

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 4 月 19 日現在

機関番号：37501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2016

課題番号：25820113

研究課題名(和文)照射領域可変型低温プラズマジェット発生器の開発と殺菌への応用に関する研究

研究課題名(英文) Development and application to sterilization of irradiation-area variable type plasma jet generator

研究代表者

川崎 敏之(Kawasaki, Toshiyuki)

日本文理大学・工学部・教授

研究者番号：30352404

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：プラズマをバイオ・医療に応用しようとする研究が活発に行われている。この場合、プラズマを被処理対象物に照射するが、その化学的影響が及ぶ範囲を明確にすると同時に制御する必要がある。これはプラズマ技術を安全かつ効果的に使用するために解決が求められている課題の1つとなっている。本研究ではプラズマが化学的に影響を及ぼす範囲を可視化することに成功し、そのメカニズムについて考察した。結果として、今まで明らかでなかった多くの知見を得ると同時に、公表することによって当該分野の発展に貢献できたと考えている。

研究成果の概要(英文)：Plasma jet technologies have been actively studied and developed for biomedical applications. In these cases, plasma-induced chemical effects on a target must be investigated for the safe and effective use of this technology. In our study, we could visually obtain the two-dimensional distributions of the plasma-induced chemical effects using a gel reagent. New information has been obtained from our original investigations and has also been reported to the world by several papers and so on. Now our method has widely been used by other researchers in studies on plasma-liquid interactions.

研究分野：プラズマ工学

キーワード：大気圧非熱平衡プラズマ プラズマ医療 プラズマ農業 活性酸素 化学プローブ 二次元濃度分布

1. 研究開始当初の背景

プラズマをバイオ・医療分野に応用しようとする研究が活発に行われている。この場合、プラズマは活性酸素種 (ROS) や活性窒素種の発生・供給のための道具として使用される。そして、これら活性種が誘起する生化学反応をがん治療、創傷治療、遺伝子導入、タンパク質変質、歯科治療などに応用しようするものである。そのため、プラズマ技術を安全かつ効果的に利用するためには、供給したい場所に活性種を適切な量だけ供給する必要がある。さらに、バイオ・医療分野における被照射物は液体を含んでいる場合が多いため、液層を介した活性種供給制御が必要不可欠である。しかしながら、プラズマ照射範囲 (化学的に影響を与える範囲) の正確な把握や制御はできていないのが現状である。特に液中における照射範囲制御に関してはほとんど報告例がないのが現状である。

2. 研究の目的

本研究ではプラズマ照射範囲、すなわちプラズマが化学的に影響を及ぼす範囲を、プラズマ発生器の構造を変化させないまま制御することを目的に研究を開始した。そうすることによって、目的に応じて照射範囲を容易に変えられるシステムを確立しようとした。特にこの可変システムを殺菌に応用しようとした。すなわち、同一構造のプラズマ発生器で容易に「局所～広範囲殺菌」を実現しようとした。同様な研究は行われておらず、確立が実現された際にはプラズマ技術の発展に貢献できると考えた。

3. 研究の方法

プラズマの発生や特徴は、印加電圧・周波数、供給ガス、電極構造・配置などの条件により変化する。本研究ではこれら発生条件とプラズマ照射範囲との関係を明らかにしようとした。当初、照射範囲は目視と殺菌領域から評価しようと考えていた。しかしながら、これらだけでは照射範囲の評価は不十分であると判断すべき結果が得られたため、殺菌と深い関係のある活性酸素 (ROS) の照射領域で評価できないか検討した。

4. 研究成果

ここでは図は示さないが、実験初期の代表的な成果として、プラズマ発生器に供給するヘリウムガス中への窒素ガスの添加量 (~10%) を調整することによって、殺菌領域を点状から面状など可変できることを明らかにした。これらの成果は論文⑭、⑮で発表した。一方で、図 1 (a) と (b) のように、目視のプラズマ照射範囲と殺菌領域が大きく異なる場合もあり、「ターゲット上への ROS 供給範囲」を可視化できないか検討した。その検討の中で、放射線研究 (古くは 60 年前) で酸化反応の検出に利用されているヨウ化カリウム (KI) - デンプンのゲル状試薬が使える

のではないかと考え実際に試したところ、図 1 (c) のように ROS の供給範囲をはっきりと可視化することに成功した。さらにこれが図 1 (b) の殺菌領域に一致したことから、プラズマの照射範囲を、化学的に影響を与える範囲として評価することが可能になった。さらに吸光度測定により、図 1 (c) から図 1 (d) のように ROS の相対濃度分布を得ることが可能になった。こうして本研究ではゲル状試薬を用いて、ROS 供給範囲を二次元濃度分布により評価することが可能になった。気相中でこのゲル状試薬を用いた成果は論文⑤、⑦、⑩、⑫で発表した。

さらにこの試薬がゲル状であることを利用して、厚さを変化させた液膜や模擬生体膜通過後の ROS も二次元で検出できるのではないかとこの着想から、図 2(a-1)、(b-1) のような実験を行った。その結果、それぞれ図 2(a-2)、(b-2) のように液状媒体を通過した ROS の可視化にも成功した。この研究成果は論文②、

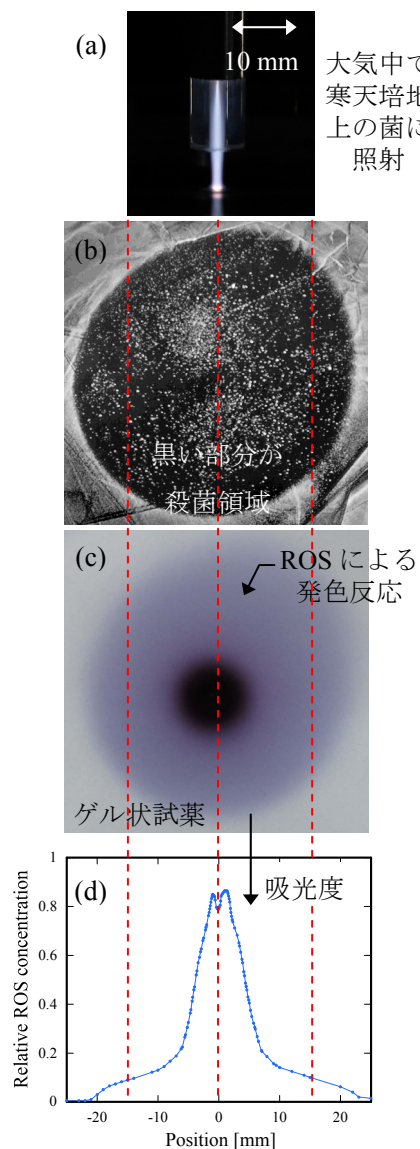


図 1 (a) プラズマ照射の様子, (b) 殺菌領域, (c) ROS 供給範囲, (d) 相対 ROS 濃度分布

③, ④, ⑨で発表した. このゲル状の試薬を使った手法によって, 今まで困難だった計測が可能になった. その結果, 「大気圧プラズマ-液相反応プロセスにおける診断技術の発展」という特集におけるテーマの1つとして, 「液体が関与するプラズマ研究への KI-デンブンプン水溶液の応用」が取り上げられるに至った(論文①). 今回の補助事業における本研究の発展と当該分野への貢献は今後にもつながる価値あるものとなった.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 16 件)

- ① 川崎敏之, 液体が関与するプラズマ研究への KI-デンブンプン水溶液の応用, プラズマ・核融合学会誌-小特集, 印刷中, 査読有.
- ② T. Kawasaki, A. Sato, S. Kusumegi, A. Kudo, T. Sakanoshita, T. Tsurumaru, G. Uchida, K. Koga, M. Shiratani, “Two-dimensional concentration distribution of reactive oxygen species transported through a tissue phantom by atmospheric-pressure plasma-jet irradiation”, Applied Physics Express, Vol. 9, 076202, 2016, 査読有.
- ③ T. Kawasaki, S. Kusumegi, A. Kudo, T. Sakanoshita, T. Tsurumaru, A. Sato, G. Uchida, K. Koga, M. Shiratani, “Effects of Irradiation Distance on Supply of Reactive Oxygen Species to the Bottom of a Petri Dish Filled with Liquid by an Atmospheric O₂/He Plasma Jet”, Journal of Applied Physics, Vol. 119, 173301, 2016, 査読有.
- ④ T. Kawasaki, S. Kusumegi, A. Kudo, T. Sakanoshita, T. Tsurumaru, A. Sato, “Effects of Gas Flow Rate on Supply of Reactive Oxygen Species Into a Target Through Liquid Layer in Cold Plasma Jet”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. 44, 3223-3229, 2016, 査読有.
- ⑤ T. Kawasaki, K. Kawano, H. Mizoguchi, Y. Yano, Y. Yamashita, and M. Sakai, “Visualization of the Two-dimensional Distribution of ROS Supplied to a Water-containing Target by a Non-thermal Plasma Jet”, International Journal of Plasma Environmental Science & Technology, Vol. 10, 41-46, 2016, 査読有.
- ⑥ F. Mitsugi, S. Kusumegi, T. Kawasaki, T. Nakamiya, Y. Sonoda, “Detection of Pressure Waves Emitted From Plasma Jets With Fibered Optical Wave Microphone in Gas and Liquid Phases”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. 44, 3077-3082, 2016, 査読有.
- ⑦ G. Uchida, A. Nakajima, T. Ito, K. Takenaka, T. Kawasaki, K. Koga, M. Shiratani, Y. Setsuhara, “Effects of nonthermal plasma jet irradiation on the selective production of

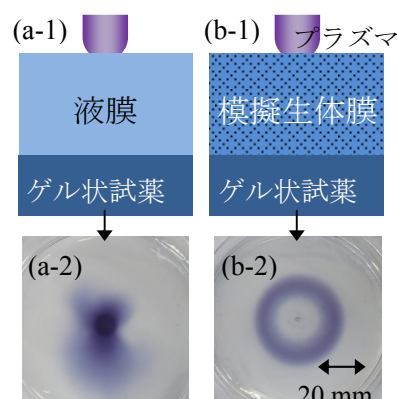


図2 ゲル状試薬と液状媒体の組み合わせによる実験例

H₂O₂ and NO₂⁻ in liquid water”, Journal of Applied Physics, Vol. 120, 203302, 2016, 査読有.

- ⑧ F. Mitsugi, T. Nakamiya, Y. Sonoda, T. Kawasaki, “Time-Resolved Observation of Plasma Jets Synchronized with Fibered Optical Wave Microphone Measurement”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. 44, 2759-2765, 2016, 査読有.
- ⑨ T. Kawasaki, W. Eto, M. Hamada, Y. Wakabayashi, Y. Abe, and K. Kihara, “Detection of reactive oxygen species supplied into the water bottom by atmospheric non-thermal plasma jet using iodine-starch reaction”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 54, 086201, 2015, 査読有.
- ⑩ A. Nakajima, G. Uchida, T. Kawasaki, K. Koga, T. Sarinont, T. Amano, K. Takenaka, M. Shiratani, and Y. Setsuhara, “Effects of gas flow on oxidation reaction in liquid induced by He/O₂ plasma-jet irradiation”, Journal of Applied Physics, Vol. 118, 043301, 2015, 査読有.
- ⑪ F. Mitsugi, T. Ohshima, H. Kawasaki, T. Kawasaki, S. Aoqui, T. Baba, S. Kinouchi, Gas Flow Dependence on Dynamic Behavior of Serpentine Plasma in Gliding Arc Discharge System, IEEE Transaction on Plasma Science, Vol. 42, 3681-3686, 2014, 査読有.
- ⑫ T. Kawasaki, K. Kawano, H. Mizoguchi, Y. Yano, K. Yamashita, M. Sakai, T. Shimizu, G. Uchida, K. Koga and M. Shiratani, Visualization of the Distribution of Oxidizing Substances in an Atmospheric Pressure Plasma Jet, IEEE Transaction on Plasma Science, Vol. 42, 2482-2483, 2014, 査読有.
- ⑬ H. Kawasaki, T. Ohshima, Y. Suda, Y. Yagyu, T. Ihara, F. Mitsugi, T. Kawasaki, S. Aoqui, T. Baba, Effect of UV light on Breakdown Voltage of atmosphere air, Trans. Mat. Res. Soc. Japan Vol. 39, No 3, p.289-292, 2014, 査読有.

- ⑭ T. Kawasaki, K. Kawano, H. Mizoguchi, Y. Yano, K. Yamashita, M. Sakai, G. Uchida, K. Koga and M. Shiratani, Control of the area irradiated by the sheet-type plasma jet in atmospheric pressure, Journal of Physics: Conference Series, Vol. 518 , 012016, 2014, 査読有.
- ⑮ T. Kawasaki, S. Hoketsu, H. Morisaki, K. Sato, H. Baba, S. Umeda, Y. Nakagawa, S. Wakamatsu, and M. Sakai, Basic Study on Generation and Sterilization of Sheet Type Plasma Jet-like DBD under Atmospheric Pressure, International Journal of Plasma Environmental Science & Technology, Vol. 7, No. 1, 26-30, 2013, 査読有.
- ⑯ F. Mitsugi, J. Furukawa, T. Ohshima, H. Kawasaki, T. Kawasaki, Shin. Aouki and H.D. Stryczewska, Observation of dynamic behavior of gliding arc discharge, The European Physical Journal Applied Physics, Vol. 61, No. 2, 1-4, 2013, 査読有.

〔学会発表〕(計 23 件)

招待講演

- ① 川崎敏之, 液体へのプラズマ照射による誘起流と活性酸素種の液中輸送, プラズマ・核融合学会第 33 回年会, 2016 年 12 月.
- ② 川崎敏之, Detection of Reactive Oxygen Species Generated by Non-thermal Plasma Jet Using Iodine-starch Reactions, 第 25 回日本 MRS 年次大会, 2015 年 12 月.
- ③ 川崎敏之, プラズマが気液相中にあるターゲットに供給する活性酸素量の簡易評価法—ゲル状試薬を用いて—, 静電気学会—放電プラズマによる水処理委員会, 2015 年 9 月.
- ④ 川崎敏之, 大気圧非熱平衡プラズマ照射による液中ラジカル生成の可視化, 核融合学会九州沖縄山口支部特別講演会, 2015 年 4 月.

国際学会

- ⑤ T. Kawasaki, G. Kuroeda, R. Sei, M. Yamaguchi, R. Yoshinaga, R. Yamashita, H. Tasaki, K. Koga, M. Shiratani, ISPlasma2017/IC-PLANTS2017, 2017 年 3 月.
- ⑥ T. Kawasaki, S. Kusumegi, A. Kudo, T. Sakanoshita, T. Tsurumaru, A. Sato, ISNTP-10, 2016 年 8 月.
- ⑦ T. Kawasaki, T. Sakanoshita, S. Kusumegi, A. Kudo, T. Tsurumaru, A. Sato, and Y. Wakabayashi, APSPT-9/SPSM-28, 2015 年 12 月.
- ⑧ T. Kawasaki, S. Kusumegi, A. Kudo, T. Sakanoshita, T. Tsurumaru, A. Sato, and Y. Wakabayashi, 3rd ISNPEDADM, 2015 年 10 月.
- ⑨ T. Kawasaki, K. Kawano, H. Mizoguchi, Y. Yano, K. Yamashita and M. Sakai, ISNTP-9,

2014 年 6 月.

- ⑩ T. Kawasaki, K. Kawano, H. Mizoguchi, Y. Yano, K. Yamashita, and M. Sakai, ISEHD2014, 2014 年 6 月.
 - ⑪ T. Kawasaki, W. Eto, M. Hamada, Y. Wakabayashi, Y. Abe, K. Kihara and M. Sakai, HAKONE XIV, 2014 年 9 月.
- その他研究代表者による国内発表 12 件

〔図書〕(計 0 件)

なし

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 2 件)

名称: プラズマ用活性酸素確認試薬、及びプラズマが発する活性酸素の影響範囲確認方法

発明者: 川崎敏之

権利者: 同上

種類: 特許

番号: 特願 2014-158678

出願年月日: 平成 26 年 8 月 4 日

国内外の別: 国内

名称: プラズマ処理装置及びプラズマ処理方法

発明者: 川崎敏之

権利者: 同上

種類: 特許

番号: 特願 2013-114167

出願年月日: 平成 25 年 5 月 30 日

国内外の別: 国内

○取得状況 (計 0 件)

なし

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.nbu.ac.jp/>

<http://mechanical-electrical.nbu.ac.jp/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

川崎 敏之 (KAWASAKI, Toshiyuki)

日本文理大学・工学部機械電気工学科・教授

研究者番号: 30352404

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし

(4)研究協力者

金澤 誠司 (KANAZAWA, Seiji)