

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)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

## 論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	大下 貴也	
		氏名	職名		
論文審査 審査員	主査	沖野 晃俊	准教授	審査員	赤塚 洋
	審査員	松本 義久	准教授		
		堀田 栄喜	教授		
		藤井 隆	連携教授		

## 論文審査の要旨 (2000 字程度)

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り、7章構成となっている。

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ている。

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おける、ガス温度制御の必要性について記述している。

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について記述している。ガスボンベから供給されたプラズマガスを冷却し、ヒーターによって所望の温度に加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ている。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 $-54^{\circ}\text{C}$ ～ $160^{\circ}\text{C}$ の範囲において、 $\pm 0.9^{\circ}\text{C}$ の精度で制御する事に成功している。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い、OHの回転温度は、熱電対で測定したガス温度よりも $6\sim 28^{\circ}\text{C}$ 高い値となることを示している。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ている。ヘリウムの励起温度はガス温度と比較して $900\sim 1,500^{\circ}\text{C}$ 高温となる事を実験的に示し、生成されたプラズマの非平衡性を確認している。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 $42\sim 273^{\circ}\text{C}$ の範囲で高温側に制御する事に成功している。

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ている。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ている。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 $0^{\circ}\text{C}$ 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ている。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て生体細胞に与える損傷の評価を行い、高温では30秒以上プラズマを照射すると生存率は20%以下に低下したが、 $20^{\circ}\text{C}$ 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とから、プラズマのガス温度を低く制御する事で細胞への損傷を低減できる可能性を示している。

第5章「高効率液中殺菌技術への応用」では、液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ている。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 ( $\text{O}_3$ )、過酸化水素 ( $\text{H}_2\text{O}_2$ )、ヒドロキシルラジカル ( $\text{OH}\cdot$ ) の生成量に有意な変化は生じないが、一重項酸素 ( $^1\text{O}_2$ ) の生成量はガス温度の上昇に伴って増加し、 $20^{\circ}\text{C}$ から $80^{\circ}\text{C}$ まで加熱することで約11倍になることを明らかにしている。また、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、 $^1\text{O}_2$  が殺菌効果に寄与している可能性を示している。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を明らかにしている。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、*E. coli* の殺菌実験を行った結果、最も多くの  $^1\text{O}_2$  を生成した酸素プラズマが高い殺菌効果を示し、 $200\text{ mL}$  の液中の細菌を30秒で4桁以上殺菌する事に成功している。以上より、提案したプラズマバブリング法が活性種の制御だけでなく、多量の水を殺菌処理する手法としても有効である事を述べている。

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ている。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、 $-47^{\circ}\text{C}$ の低温でも銅板とポリイミドフィルムに対する親水化効果が維持される事を確認している。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ている。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、 $42^{\circ}\text{C}$ のプラズマを加熱して $237^{\circ}\text{C}$ 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ている。発光分光測定を用いて水素ラジカルの数密度を推定したところ、処理効果と有意な相関が見られなかった。このため、温度とともにガス流速が上昇する事およびプラズマと酸化銅の反応速度が上昇する事が、処理効果の向上に寄与していると結論づけている。

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ている。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ている。

以上を要するに、本論文は、大気圧非平衡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についてまとめたもので、工学上ならびに工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士(工学)の学位論文として十分な価値があるものと認められる。