# 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 3 1 日現在

機関番号: 12601

研究種目: 基盤研究(C)(一般)

研究期間: 2021~2023

課題番号: 21K05845

研究課題名(和文)大気圧低温プラズマによる農産物の鮮度保持効果に及ぼす供給ガスの種類と濃度の影響

研究課題名(英文)Effect of supply gas type and concentration on maintaining freshness of agricultural products by atmospheric low temperature plasma

### 研究代表者

荒木 徹也 (ARAKI, TETSUYA)

東京大学・大学院農学生命科学研究科(農学部)・准教授

研究者番号:40420228

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文):非加熱大気圧プラズマジェットにより生成されたプラズマ活性水が青果物の効果的なサニテーション技術として機能するために必要となる基礎的条件を実験的に検討した結果、供給ガスとして酸素を選び、プラズマバブリングの処理条件として流速を8L/min、反応時間を3-5分に設定するのが望ましいこと、またプラズマ活性水による処理および直接プラズマバブリング処理はともに処理後のレタス試料のラジカル消去能力に顕著な影響を及ぼさないことが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義 青果物処理施設における青果物の運搬手段として水を用いる従来のハイドロハンドリングシステムにおける塩素 および熱処理によるサニテーション、とりわけ塩素洗浄が人間の健康と環境に及ぼす潜在的な影響が懸念される ことへの対応策として、新たな代替技術としての非加熱処理法の一つである大気圧低温プラズマ処理において用 いられるプラズマ活性水の生成に必要となる供給ガスの処理条件がプラズマ活性水の物理化学的特性および青果 物の鮮度保持効果に及ぼす影響を実験的に解明している。

研究成果の概要(英文): A series of experimental investigations on the basic conditions necessary for plasma activated water produced by a non-thermal atmospheric pressure plasma jet to function as an effective sanitation technology for fresh produce indicated that oxygen should be selected as the supply gas and the desirable operations conditions of plasma bubbling was 8 L/min in the flow rate and 3-5 min in the reaction time. In addition, both treatment with plasma activated water and direct plasma bubbling treatment had no significant impact on radical scavenging ability of the lettuce sample after treatment.

研究分野: 食品工学

キーワード: 大気圧低温プラズマ 農産物 供給ガス 電子スピン共鳴分光法 抗菌活性

# 1.研究開始当初の背景

青果物処理施設における青果物の運搬手段として水を用いる従来のハイドロハンドリングシステムにおいては、塩素および熱処理によるサニテーションが不可欠とされていた。しかしながら、塩素洗浄が人間の健康と環境に及ぼす潜在的な影響が懸念されるようになったため、従来の青果物サニテーション技術を代替することを目指す新たな代替技術としての様々な非加熱処理法、例えば高圧処理、超音波処理、オゾン化処理、パルス電場処理、光パルス処理などがこれまで提案されてきた。一方、気体がイオン化することにより生成されるプラズマに関しては従来、工業用途のプラズマ処理は真空容器中の減圧下で行われることが一般的であったが、近年、大気圧低温プラズマ処理を可能とする装置が開発されたことにより、工業分野や医療分野のみならず、農業および食品分野での応用可能性を探るための基礎研究を実施することが可能となっている。

しかしながら、本研究で新たな非加熱処理法として着目した大気圧低温プラズマ処理に関しては、処理後の食品の品質に及ぼす影響に関する先行研究のレビュー論文は存在するものの、プラズマ活性水の生成に必要となる供給ガスの処理条件がプラズマ活性水の物理化学的特性および青果物の鮮度保持効果に及ぼす影響を実験的に検討した研究例は数少ない現状にある。そこで本研究では、東京工業大学が2018年に開発した大気圧温度制御マルチガスプラズマジェットヘッド(Plasma Concept Tokyo, 2018)が取り付けられている大気圧低温プラズマ照射装置を用いて生成したプラズマを直接バブリング導入した水、すなわちプラズマバブル水(Plasma Bubbled-up Water; PBW)の物理化学的特性に及ぼす供給ガスの種類および濃度の影響を実験的検討の対象とした。

## 2.研究の目的

本研究の目的は、大気圧低温プラズマによる農産物の鮮度保持効果に及ぼす供給ガスの種類と濃度の影響を実験的に解明することにある。具体的にはまず、供給ガスの種類および濃度を変化させて生成されたマルチガスプラズマバブル水の物理化学的特性について検討する。次に、本研究で使用する大気圧低温プラズマ照射装置の操作条件(プラズマ温度、ガスの種類および流量、プラズマ処理時間)およびサンプルサイズの差異が処理効果に及ぼす影響を定量化するための実験的研究を実施し、プラズマ処理効果が発現するサンプルサイズの上限を特定するとともに、供給ガスの種類と濃度を変化させたときのプラズマ処理効果の発現が線形であるか非線形であるかを検討する。最終的には、オゾン水処理や超音波処理等の農産物前処理技術と比較した場合の大気圧低温プラズマの得失を経済面も考慮して分析する。

# 3.研究の方法

## (1) プラズマ活性水を生成するためのプロセスパラメータの最適化

大気圧低温プラズマ照射装置におけるプラズマ照射条件を 9kV と 16kHz、供給ガスの種類および濃度条件を酸素 100%、窒素 100%にそれぞれ設定し、供給ガス流量 (4L/min および 8L/min) およびプラズマ電極と水面間の空隙の距離 (2cm および 4cm) が生成されたプラズマ活性水による E.coli 0157:H7 懸濁液に対する殺菌効果に及ぼす影響を検討した(図1)。 具体的には、生成されたマルチガスプラズマバブル水の物理化学的特性について pH メータ、酸化還元電位計、UV-Vis 分光光度計、オゾン濃度測定、およびラジカルの電子スピン共鳴 (ESR: Electron Spin Resonance) 測定等の方法によりプラズマバブリングの抗菌活性について検討した。

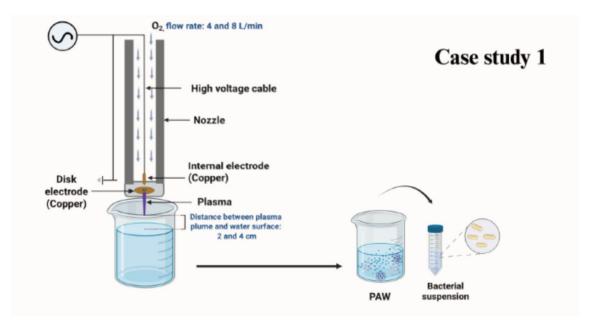


図 1 プラズマ活性水を生成するためのプロセスパラメータの最適化実験

# (2) 新規サニテーション手法としての非加熱プラズマバブリングシステムの評価

新規殺菌方法としての大気圧低温プラズマバブリングシステムの特性評価を行うため、大気圧低温プラズマ照射装置の先端にセラミックフィルターを取り付けた上で、生成されたプラズマ活性水による処理および直接プラズマバブリング処理が E.coli 0157:H7 懸濁液に対する殺菌効果に及ぼす影響を検討した(図2)。 具体的には、物理化学的特性および in vitro 殺菌効果(大腸菌 0157:H7)を測定するとともにおよび電子スピン共鳴 (ESR) 測定により反応種について実験的に検討し、プラズマ活性水と比較した。

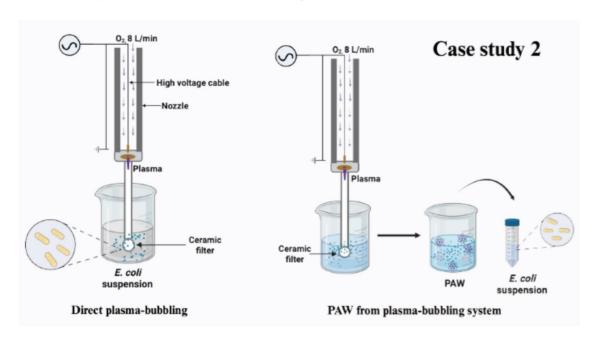


図 2 非加熱プラズマバブリングシステムの評価実験

## (3) プラズマバブリング処理によるカット野菜の殺菌効果の検証

E.coli 0157:H7 を植菌したアイスバーグレタスをモデル食品試料とし、大気圧低温プラズマ 照射装置の先端にセラミックフィルターを取り付けた上で、生成されたプラズマ活性水による 処理および直接プラズマバブリング処理がモデル食品試料に対する殺菌効果に及ぼす影響を検討した(図3)。

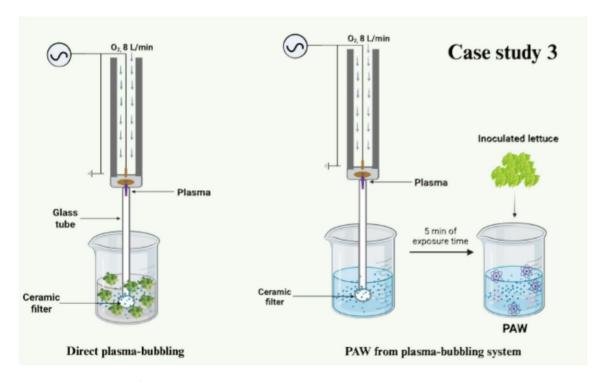


図3 プラズマバブリング処理によるカット野菜の殺菌効果の検証実験

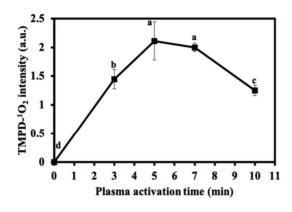
# 4. 研究成果

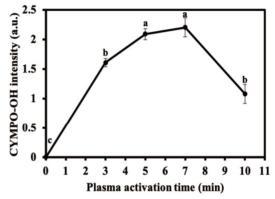
# (1) プラズマ活性水を生成するためのプロセスパラメータの最適化

本研究の実験条件下では供給ガスの種類は酸素、ガス流量は 8 L/min、プラズマ電極と水面の間の空隙は 2 cm が最適であることが明らかとなった。また、プラズマ活性水の殺菌効果はグラム陽性菌とグラム陰性菌で異なること、および本研究で用いた大気圧低温プラズマ照射装置は in-vitro 研究では比較的低い殺菌効果を示すことを明らかにした。

# (2) 新規サニテーション手法としての非加熱プラズマバブリングシステムの評価

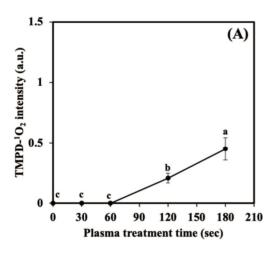
プラズマ活性水による処理では最大で 3 log10 CFU/mL、直接プラズマバブリング処理(処理時間:180 秒間)では 8 log10 CFU/mL減少することを明らかにした。また、電子スピン共鳴スピントラップ法およびスカベンジャーアッセイの結果から、上記の両者のプラズマ処理において生成されたプラズマ活性水に活性酸素種であるヒドロキシラジカルおよび一重項酸素がともに存在し、主要な短命反応種であることを確認した(図4および図5)。

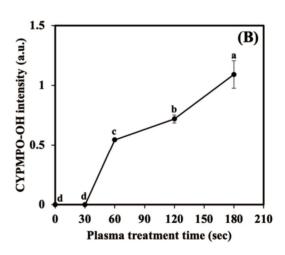




Signal intensity of TMPD- $^{1}O_{2}$  spin adduct (A), and CYPMPO-OH spin adduct (B) in PAW at different activation times.  $^{a-d}$  Values with different letters were significantly different at p < 0.05 (n=3)

図4 ラジカルスピン付加物のシグナル強度(プラズマ活性水による処理)





Signal intensity of TMPD-102 spin adduct (A) and CYPMPO-OH spin adduct (B) after different treatment times of direct plasma-bubbling towards E. coli. and Values with different letters were significantly different at p < 0.05 (N=3)

# 図5 ラジカルスピン付加物のシグナル強度(直接プラズマバブリング処理)

# (3) プラズマバブリング処理によるカット野菜の殺菌効果の検証

直接プラズマバブリング処理によりレタスの細菌負荷が 2 log10 CFU/mL 減少し、塩素洗浄と同様に洗浄水中に生細胞が残らないため相互汚染を防止できる可能性があること、またプラズマ活性水による処理および直接プラズマバブリング処理はともに処理後のレタス試料のラジカル消去能力に顕著な影響を及ぼさないことを明らかにした。ただし、表面侵食により視覚的な損傷が発生する可能性があることに留意する必要がある。

### 5 . 主な発表論文等

「雑誌論文】 計2件(うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件)

「無心論文」 前2件(プラ直説的論文 2件/プラ国际共者 0件/プラオープングプセス 0件)	
1.著者名	4 . 巻
Naufal Shidqi Rabbani, Kazunari Miyashita, Tetsuya Araki	28
2.論文標題	5.発行年
Development of non-contact strawberry quality evaluation system using visible near infrared	2022年
spectroscopy: optimization of texture qualities prediction model	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Food Science and Technology Research	441-452
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	<u>│</u> │ 査読の有無
10.3136/fstr.FSTR-D-22-00083	有
オープンアクセス	国際共著
· · · · · · =· ·	
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

1. 著者名	4 . 巻
Komarudin, A. G., Nei, D., Kameya, H., Sotome, I., & Araki, T.	29
2.論文標題	5 . 発行年
Characterization of a non-thermal plasmabubbling system as a novel sanitizer: physicochemical properties, bactericidal effect, and reactive species	2023年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Food Science and Technology Research	365-376
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.3136/fstr.FSTR-D-23-00011	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

# 〔学会発表〕 計4件(うち招待講演 0件/うち国際学会 0件)

1.発表者名

Amalia Ghaisani Komarudin, Daisuke Nei, Hiromi Kameya, Itaru Sotome, Tetsuya Araki

2 . 発表標題

Evaluation of plasma-activated water (PAW) produced by nonthermal plasma-bubbling system as a novel food sanitizer

3 . 学会等名

日本食品科学工学会年次大会

4.発表年

2022年

1.発表者名

Amalia Ghaisani Komarudin, Daisuke Nei, Hiromi Kameya, Itaru Sotome, Tetsuya Araki

2 . 発表標題

Nonthermal atmospheric plasma (NTAP) bubbling system as a novel food disinfectant

3 . 学会等名

日本食品工学会年次大会

4.発表年

2022年

#### 1.発表者名

Komarudin, A. G., Sotome, I., & Araki, T.

# 2 . 発表標題

Non-thermal plasma-bubbling system for food decontamination: Identification of reactive species and its bactericidal effect on iceberg lettuce.

### 3.学会等名

The International Plasma Chemistry Society. Kyoto, Japan.

### 4.発表年

2023年

# 1.発表者名

Komarudin, A. G., Sotome, I., & Araki, T.

# 2 . 発表標題

Inactivation of E. coli 0157:H7 on Iceberg Lettuce by Non-Thermal Plasma Bubbling System.

### 3 . 学会等名

International Association for Food Protection (IAFP). Toronto, Canada.

# 4.発表年

2023年

# 〔図書〕 計0件

# 〔産業財産権〕

[その他]

# 6.研究組織

6	. 研究組織		
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
711		国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・食品研究部門・上級研究員	
研究分担者	(Nei Daisuke)		
	(70466001)	(82111)	
	五月女 格	東京大学・大学院農学生命科学研究科(農学部)・准教授	
研究分担者	(Sotome Itaru)		
	(90469833)	(12601)	

### 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

# 8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------