

分野横断プロジェクト	
課題番号	J10B01
課題分野	次世代反応流体科学
研究期間	2011.4～2012.3

[全体概要]

次世代反応流体科学の創成 Frontier Science of Next Generation Reactive Fluid

研究代表者 石本 淳
サブリーダー1 佐藤 岳彦
サブリーダー2 丸田 薫
サブリーダー3 石本 淳

1. 研究目的

ライフサイエンス、燃焼科学、高応答性流体科学の三つの研究領域からなるプロジェクト推進し、生物・化学・高応答流体の各種反応性流動に関する異分野融合型の学理創成を行う。近い将来、反応を伴う流動科学領域は次世代流体科学の主要学問領域として重要な地位を占めることは確実視されていると考えられるが、物理化学的プロセスや熱流動の素過程に多くの未解明な部分を残しているのが現状であり、工学的に十分な検討が行われているとはいえない。本プロジェクトにおいて次世代反応性流体科学の学理構築を推進するためには、既存の単一領域の発展型研究から脱却し異分野融合型の新しい発想からなる研究を推進する必要がある。そこで本研究においては、現在の先進流体科学をベースとした上記3研究領域の異分野融合の発想から成る先進的アプローチを行い、次世代反応性流体科学の創成を目指すものである。

2. 研究成果の内容

本年度は研究から2年目に当たり、徐々にではあるが各研究分野間の融合研究成果が形成されつつある。さらに次世代反応性流動に関わる3研究プロジェクトの融合研究の指針と各研究グループによる進捗状況の確認を行った。

特に本年度は高応答性流体プロジェクトの石本研究グループと寒川研究グループの融合研究により新型のナノデバイス洗浄方式の開発に進展が見られたので、この研究成果概要を紹介する。混相流体工学とナノデバイス工学という異分野を専門とするグループが相互連携を行うことにより、新型の反応性混相流体工学応用機器の創成が進展し、異分野融合による新発想の研究成果が得られつつある。なお、本研究成果に関しては、日経産業新聞にその内容が掲載され産業界からの注目を集めている（2011年10月7日掲載）。

本研究においては過冷却液体窒素と極低温ヘリウムガス（寒剤）の高速衝突により連続生成される微細固体窒素粒子から成るマイクロ・ナノスラッシュ噴霧流の有する超高熱流束冷却特性とそれに伴うレジスト熱収縮効果を有効活用した新型半導体洗浄法に関する検討を行う。マイクロスラッシュ噴霧を高温加熱ウエハー面上のレジストに高速衝突させ、粒子の慣性力と噴霧の熱流体力学的効果、超高熱流束急冷によるレジスト熱収縮効果の相互作用により、アッシングプロセスを経ずにレジストをウエハー面上からはく離・除去、洗浄するという、レジスト除去・洗浄同時プロセス機構から成るドライ型アッシングレス洗浄システム

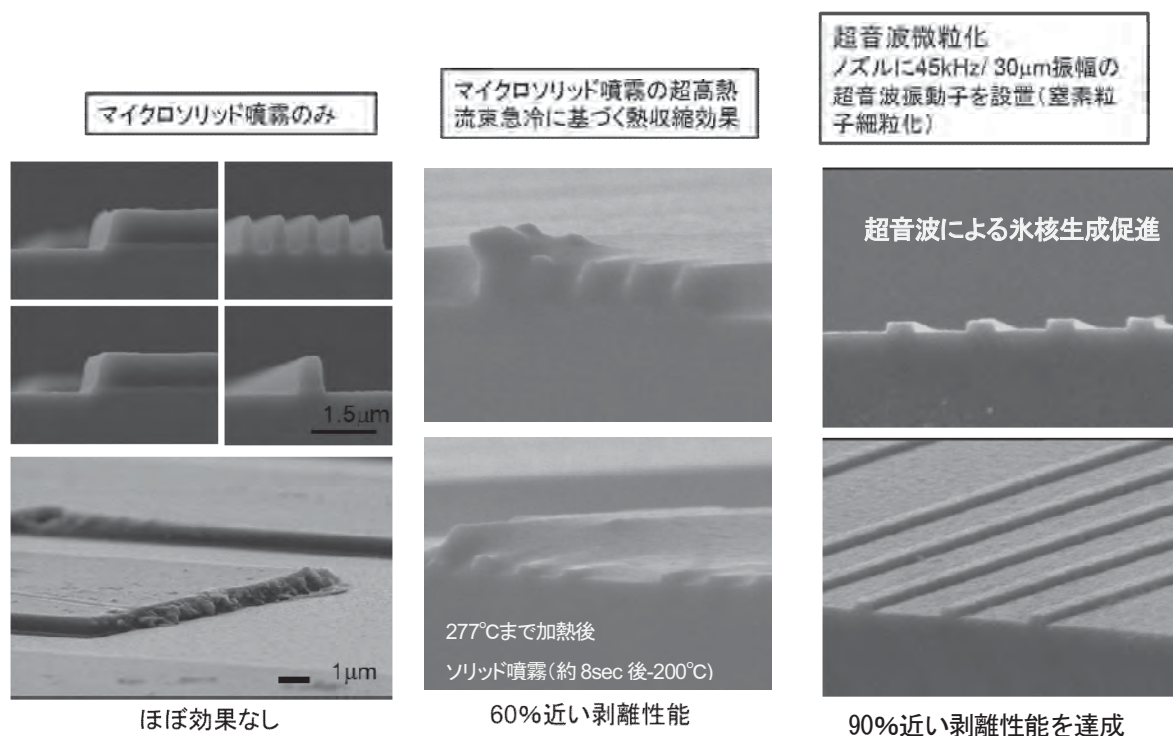
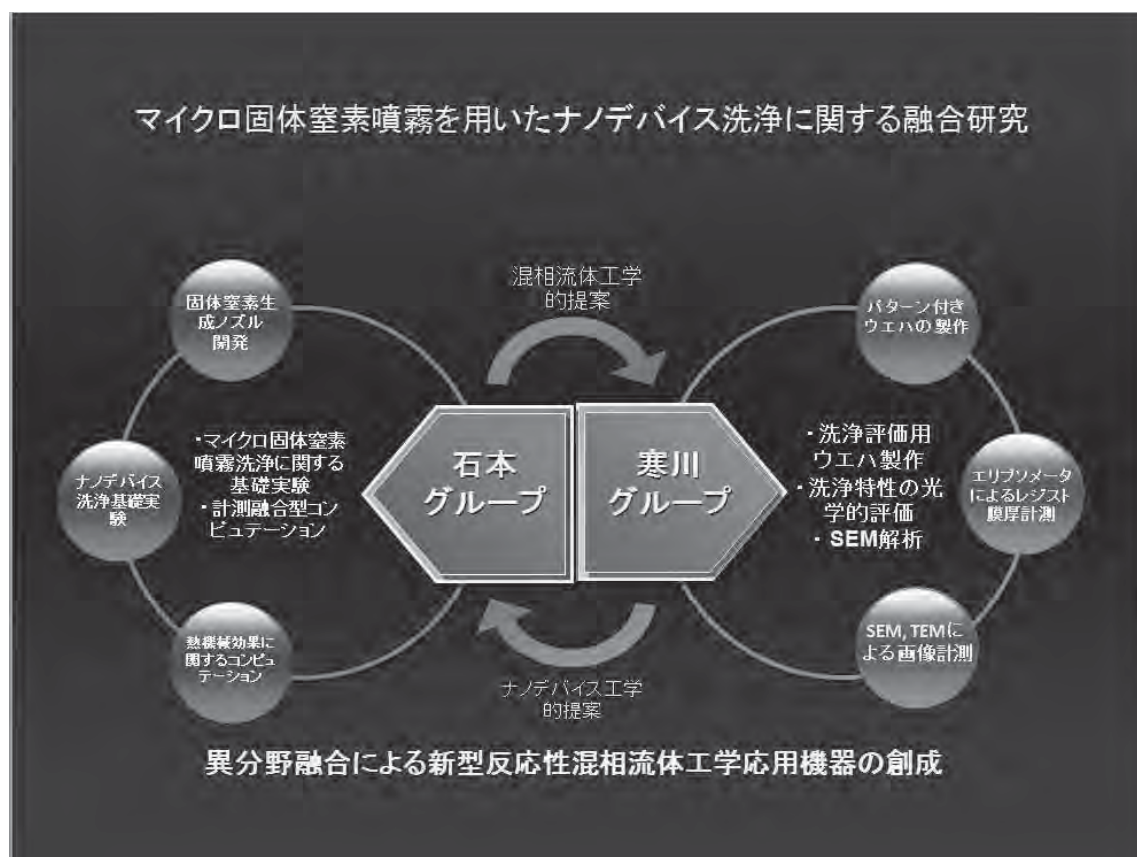


図1 マイクロ・ナノソリッド噴霧によるレジスト剥離・洗浄性能

を開発する。その結果、マイクロ・ナノスラッシュジェットの衝突による物理的レジストはく離と超高熱流束急冷による熱収縮の相乗効果を利用し、フォトレジストの一部をはく離することに成功した。加熱無しの場合、レジストはく離には至らないことから、レジストはく離に及ぼす熱収縮効果の影響はかなり大きいことを明らかにした。

実験は以下の2種の条件下によって行った。1) マイクロソリッド噴霧単体でその慣性力によりレジストのはく離・洗浄を行ったもの、2) ウエハーレジストをあらかじめ高温加熱した後、マイクロソリッド噴霧を吹き付け熱収縮の効果でレジストのはく離・洗浄を行ったものである。以下にそれぞれの結果を示す。

1) **マイクロソリッド噴霧のみによる洗浄** マイクロソリッド噴霧における SN_2 粒子が有する慣性力によるレジストのはく離・洗浄性能を確認するため、非加熱のウエハーレジストに対し、そのままマイクロソリッド噴霧を照射して、ウエハーレジストのはく離性能を評価する。その結果、照射する前との変化が見られず、マイクロソリッド噴霧によるレジストのはく離・洗浄性能を確認することができなかった。本結果より、洗浄の際には、熱力学的あるいは流体力学的に何らかの付加効果を併用する必要があることが判明した。

2) **超高熱流束冷却に基づく熱収縮効果洗浄** マイクロソリッド噴霧の超高熱流束急冷に基づく熱収縮効果を利用したウエハーレジストはく離・洗浄特性に関し検討を行う。まず、ウエハーに密着している基盤をヒーターで加熱後、マイクロソリッド噴霧を照射することにより超高熱流束急冷に基づく熱収縮効果利用による、ウエハーレジストのはく離・洗浄特性を評価する。噴霧照射時間 t_e を変化させてSEM観察を行った結果を図1に示す。それぞれ、 $t_e = 5\text{ min}$, 10 min , 15 min の照射を行った場合の結果である。熱収縮の効果を高めるために、マイクロソリッド噴霧を照射する直前に、ヒーターを用いてウエハーを550 Kまで急加熱した。急加熱の後マイクロソリッド噴霧を照射させ急冷させると、わずか8秒後に200 Kの温度降下を確認した。最もはく離特性の高い、 $t_e = 15\text{ min}$ の結果に着目すると、マイクロソリッド噴霧の粒子が持つ慣性力と超高熱流束急冷による熱収縮の効果で60%近いはく離・洗浄性能が達成されていることが分かる。本研究より、ウエハーの初期加熱無しの場合、レジストはく離には至らないことから、レジストはく離に及ぼす熱収縮効果の影響はかなり大きいと言える。従来型のレジストはく離・洗浄システムにおいては、熱収縮効果を積極的に活用しようとする発想は存在しなかったが、本研究により初めてレジストの急速熱収縮効果に基づく SiO_2 膜からはく離と除去が可能であることを明らかにした点は本研究の大きな成果であると考えている。

3) **超音波振動子を用いた固体窒素微粒化促進効果による洗浄特性** 上述のウエハー超高熱流束冷却条件に付加して、マイクロ・ナノ固体窒素粒子生成用二流体ノズルに超音波振動子を設置し、氷核生成の促進と固体窒素粒子の微粒化促進を行い、洗浄特性の評価を行った。その結果マイクロ固体窒素噴霧による洗浄メカニズムは、1) マイクロソリッド噴霧の慣性力の効果、2) 基盤加熱後に照射するマイクロソリッド噴霧の持つ超高熱流束急冷によるレジスト熱収縮の効果、3) 超音波振動子設置による氷核生成促進と固体窒素粒子の微粒化促進の相乗効果により、良好な洗浄特性を得られることが判明し、90%程度のウエハーレジストはく離・洗浄性能を達成しうることが明らかとなった [1]。

(代表的研究成果)

- [1] Jun Ishimoto, Daisuke Tan, U Oh, Tomohiro Kubota and Seiji Samukawa
Integrated Experimental and Numerical Study of Thermomechanical Resist Removal-Cleaning
Performance Using Cryogenic Micro-Solid Nitrogen Spray
ECS Transactions, Vol. 41, No.5, pp. 83-90 (2011).

【各研究グループの融合研究指針】

ライフサイエンスグループにおいては、細胞・生体組織にかかわる反応・輸送現象をマルチスケールで明らかにし、細胞と流動場の相互作用に関する研究、燃焼グループにおいては利用技術が高度化する燃焼・反応現象の解明・モデル化・制御を通じて、持続可能な社会構築に貢献する環境負荷の低い次世代反応流体科学技術の創出に関する研究、高応答性流体グループにおいては、外的要因に対し特有の反応・応答・機能性を表出化する流体・熱流動を対象とし、その異分野融合型研究開発を開始するための基盤構築を行った。詳しい内容に関しては次ページ以降の各研究プロジェクト（研究小グループ）の報告内容を参照のこと。

3. 研究目標の達成状況

ライフサイエンス、燃焼科学、高応答性流体科学の3プロジェクトにおいて次世代反応性流動に関連するテーマ設定と研究基盤の整備ならびに導入的研究を実施した。震災のため研究の実施が一時的に中断されたが、徐々に復旧しつつある。詳しい内容に関しては次ページ以降の各研究プロジェクト（研究小グループ）の報告内容を参照のこと。

4. まとめと今後の課題

現在のところ、徐々にではあるが各研究分野間の融合研究成果が形成されつつあり次世代反応性流動に関連する先進的成果を得るに必要な研究体制が整ってきていると言える。現在の研究体制に付加して3プロジェクト間の相互連携を行うことが分野横断型研究としての有効性を外部発信することにつながると考えられる。そこで次年度からはプロジェクト間の相互連携研究テーマとして、高応答性流体プロジェクトを基幹とした、1. ナノ固体窒素粒子噴霧を用いたヒト iPS 細胞の超高熱流束ガラス凍結（ライフと連携）、2. バイオ燃料の微粒化と噴霧燃焼特性（燃焼と連携）に関する融合研究を推進することを計画している。

細胞・生体組織における反応・輸送現象に関する研究
Research on Reaction and Transport Phenomena with Cell/Living Tissue

佐藤 岳彦^{1)†}, 小原 拓¹⁾, 太田 信¹⁾,
白井 敦¹⁾, 小宮 敦樹¹⁾, 富田 典子¹⁾
¹⁾東北大学流体科学研究所
†サブリーダー

1. 研究目的

細胞・生体組織にかかわる反応・輸送現象をマルチスケールで明らかにし、細胞と流動場の相互作用に関する基礎学理を構築する。本目的を達成するために、①プラズマ流の物理刺激輸送と細胞反応（佐藤）、②細胞膜輸送と細胞界面流動現象の理論的研究（小原）、③生体適合材料と細胞の相互作用（太田、富田）、④血管内皮細胞上における好中球の挙動に対する fMLP 刺激の影響（白井）、⑤物質・熱の細胞膜輸送現象の実験的研究（小宮）の各研究課題について取り組む。

2. 研究成果の内容

本年度は、上記研究課題に対応して下記研究成果を得た。

①プラズマ流の物理刺激輸送と細胞反応（佐藤）

プラズマ流により生成された化学種の細胞に与える影響について、DNA マイクロアレイにより網羅的遺伝子発現解析を行った。図 1 に網羅的遺伝子発現解析による各暴露条件に対する遺伝子発現数の変化を示した。プラズマ処理培地（210 s 照射:P210s と 40 s 照射:P40s）と過酸化水素添加培地（304 μ M:H304 μ M と 51 μ M:H51 μ M）を準備し、P210s と H304 μ M は 20s, P40s と H51 μ M は 60s 暴露した。図中の C はコントロールで、各条件の比を取り、発現量が 2 倍以上増えたときと 1/2 倍以下に減少した時の遺伝子発現数を縦軸に示している。これより、P40s と H51 μ M では、コントロールに比べて遺伝子発現量が 2 倍以上に増大している遺伝子数が減少した数に比べて 1000 以上増えていることが明らかになった。また、照射時間が長い P210s と過酸化水素濃度が高い H304 μ M は、P40s や H51 μ M よりも発現量が 1/2 倍以下になる遺伝子数が大きく増大することが明らかになった。

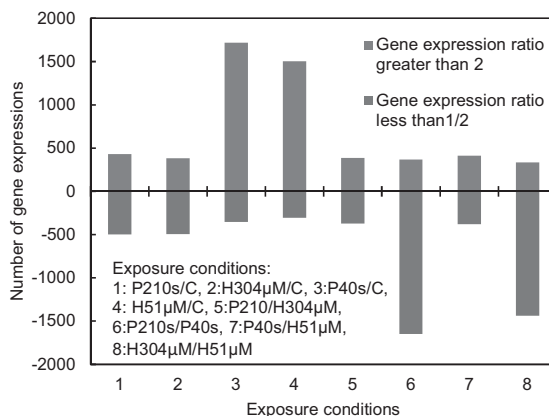


図 1：網羅的遺伝子発現解析による各暴露条件に対する遺伝子発現数の変化

②細胞膜輸送と細胞界面流動現象の理論的研究（小原）

水中に自己組織化的に形成される各種の脂質二重膜について、その膜面平行／垂直方向の熱輸送特性を計測し、脂質種の違いが輸送特性に与える影響を解析した。二重膜の膜面垂直方向熱抵抗において大きな部分を占める単層膜間の熱抵抗は、脂質分子尾部の2本のアルカン鎖の長さが異なる SMPC において顕著に減少すること、膜面垂直方向の熱伝導率は、アルカン鎖長が長くなるほど大きくなることなどを見出した。

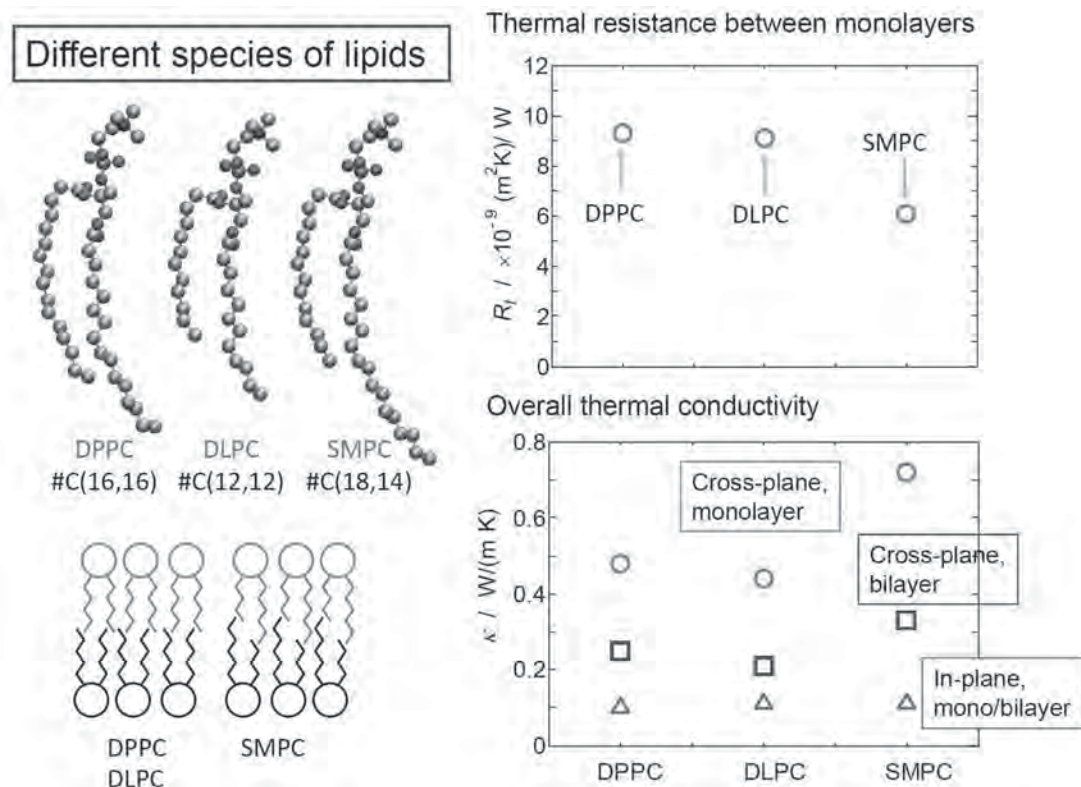


図2：脂質二重膜を形成する各種脂質分子と熱輸送特性。（右上）単層膜間の熱抵抗，（右下）単層膜・二重膜の膜面平行／垂直方向熱伝導率。

③生体適合材料と細胞の相互作用（太田，富田）

生体適合性材料を用いた生体軟組織の生体外循環システムモデル開発のため、今年度は血球モデルの要素技術の研究を行った。特に、血球モデルは脂質膜と膜孔タンパク質で構成されるので、膜孔タンパクの形成が脂質膜に及ぼす影響について、クラスター形成とシングル膜孔形成が溶血活性に及ぼす影響を調べた。経過時間毎に溶血活性（ヘモグロビンの流出量）および、血球内のカリウムイオンの流出量を計測し、同時間における膜上のクラスターを構成する膜孔数と、シングルで存在する膜孔数の割合を計測した。その結果、膜孔の内径（2nm）より小さいカリウムイオンは5分でほぼ完全に溶出し、遅れてヘモグロビンの溶出が100%に達した。シングル膜孔数の割合は5分後が最も多く、その後減少した。一方、クラスターを構成する膜孔数の割合は、経過時間とともに上昇した。

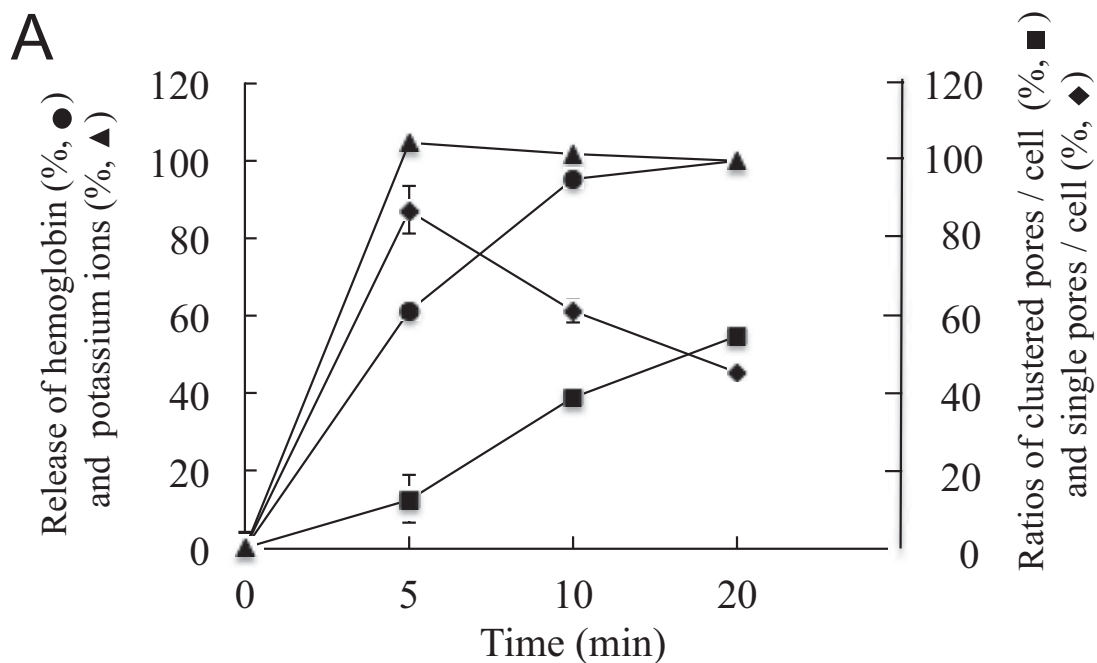


図 3 : クラスター形成とシングル膜孔形成が溶血活性に及ぼす影響

④血管内皮細胞上における好中球の挙動に対する fMLP 刺激の影響（白井）

傾斜遠心顕微鏡を用いて、ガラス平板上に培養したヒト臍帯静脈内皮細胞(HUVEC)に押しつけられながら移動する HL60 細胞(好中球のモデル細胞)の挙動を観察した。ここで、好中球の走化因子の一つである N-formyl-methionyl-leucyl-phenylalanine (fMLP)を用いて HL60 を刺激し、この刺激が挙動に与える影響を解析した。47pN で HUVEC に押しつけながら 10, 30 および 50pN で HL60 細胞を駆動した場合の平均移動速度を比較した結果、図 4 に示すように、HL60 細胞は、fMLP の刺激により平均移動速度が上昇した。そして、これは HUVEC 基板に対する付着率の減少に起因することが確認された。好中球は fMLP 刺激により固さを増すことから、押しつけ力下における HL60 の接触面積が fMLP 刺激により減少し、接着分子の結合量が減少することに起因すると考えられる。

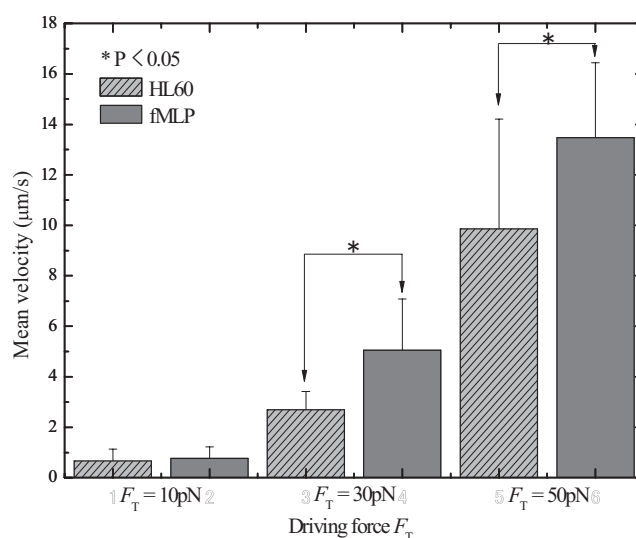


図 4：各駆動力 F_T における，fMLP 刺激が HL60 細胞の HUVEC 基板上における平均移動速度に与える影響

⑤物質・熱の細胞膜輸送現象の実験的研究（小宮）

流体研既有的の干渉計を用いて微小非定常拡散場の可視化を行い，タンパク質が特異に有する構造が拡散現象に与える影響について評価をした．試料として Lysozyme, BSA を用い，各タンパク質の物質拡散係数濃度依存性を評価した．BSA の分子量は Lysozyme の分子量よりも大きいので，溶媒による抵抗が大きくなり，図 5 に示すように，BSA の拡散現象は Lysozyme よりも遅くなることがわかる．また，Lysozyme と BSA では，濃度依存の傾向が異なり，これは現在理論的に研究が進められているタンパク質の分子構造が hard sphere か soft sphere かによる違いと定性的に一致している．

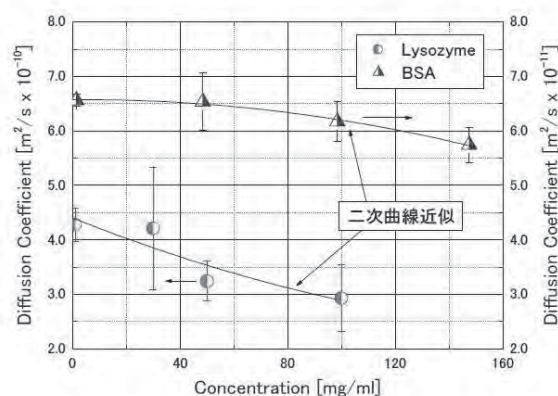


図 5：Lysozyme と BSA の物質拡散係数濃度依存性

3. 研究目標の達成状況

本年度の研究目標は概ね達成し，順調に研究を遂行している．各研究課題に対する個別の達成状況は下記の通りである．

①プラズマ流の物理刺激輸送と細胞反応（佐藤）

本年度は，プラズマ流の刺激に対する遺伝子群発現解析を進め，プラズマ流の照射条件により，遺伝子群の発現パターンが変化することを明らかにすることに成功し，細胞反応を司

る遺伝子群発現機構の解明に向けて大きく前進した。

②細胞膜輸送と細胞界面流動現象の理論的研究（小原）

脂質二重膜の熱輸送に関して解析をほぼ完了し、各種脂質分子に対して界面の性状と熱抵抗を計測するなど成果を得た。

③生体適合材料と細胞の相互作用（太田、富田）

細胞表面に存在するタンパク質の形成について解明したことによって、本相互作用について大きく進展させることができた。

④血管内皮細胞上における好中球の挙動に対する fMLP 刺激の影響（白井）

fMLP 刺激した HL60 細胞を用いた実験により、当初の目標通りに、走化因子による刺激が HL60 の移動速度に影響を与えることが示された。

⑤物質・熱の細胞膜輸送現象の実験的研究（小宮）

本年度の予定では、狭チャネル内でのタンパク質拡散を評価することも挙げられていたが、分子構造が拡散現象に及ぼす影響評価について集中的に実験観察を行い、生体高分子物質移動現象に関して有用な知見が得られたと考えられる。全体としては目標に対して 80%の達成度とすることができる。

4. まとめと今後の課題

今後の課題については、下記の通りである。

①プラズマ流の物理刺激輸送と細胞反応（佐藤）

網羅的遺伝子解析から Gene Ontology 解析を進め、細胞の各機能がどのように応答しているか解析する。また、リアルタイム PCR による遺伝子群発現の再現性について検証する。

②細胞膜輸送と細胞界面流動現象の理論的研究（小原）

今後は運動量の伝搬メカニズムと脂質二重膜の摩擦特性の解明が大きな課題である。

③生体適合材料と細胞の相互作用（太田、富田）

今後、細胞膜の大部分を占める脂質膜が本作用に与える影響を調べる。

④血管内皮細胞上における好中球の挙動に対する fMLP 刺激の影響（白井）

従来の研究では、血球の活性化により血管内皮細胞への付着率が増加することが報告されており、本結果と逆である。その原因の一つとして、HL60 細胞と好中球に、走化因子に対する反応に差があることが挙げられる。そこで、HL60 細胞を分化して好中球様細胞にする必要がある。また、走化因子による刺激は、血球だけではなく血管内皮細胞にも作用する。そのため、血管内皮細胞の刺激による血球挙動の影響を解析する。

⑤物質・熱の細胞膜輸送現象の実験的研究（小宮）

光学干渉計を用いてタンパク質の分子構造が拡散現象に与える影響について定性的に評価をした。今後は生体組織内環境を模擬した状態でのマイクロチャネル内の物質移動現象を取り扱っていく。

5. 研究成果

1) 学術雑誌（査読つき国際会議、解説等を含む）

- [1] Tetsuji Shimizu, Yutaka Iwafuchi, Gregor E. Morfill and Takehiko Sato: Formation of thermal flow fields and chemical transport in air and water by atmospheric plasma, *New Journal of Physics*, Vol.13, No.5, (2011), 053025 (10 pages).
- [2] Tetsuji Shimizu, Yutaka Iwafuchi, Gregor E. Morfill and Takehiko Sato: Transport mechanism of chemical species in a pin-water atmospheric discharge driven by negative voltage, *Journal of Photopolymer Science and Technology*, Vol.24, No.4, (2011), pp.421-427.

- [3] Takehiko Sato, Mayo Yokoyama and Kohei Johkura: A key inactivation factor of HeLa cell viability by a plasma flow, *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol.44, No.37, (2011), 372001 (5 pages).
- [4] Noriko Tomita, Kazuyo Abe, and Makoto Ohta: Quantitative analysis of subunit mismatch arrangement in staphylococcal gamma-hemolysin heteroheptameric transmembrane pore, *Proceedings of ASME 2011 International Mechanical Engineering Congress & Exposition 2011*, (2011), IMECE2011-63645.
- [5] Noriko Tomita, Kazuyo Abe, Jun Kaneko, Yoshiyuki Kamio and Makoto Ohta: Probabilistic Study on Subunit Mismatch Arrangement in Staphylococcal γ -hemolysin Heteroheptameric Transmembrane Pore, *Journal of Biomechanical Science and Engineering*, Vol.6, No.4, (2011), pp.286-298.
- [6] Noriko Tomita, Kazuyo Abe, Yoshiyuki kamio and Makoto Ohta: Cluster-forming property correlated with hemolytic activity by staphylococcal γ -hemolysin transmembrane pore, *FEBS Letters*, Vol.585, No.21, (2011), pp.3452-3456.
- [7] Keitaro Yamashita, Yuka Kawai, Yoshikazu Tanaka, Nagisa Hirano, Jun Kaneko, Noriko Tomita, Makoto Ohta, Yoshiyuki Kamio, Min Yao, and Isao Tanaka: Crystal structure of the octameric pore of staphylococcal γ -hemolysin reveals the β -barrel pore formation mechanism by two components, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America (PNAS)*, Vol.108, No.42, (2011), pp.17314-17319.
- [8] Keisuke Mamada, Hiroyuki Kosukegawa, Vincent Fridrici, Philippe Kapsa, Makoto Ohta: Friction properties of PVA-H/steel ball contact under water lubrication conditions, *Tribology International*, Vol.44, Issues 7-8, (2011) pp.757-763.
- [9] Keisuke Mamada, Vincent Fridrici, Hiroyuki Kosukegawa, Philippe Kapsa, Makoto Ohta: Friction Properties of Poly(vinyl alcohol) Hydrogel: Effects of Degree of Polymerization and Saponification Value, *Tribology Letters*, Vol.42, Issue 2, (2011) pp.241-251.
- [10] J.F. Torres, A. Komiya, J. Okajima and S. Maruyama: Evaluation of the Concentration Dependency of Mass Diffusion Coefficients in Aqueous Binary Solutions, *Proceedings of the 7th International Conference on Diffusion in Solids and Liquids*, Algarve, (2011), CD-ROM DSL315.

2) 国際会議・国内学会・研究会・口頭発表等

- [11] Takehiko Sato, Mayo Yokoyama, Kohei Johkura: Inactivation process of HeLa cell by exposure to a plasma-treated medium, *Proceedings of the 20th International Symposium on Plasma Chemistry (ISPC-20)*, Philadelphia, USA, (2011), presentation no. 287.
- [12] Naoya Kishimoto, Tetsuji Shimizu, Gregor E. Morfill and Takehiko Sato: Analysis of Plasma Flow at Gas-Liquid Interface for Biological Interaction, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp.68-69.
- [13] Yoshihisa Nakano, Shigeru Fujimura and Takehiko Sato: Anti-bacterial Effect of a Dielectric Barrier Discharge Plasma against Biofilm-producing Gram Negative Bacilli, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp.70-71.
- [14] Takehiko Sato, Marc Tinguely, Masanobu Oizumi and Mohamed Farhat: Effect of Neighboring Solid Wall on Generation of Residual Microbubbles after Collapse of Laser-Induced Bubble, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on*

- Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp.64-65.
- [15] Takehiko Sato, Takashi Miyahara and Tatsuyuki Nakatani: Observation of Bubble Formation and Collapse Process by Generating a Plasma, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp.66-67.
- [16] Hidemasa Fujita, Seiji Kanazawa and Takehiko Sato: Streamer Propagation Mechanism in Water, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp.60-61.
- [17] Takehiko Sato, Mayo Yokoyama and Kohei Johkura: Effect of Chemical Species Generated by a Plasma Flow on Inactivation of HeLa Cell Viability, *Proceedings of the 8th International Conference on Flow Dynamics*, Sendai, (2011), pp.690-691.
- [18] Seiji Kanazawa, Yuki Ichihashi, Satoshi Watanabe, Shuichi Akamine, Ryuta Ichiki, Toshikazu Ohkubo, Takehiko Sato, Marek Kocik, Jerzy Mizeraczyk: Observation of Liquid-Gas Phase Dynamics from Pre-breakdown to Post-discharge in a Single-shot Underwater Pulsed Discharge, *The 2nd ISNPEDADM-2011 (New electrical technologies for environment)*, New Caledonia, (2011).
- [19] Tetsuji Shimizu, Yutaka Iwafuchi, Gregor E. Morfill and Takehiko Sato: Plasma Induced Flow and Chemical Transport in a Plasma-Water System, *Abstracts - 21st Academic Symposium of MRS-Japan 2011*, Yokohama, (2011), abstract no. A-08.
- [20] Tetsuji Shimizu, Yutaka Iwafuchi, Gregor E. Morfill and Takehiko Sato: Flow formation and chemical species transport in a pin-water surface atmospheric plasma, *The 8th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing (JSPP2012) Book of Abstracts*, Nara, (2012), O05 (2 pages).
- [21] 佐藤岳彦, 岩渕豊, 清水鉄司, Gregor Morfill : 水面上に形成するプラズマ流による気液中の化学輸送機構, 第 23 回「電磁力関連のダイナミクス」シンポジウム, 名古屋, (2011).
- [22] 佐藤岳彦, 岩渕豊, 清水鉄司, Gregor Morfill : 大気圧プラズマ流の気中・液中における化学輸送機構, 第 28 回国際フォトポリマーコンファレンス, 千葉, (2011).
- [23] 佐藤岳彦 : 大気圧プラズマ流の化学種生成輸送機構と滅菌特性, 学術振興会「プラズマ照射による医療用品の滅菌, エンドトキシンならびにプリオン不活化法と応用」に関する研究開発専門委員会, 平成 23 年度第 4 回合同委員会, 大阪, (2011).
- [24] 石田将之, 佐藤岳彦: 大気放電による滅菌法の開発, 第 21 回環境工学総合シンポジウム 2011, 東京, (2011).
- [25] 佐藤岳彦, 岩渕豊, 清水鉄司, Gregor Morfill : 大気圧プラズマ流の気液中における熱流動解析, 第 21 回環境工学総合シンポジウム 2011, 東京, (2011).
- [26] 佐藤岳彦 : プラズマ滅菌, 第 2 回プラズマ・バイオ融合若手研究会, 山形, (2011).
- [27] 佐藤岳彦, 横山茉代, 城倉浩平 : プラズマ照射培地による細胞不活性化, 第 35 回静電気学会全国大会, 東京, (2011).
- [28] 佐藤岳彦 : プラズマ処理培地への暴露による細胞不活性化における過酸化水素の役割, プラズマコンファレンス 2011 (PLASMA2011), 金沢, (2011).
- [29] 佐藤岳彦 : 流体力学的視点からみたプラズマ医療, プラズマ核融合学会専門委員会「プラズマ科学の医療応用」第 2 回会合, 東京, (2011).
- [30] 佐藤岳彦 : 大気圧プラズマ流による生体への干涉機構ープラズマ医療への展開ー, 第 1 回流体科学におけるバイオ・医療に関する講演会, 仙台, (2011).
- [31] 佐藤岳彦 : プラズマ流と生体の相互作用解明に向けた流体力学的取組, 日本機械学会環境工

- 学部門第3技術委員会講演会，東京，(2011).
- [32] 佐藤岳彦，横山茉代，城倉浩平：プラズマ処理培地への暴露における HeLa 細胞不活性化因子，日本機械学会第24回バイオエンジニアリング部門講演会，大阪，(2012).
 - [33] Noriko Tomita, Makoto Ohta: Analysis of cell adhesion on PVA-H for developing vessels bio-model with dynamical and biological response” *24th European Conference on Biomaterials*, Dublin, Ireland, Sep. 4-8, 2011, Abstract Book (CD-ROM), pp. n3484-n3484, Oral and Poster presentations.
 - [34] Makoto Ohta, Shuya Shida, Chang-ho Yu, Kei Ozawa, Xiaobo Han, Noriko Tomita, Hiroyuki Kosukegawa, Daniel A. Ruefenacht: Assessment of stent using in vitro/-silico biomodelling, *8th International Interdisciplinary cerebrovascular Symposium and 11th Oriental Conference of Interventional Neuroradiology and 6th East Asian Conference of Neurointervention*, Shanghai, Chiana, Sep. 8-11, 2011, Abstracts, pp.130-130, Oral presentation, (Invited)
 - [35] Noriko Tomita, Kazuyo Abe, Jun Kaneko, Yoshiyuki Kamio and Makoto Ohta: Characterization and image analysis of heteroheptameric structure on staphylococcal γ -hemolysin transmembrane pore, *Eighth International Conference on Flow Dynamics*, Sendai, Japan, Nov. 9-11, 2011, Proceedings pp.468-469, Oral presentation, (Invited)
 - [36] Noriko Tomita, Kazuyo Abe, and Makoto Ohta: Quantitative analysis of subunit mismatch arrangement in staphylococcal gamma-hemolysin heteroheptameric transmembrane pore, *ASME2011 International Mechanical Engineering Congress & Exposition*, Denver, USA, Nov. 11-17, Proceedings of ASME 2011 International Mechanical Engineering Congress & Exposition IMECE63645, pp.1-8, Oral presentation
 - [37] Noriko Tomita: Membrane protein for preparation of application for nano-micro channel, *Japan-China Joint Workshop on Bio, Material and Flow Dynamics*, Sendai, Japan, Feb. 21-23, 2012, Oral presentation
 - [38] H.Kosukegawa, V. Fridrici and Makoto Ohta: Friction Behavior of Medical Metallic Alloys against Biomimetic Poly (vinyl alcohol) Hydrogel, *24th European Conference on Biomaterials The Annual Conference of the European Society for Biomaterials*, Dublin, Ireland, Sep.4-8, 2011
 - [39] Hiroyuki Kosukegawa, Chihaya Kiyomitsu, Makoto Ohta: Control of wallthickness of blood vessel biomodel made of poly (vinyl alcohol) hydrogel by a three-dimentional rotating spin DIP-coating method, *ASME INTERNATIONAL MECHANICAL ENGINEERING CONGRESS AND EXPOSITION*, Colorado, USA, 2011.11.11-17
 - [40] Yasutomo Shimizu, Shuya Shida, Makoto Ohta: Influence of Plaque Movement on Blood Flow and Blood Vessel around Stenosis Area, *Eighth International Conference on Flow Dynamics*, Sendai, Japan, 2011.11.9-11
 - [41] Xiaobo Han, Naoya Sakamoto, Naoki Saito, Masaaki Sato, Makoto Ohta: Involvement of ERK in Morphological Response of Endothelial Cells to Spatial Gradient of Shear Stress, *Eighth International Conference on Flow Dynamics*, Sendai, Japan, 2011.11.9-11
 - [42] Hiroyuki Kosukegawa, Vuncent Fridrici, Philippe Kasper, Boyko Stoimenov, Koshi Adachi, Makoto Ohta: Friction Analysis of Biometal on PVA Biomodel, *Eighth International Conference on Flow Dynamics*, Sendai, Japan, 2011.11.9-11
 - [43] Yoshikazu Tanaka, Keitaro Yamashita, Yuka Kawai, Nagisa Hirano, Jun Kaneko, Noriko Tomita, Makoto Ohta, Yoshiyuki Kamio, Min Yao and Isao Tanaka: Crystal Structure of the Octameric Pore of Staphylococcal γ -hemolysin, *Eighth International Conference on*

Flow Dynamics, Sendai, Japan, 2011.11.9-11

- [44] Hiroyuki Kosukegawa, Vincent Fridrici, Philippe Kapsa, Boyko Stoimenov, Koshi Adachi, Makoto Ohta: Friction of Medical Metallic Alloys on Soft Tissue Biomodel, *International Tribology Conference*, Hiroshima, Japan, 2011.10.30-11.3
- [45] A. Shirai, T. Umimoto, H. Uranuma and T. Hayase: Behavior of HL60 cells on HUVEC substrate under inclined centrifugal forces, *2012 Annual ELyT Workshop Abstract Book (2012/3/11-14)*, USB-memory.
- [46] 白井, 浦沼, 早瀬: HUVEC 基板上を移動する HL60 に対する押しつけ力の影響, 日本機械学会第 24 回バイオエンジニアリング講演会講演論文集 (2012/1/7-8), CD-ROM.
- [47] 佐藤, 白井, 早瀬: ガラス平板上における HL60 の挙動に与える fMLP 刺激の影響に関する傾斜遠心顕微鏡を用いた実験的研究, 日本機械学会第 24 回バイオエンジニアリング講演会講演論文集 (2012/1/7-8), CD-ROM.
- [48] J.F. Torres, 小宮敦樹, 岡島淳之介, 円山重直: 高分子化合物の水溶液内物質拡散係数の濃度依存性測定, 第 48 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, 岡山, (2011), pp.27-28.
- [49] 小宮敦樹, 円山重直, J.F. Torres, 庄司衛太: 光学干渉計による物質拡散場および温度境界層の高精度可視化, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2011 講演論文集, 浜松, (2011), 熱工学ギャラリーコレクション A137.
- [50] A. Komiya, S. Live, S. PRUVOST and J. Chevalier: Active Mass Transfer Control in Diffusion Field by Smart Materials, *ELyT Lab workshop 2012*, Gien, (2012), pp.58-59.

3) その他 (特許, 受賞, マスコミ発表等)

(特許) 該当なし

(受賞) 該当なし

(マスコミ発表) 該当なし

[サブテーマ 2]

燃焼・反応現象の解明と制御に関する研究 Research on Combustion and Chemical Kinetics

丸田 薫^{1)†}, 小林 秀昭¹⁾, 大上 泰寛^{1,2)}, 中村 寿¹⁾,
店橋 護³⁾, Sergey Minaev⁴⁾, Yiguang Ju⁵⁾
¹⁾東北大学流体科学研究所, ²⁾秋田県立大学, ³⁾東京工業大学,
⁴⁾SB RAS, ITAM, ⁵⁾Princeton University, MAE,
†サブリーダー

1. 研究目的

燃料が多様化し利用技術が高度化する燃焼・反応現象の解明・モデル化・制御を通じて、持続可能な社会構築に貢献する環境負荷の低い次世代反応流体科学技術の創出を図る。

2. 研究成果の内容

燃焼・反応現象のさらなる高度利用を実現するため、本サブテーマは①独自の実験手法による燃焼・反応現象の理解、②スーパーコンピュータを用いた詳細数値計算による燃焼・反応現象のモデル化、③融合研究による三次元燃焼現象リアルタイム解析技術を三本の柱として進めている。これら 3 つの研究項目について、平成 23 年度は所内および所外共同研究者と準備作業を中心に以下を実施した。

①燃焼・反応現象の理解（乱流燃焼特性）

- ・ 直接数値解析(DNS)と実験結果の比較検討を可能にする標準乱流燃焼バーナを完成（図 1）。
- ・ 同バーナを用いバイオ燃料であるプロパノール異性体の高圧乱流燃焼実験を実施（図 2）。
- ・ バイオエタノールの詳細反応経路解析と高圧燃焼実験による検証を実施（図 3）
- ・ 種々燃料改質装置に用いられる多孔体内に形成される高圧伝播火炎のレーザー可視化計測を実施（図 4）
- ・ CCS を想定した石炭改質模擬ガスと純酸素ならびに高濃度二酸化炭素予混合気に対する高圧乱流燃焼実験を実施。
- ・ 高温予混合気における火炎の不安定挙動解析を実施。

① 燃焼・反応現象の理解（燃料の着火特性）

- ・ 燃料の着火特性を計測するためのマイクロリアクタについて、高級炭化水素燃料の多段階酸化反応の圧力依存性およびオクタン価依存性につづき、トルエン添加効果、セタン価依存性を解明。
- ・ マイクロリアクタ内の化学種計測の高度化に向けて、分光計測に用いる装置を導入。
- ・ 低級炭化水素における顕著な着火性の差異に注目し、天然ガス成分の影響を調査。
- ・ マイクロリアクタにおける壁の化学的消炎作用について実験および数値計算により検討。

②詳細数値計算による燃焼・反応現象のモデル化

- ・ 大規模炭化水素燃料であるイソセタン、n セタンにおける詳細化学反応を含む数値計算を行い、既存の低温酸化反応機構の問題点を抽出。

③融合研究による三次元燃焼現象リアルタイム解析技術

- ・ 燃焼現象のリアルタイム三次元描画に関する結果を発表。

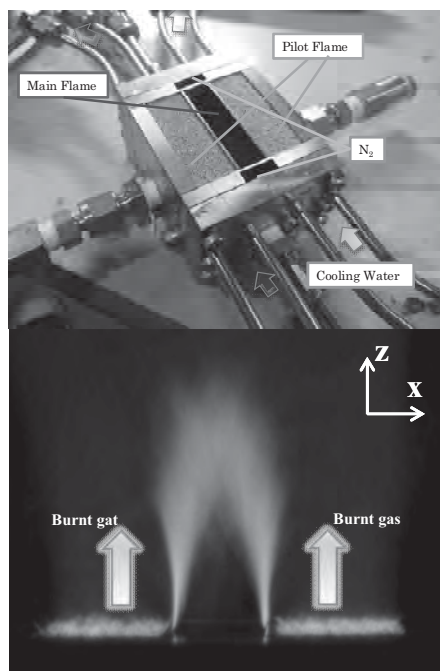


図1：標準乱流燃焼バーナと火炎写真

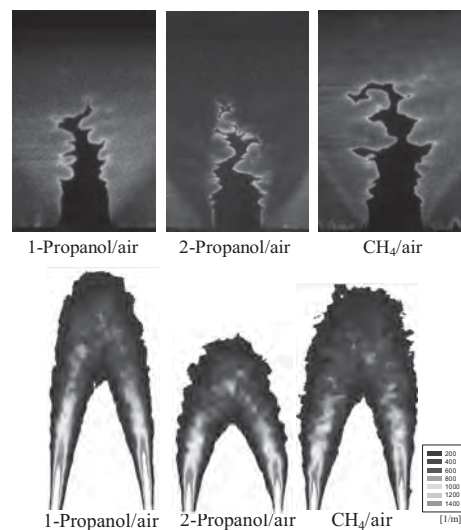


図2 プロパノール異性体高圧乱流火炎のOH-PLIFと火炎面密度分布 (0.5 MPa)

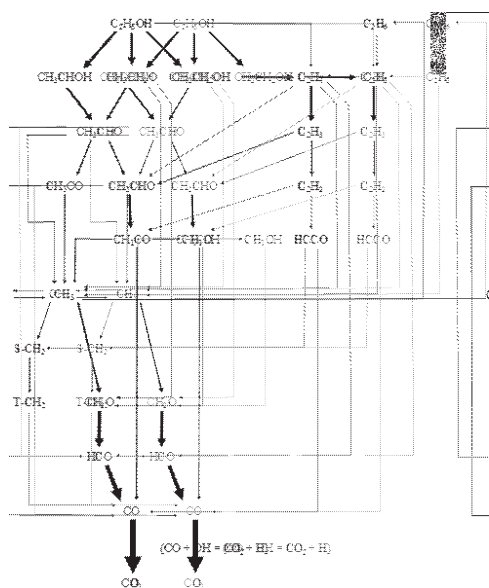


図3 エタノール燃焼の反応経路

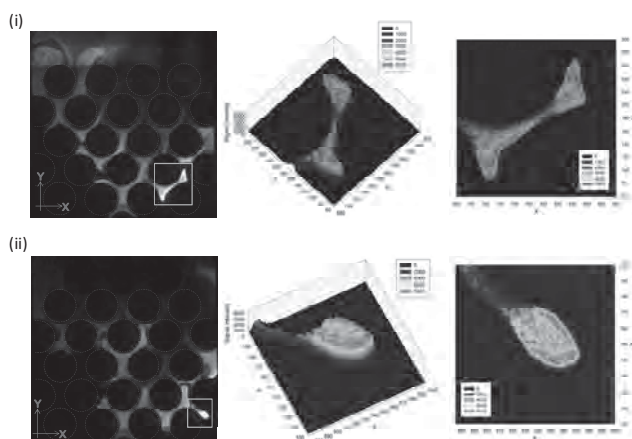


図4 高圧充填層内を伝播する予混合火炎前縁部のエッジフレーム構造 (OH-PLIF, 0.5 MPa)

3. 研究目標の達成状況

計画に基づき、平成23年度も順調に推移している。

4. まとめと今後の課題

平成23年度までに各サブトピックの基盤技術や装置の構築を実施した。平成24年度はさらに

押し進め、実験から素反応計算までを通じた総合研究を実施することが課題である。

5. 研究成果

1) 学術雑誌（査読つき国際会議，解説等を含む）

- [1] S. Kadowaki, M. Yahata, H. Kobayashi: Effects of the Unburned-Gas Temperature and Lewis Number on the Intrinsic Instability of High-Temperature Premixed Flames, *Journal of Thermal Science and Technology*, Vol.6, pp. 376-390, (2011).
- [2] M. Okuyama, T. Suzuki, Jinhua Wang, Y. Ogami, H. Kobayashi: Flame Structure and Propagation Mechanism through Meso—Scale Flow Channel Network in a Packed Bed at High Pressure, *The Eighth KSME-JSME Thermal and Fluids Engineering Conference*, GST04-017 (2012).
- [3] J. Wang, F. Matsuno, Y. Ichikawa, M. Okuyama, Y. Ogami, H. Kobayashi: Flame Front Structure Characteristics of Turbulent Premixed Flames Diluted with CO₂ and H₂O at High Pressure and High Temperature, *The Eighth KSME-JSME Thermal and Fluids Engineering Conference*, GST04-016 (2012).
- [4] Yiguang Ju, Kaoru Maruta Microscale combustion: Technology development and fundamental research, *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol.37, Issue 6:669-715 (2011.12). doi:10.1016/j.pecs.2011.03.001.
- [5] Mikito Hori, Akira Yamamoto, Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa and Kaoru Maruta: Study on octane number dependence of PRF/air weak flames at 1-5 atm in a micro flow reactor with a controlled temperature profile, *Combustion and Flame*, Vol.159, Issue 3 : 959-967.

2) 国際会議・国内学会・研究会・口頭発表等

- [1] H. Kobayashi, Y. Ogami: Turbulent Combustion of Model Coal-gasification Syngas at High Pressure, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp.10-11.
- [2] F. Matsuno, J. Wang, Y. Otawara, Y. Ogami, H. Kobayashi: A Study on Turbulent Premixed Combustion for CO/H₂/CO₂/O₂ Mixture at High Pressure, *The Eighth International Conference on Flow Dynamics (8th ICFD 2011)*, (2011), pp.572-573.
- [3] S. Kadowaki, T. Oshima, H. Kobayashi: Instability of High-Temperature Premixed Flames, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp.78-79.
- [4] Sereschenko EV, SS Minaev, RV Fursenko, Maruta K.: Modeling of unsteady combustion waves in gas mixtures of small systems, *FAPMCP Fundamental and Applied Problems in Mechanics and Control Processes*, (Vladivostok, Sep., 2011).
- [5] Taiki Kamada, Hisashi Nakamura, Takuya Tezuka, Susumu Hasegawa, Kaoru Maruta: Study on weak flame behavior of lower alkane fuels in micro flow reactor with controlled temperature profile, *Eighth International Conference on Flow Dynamics Proceedings*, Sendai, (2011), pp. 548-549.
- [6] Satoshi SUZUKI, Mikito HORI, Akira YAMAMOTO, Takuya TEZUKA, Susumu HASEGAWA, Hisashi NAKAMURA, Kaoru MARUTA: Cetane number and weak flames of diesel PRF in a micro flow reactor with a controlled temperature profile, *Eighth International Conference on Flow Dynamics Proceedings*, Sendai, (2011), pp. 542-543.

- [7] Sergey Minaev, Roman Fursenko, Evgeniy Sereschenko, Aiwu Fan, Sudarshan Kumar and Kaoru Maruta: Oscillating and Rotating Flame Patterns in Microchannels, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp. 20-21.
- [8] Boris Mazurok, Alex Menschikov, Boris Dolgovesov, Roman Fursenko, Sergey Minaev and Kaoru Maruta: Real Time Modeling of Flame Front Evolution by Kinematical Model, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp. 80-81.
- [9] Roman Fursenko, Sergey, Kaoru Maruta and Hisashi Nakamura: GPU-based Parallel Computations of Low Lewis Number Stretched Premixed Flames, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp. 82-83.
- [10] 門脇敏, 小林秀昭, 大島卓也: 高温予混合火炎の固有不安定性に関する数値解析: 未燃ガス密度一定条件下における温度の影響, 第48回日本伝熱シンポジウム2011 講演論文集, (2011), pp.97-98.
- [11] 大上泰寛, 小関雅人, 奥山昌紀, 鈴木拓朗, 小林秀昭: 高温高压下におけるエタノール予混合火炎の燃焼メカニズムに関する研究, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2011 講演論文集, (2011), pp.133-134.
- [12] Jinhua Wang, 大田原佑樹, 松野太, 小林秀昭, 大上泰寛, 工藤琢, 奥山昌紀: 高压下における石炭改質模擬ガスの純酸素乱流燃焼特性に関する研究, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2011 講演論文集, (2011), pp.135-136.
- [13] 大上泰寛, 小関雅人, 奥山昌紀, 鈴木拓朗, 小林秀昭: 高温高压下におけるエタノール/空気予混合火炎の燃焼反応機構の解析, 第49回燃焼シンポジウム講演論文集, (2011), pp.4-5.
- [14] 門脇敏, 大島卓也, 小林秀昭: 高温予混合火炎の数値解析: 未燃ガス密度一定条件下における火炎面の不安定性, 第49回燃焼シンポジウム講演論文集, (2011), pp.20-21.
- [15] Jinhua Wang, 市川泰久, 松野太, 奥山昌紀, 大上泰寛, 小林秀昭: 高压下における乱流予混合火炎の火炎面構造解析に関する研究, 第49回燃焼シンポジウム講演論文集, (2011), pp.234-235.
- [16] 大田原佑樹, Jinhua Wang, 松野太, 工藤琢, 大上泰寛, 奥山昌紀, 小林秀昭: 高压下における石炭改質模擬ガスに対する純酸素予混合乱流燃焼特性, 第49回燃焼シンポジウム講演論文集, (2011), pp.236-237.
- [17] 堀 幹人, 山本 晃, 手塚卓也, 長谷川進, 中村 寿, 丸田 薫: 温度分布制御型マイクロフローリアクタにおける PRF/空気 weak flame の圧力およびオクタン価依存性, 自動車技術会 2011 年春季大会学術講演会, 20115399, (2011.5).
- [18] 鎌田 大輝, 手塚 卓也, 長谷川 進, 中村 寿, 丸田 薫: 温度分布制御型マイクロフローリアクタによる低級アルカン燃料の着火特性に関する研究, 日本機械学会東北支部第47期秋季講演会, (2011.9).
- [19] 猿渡 堅一郎, 中村 寿, 手塚 卓也, 長谷川 進, 丸田 薫: 温度分布制御型マイクロフローリアクタによる水素の燃焼特性および表面反応の影響, 第49回燃焼シンポジウム講演論文集, 378-379, (2011.11).
- [20] 鈴木 聡史, 堀 幹人, 中村 寿, 手塚 卓也, 長谷川 進, 丸田 薫: 温度分布制御型マイクロフローリアクタを用いたディーゼル基準燃料のセタン価と燃焼特性, 第49回燃焼シンポジウム講演論文集, 356-357, (2011.11).

高応答性流体の異分野融合展開

Development of the Different Academic Field Integration of High Responsible Fluid

石本 淳^{1†}, 西山 秀哉¹, 高奈 秀匡¹, 徳増 崇¹, 寒川 誠二¹, 久保田 智広¹
Kozo Saito², 姫野 武洋³, 新城 淳史⁴, 岡村 崇弘⁵, 松浦 一雄⁶, 井上 元⁷

¹東北大学流体研, ²IR4TD, University of Kentucky, USA, ³東京大大学院,
⁴JAXA 研究開発本部, ⁵KEK 素核研低温, ⁶東北大学国際高等, ⁷九州大工学研究院
†サブリーダー

1. 研究目的

外的要因に対し特有の反応・応答・機能性を表出化する流体・熱流動を対象とし、その異分野融合型研究開発手法を通して、ナノ機能性創出、反応性界面物理、環境調和型エネルギー、低炭素社会構築、リサイクル科学、流体-固体材料連成科学への学術的貢献と先端応用展開を目指す。各小研究グループにおける研究目標は以下となる。

① サステナブル反応性微粒化・界面現象に関する研究 (石本 G)

外的要因に対し特有の反応・応答・機能性を表出化する流体の微粒化・界面現象に関して、その異分野融合型研究開発手法を通して、新エネルギー循環科学への学術的貢献と先端応用展開を目指す。

② プラズマチューブによる管内微粒子流動制御 (西山・高奈 G)

近年、自動車の排気ガスや工場から発する煤煙などによる大気汚染は深刻化しており、環境への配慮が責務である産業界にとっては環境汚染対策が急務の課題になっている。そこで本研究では、大気汚染微粒子の除去ならびに高効率微粒子搬送技術の確立を目指し、空気を誘電体バリア放電(Dielectric Barrier Discharge)を用いて活性化させた管内において、微粒子の攪拌・搬送及び浄化を可能とするプラズマチューブを提案するとともに、その特性を明らかにすることを目的とする。

③ PEFC 触媒層の酸素、プロトン輸送性能の評価シミュレータの構築 (徳増 G)

固体高分子形燃料電池(PEFC)は化石燃料に代わる次世代電源として期待が大いに高まっているが、その利用効率を増加させるには触媒層で十分な反応を生じさせる必要がある。現在、分極が大きいのはカソード側の触媒層であり、この分極を低下させるにはカソード側触媒層で触媒表面に十分な量のプロトン、酸素を供給する必要がある。触媒層内では触媒表面や担持カーボンはアイオノマーと呼ばれる厚さ数 nm の高分子超薄膜で覆われており、プロトンはこのアイオノマー内を移動して触媒表面に到達し、酸素分子はこのアイオノマーを透過して触媒表面に到達する。このアイオノマーは厚すぎると酸素透過を阻害し、薄すぎるとプロトン輸送を阻害するため、触媒層で効率よく反応を起こすためには、このアイオノマー内部におけるプロトンおよび酸素のナノスケール輸送現象を解明し、その知見を元に触媒層の最適設計を行う必要がある。このような理由から、本研究では東北大学側が分子動力学法を用いてアイオノマー内のプロトン輸送現象、酸素透過現象を解明する。また九州大学側では触媒層の多孔体構造を数値的に再現してその内部の輸送現象をマクロ方程式により解析するシミュレータを開発し、最終的にはこのマクロシミュレータに分子動力学法より得られたプロトン輸送、酸素透過モデルを組み込むことにより PEFC 触媒層の包括的な性能を予測できるマルチスケールシミュレータを確立することを目的とする。

- ④ 計算と実験の融合によるプラズマとナノ構造表面界面相互作用に関する研究（寒川 G）
 プラズマ固体相互作用の解明とナノ界面制御のため、計算と実験の融合によるプラズマとナノ構造表面界面相互作用を明らかにし、将来のナノデバイス開発に貢献する。

2. 研究成果の内容

外的要因に対し特有の反応・応答・機能性を表出化する流体・熱流動を対象とし、その異分野融合研究を推進する。具体的には、1) サステナブル反応性微粒化・界面現象に関する研究（石本グループ）、2) 環境浄化・エネルギー促進用反応性混相プラズマ流動システムの構築（西山・高奈グループ）、3) プラズマ固体相互作用の解明とナノ界面制御（寒川・Huangグループ）、4) 燃料電池内部の反応流動現象のマルチスケール解析（徳増グループ）の4グループにより研究を実施した。本年度は、上記研究課題に対して以下の研究成果を得た。

① サステナブル反応性微粒化・界面現象に関する研究（石本 G）

研究成果に関しては、全体の研究概要を参考のこと。

② プラズマチューブによる管内微粒子流動制御（西山・高奈 G）

図 1(a)に実験装置の概略図を、図 1(b)にプラズマチューブの断面図をそれぞれ示す。表裏に幅 5 mm の一対の螺旋状の銅電極を有する内径 12 mm 及び 20 mm のテフロン製の長さ 100 mm のプラズマチューブを製作し、大気圧・室温の下で放電を行った。なお、プラズマチューブの外壁及び内壁には幅 5 mm の銅電極が 3 mm 及び 4 mm の間隔で交互に螺旋状に巻きつけられており、電極角度は 45° である。入力電圧波形は 1 kHz の正弦波とし、印加電圧を変化させて流れのない状態で管中央底部にアルミナ微粒子を静置して実験を行った。

図 2(a)(b) に PIV 計測によって得られたチューブ出口近傍での管軸平行面及び垂直面における誘起流の平均速度ベクトル分布を示す。これらの図より、管出口においては斜め上向きに最大で 56 cm/s の流れが放電により誘起され、誘起流は管出口断面から見て左方向に旋回することが分かる。

図 3 に数値計算により得られたプラズマチューブ内の電位分布を示す。なお、印加電圧は 7.5 kV である。高電圧印加電極から半径方向及び軸方向に電位勾配が大きく、高電圧印加電極近傍に強い電界が形成される。高電圧印加電極では交流電圧が印加されるため、電界の向きは交互に反転する。したがって、粒子は静電気力により図中に矢印で示したように激しく半径方向に振動し、壁面上の粒子は電極間を軸方向に振動することが明らかとなった。

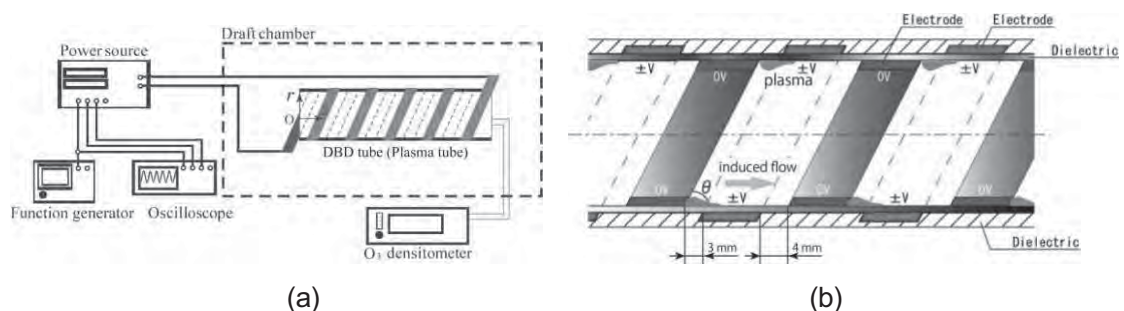


図 1 : (a) 実験装置の概略図, (b) プラズマチューブの断面図

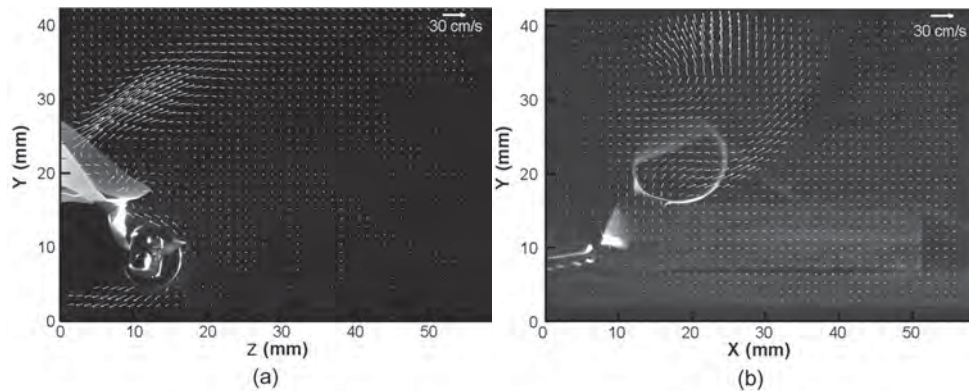


図 2 : PIV 計測によるプラズマチューブ出口近傍における時間平均速度場
(a) 管軸に対して平行断面, (b) 垂直断面

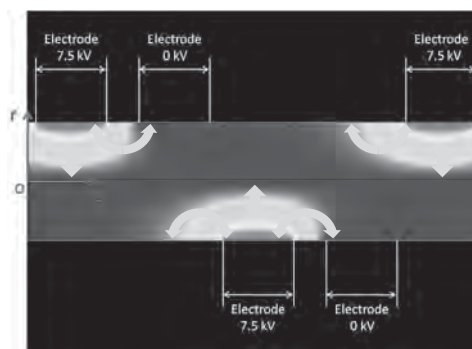


図 3 : 数値計算によるプラズマチューブ内の電位分布

③ PEFC 触媒層の酸素, プロトン輸送性能の評価シミュレータの構築 (徳増 G)

東北大学側では, 今年度は白金表面上の酸素透過をシミュレートし, その含水率依存性について解析を行った(図 4). 含水率は $\lambda=3, 7, 11$ と設定した. その結果, 含水率が増加するにつれてアイオノマーの酸素透過係数が減少するという, バルク薄膜の実験結果とは異なる結果が得られた. この結果を詳細に解析するために, バルク薄膜の酸素透過係数を, 溶解度係数と拡散係数の積から算出した. その結果, 確かに計算でもバルク薄膜では含水率が相加するにつれて酸素透過係数が増加し, これは溶解度係数の減少よりも拡散係数の増加が卓越しているために起こることが確認され, アイオノマーとバルク薄膜の性質の違いを数値計算で求めることに成功した.

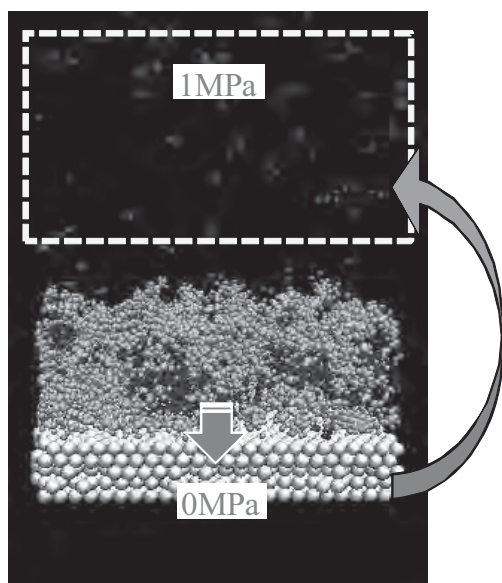


図 4: 分子動力学法によるアイオノマーの酸素透過現象のシミュレーションの概念図

京都大学側では昨年度作成した触媒層構造の妥当性評価のために SEM, TEM 像との比較およびこれら

画像解析からの再構築を行った (図 5). また電解質であるアイオノマーの被覆モデルを開発し, 前年度開発した解析コードに更に改良を加え, 担持カーボンとアイオノマーから成る複雑多孔質体内部の電気化学反応と物質輸送の連成解析を行った. 図 6 にその一例を示す. さらに電極触媒である各白金点の反応量分布を評価し, 電極構造と白金有効利用率の相関から, 低白金化への指針提案が可能なシミュレータを開発した. なお本計算で用いる各種パラメータには実測が困難なため不明確なものが多く存在し, 特に Pt 表面近傍の酸素拡散, アイオノマーへの酸素の溶解・拡散係数に関して, 今後は上述の分子動力学の知見を用いて検証を行う予定である.

④ 計算と実験の融合によるプラズマとナノ構造表面界面相互作用に関する研究 (寒川 G)

固体表面におけるプラズマ-固体相互作用を直接観測するため, 固体表面にセンサを組み込んだオンウェハセンサを開発した. 特に, プラズマエッチングにおいて, 加工対象の表面凹凸のサイズがイオンシースの厚さと同程度またはそれ以上であると, イオンシース電界が表面凹凸を感じて曲がり, イオンはその曲がった電界によって加速され加工対象表面に傾いて入射するため, 加工形状の異常が生じる. 加工形状の異常 (エッチング側壁の傾き) はイオンの入射角度を反映し, イオンの入射角度はシース電位分布に依存し, シース電位分布はシース厚さ・シース電位・表面形状に依存する. そこで, シース厚さ・シース電位をオンウェハセンサで測定し, 得られた測定値と表面形状の情報からエッチング形状を予測する方法を確立した.

今年度は, シース厚さ・シース電位を測定できるセンサを開発した (図 7). このセンサは, シース電位及びイオン飽和電流密度を測定可能であり, これらの情報からシース厚さを計算できる. 開発したセンサを用いて塩素ガスの誘導結合プラズマを測定した例が図 8 である. この例ではエッチング装置のステージに印加する RF バイアスの出力値を横軸に, 測定したシース電位とシース厚さを縦軸にとっている. ステージバイアスの増加とともにシース電位及びシース厚さが増加する結果となっており, 測定に成功したと言える. このような測定を,

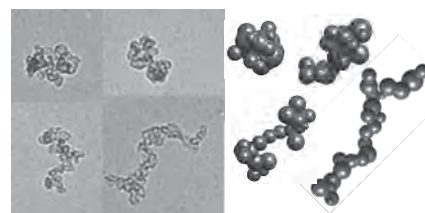


図 5: カーボン凝集構造の数値構造化

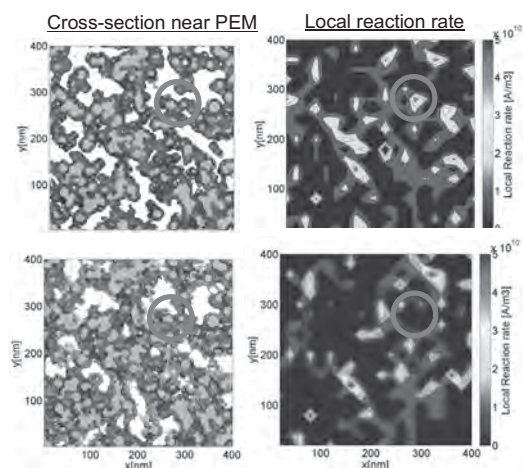


図 6: 触媒層構造と反応量分布の相関

各種プラズマ条件（ソースパワー依存性、バイアスパワー依存性、圧力依存性）において行った。

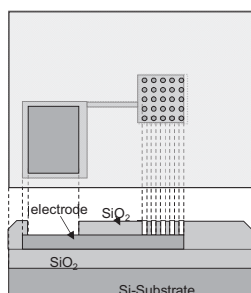


図 7. シース形状センサ

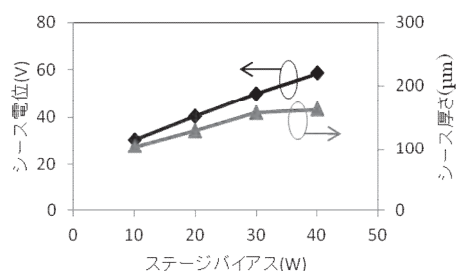


図 8. シース形状センサ測定結果

さらに、エッチング形状の検討を行った。高さ数百 μm の垂直段差の底にフォトレジストのライン&スペースパターンを持つサンプルを用意し、このサンプルをプラズマでエッチングした。その結果、段差に近いところではエッチング形状が傾くことが分かった。これは、段差付近ではシース形状が傾き、イオン軌道が傾くためであると考えられる。形状は、段差からの距離の増大に伴い垂直なものとなった。この側壁角度（エッチング形状側壁角度）を段差からの距離の関数として読み取った結果が図 9 である。このようなデータを、センサ測定を行った各種プラズマ条件において取得した。

取得したセンサ測定（シース電圧・シース厚さ）およびエッチング形状側壁角度のデータを、ニューラルネットワークを用いて関連づけた。まず、入力としてはセンサ測定値であるシース電位とシース厚さ及び実験パラメータである段差高さ、出力としては段差からの距離 0~2200 μm におけるエッチング形状側壁角度を採用し、蓄積したデータを学習させた。学習済みのニューラルネットワークを用いると、センサ測定結果からエッチング形状を予測することができる。予測の例を図 10 に示す。予測は実測によく一致していることが分かる。

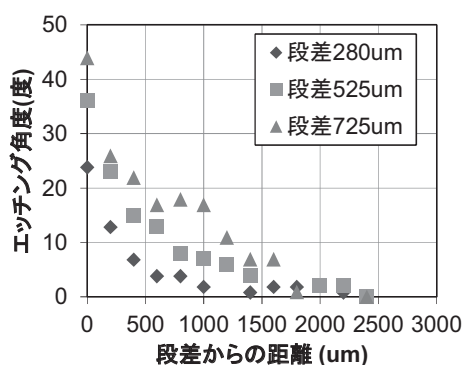


図 9 エッチング形状側壁角度の実測結果

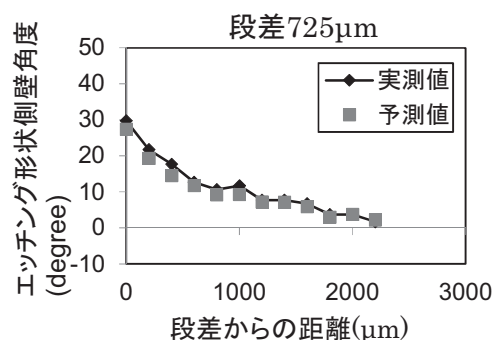


図 10 エッチング形状側壁角度の予測結果

これらのシミュレーション技術を実用的で使いやすいシステムとするため、みずほ情報総研と共同で、システムの開発を行った。

さらに、アドバンテスト・原田産業株式会社と共同で、ワイヤレス測定システムの試作品も作製した（図 11）。制御用マイコン・メモリ・赤外線通信部・電源接続部・センサ接続部を備え、接続したセンサの測定値をメモリに蓄え、赤外線通信によって取り出すことが可能である。

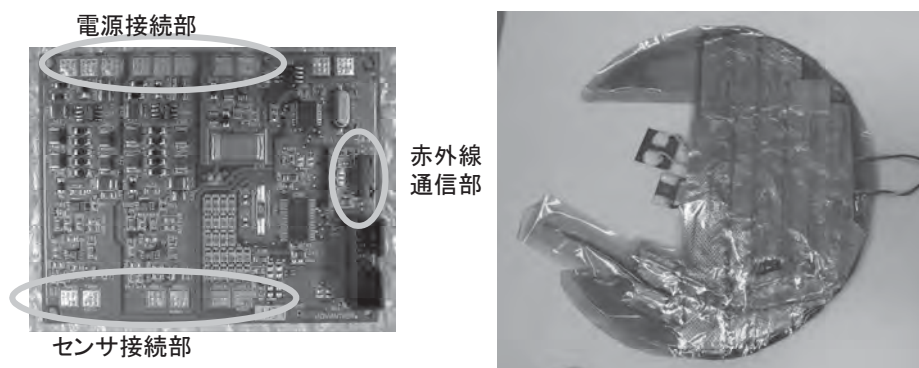


図 11 ワイヤレス測定用制御回路およびセンサ接続セッティング例

3. 研究目標の達成状況

- ① サステナブル反応性微粒化・界面現象に関する研究(石本 G)
マイクロ固体窒素噴霧による洗浄メカニズムに関する検討を行い、1) マイクロソリッド噴霧の慣性力の効果、2) 基盤加熱後に照射するマイクロソリッド噴霧の持つ超高熱流束急冷によるレジスト熱収縮の効果、3) 超音波振動子設置による氷核生成促進と固体窒素粒子の微粒化促進の相乗効果により、良好な洗浄特性を得られることが判明し、90 %程度のウエハーレジストはく離・洗浄性能を達成しうることが明らかとなった
- ② プラズマチューブによる管内微粒子流動制御 (西山・高奈 G)
静電効果を活用した管内微粒子の革新的攪拌・搬送方式を提案し、PIV 計測及び数値計算から管内微粒子の複雑挙動を明らかにすることに成功したことから、本研究目的は概ね達成されたと考えられる。
- ③ PEFC 触媒層の酸素、プロトン輸送性能の評価シミュレータの構築 (徳増 G)
今年度は昨年度の成果をさらに各研究室単位で発展させ、より詳細な現象の理解を行うことができ、さらにお互いの計算の融合を測る上で必要な課題の抽出ができたため、十分に目標は達成されたと考えている。
- ④ 計算と実験の融合によるプラズマとナノ構造表面界面相互作用に関する研究 (寒川 G)
プラズマ-固体相互作用において重要なシースによるイオンの起動及びエッチング形状への影響を解明するため、実験と計算を融合し、シース形状センサおよびセンサ測定値からのエッチング形状予測を行った。このことは、将来のナノデバイス開発におけるエッチング形状制御において重要な意味を持つ。さらに今年度は、オンウェハモニタリングの実用性を高めるためのワイヤレス化の検討を行った。従って、目標を十分に達成することができたと言える。

4. まとめと今後の課題

- ① サステナブル反応性微粒化・界面現象に関する研究(石本 G)
本ウルトラクリーンナノデバイス洗浄システムの実用化には、マイクロ固体窒素粒子の有するレジストはく離メカニズムに関するシミュレーション科学的検討を行う必要があることが判明した。すなわち固体窒素粒子界面の有する高機能性に対し流体力学的アプローチと熱力学的アプローチの両面から成る検討を行い、粒子界面と洗浄対象物間の相互作用を解明する必要がある。
- ② プラズマチューブによる管内微粒子流動制御 (西山・高奈 G)

管内に誘電体バリア放電(DBD)発生機構を有するプラズマチューブを製作し、DBD プラズマによる誘起流及び微粒子の攪拌・搬送挙動を PIV 計測及び数値計算により明らかにした。今後は、管内微粒子の 3 次元数値解析により管内での微粒子や液滴の複雑挙動を詳細に解明し、微粒子の攪拌・搬送のための最適条件を明らかにするとともに、微粒子の浄化効果についても検討する必要がある。

③ PEFC 触媒層の酸素、プロトン輸送性能の評価シミュレータの構築 (徳増 G)

今後はナノスケール(分子動力学法)のシミュレーションで得られた酸素透過現象に関する知見のモデリングを行い、メゾスケールのシミュレータに組み込むことが最大の課題であり、これに向けて議論を深めていく予定である。またプロトン輸送についても計算を行っていく予定である。

④ 計算と実験の融合によるプラズマとナノ構造表面界面相互作用に関する研究 (寒川 G)

今後、ワイヤレス測定システムを実証し、測定適用可能範囲を明らかにする。さらに、ダメージ・エッチング形状予測のためのデータベースを拡充する。これらを測定システムへと統合する。これらのことから、実用的なシステムへと完成度を高める。一方で、開発したセンサを用いてプラズマ-固体表面相互作用の解明を進める。

5. 研究成果 (*は別刷あり)

1) 学術雑誌 (査読つき国際会議, 解説等を含む)

- *[1] Jun Ishimoto, Shinji Akiba, Kazuhiro Tanji and Kazuo Matsuura: Integrated Super Computational Prediction of Liquid Droplet Impingement Erosion, *Progress in Nuclear Science and Technology*, Vol. 2, (2011), pp. 498-502.
- *[2] Jun Ishimoto, Daisuke Tan, U Oh, Tomohiro Kubota and Seiji Samukawa: Integrated Experimental and Numerical Study of Thermomechanical Resist Removal-Cleaning Performance Using Cryogenic Micro-Solid Nitrogen Spray, *ECS Transactions*, Vol. 41, No.5, (2011), pp. 83-90.
- *[3] Takehiro HIMENO, Chihiro INOUE and Toshinori WATANABE: Study on Free-surface Flows in Aerospace Propulsion Systems, *Interdisciplinary Information Sciences*, Vol.17, No.1, (2011) pp.15-17.
- [4] Kozo SAITO, Abraham J. SALAZAR, Kenneth G. KREAFLE and Eric A. GRULKE: Hitozukuri and Monozukuri: Centuries' Old Eastern Philosophy to Seek Harmony with Nature, *Interdisciplinary Information Sciences*, Vol.17, No.1, (2011), pp. 1-9.
- [5] Kenneth G. KREAFLE: Lean Product Development, *Interdisciplinary Information Sciences*, Vol.17, No.1, (2011), pp. 11-13.
- *[6] 篠原圭介, 高奈秀匡, 西山秀哉: プラズマチューブ内における微粒子の攪拌及び搬送特性, 混相流, Vol. 25, No. 5, (2011), pp. 495-500.
- [7] Kiminori Sakai and Takashi Tokumasu: Molecular Dynamics Simulation of Oxygen Permeation through the Ionomer of PEFC Cathode Side Catalyst Layer, *Proceedings of ASME-JSME-KSME Joint Fluids Engineering Conference 2011*, (2011), AJK2011-36020.
- [8] Kiminori Sakai, Takashi Tokumasu: Molecular Dynamics Study of Oxygen Permeation in the PFSA Ionomer on Pt Catalyst Surface, *ECS Transactions*, Vol.41, No.1, (2011), pp.2105-2113.
- [9] G. Inoue, Y.P. Fan, T. Matsuoka, Y. Matsukuma, M.Minemoto: Modeling Carbon Black Aggregate Structure and Ionomer Coat for Optimum Design of PEFC Catalyst Layer, *Proceedings of ASME-JSME-KSME Joint Fluids Engineering Conference 2011*, (2011), AJK2011-17014.

- [10] Michio Sato, Hiroto Ohtake, and Seiji Samukawa: Reduction in Number of Sparks Generated in High-Density Plasma Process by Fixing the Wall Potential, *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 50 (2011), pp. 036204.
- [11] Noriaki Matsunaga, Hirokatsu Okumura, Butsurin Jinnai, and Seiji Samukawa: Measurement and simulation of spreading current in interlayer dielectric film deposition by plasma-enhanced chemical vapor deposition, *Journal of Vacuum and Science and Technology A*, Vol. 29 (2011), pp. 041302.

2) 国際会議・国内学会・研究会・口頭発表等

- [1] Jun Ishimoto, Shinji Akiba, Kazuhiro Tanji and Kazuo Matsuura: Computational Study of Liquid Droplet Impingement Erosion in Nuclear Power Plant, *Eighth International Conference on Flow Dynamics (ICFD2011)*, Sendai, Miyagi, Japan, Nov. 9-11 (2011). **(Invited)**
- [2] Jun Ishimoto: Thermomechanical Resist Removal-Cleaning Technology Using Cryogenic Micro-Solid Nitrogen Spray, *The 14th Surface Cleaning Users Group Meeting, Cleaning Technology Symposium (KSCUGM)*, November 24 (2011) Hanyang University, ERICA Campus, Ansan, Korea. **(Invited)**
- [3] Kazuo Matsuura, Masami Nakano and Jun ISHIMOTO: Visualization of Leaking and Accumulating Hydrogen Under a Sensing-Based Ventilation Control in a Partially Open Space, *Proceedings of The 11th Asian Symposium on Visualization*, Niigata, Japan, June 5-9, 2011 [in CD-ROM].
- [4] Jun Ishimoto: Progress in Transdisciplinary Collaborative Research Project, *The Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011).
- [5] U Oh, Jun Ishimoto and Kozo Saito: Measurement Coupled Computation of Cooling and Wafer Cleaning Performance Using Micro-Solid Nitrogen, *Proceedings of the Eleventh International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration*, Sendai, (2011), pp. 34-35.
- [6] 王 宇 (東北大), 丹 大輔 (東燃化学), 石本 淳 (東北大): マイクロ固体窒素噴霧流を用いた超高熱流束冷却と新型半導体洗浄法の開発, 日本混相流学会年会講演会 2011 オーガナイズドセッション (OS-6 サステナブル異分野融合型混相流). [2011 年 8 月 6-8 日, 京都工芸繊維大学 (京都市)].
- [7] 松浦一雄 (東北大), 中野政身 (東北大), 石本 淳 (東北大): 低開口部を有する部分開放空間におけるセンシングに基づく水素漏洩のリスク緩和制御, 日本混相流学会年会講演会 2011 オーガナイズドセッション (OS-6 サステナブル異分野融合型混相流). [2011 年 8 月 6-8 日, 京都工芸繊維大学 (京都市)].
- [8] 松浦一雄 (東北大), 中野政身 (東北大), 石本 淳 (東北大): センシングに基づく水素漏洩のリスク緩和制御アルゴリズムの構築.
- [9] 篠原圭介, 高奈秀匡, 西山秀哉: プラズマチューブ内における微粒子の攪拌及び搬送, 日本混相流学会年会講演会 2011, (2011), pp.396-397.
- [10] 坂井公則, 徳増崇, PEFC 触媒層内 ionomer における酸素分子透過に関する分子論的研究, 第 48 回日本伝熱シンポジウム, 2011.
- [11] 坂井公則, 徳増崇, PEFC 触媒層の ionomer 内における酸素拡散に関する分子論的研究, 日本機械学会 2011 年度年次大会, 2011.
- [12] 松岡孝洋, 井上元, 松隈洋介, 峯元雅樹: PEFC 触媒層内の多成分反応種輸送の解明と Pt 利用率向上の検討, 化学工学会 第 43 回秋季大会, 2011.

- [13] 井上元, 松岡孝洋, 松隈洋介, 峯元雅樹: PEFC 触媒層内のカーボン凝集および電解質被覆モデリングと反応分布評価, 日本機械学会 2011 年度年次大会, 2011.
- [14] (招待) 寒川誠二, プラズマ誘起損傷のモニタリングと超低損傷・微細加工技術, 日本真空協会 スパッタリングおよびプラズマプロセス技術部会 (SP 部会) 第 124 回定例研究会 (2011/7/26).
- [15] 荒木良亮, 久保田智広, 三輪和弘, 岩崎拓也, 小野耕平, 寒川 誠二, オンウエハーモニタリングとシミュレーションの融合による立体形状エッチングにおけるシース形状およびイオン軌道予測, 2011 年秋季 第 72 回 応用物理学会学術講演会 (2011/8/31).
- [16] Ryosuke Araki, Kazuhiro Miwa, Tomohiro Kubota, Takuya Iwasaki, Kohei Ono, and Seiji Samukawa: Prediction of ion sheath shape and ion trajectory during plasma etching processing using on-wafer monitoring technique, *American Vacuum Society 58th International Symposium & Exhibition*, PS2-TuA1 (Nashville, 2011/11/1).
- [17] Ryosuke Araki, Tomohiro Kubota, and Seiji Samukawa: Prediction of ion sheath shape and ion trajectory during plasma etching processing using on-wafer monitoring technique and simulation, *The 8th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing* (Nara, 2012/1/16).
- [18] 荒木良亮, 久保田智広, 岩崎拓也, 小野耕平, 寒川誠二, オンウエハーモニタリングとシミュレーションの融合によるプラズマプロセス中の表面イオンシース形状と入射イオン軌道予測, 2012 年春季 第 59 回 応用物理学関係連合講演会 (2012/3/17).

3) その他 (特許, 受賞, マスコミ発表等)

(マスコミ発表)

- * [1] 原発配管の劣化箇所予測 新システムで画像化 (日経産業新聞 2011 年 6 月 21 日掲載)
- * [2] 半導体洗浄, 人体に害無く ー東北大が新技術 固体窒素を利用ー (日経産業新聞 2011 年 10 月 7 日掲載)
- [3] 2011 年 12 月 2 日: 日刊工業新聞ニュースリリース「みずほ情報総研, ワイヤレス化オンウエハセンサ活用のプラズマプロセス解析システムを開発」