

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	温度制御プラズマ装置の開発と殺菌および表面処理への応用に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	大下貴也
Author(English)	Oshita Takaya
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9999号, 授与年月日:2015年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:沖野 晃俊,堀田 栄喜,松本 義久,赤塚 洋,藤井 隆
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9999号, Conferred date:2015/9/25, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	創造エネルギー	専攻	申請学位 (専攻分野)： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(工学)
学生氏名： Student's Name	大下 貴也		指導教員 (主)： Academic Advisor(main)	沖野 晃俊	
			指導教員 (副)： Academic Advisor(sub)	松本 義久	

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters )

近年、大気圧低温プラズマの産業応用が進んでいるが、従来のプラズマ発生装置では放電電力などによりプラズマのガス温度を間接的に制御している。このため、ガス温度と各種特性や処理効果の関係は調べられておらず、また、熱に弱い対象物を処理する場合は入力電力を制限するなど、応用面でも問題があった。本論文は「温度制御プラズマ装置の開発と殺菌および表面処理への応用に関する研究」と題し、プラズマのガス温度を制御できる装置の開発を行い、その基礎特性を明らかにするとともにガス温度が殺菌や表面処理に与える影響を調査したものである。以下に本論文の概要をまとめる。

第 1 章「序論」では、プラズマの温度を理解し、適切に制御することの重要性を述べ、従来の大気圧低温プラズマ装置における温度制御法の問題点を指摘した。

第 2 章「ガス温度の観点から見た大気圧プラズマ応用の現状」では、各種の大気圧プラズマをガス温度の観点から分類し、現在広く使用されている大気圧低温プラズマ装置について、ガス温度制御の必要性について記述した。

第 3 章「温度制御プラズマ装置の開発」では、入力電力等とは独立にプラズマのガス温度を制御できる装置の開発を行った。まず、ガスボンベから供給されたプラズマガスを冷却し、ヒーターにより所望の温度に熱した後にプラズマ化することでプラズマのガス温度を任意の値に制御する手法を提案した。この方法を用いたヘリウムプラズマジェットを試作し、ガス温度を $-54\text{ }^{\circ}\text{C}\sim 160\text{ }^{\circ}\text{C}$ の範囲において、 $\pm 0.9\text{ }^{\circ}\text{C}$ の精度で制御する事に成功した。分光手法を用いてプラズマの各種パラメータの測定を行ったところ、OH の回転温度は、熱電対で測定したガス温度よりも  $6\sim 28\text{ }^{\circ}\text{C}$  高い値となった。電子密度と放電電力は、ともにガス温度の上昇とともに低下したことから、相関があることを明らかにした。ヘリウムの励起温度はガス温度と比較して  $900\sim 1,500\text{ }^{\circ}\text{C}$  高温となり、生成されたプラズマの非平衡性を確認した。さらに、ヒーターによる加熱機構を備えた水素混合アルゴンプラズマジェットを開発し、ガス温度を  $42\sim 273\text{ }^{\circ}\text{C}$  の範囲で高温側に制御する事に成功した。

第 4 章「表面殺菌技術への応用」では、プラズマのガス温度が殺菌効果に与える影響を調査した。酸素混合ヘリウムプラズマジェットを *E. coli* に対して照射した結果、ガス温度が零下のプラズマにおいても *E. coli* に対して殺菌効果が認められる事および低温制御すると殺菌効果が低下することを明らかにした。一方、*S. mutans* に二酸化炭素プラズマを照射した場合、照射部が氷結する  $0\text{ }^{\circ}\text{C}$  のプラズマを除いたすべてのガス温度のプラズマで D 値が等しく  $0.34\text{ min}$  となったことから、低温制御しても殺菌効率が低下しないことを明らかにした。次に、マウス線維芽細胞に対して二酸化炭素プラズマを照射し生体細胞に与える損傷の評価を行った。その結果、高温では 30 秒以上プラズマを照射すると生存率は 20%以下に減少したが、 $20\text{ }^{\circ}\text{C}$  以下に制御したプラズマでは 60 秒間照射しても

70%以上の生存率が保たれた。これより、プラズマの温度が細胞への損傷に寄与している事を明らかにした。

第5章「高効率液中殺菌技術への応用」では、液相中細菌の高効率殺菌に向けた活性種制御を目的として、ガス温度と雰囲気ガスが液中に生成する活性種に与える影響を調査した。ガス温度を変化させて各種活性種の生成量を測定した結果、オゾン ( $O_3$ )、過酸化水素 ( $H_2O_2$ )、ヒドロキシルラジカル ( $OH\cdot$ ) の生成量に有意な変化は見られなかったが、一重項酸素 ( $^1O_2$ ) の生成量はガス温度の上昇に伴って増加し、 $^1O_2$  は室温である 20 °C から 80 °C まで加熱することで約 11 倍となった。液中の *E. coli* の殺菌実験を行ったところ、ガス温度が高いほど高い殺菌効果が得られたことから、 $^1O_2$  が殺菌効果に寄与している可能性を示した。次に、雰囲気ガスによる活性種生成量の違いを調査した結果、空気を介さずに液中に直接プラズマを液中に導入した場合、生成される活性酸素種の種類や量が異なることが明らかになった。そこで、空気を介さない液中殺菌方法として、プラズマの射出口を液体容器の底部に配置して処理対象の液体をバブリングする、プラズマバブリング法を提案した。*E. coli* の殺菌実験を行った結果、最も多くの  $^1O_2$  を生成した酸素プラズマが高い殺菌効果を示し、200 mL の菌液を 30 秒で 4 桁以上殺菌する事に成功した。これにより、活性種の制御法としての活用に加えて、多量の水を殺菌処理する手法としての有効性も示した。

第6章「表面処理技術への応用」では、表面親水化処理と銅酸化膜還元処理におけるガス温度の影響を調査した。表面親水化処理においてガス温度を制御してプラズマ照射した場合、-47 °C の低温まで銅板とポリイミドフィルムに対する親水化効果を確認した。また、無機材料、高分子材料を問わずガス温度の上昇に伴って親水化効果が向上することを明らかにした。次に、水素混合アルゴンプラズマを用いて銅酸化膜還元処理におけるプラズマガス温度の影響を調査した結果、42 °C のプラズマを加熱して 237 °C にすることで還元処理速度は約 5 倍となり、ガス温度を高温に制御することで酸化膜還元速度を向上できることを明らかにした。発光分光測定を用いて水素ラジカルの生成量を推定したところ、処理効果と有意な相関が見られなかったことから、ガス膨張によるガス流速の上昇およびプラズマと酸化銅の反応速度の上昇が処理効果の向上に寄与していると結論づけた。

第7章「結論」では、本論文で得られた成果を総括するとともに、開発した装置の実用化に向けた展開について検討した。特に、医療分野における生体処理用のプラズマ源としての利用について言及し、本研究で開発した温度制御技術の活用方法について提案した。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)  
Doctoral Program

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻 : Department of	創造エネルギー	専攻	申請学位 (専攻分野) : Academic Degree Requested	博士 Doctor of	( 工学 )
学生氏名 : Student's Name	大下 貴也		指導教員 (主) : Academic Advisor(main)	沖野 晃俊	
			指導教員 (副) : Academic Advisor(sub)	松本 義久	

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words )

In recent years, atmospheric plasmas have attracted attention in industrial and medical fields because the generation of atmospheric pressure plasma at low temperatures—from room temperature to around 100 °C—has been feasible. Consequently, atmospheric low temperature plasmas have been widely used for various applications; cleaning and hydrophilization of the surfaces of processing objects by oxygen included plasmas; oxide removal on metal surfaces with hydrogen included plasmas; sterilization of various bacteria; surface coating. In general plasma devices, an electrical discharge is passed through a gas at about room temperature to generate plasma, so the plasma is at a temperature higher than room temperature; moreover, the gas temperature is determined by the discharge condition such as discharge power and plasma gas flow rate, so accurate temperature control is difficult and the influence of only the plasma gas temperature on the treatment effect could not be investigated. In this study, an atmospheric pressure plasma source in which the gas temperature can be accurately controlled from below freezing point up to a high temperature was developed. In the developed plasma source, the gas that is to be supplied to the discharge unit is first cooled by using a gas cooler and then heated by a heater. The gas temperature of the produced plasma is measured, and feedback is sent to the heater. Thus, plasma at a desired temperature can be generated. Gas temperature control of the plasma over a range from -54 °C to +160 °C with a standard deviation of 0.9 °C was realized. Spectroscopic characteristics of generated plasma and the influence of the plasma gas temperature on the effects of sterilization, hydrophilization and oxide removal were investigated using the developed plasma source.

備考 : 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意 : 論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).