズマ・液体界面にかかわる現象を解明するため、気流を考慮した大気圧直流グロー放電のシミュレーションと液中の電界反応のシミュレーションを行った。このシミュレーションを用いて、直流グロー放電における自己組織化を再現することに成功した(業績 81,82)。この成果は、プラズマのバイオ応用における大気圧放電の解析の基盤プラットフォームとしての役割を期待されている。

伊藤は、ナノ領域で顕在化するプラズマと細胞の反応が、生体機能など細胞の階層構造に与えるダイナミクスを明らかにした(業績 28, 29)。この成果は、蛍光顕微鏡を用いたプラズマ照射下での細胞の変化、細胞へのラジカル輸送を可視化するシステムの構築と、大気圧プラズマ中の酸素原子密度の 2 次元空間分布計測により初めて得られた結果である。これらは、ラジカルの細胞内への侵入経路、細胞内での輸送と細胞内物質との相互作用を解明するための基盤となる成果である。

公募研究においては以下の研究を推進した。京都工繊大・高橋は、プラズマとナノ界面における化学反応 解析用浮遊型熱センサを開発するために、プラズマとナノ粒子の界面における熱ダイナミックスに関する研 究を推進して、蛍光ナノ粒子を用いてナノ粒子の表面温度計測に成功した。浜口はシミュレーションとビー ム実験により、プラズマナノ界面相互作用の解析と原子スケール構造制御について研究を推進した。その結 果、DLC 形成過程において sp³ 混成軌道形成に水素が重要な役割を果たすこと、また水素イオン照射によ る酸素の増殖拡散効果があることを明らかにした(『世界初』業績 62,91)。斧との連携により、この増殖拡 散が LSI のゲートエッチングで問題となるシリコン・リセスをもたらしている可能性が極めて高く、問題 解決の糸口が得られた。篠原はシリコン表面における化学反応解析をプラズマナノ界面相互作用解析に適用 して、**斧との連携**の中で界面での化学反応に関する知見(業績17,37)がモデル化に貢献した。作道は第1期、 第2期においてバイオ分野の反応解析手法を上手く適用し、プラズマとプリオンやウイルスの相互作用のメ カニズム解明を進めた。プラズマ照射が酸化ストレスにより、インフルエンザウイルスの蛋白質の構造変 化・分解および脂質の修飾を誘起し、結果としてウイルスを不活化していることが世界で初めて示唆された (『**世界初**』、業績 39, 40)。また領域内の研究者との連携において、バイオ分野の反応解析手法をプラズマ 科学分野に定着させた功績は大きい。**村上**は、**杤久保、白藤らとの連携**により、信頼性の高い大気圧プラズ マシミュレーションを実現した (業績 18,41,42)。その高い信頼性が認められそのデータセットが英国 IOPのリポジトリとして登録された。

【研究項目 A03:ナノ界面プラズマを使う】

プラズマとナノ界面の相互作用を理解し応用するためには、この相互作用を有効に活かした応用を発展させることが重要である。この視点から計画研究では、斧は次世代ナノ加工技術に関係する応用を、後藤は超臨界流体プラズマの材料プロセシングおよび物質変換手法への応用を、永津はバイオ・医療分野への応用を目的としてナノ粒子創成を、小松はプラズマ揺らぎが誘起する多形結晶創成を中心に研究を推進した。

斧は、プラズマと薄膜表面・界面の階層的複合反応制御による次世代ナノ加工技術の構築について、①微

細パターン底面・側面においてナノスケールの微小な寸法誤差・形状異常・界面変質層を生じる要因と発現機構解明、および②ナノスケールで顕在化する相互作用、特にナノスケール相互作用の揺らぎの機構モデルの構築を進めた。白谷の計画研究の成果である振幅変調放電をエッチングプラズマに適用して、表面ラフネス低減を実証した『世界初』(J. Vac. Sci. Technol. B 掲載予定)。この結果は超高精度エッチングプロセスとして、揺らぎの無い 10 nm レベルの極微細加工プロセス構築をはかるための基盤となる成果である。斧が開発した原子スケールセルモデル(ASCeM)では、新たに三次元モデルASCeM-3Dを構築し、ナノスケールの表面ラフネスと側壁ラインエッジラフネス様の表面リップル構造を世界で初めて再現した(図14、業績129)。(浜口、篠原、八田との連集)

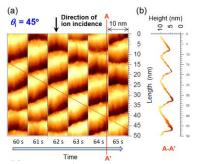


図14.3次元原子スケールセルモデルによるエッチング表面でのラフネス形成の再現。

後藤は、超臨界中で形成したマイクロエマルジョン界面とプラズマの相互作用を利用した材料プロセシングおよび物質変換手法の構築に成功した。超臨界流体でのレーザアブレーションによる金等のナノ粒子の形状の顕著な圧力依存性を確認。機構解明のため北大・佐々木と連携してプラズマ発光強度を測定した。また超臨界流体でのプラズマがアルゴン・アラニン系でのナノパルス放電プラズマによりアラニン重合体(オリゴペプチド)の生成に成功した(『世界初』、業績 12)。プラズマ無しでは全く生成されないことから、超臨界プラズマに特徴的な新規反応であるといえる。この研究成果は、超臨界クラスタ流体での高次ダイアモンドイド形成機構解明への重要な知見を与えた(寺嶋との連携)。

永津は、ナノ粒子のバイオ・医療分野への応用を目的とし、①磁気ナノ粒子表面のプラズマ化学修飾による溶液への分散性向上と多糖類の固定化、作製したナノ粒子による従来にない高い濃度のウイルス濃縮(作道との連携)、 $2O_2/He$ プラズマ雰囲気レーザアブレーションによる高結晶性 ZnO ナノ粒子の作製 (白谷との連携)を実現した。

小松は、レーザ支援プラズマ CVD を用いて、生成系の相対的回転運動とパルスレーザによる周期的エネルギー注入を導入することで、3 段階の階層的パターン形成が生成することを実験的に発見した(**白谷との連携**、業績 14)。これは、プラズマ CVD という反応拡散系にパルスレーザによる表面反応の周期的励起を導入することによって実現した自己組織的秩序形成として新しい物理化学現象である。またレーザ支援プラズマ CVD により成長したミクロコーンの周囲に同心円状の波紋模様が発達していることを見いだした。この波紋模様の発生機構として、薄膜表面への直接光とコーン表面からの反射光の干渉モデルを提案し、測定結果と良く一致した。レーザ支援プラズマ CVD 方による結晶成長が光励起表面反応の結果であることが実験的に証明された

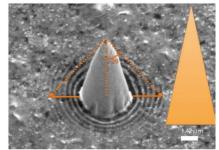


図 15. レーザ支援プラズマ CVD で作製したミクロコーンの周囲に 発達した波紋模様。図中のスケールバーは $1.42\mu m$ を示す。

(白谷との連携(同誌の表紙を飾った)、業績13)。

公募研究は多岐に亘り、計画研究ではカバーしきれない応用 分野について研究され多くの世界初の成果がえられた。特に、 石島は、新たに開発した液中マイクロ波バブルプラズマの極め て高い界面反応場を用いて超高速レジスト膜除去を実現した (図15)。この方法は、薬液を用いることなく低温でレジストの高速除去が可能であり実用化が期待される。この成果を報告した論文は同誌の Editor's Choice に選定され注目されている (業績48)。



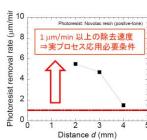


図15。液中マイクロ波バブルプラズマの 写真と高分子膜の高速除去の結果。

9. 研究成果の取りまとめ及び公表の状況(主な論文等一覧、ホームページ、公開発表等)(5ページ程度)

新学術領域研究(公募研究含む)の研究課題を元に発表した研究成果(主な論文、書籍、ホームページ、主催シンポジウム等の状況)について具体的に記述してください。論文の場合、現在から順に発表年次をさかのぼり、計画研究・公募研究毎に順に記載し、研究代表者には二重下線、研究分担者には一重下線、連携研究者には点線の下線を付し、corresponding author には左に*印を付してください。また、一般向けのアウトリーチ活動を行った場合はその内容についても記述してください。

【領域全体の状況概要】領域の主要成果を 2014 年 1 月に Jpn. J. Appl. Phys. 特集号として刊行した。 領域の解説論文 6 編が 2014 年 7 月のプラズマ・核融合学会誌に小特集として出版される。

論文 • 書籍件数	招待講演数 (総講演件数)	特許数	受賞数	新聞発表 件数	アウトリ ーチ活動	ホームページ
895	435 (3119)	106	155	31	312	http://mm4.ed.kyushu-u.ac.jp/kyudai/index.html

【主な論文】全895件

2014年(計画研究)

- 1. *M. Shiratani, K. Koga, K. Kamataki, S. Iwashita, G. Uchida, H. Seo, and N.Itagaki, Theory for correlation between plasma fluctuation and fluctuation of nanoparticle growth in reactive plasmas, Jpn. J. Appl. Phys., 53 (2014), 010201
- 2. F. Oshima, S. Stauss, Y. Inose and *<u>K. Terashima</u>, Synthesis and investigation of reaction mechanisms of diamondoids produced using plasmas generated inside microcapillaries in supercritical xenon, Jpn. J. Appl. Phys., **53** (2014), 010214(8). [SPOTLIGHTS [:選定]
- 3. T. Shirafuji, A. Nakamura and *F. Tochikubo, Numerical simulation of electric double layer in contact with dielectric barrier discharge -Effects of ion transport parameters in liquid, Jpn. J. Appl. Phys., 53 (2014), 03DG04 (6pp)
- 4. *T. Shirafuji, Y. Oguda and Y. Himeno, Time-resolved optical emission spectroscopy on three-dimensionally integrated micro-solution plasmas, Jpn. J. Appl. Phys., 53 (2014), 010211 (6pp)
- 5. Y. Hayashi, Wahyudiono, S. Machmudah, N. Takada, H. Kanda, K. Sasaki, and *M. Goto, Decomposition of methyl orange using pulsed discharge plasma at atmospheric pressure: Effect of different electrodes, Jpn. J. Appl. Phys. 53 (2014), 010212
- 6. N. Takada, S. Machmudah, H. Goto, Wahyudiono, M. Goto, and *K. Sasaki, Characteristics of optical emission intensities and bubblelike phenomena induced by laser ablation in supercritical fluids, Jpn. J. Appl. Phys., 53 (2014), 010213
- 7. Alexander Pyatenko, Hongqiang Wang, *Naoto Koshizaki, Growthmechanism of monodisperse spherical particles under nanosecond pulsed laser irradiation, Journal of Physical ChemistryC, 118 (2014), 8, 4495-4500, 「インパクトファクター IF: 4.814]
- 8. *M. Shiratani, K. Koga, K. Kamataki, S. Iwashita, G. Uchida, H. Seo, and N.Itagaki, Theory for correlation between plasma fluctuation and fluctuation of nanoparticle growth in reactive plasmas, Jpn. J. Appl. Phys., 53 (2014), 10201
- 9. *H. Hashizume, <u>T. Ohta, K. Takeda</u>, K. Ishikawa, M. Hori, <u>M. Ito</u>, Oxidation mechanism of Penicillium digitatum spores through neutral oxygen radicals, Japanese Journal of Applied Physics, **53** (2014), 010209, [SPOTLIGHTS 定义]
- 10. Y. Minagawa, N. Shirai, S. Uchida, *F. Tochikubo, Analysis of effect of ion irradiation to liquid surface on water molecule kinetics by classical molecular dynamics simulation, Jpn. J. Appl. Phys. 53 (2014), 010210
- 11. *N. Shirai, S. Uchida, F. Tochikubo, Synthesis of metal nanoparticles by dual plasma electrolysis using atmospheric dc glow discharge in contact with liquid, Jpn. J. Appl. Phys, 53 (2014),046202.
- 12. Y. Hayashi, Wahyudiono, S. Machmudah, N. Takada, <u>H. Kanda, K. Sasaki</u>, *<u>M. Goto</u>, Decomposition of methyl orange using pulsed discharge plasma at atmospheric pressure: Effect of different electrodes, Jpn. J. Appl. Phys., <u>53</u> (2014), 1021218
- 13. *Shojiro Komatsu, Masaharu Shiratani, Formation of microcones accompanied with ripple patterns in laser-activated plasma CVD of sp3-bonded BN films, J. Mater. Res., 29 (2014), 485-491., [Cover Paper [之実定]
- 14. *Shojiro Komatsu, Masaharu Shiratani, Self-organized formation of hierarchically-ordered structures in laser-activated plasma CVD of sp3-bonded BN films, Jpn. J. Appl. Phys. 53 (2014), 010202(1-6)

2014年(公募研究)

- 15. *K. Miyazaki and G. Miyaji, Mechanism and control of periodic surface nanostructure formation with femtosecond laser pulses, Appl. Phys. A, 114 (2014), No.1, 177–185
- 16. Hiroki Kobayashi, Pattarin Chewchinda, Yasunori Inoue, Hiroshi Funakubo, Michikazu Hara, Masaie Fujino, Osamu Odawara, and *Hiroyuki Wada, Photovoltaic Properties of Si-Based Quantum-Dot-Sensitized Solar Cells Prepared Using Laser Plasma in Liquid, Japanese Journal of Applied Physics, 53 (2014), 010208
- 17. *Masanori Shinohara, Taka-aki Kawakami, Ko-jiro Hara, Shohei Yagi, Yoshinobu Matsuda, Hiroshi Fujiyama, Reactions of Surface Hydrogen on Amorphous Carbon Films with Hydrogen Plasma, Jpn. J. Appl. Phys., 53 (2014), No. 1, 010204 (6 pages)
- 18. *T. Murakami, K. Niemi, T. Gans, D. O'Connell and W. G. Graham, Afterglow chemistry of atmospheric pressure helium-oxygen plasmas with humid air impurity, Plasma Sources Science and Technology, 23 (2014), no. 2, 025005, [IOP Select に選定]
- Wei Xie, Naoki Muraya, Takashi Yanase, Taro Nagahama, *<u>Toshihiro Shimada</u>, Diamond-like carbon doped with highly π -conjugate molecules by plasma-assisted CVD, Jpn. J. Appl. Phys., 53 (2014), 010203.

2013年(計画研究)

- *Hyunwoong Seo, Yuting Wang, Giichiro Uchida, Kunihiro Kamataki, Naho Itagaki, Kazunori Koga, Masaharu Shiratani, Analysis on the effect of polysulfide electrolyte composition for higher performance of Si quantum dot-sensitized solar cells, Electrochimica Acta, 95 (2013), 43-47
- 21. *K. Urabe, H. Muneoka, S. Stauss, and K. Terashima, Development of Near-Infrared Laser Heterodyne Interferometry for Diagnostics of Electron and Gas Number Densities in Microplasmas, Appl. Phys., Express 6 (2013), 1261018(4)
- 22. *K. Urabe, T. Kato, S. Stauss, S. Himeno, S. Kato, H. Muneoka, M. Baba, T. Suemoto, and K. Terashima, Dynamics of pulsed laser ablation in high-density carbon dioxide including supercritical fluid state, J. Appl. Phys., 114 (2013), 143303
- 23. *T. Shirafuji and Y. Himeno, Generation of three-dimensionally integrated micro-solution plasmas and its application to decomposition of methylene blue molecules in water, Jpn. J. Appl. Phys., 52 (2013), 11NE03 (5pp)
- 24. *T. Shirafuji, Y. Noguchi, T. Yamamoto, J. Hieda, N. Saito, O. Takai, A. Tsuchimoto, K. Nojima and Y. Okabe, Functionalization of multi-walled carbon nanotubes by solution plasma processing in ammonia aqueous solution and preparation of composite material with polyamide 6, Jpn. J. Appl. Phys., 52 (2013), 125101 (6pp)
- 25. W. Soliman, N. Takada, N. Koshizaki, and *K. Sasaki, Structure and size control of ZnO nanoparticles by applying high pressure to ambient liquid in liquid-phase laser ablation, Appl. Phys. A, 110 (2013), 779, [注目論文として紹介]

- N. Takada, Fujikawa, N. Koshizaki, and *K. Sasaki, Effect of ultrasonic wave on the syntheses of Au and ZnO nanoparticles by laser ablation in water, Appl. Phys. A, 110 (2013), 835
- 27. *Y. Kim, T. Matsunaga, K. Nakahara, H. Seo, K. Kamataki, G. Uchida, N.Itagaki, K. Koga, M. Shiratani, Effects of nanoparticle incorporation on properties of microcrystalline films deposited using multi-hollow discharge plasma CVD, Surf. Coat. Technol., 228 (2013), S550 ~S553
- 28. *H. Hashizume, <u>T. Ohta</u>, J. Fengdong, <u>K. Takeda</u>, K. Ishikawa, M. Hori, <u>M. Ito</u>, Inactivation effects of neutral reactive-oxygen species on Penicillium digitatum spores using non-equilibrium atmospheric-pressure oxygen radical source, Applied Physics Letters, **103** (2013), 153708
- 29. T. Tsutsumi, <u>T. Ohta</u>, K. Ishikawa, <u>K. Takeda</u>, H. Kondo, M. Sekine, M. Hori, *<u>M. Ito</u>, Precise Rapid Measurements of Substrate Temperatures by Frequency-Domain Low-Coherence Interferometry, Applied Physics Letters, **103** (2013), 182102
- 30. A. T. Quitain, T. Kai, M. Sasaki, *M. Goto, Supercritical carbon dioxide extraction of fucoxanthin from Undaria pinnatifida, Journal of Agriculture and Food Chemistry, 61 (2013), No. 24, 5792-7, [Key Scientific Articles に選定され Global Medical Discovery の Web site に掲載]
- 31. S. Muradia, *M. Nagatsu, Low-voltage Pulsed Plasma Discharges inside Water Using a Bubble Self-generating Parallel Plate Electrode with a Porous Ceramic, Appl. Phys. Lett., 102 (2013), No. 14, 144105(4 pages)

2013年(公募研究)

- 32. G. Miyaji and *K. Miyazaki, Role of multiple shots of femtosecond laser pulses in periodic surface nanoablation, Appl. Phys. Lett. 103 (2013), 071910
- 33. *K. Miyazaki and G. Miyaji, Nanograting formation through surface plasmon fields induced by femtosecond laser pulses, J. Appl. Phys., 114 (2013), No.15, 153108
- 34. Toru Harigai, Yuki Yasuokaa, Noriko Nitta, Hiroshi Furuta, *Akimitsu Hatta, X-ray reflectivity analysis on initial stage of diamond-like carbon film deposition on Si substrate by RF plasma CVD and on removal of the sub-surface layer by oxygen plasma etching, Diamond and Related Materials, 38 (2013), pp.36-40.
- 35. *Yoshie Ishikawa, Yukiko Katou, Naoto Koshizaki, Qi Feng, Raw Particle Aggregation Control for Fabricating Submicrometer-sized Spherical Particles by Pulsed-laser Melting in Liquid, Chemistry Letters, 142 (2013), CL-13044
- 36. Takayoshi Yumii, Noriaki Kimura, and *Satoshi Hamaguchi, Quantum Cascade Laser (QCL) Absoption Spectroscopy with the Amplitude-to-Time Convension (ATTC) Technique for Atmospheric-Pressure Plasmas, J.Appl.Phys., 113 (2013), 213101-1-10
- 37. *Masanori Shinohara, Yoshiki Takami, Susumu Takabayashi, Akinori Oda, Yoshinobu Matsuda, and Hiroshi Fujiyama, Evolution of Hydride Components Generated by Hydrogen Plasma Irradiation of a Si(110) Surface, Investigated with In-situ Infrared Absorption Spectroscopy in Multiple Internal Reflection Geometry, IEEE Trans. Plasma Sci., 41 (2013), Issue 8, pp.1878-1883.
- 38. *Fumiaki Mitsugi, Tomoaki Ikegami, Toshiyuki Nakamiya, and Yoshito Sonoda, Optical wave microphone measurements of laser ablation of copper in supercritical carbon dioxide, Thin Solid Films, **547** (2013), 81-85
- 39. *Sakudo A, Shimizu N, Imanishi Y, Ikuta K., N2 gas plasma inactivates influenza virus by inducing changes in viral surface morphology, protein and genomic RNA., BioMed Res Int, (2013), 694269
- 40. *Sakudo A, Higa M, Maeda K, Shimizu N, Imanishi Y, Shintani H., Sterilization mechanism of nitrogen gas plasma: Induction of secondary structure change in protein., Microbiol Immunol, 57(7) (2013), 536-42
- 41. *T. Murakami, K. Niemi, T. Gans, D. O'Connell and W. G. Graham, Interacting kinetics of neutral and ionic species in an atmospheric pressure helium-oxygen plasma with humid air impurities, Plasma Sources Science and Technology, 22 (2013), no. 4, 045010, [PSST Most read Top 10 に 10 週連続ランクイン]
- 42. *T. Murakami, K. Niemi, T. Gans, D. O'Connell and W. G. Graham, Chemical kinetics and reactive species in atmospheric pressure helium-oxygen plasmas with humid air impurities, Plasma Sources Science and Technology, 22 (2013), no. 1, 015003, [PSST Most read Top 10 に 10 週連続ランクイン]
- 43. K. Morita, Y. Sakawa, <u>K. Tomita</u>, T. Ide, Y. Kuramitsu, K. Nishio, K. Nakayama, K. Inoue, T. Moritaka, H. Ide, M. Kuwada, K. Tsubouchi, K. Uchino, *H. Takabe, Thomson scattering measurements of a shock in laser-produced counter-streaming plasmas, Phys. Plasmas, 20 (2013), 092115 (6 pages)
- 44. *T Nozaki and K Okazaki, Non-thermal plasma catalysis of methane: principles, energy efficiency, and applications, Catalysis Today, 211 (2013), 29-38, [2013 年に掲載されて以来 1000 件以上のダウンロード]
- 45. *Elizaveta Saenko, Kenji Takahashi, Vladimir Feldman, EPR Evidence for a Physically Trapped Excess Electron in a Glassy Ionic Liquid, J. Physical Chemistry Letter, 4 (2013), pp 2896–2899[IF: 6.585]
- 46. T. Kikasako, *K. Saitow, Si quantum dots with a high absorption coefficient: analysis based on both intensive and extensive variables, Appl. Phys. Lett., 103 (2013), 151912
- 47. S. Yoshida, K. Hagiwara, T. Hasebe, *A. Hotta, Surface modification of polymers by plasma treatments for the enhancement of biocompatibility and controlled drug release, Surface and Coating Technology, 233 (2013), 99-107
- 48. *T. Ishijima, K. Nosaka, Y. Tanaka, Y. Uesugi, Y. Goto, H. Horibe, A high-speed photoresist removal process using multibubble microwave plasma under a mixture of multiphase plasma environment, Appl. Phys. Lett., 103 (2013), 142101 (5pp), [AIP の Direct Mail、Editor's picks for November 2013 & Editor's picks for December 2013 として 2 回配信]
- 49. *K. Ninomiya, <u>T. Ishijima</u>, M. Imamura, T. Yamahara, H. Enomoto, <u>K. Takahashi</u>, Y. Tanaka, Y. Uesugi, N. Shimizu, Evaluation of extra- and intracellular OH radical generation, cancer cell injury, and apoptosis induced by a non-thermal atmospheric-pressure plasma jet, Journal of Physics D: Applied Physicsys, **46** (2013), 425401(8pp)

2012年(計画研究)

- 50. T. Kato, S. Stauss, S. Kato, K. Urabe, M. Baba, T. Suemoto, *K. Terashima, Pulsed laser ablation plasmas generated in CO₂ under high-pressure conditions up to supercritical fluid, Appl. Phys. Lett., 101 (2012), 224103
- 51. F. Oshima, S. Stauss, C. Ishii, D. Z. Pai, and *<u>K. Terashima</u>, Plasma microreactor in supercritical xenon and its application to diamondoid synthesis, J. Phys. D: Appl. Phys. **45** (2012) 402003
- 52. *Kunihiro Kamataki, Kazunori Koga, Giichiro Uchida, Naho Itagaki, Daisuke Yamashita, Hidefumi Matsuzaki, Masaharu Shiratani, Control of radial density profile of nano-particle produced in reactive plasma by amplitude modulation of rf discharge voltage, Thin Solid Films, 523 (2012), 76-79
- 53. *K. Ishikawa, H. Mizuno, H. Tanaka, K. Tamiya, H. Hashizume, <u>T. Ohta, M. Ito,</u> S. Iseki, <u>K. Takeda,</u> H. Kondo, M. Sekine, and M. Hori, Real-time in situ electron spin resonance measurements on fungal spores of Penicillium digitatum during exposure of oxygen plasmas, APPLIED PHYSICS LETTERS, **101** (2012), 013704
- 54. *Y. Takao, K. Eriguchi, K. Ono, Effect of capacitive coupling in a miniature inductively coupled plasma source, J. Appl. Phys. 112 (2012), No. 9, 093306-1~10, [Research Highlights (定義定]
- 55. Wahyudiono, H. Watanabe, S. Machmudah, T. Kiyan, M. Sasaki, H. Akiyama, *M. Goto, Pyrrole conversion induced pulse discharge plasma over a water surface under high-pressure argon, Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 61 (2012), pp. 51-57
- 56. T. E. Saraswati, A. Ogino, *M. Nagatsu, RF Plasma-Activated Immobilization of Biomolecules onto Graphite-Encapsulated Magnetic Nanoparticles, Carbon, **50** (2012), pp.1253-1261, [IF: 5.856]
- Z. Shao, <u>A. Ogino</u>, *<u>M. Nagatsu</u>, Effect of water vapor addition on the microwave-excited Ar plasma-induced polyethylene glycol polymerization and immobilization of L-cysteine, Appl. Phys. Express, 5 (2012), 046201(3pages)
- 58. C. Zhang, J. Hu, X. Wang, X. Zhang, H. Toyoda, *M. Nagatsu, Y. Meng, High performance of carbon nanowall supported Pt catalyst for methanol electro-oxidation, Carbon, 50 (2012), No. 10, pp. 3731-3738, [IF: 5.856]

2012年(公募研究)

- 59. *T. Ohshima, T. Kanazawa, S. Aoqui, <u>H. Kawasaki, F. Mitsugi</u>, T. Uematsu, Structural Properties of Metallic Nanostructures Prepared Using Organ-Metal Solutions, J. Nanosci. Nanotechnol., **12** (2012), No. 11, pp. 8770-8774,
- 60. Takashi Nunokawa, Yuji Onodera, Masahiko Hara, Yoshitaka Kitamoto, Osamu Odawara, *Hiroyuki Wada, Preparation of Y2O3:Er,Yb Nanoparticles by Laser Ablation in Liquid, Applied Surface Science, 261 (2012), 118–122
- 61. *T.Tomita, M.Yamamoto, N.Hasegawa, K.Terakawa, Y.Minami, M.Nishikino, M.Ishino, T.Kaihori, Y.Ochi, T.Kawachi, M.Yamagiwa and T.suemoto, Experimental verification of femtosecond laser ablation schemes by time-resolved soft x-ray reflective imaging, Optics Express, 20 (2012), No.28, pp.29329--29337
- 62. S. Yoshimura, Y. Tsukazaki, M. Kiuchi, S. Sugimoto, *S. Hamaguchi, Sputtering yields and surface modification of poly(methy1 methacrylate)(PMMA)by low-energy Ar+/CF3+ ion bombardment with vacuum ultraviolet(VUV)photon irradiation, J. Phys. D: Appl. Phys., 45 (2012), 505201.
- 63. *Fumiaki Mitsugi, Ryota Ide, Tomoaki Ikegami, Toshiyuki Nakamiya, Yoshito Sonoda, Optical wave microphone measurement during laser ablation of Si, Thin Solid Films, 521 (2012), 132-136
- 64. *Sakudo A, Baba K, Ikuta K, Analysis of Vis-NIR spectra changes to measure the inflammatory response in the nasal mucosal region of influenza A and B virus-infected patients, J Clin Virol, 55(4) (2012), 334-8
- 65. *Sakudo A, Baba K, Ikuta K, Discrimination of influenza virus-infected nasal fluids by Vis-NIR spectroscopy, Clin Chim Acta 2012, 414:130-4
- 66. *Sakudo A, Kuratsune H, Kato HY, Ikuta K, Visible and near-infrared spectra collected from the thumbs of patients with chronic fatigue syndrome for diagnosis, Clin Chim Acta, 413(19-20) (2012), 1629-32
- 67. Xuan Meng, Tamaki Shibayama, Ruixuan Yu, Shinya Takayanagi and Seiichi Watanabe, Microstructure analysis of ion beam-induced surface nanostructuring of thin Au film deposited on SiO2 glass, Journal of Materials Science, (2012), DOI: 10.1007/s10853-012-6816-1
- 68. Shinya Kumagai, Hirotaka Asano, Masaru Hori, Minoru Sasaki, Floating Wire for Enhancing Ignition of Atmospheric Pressure Inductively Coupled Micro Plasma, Japanese Journal of Applied Physics, 51 (2012), 01AA01
- 69. *T. Kaneko and R. Hatakeyama, Creation of Nanoparticle—Nanotube Conjugates for Life-Science Application Using Gas—Liquid Interfacial Plasmas, Japanese Journal of Applied Physics, **51** (2012), No. 11, pp. 11PJ03-1-6, [SPOTLIGHTS へ選定]
- J. Takahashi, *A. Hotta. Adhesion enhancement of polyolefins by diamond like carbon coating and photografting polymerization, Diamond and Related Materials, 26 (2012), 55-59
- 71. Y. Taniuchi, T. Yamada, M. Isomura and *<u>H. Shindo</u>, A New Floating-Probe for Measurement of Insulated Plasma Produced by Radio-Frequency Power, Jpn. J. Appl. Phys., **51** (2012), 116101
- 72. *K. Yamada, K. Yamamoto, T. Sonoda, S. Matsushima, and H. Nakamura, Visible Light Activity of Photocatalytic Composites Composed of Metal Oxides, Nanoscience and Nanotechnology Letters, 4 (2012), pp. 712-715
- 73. *T. Yatsuhashi,* N. Uchida, K. Nishikawa, Novel Method of Producing Carbon Nanoparticles on Benzene/Water Interface with Femtosecond Laser Plasma Filament, Chem. Lett., 41 (2012), 722-724

2011年(計画研究)

- 74. *M. Shiratani, K.Koga, S.Iwashita, G.uchida, N.Itagaki, K.Kamataki, Nano-factories in plasma: present status and outlook, Journal of Physics D: Applied Physics, 44 (2011), pp.174038-1~174038-8[発表後 2ヶ月で250 回以上ダウンロード]
- Hiroharu Yui, Takaaki Tomai, Masayoshi Sawada and *<u>Kazuo Terashima</u>, Generation of Laser-Induced Plasma in Supercritical Water and Vibrational Spectroscopic Study on the Accompanying Stimulated Raman Scatterings, Appl. Phys. Lett., 99 (2011), 091504
- 76. Sho Nakahara, Sven Stauss, Toru Kato, <u>Takehiko Sasaki</u> and *<u>Kazuo Terashima</u>, Synthesis of higher diamondoids by pulsed laser ablation plasmas in supercritical CO₂, J.Appl.Phys., **109** (2011), 123304.[**Research Highlights** に選定]
- 77. W. Soliman, N. Takada, and *K. Sasaki, Effect of water pressure on size of nanoparticles in liquid-phase laser ablation, Jpn. J. Appl. Phys., **50** (2011), 108003
- 78. *K. Kamataki, H. Miyata, K. Koga, G. Uchida, N. Itagaki, M. Shiratani, Impacts of Amplitude Modulation of RF Discharge Voltage on the Growth of Nanoparticles in Reactive Plasmas, Applied Physics Express, 4 (2011), pp.100500-1~105001-3, [月間ダウンロード数 Top 10 入り]
- 79. S. Iseki, H. Hashizume, F. Jia, <u>K. Takeda</u>, K. Ishikawa, <u>T. Ohta</u>, <u>M. Ito</u>, and *M. Hori, Inactivation of Penicillium digitatum Spores by a High-Density Ground-State Atomic Oxygen-Radical Source Employing an Atmospheric-Pressure Plasma, Applied Physics, Express 4 (2011), 116201
- 80. F. Jia, N. Sumi, K. Ishikawa, H. Kano, H. Inui, J. Kularatne, <u>K. Takeda</u>, H. Kondo, M. Sekine, A. Kono, *M. Hori, Laser Scattering Diagnosis of a 60-Hz Non-Equilibrium Atmospheric Pressure Plasma Jet, Applied Physics, Express 4 (2011), 026101
- 81. *N. Shirai, S. Uchida, F. Tochikubo, S. Ishii, Self-Organized Anode Pattern on Surface of Liquid or Metal Anode in Atmospheric DC Glow Discharges, IEEE Trams. Plasma Sci., 39 (2011), 2652-2653
- 82. *F. Tochikubo, N. Shirai, S. Uchida, Simulation of atmospheric pressure dc glow discharge along a miniature helium flow in nitrogen, Appl. Phys. Express. 4 (2011) 056001
- 83. S. Machmudah, Wahyudiono, Y. Kuwahara, M. Sasaki, *M. Goto, Nano-structured Particles Production using Pulsed Laser Ablation of Gold Plate in Supercritical CO2, J. Supercritical Fluids, 60 (2011), pp. 127-136
- 84. *C. Zhang, J. Hu, Y. Meng, M. Nagatsu, H. Toyoda, Preparation of high-performance hydroxide exchange membrane by a novel ablation restriction plasma polymerization approach, Chemical Communications, 47 (2011), pp.10230-10232, [Cover Paper [二選定]]
- 85. C. Zhang, J. Hu, X. Shu, W. Shen, H. Toyoda, *M. Nagatsu, Y. Meng, High-performance plasma-polymerized alkaline anion-exchange membranes for potential application in direct alcohol fuel cells, Plasma Process. Polym., 8 (2011), No.11, pp.1024–1032, [Cover Paper [選定]

2011年(公募研究)

- 86. K. Yoshii, G. Miyaji, and *<u>K. Miyazaki</u>, Retrieving Angular Distributions of High-Order armonic Generation from a Single Molecule, Phys. Rev. Lett., **106** (2011), No.1, 013904, [IF: 7.943]
- 87. T. Matsumoto, D. Wang, *T. Namihira, H. Akiyama, Process performances of 2 nano-seconds pulsed discharge plasma, Japanese Journal of Applied Physics, 50 (2011), No.8, pp.08JF14-1-5
- 88. Tooru Harigai, Hirofumi Koji, Hiroshi Furuta, and *Akimitsu Hatta, Formation of Nanofibers on the Surface of Diamond-Like Carbon Films by RF O₂ Plasma Etching, Jpn. J. Appl. Phys., **50** (2011), 08JF12
- 89. *T. Ohshima, Y. Murakami, <u>H. Kawasaki</u>, Y. Suda, Y. Yagyu, Effect of Oxygen Gas Pressure on Electrical, Optical, and Structural Properties of Al-Doped ZnO Thin films Fabricated by Pulsed Laser, Deposition for Use as Transparent Electrodes in All-Solid-State Electrochromic Devices, Japanese Journal of Applied Physics, **50** (2011) 08ID09
- 90. *Kazuo Takahashi, Yasuaki Hayashi, and Satoshi Adachi, Measurement of electron density in complex plasmas of the PK-3 plus apparatus on the International Space Station, J. Appl. Phys., 110 (2011), 13307
- 91. S. Yoshimura, K. Hine, M. Kiuchi, J. Hashimoto, M. Terauchi, Y. Honda, M. Nishitani, and *S. Hamaguchi, Experimental evaluation of CaO, SrO, and BaO sputtering yields by Ne or Xe ions, J. Phys. D: Appl. Phys., 44 (2011)
- 92. *Ayumi Ando, Tomoko Kurose, Vivien Reymond, Katsuhisa Kitano, Hideaki Kitahara, Keisuke Takano, Masahiko Tani, Masanori Hangyo and Satoshi Hamaguchi, Micro pattern formation of extracellular-matrix (ECM) layers by atmospheric-pressure plasmas and cell culture on the patterned ECMs, J. Phys. D: Appl. Phys., 44 (2011), 482002

- 93. *T. Ito, T. Kanazawa, and S. Hamaguchi, Rapid Breakdown Mechanisms of Open Air Nanosecond Dielectric Barrier Discharges, Phys. Rev. Lett., 107 (2011), 065002. [IF: 7.943]
- 94. S. Nakahara, S. Stauss, T. Kato, <u>T. Sasaki</u> and *<u>K. Terashima</u>, Synthesis of higher diamondoids by pulsed laser ablation plasmas in supercritical CO2, J. Applied Physics, **109** (2011), 123304-8
- 95. M. Adharvana Chari, D. Shobha, *T. Sasaki, Room temperature synthesis of benzimidazole derivatives using reusable cobalt hydroxide (II) and cobalt oxide (II) as efficient solid catalysts, Tetrahedron Letters, 52 (2011), 5575-5580
- 96. *T Nozaki, S Yoshida, T Karatsu, K Okazaki, Atmospheric pressure plasma synthesis of carbon nanotubes, Journal of Physics D: Applied Physics, 44 (2011), 174007(9pp), [2011 年から1 年間で500 件以上のダウンロード]
- 97. *T. Nozaki, A Ağıral, S. Yuzawa, J.G.E. (Han) Gardeniers, K. Okazaki, A single step methane conversion into synthetic fuels using microplasma reactor, Chemical Engineering Journal, 166 (2011), 288–293
- 98. M. Mizushima, T. Kawamura, *K. Takahashi, K. Nitta, In situ near-infrared spectroscopic studies of the structural changes of polyethylene during melting, Polymer J., 44 (2011), 245-251
- 99. S. Takahashi and *H. Shindo, Silicon Trench Oxidation in Downstream of Microwave Oxygen Plasma, Jpn. J. Appl. Phys., 50 (2011), 066201
- 100. *Y. Takeda, T. Kondow, F. Mafuné, Self-assembly of gold nanoparticles in protein crystal, Chemical Physics Letters, 504 (2011), pp175–179

2010年(計画研究)

- 101. Sho Nakahara, Sven Stauss, Hiroyuki Miyazoe, Tomoki Shizuno, Minoru Suzuki, Hiroshi Kataoka, <u>Takehiko Sasaki</u> and *<u>Kazuo Terashima</u>, Pulsed laser ablation synthesis of diamond molecules in supercritical fluids, Appl. Phys. Express, 3 (2010), 096201
- 102. *Sven Stauss, Hiroyuki Miyazoe, Tomoki Shizuno, Koya Saito, <u>Takehiko Sasaki</u>, and <u>Kazuo Terashima</u>, Synthesis of the higher-order diamondoid hexamantane using low-temperature plasmas generated in supercritical xenon, Jpn. J. Appl. Phys., <u>49</u> (2010), 070213
- 103. S.-M. Baek, <u>T. Shirafuji</u>, S.-P. Cho, N. Saito and *O. Takai, Oxygen gas barrier properties of hydrogenated amorphous carbon thin films deposited with a pulse-biased inductively coupled plasma chemical vapor deposition method, Jpn. J. Appl. Phys., **49** (2010), 08JF10 (6pp)
- 104. W. Soliman, N. Takada, and *<u>K. Sasaki</u>, Growth processes of nanoparticles in liquid-phase laser ablation studied by laser-light scattering, Appl. Phys. Express, 3 (2010), 035201, [被引用数:33]
- 105. *K. Sasaki and N. Takada, Liquid-phase laser ablation, Pure Appl. Chem., 82 (2010), 1317, [被引用数:29]
- 106. C. S. Moon, K. Takeda, S. Takashima, M. Sekine, Y. Setsuhara, M. Shiratani, *M. Hori, High performance of compact radical monitoring probe in H2/N2 mixture plasma, J. Vac. Sci. Technol. B, 28 (2010), L17
- 107. S. Iseki, <u>T. Ohta</u>, A. Aomatsu, <u>M. Ito</u>, H. Kano, Y. Higashijima, *M. Hori, Rapid inactivation of Penicillium digitatum spores using high-density nonequilibrium atmospheric pressure plasma, Appl. Phys. Lett., **96** (2010), 153704, [被引用数:29]
- 108. *K. Eriguchi, Y. Nakakubo, A. Matsuda, Y. Takao, K. Ono, Model for Bias Frequency Effects on Plasma-Damaged Layer Formation in Si Substrates, Jpn. J. Appl. Phys., 49 (2010), No. 5, pp. 056203-1~11
- 109. C.L. Chen, D. Lu, B. Liang, A. Ogino, X. Wang, *M. Nagatsu, Amino Group Introduction onto Multiwall Carbon Nanotubes by NH3/Ar Plasma Treatment, Carbon, 48 (2010), pp.939-948, [IF: 5.865]
- 110. Kazuaki Kobayashi and *Shojiro Komatsu, First-Principles Study of 30H-BN Polytypes, Materials Transactions, 51(2010), 1497-1503.

2010年(公募研究)

- 111. G. Miyaji and *K. Miyazaki, Shape control of nanostructured thin film surface in femtosecond laser ablation, Appl. Phys. A, 98 (2010), 927–930
- T. Matsumoto, D. Wang, *T. Namihira, H. Akiyama, Energy efficiency improvement of nitric oxide treatment using nano-seconds pulsed discharge, IEEE Transactions on Plasma Science, 38 (2010), No.10, pp.2639-2643
- Y. Murakami, S. Horiguchi, and *S. Hamaguchi, Molecular dynamics simulation of the formation of sp3 hybridized bonds in hydrogenated diamond-like carbon deposition processes, Phys. Rev. E., 81 (2010), 041602 (9pp)
- 114. *R. Hatakeyama, Y. F. Li, T.Y. Kato, and <u>T. Kaneko</u>, Infrared Photovoltaic Solar Cells Based on C60 Fullerene Encapsulated Single-Walled Carbon Nanotubes, Applied Physics Letters, 97 (2010), No. 1, pp. 013104-1-3
- 115. Q. Chen, <u>T. Kaneko</u>, and *R. Hatakeyama, Effects of Ionic Liquid Electrode on Pulse Discharge Plasmas in the Wide Range of Gas Pressures, Journal of Applied Physics, **108** (2010), No. 10, pp. 103301-1-6
- 116. J. Jie, A. Morita, and *H. Shirai, Role of Oxygen Atoms in the Growth of Sputter-Deposited ZnO Films, Journal of Applied Physics, 108 (2010), 033521 1-8
- D. Kajiya, *<u>K. Saitow</u>, Phenyl Group Leads to Greater Attractive Energy than Chloro Group in Supercritical fluids: Site Selective Solvation Observed by Raman Spectroscopy, J. Phys. Chem. B, 114 (2010), 16832-16837

2009年(計画研究)

- 118. Takaaki Tomai, Hiroharu Yui, and *Kazuo Terashima, Raman spectroscopy of reaction fields induced by plasma in supercritical CO₂, Appl. Phys. Lett., 94 (2009), 151501
- 119. *K.Sakai, T. Morita, N. Sano, <u>T. Shirafuji</u>, <u>T. Nozaki</u> and K. Tachibana, Reduction of CO2 solute by hydrogen microplasmas in an electrolyte, J. Phys. D: Appl. Phys., **42** (2009), 202004 (4pp)
- 120. *K. Sasaki, T. Nakano, W. Soliman, and N. Takada, Effect of pressurization on the dynamics of a cavitation bubble induced by liquid-phase laser ablation, Appl. Phys. Express, 2 (2009), 046501, [被引用数:38]
- S. Takahashi, S.Takashima, K.Yamakawa, S. Den, H.Kano, <u>K. Takeda</u>, *M. Hori, Development of atomic monitoring probe and its application to spatial distribution measurements of H and O atomic radical densities in radical-based plasma processing., J. Appl. Phys., 106 (2009), 053306
- 122. *F. Tochikubo, Modeling for plasma-enhanced catalytic reduction of nitrogen oxides, Thin Solid Films, 518 (3) (2009), 957-961
- 123. *F. Tochikubo, S. Uchida, H. Yasui, K. Sato, Numerical simulation of NO oxidation in dielectric barrier discharge with microdischarge formation, Jpn. J. Appl. Phys., 48 (2009), 076507
- 124. Y. Kuwahara, T. Saito, M. Haba, T. Iwanaga, M. Sasaki, *M. Goto, Nanosecond pulsed laser ablation of copper in supercritical carbon dioxide, Jpn. J. Appl. Phys., 48 (2009), No. 4, 40207
- 125. T. Kiyan, M. Sasaki, T. Ihara, T. Namihira, M. Hara, M. Goto, *H. Akiyama, Pulsed breakdown and plasma-aided phenol polymerization in supercritical carbon dioxide and sub-critical water, Plasma Processes and Polymers, 6 (2009), No. 11, pp. 778-785
- 126. C.L. Chen , X.K. Wang, *M. Nagatsu, Europium Adsorption on Novel Multiwall Carbon Nanotube / Iron Oxide Magnetic Composites in the Presence of Polyacrylic Acid, Environmental Science & Technology., 43 (2009), pp. 2362-2367, [IF: 5.257]
- M. K. Singh, A. Ogino, *M. Nagatsu, Inactivation Factors of Spore Forming Bactria Using Low-pressure Microwave Plasmas in N2 and O2 Gas Mixture, New Journal of Physics, 11 (2009), 115027(15pages), [IF: 4.063]
- 128. *S. Komatsu, Y. Sato, D. Hirano, T. Nakamura, K. Koga, A. Yamamoto, T. Nagata, T. Chikyo, T. Watanabe, T. Takizawa, K. Nakamura, T. Hashimoto, M. Shiratani, P-type sp3-bonded BN/n-type Si heterodiode solar cell fabricated by laser-plasma synchronous CVD method, J. Phys. D: Appl. Phys., 42 (2009), 225107(6pp).

【主な招待講演】全 435 件

- 129. <u>K. Ono</u>, Plasma Etch Challenges for Nanoscale Device Fabrication: Modeling, Analysis, and Control of Plasma-Surface Interactions, 9th Asian-European International Conference on Plasma Surface Engineering(プレナリ-講演), Jeju, South Korea, 2013 年 8 月 30 日.
- 130. <u>Kazuo Terashima</u>, Sven Stauss, and Keiichiro Urabe, Synthesis of novel nanomaterials using supercritical fluid plasma-CVD XXXI International Conference of Phenomena in Ionized Gases (招待講演), GL10 (Granada, Spain, July 14-19, 2013).
- 131. M. Shiratani, Control of nanoparticle formation in reactive plasmas and its application to fabrication of green energy devices, (プレナリー講演), The 13th International Conference on Plasma Surface Engineering (PSE2012), 2012 年 9 月 12 日, Garmisch-Partenkirchen Conference Center, Germany.
- 132. <u>M. Shiratani</u>, <u>K. Koga</u>, <u>G. Uchida</u>, Plasma CVD of nanoparticle composite films and their applications, The 8th Asian- European International Conference on Plasma Surface Engineering (AEPSE2011), (プレナリー講演), 2011年9月20日, 大連市, 大連(中国).
- 133. M. Shiratani, K. Koga, G. Uchida, H. Seo, N. Itagaki, K. Kamataki, Multi-hollow discharge plasma CVD: Si deposition, the International Conference on Phenomena in Ionized Gases (ICPIG2011), (プレナリー講演), 2011年8月29日, Queen's University Belfast, Belfast (英国)
- 134. <u>白谷正治</u>, プラズマナノ界面の学理と産業応用, 日本学術振興会 プラズマ材料科学第 153 委員会 第 96 回研究会(招待講演) 2010 年 5 月 21 日, 弘済会館、東京.

【主な特許】全 106 件

- 135. 寺嶋和夫 他6名、ダイヤモンドイドの合成方法及びダイヤモンドイド、W02011/099351、(2011).
- 136. <u>伊藤昌文、太田貴之</u> 他 2 名、マルチマイクロホローカソード光源および原子吸光分析装置、特開 2011-171251 (2011).
- 137. 斧高一 他 3 名、半導体処理装置のクリーニング方法およびシリコン基板のエッチング方法、特許 4836112 号(2011).
- 138. 後藤元信、佐々木満 他 4 名、ペクチン改質方法、特開 2011-225745 (2011).

【主なアウトリーチ活動】全 312 件

2013 年度 (計画研究)

- 139. 8th International Conference on Reactive Plasmas(ICPR-8), 福岡国際会議場, 平成26年2月4日~7日,600人 (会期中に領域研究主催による新学術領域『プラズマとナノ界面の相互作用に関する学術基盤の創成』公開シンポジウムを開催した)
- 140. 第 18 回テクノフェスタ in 浜松・先端研究公開展示「プラズマ修飾を行った磁性体ナノ微粒子を用いたバイオ・医療応用」、研究室公開展示「プラズマを使った新しい殺菌技術」、小中学生向けのおもしろ実験「エナメル線で自分の好きな形にプラズマを作ってみよう」,静岡大学,2013 年 11 月 9 日~11 月 10 日,380 人
- 141. イノベーションジャパン出展,東京ビッグサイト,2013年8月29日~8月30日,21,010人(2つの研究テーマが出展)
- 142. 応用物理学会東海支部第16回「リフレッシュ理科教室」,名古屋市科学館9階実験教室,2013年08月09-10日,小中学校教員30名,小中学校生徒100名,工作をとおしてプラズマをはじめ理系の研究の面白さを学生のみならず教員にも伝えた

2013 年度 (公募研究)

143. nano tech 2014 第 13 回国際ナノテクノロジー総合展・技術会議。東京ビッグサイト 東4~6ホール&会議棟、2014年1月29日~31日、

2012 年度 (計画研究)

- 144. 新学術領域『プラズマとナノ界面の相互作用に関する学術基盤の創成』公開シンポジウム,東京大学武田ホール,平成 25 年 2 月 22 日,60 名 (本領域研究主催シンポ)
- 145. 第12回国際ナノテクノロジー総合展・技術会議, 東京ビッグサイト, 2013年1月30日~2月1日, 45,000人

2012 年度(公募研究)

- 146. 埼玉大学特別講演「知の探求」市民講座, 埼玉大学, 2012年10月5日, 180人
- 147. 大和市主催・やまと市民大学講座「太陽光発電と低炭素社会」,神奈川県大和・大和市生涯学習センター、2012年7月14日,61人
- 148. 金沢大学オープンキャンパス,金沢大学,2012年8月9日-10日,100人,高校生を対象に研究室にて研究内容の紹介を行った。

2011 年度 (計画研究)

- 149. 九大プラズマナノ界面工学センター合同公開シンポジウム,九州大学箱崎キャンパス,平成24年1月8日,60人(本領域研究主催シンポ)
- 150. Plasma Conference 2011, 石山県立音楽堂, 平成 23 年 11 月 22 日~25 日,1000 人 (本領域研究が開催に深く関わった)
- 151. 第 16 回テクノフェスタ in 浜松・先端研究公開展示「未来を拓くプラズマテクノロジー」、研究室公開展示「大容積マイクロ波プラズマ装置の開発と応用」、おもしろ実験 「エナメル線で自分の好きな形にプラズマを作ってみよう」,静岡大学,2011 年 11 月 12~13 日,300 人

2011 年度(公募研究)

- 152. ハピ★テク (女子高生のための理工系大学・学部の進学情報サイト) の取材, インターネットによる情報公開 (http://hapiteku.com/topics/archive/post.php), 2011年11月5日
- 153. 長岡ケーブルテレビ平成 23 年度第 8 回テクノ探検隊「「プラズマ」って何だろう?身近な「プラズマ」を見て・さわってみよう!」, 長岡ケーブルテレビ、2011 年 12 月 1 日 (テレビ放映)

2010 年度(計画研究)

- 154. 新学術領域研究公開シンポジウム兼九大プラズマナノ界面工学センターキックオフシンポジウム,九州大学百年講堂,平成23年1月6日,50人(本領域研究主催シンポ)
- 155. 平成22年度 理工学部市民開放講座「分光センシングの世界 ーナノテクから環境、バイオまでー」,名城大学,2010年4月17日,200人

10. 当該学問分野及び関連学問分野への貢献度(1ページ程度)

研究領域の研究成果が、当該学問分野や関連分野に与えたインパクトや波及効果などについて記述してください。

本研究領域の役割は、プラズマとナノ界面の相互作用に関する学術基盤を構築し、これを当該学問分野であるプラズマエレクトロニクス工学分野へと昇華させることで社会に広く貢献しようというものであり、主な貢献としては、以下の3項目が挙げられる。

- 1. 非平衡統計物理学との結びつき、
- 2. LSI 作製等のナノプロセスへの貢献、
- 3. バイオ応用への貢献。

具体的な内容は以下のように要約される。

- 1. 本領域の研究対象であるプラズマとナノ界面相互作用ゆらぎは、プラズマ物理学関連研究者との連携により、非平衡統計物理学と密接な関わりがあることが分かった。本領域の成果をもとに、白谷がセンター長を務める「プラズマナノ界面工学センター」(2010年10月九州大学先導的学術研究拠点として発足)は2014年4月設置時限の無い九州大学学内共同教育研究施設として格上げされ、様々な分野への波及効果が期待されている。また、日本学術会議第22期学術の大型施設計画・大規模計画に関するマスタープラン(マスタープラン 2014)に、本領域の成果を基盤の一つとして提案した、「非平衡極限プラズマ全国共同連携ネットワーク研究計画」が重点大型研究計画として、「最先端プラズマ科学グローバルイノベーション拠点の形成」が大型研究計画としてそれぞれ認められた。これらは、本領域の成果が学術的に高く評価されたことを示している。
- 2. トップダウンプロセスの代表とも言える半導体エッチングプロセスでは、ナノメートル領域のプロセスの理解にはシミュレーションが重要な役割を果たしている。斧は、八田、篠原、浜口らの公募研究と連携して、マルチスケールシミュレーションを実現させ、原子・分子反応のゆらぎがシステム全体の構造を規定する階層的構造形成をマルチスケールで模擬した。この解析結果を基に微細化のボトルネックであったラインエッジラフネスを克服する方法を見いだし、ゆらぎが抑制された超高精度エッチングプロセスの実現を果たした。本研究成果は、次世代以降のLSI作製プロセスの基盤となるもので、半導体産業の発展に大きく寄与するものである。
- 3. 永津、白谷、作道との連携は、ウイルス等の超高感度検出技術の基盤構築へとつながった。本成果は、 ナノ界面プラズマ科学のナノ・バイオテクノロジー科学分野への波及効果と評価できる。ナノ界面プラ ズマ科学の他の波及効果として、種子や食品粉体表面の処理などの農学へと発展したことが挙げられ る。この成果により、白谷は、プラズマの農業応用に関する産学連携研究会の座長を務めることとなり、 全く新しいプラズマ科学分野が切り開かれた。

領域内の大気圧プラズマ、気液混合プラズマの研究は、プラズマのバイオ応用と強く結びつき、名古屋大堀教授が代表を務める新学術領域「プラズマ医療」の立案・採択へとつながった。2つの領域で合同シンポジウムを開催することにより、本領域からプラズマ医療への波及効果があった。また、プラズマとバイオ分野および電気化学分野との2つ合同研究会の開催に繋がった。

伊藤、作道らの連携により、プラズマによる殺菌メカニズムが原子分子レベルと細胞レベルで解明された。この成果は農業用水処理やポストハーベスト代替、殺菌滅菌薬剤代替などへの応用が期待されている。この成果の重要性が認められ、伊藤がセンター長を務める**名城大学プラズマバイオ科学技術センターが 2014 年 3 月に発足**した。

学術への貢献が評価されて、2013 年に白谷(領域代表)と斧(研究項目 A03 班長)、2014 年に寺嶋(研究項目 A01 班長)と永津(計画研究代表)が応用物理学会フェロー表彰を受けた。 1つの新学術領域から 4名ものフェローを研究期間中とその直後に輩出するのは初めてである。2万人以上の広範な専門分野の会員から毎年 20 名程度のフェローが、厳しい審査をへて選ばれることから、このフェロー表彰の結果は、本領域の成果が応用物理学の広い分野に波及効果があると客観的に極めて高く評価されたことを意味している。

2013 年応用物理学会春期学術講演会において、シンポジウム「ナノ界面プラズマの科学と応用展開」が開催され、多様な分野の研究者が参集し活発な議論が行われた。Japanese Journal of Applied Physics でナノ界面プラズマの特集号を企画し、2014 年に53 巻1号が発行された。

本領域の成果をより効率よく他の研究分野や、社会・国民に波及させるためには、また、公開シンポジウムの開催や、電気化学分野、医学分野等の研究者との共同研究会の開催に繋がり、他分野への波及を推進してきた。また本研究領域を取りまとめて、研究成果を社会・国民に発信するため、研究成果を製本し公開し、公開シンポジウムを 2014 年 6 月 14 日に開催した。