

低温等离子体射流对食品接触材料表面细菌灭活效率的影响

许桂敏^{1,2}, 王婧昕¹, 刘进仁³, 李荣荣³, 石兴民³, 张冠军²

(1. 长安大学能源与电气工程学院, 西安 710018; 2. 西安交通大学电气工程学院, 西安 710049;
3. 西安交通大学公共卫生学院, 西安 710061)

摘要: 大气压低温等离子体作为一种新型的非热杀菌技术, 在食品领域具有广泛的应用前景。为此选取了 3 种常见的食品接触材料(牛皮纸、304 不锈钢片、玻璃片)和 2 种代表性的致病菌(金黄色葡萄球菌和沙门氏菌), 利用氩气大气压等离子体射流(atmospheric pressure plasma jet, APPJ)处理表面涂布了细菌的材料, 采用 3 种常用的灭菌动力学模型(Log-linear、Geeraerd 和 Weibull), 对比研究了等离子体对食品接触材料表面细菌的灭活效率。研究表明: Ar APPJ 对涂布在材料表面细菌的杀灭效果均随等离子体处理时间的增加而逐渐增强。与各组的对照相比, 等离子体处理 90 s、120 s、150 s 的细菌灭活率均具有显著差异($P<0.05$)。3 种灭菌动力学模型中, Weibull 模型的 R^2 数值都接近为 1, 具有较高的拟合精度, 预测值和实测值之间的相关性最好, 表明该模型能够比 Log-linear 和 Geeraerd 模型更好地反映等离子体对食品接触材料表面细菌的灭活规律, 更适合描述等离子体的杀菌过程。该研究结果可为低温等离子体技术在食品工业的应用提供参考。

关键词: 低温等离子体射流; 细菌; 食品接触材料; 动力学模型; 灭活效率

Effect of Low Temperature Plasma Jet on Bacteria Inactivation Efficiency of Food Contact Materials Surface

XU Guimin^{1,2}, WANG Jingxin¹, LIU Jinren³, LI Rongrong³, SHI Xingmin³, ZHANG Guanjun²

(1. School of Energy and Electrical Engineering, Chang'an University, Xi'an 710018, China;

2. School of Electrical Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;

3. School of Public Health, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710061, China)

Abstract: As a new type of non-thermal sterilization technology, the low-temperature plasma at atmospheric pressure has shown great potentials in food industry. In this study, three common food contact materials (kraft paper, 304 stainless steel, glass sheet) and two representative pathogenic bacteria (*Staphylococcus aureus* and *Salmonella*) are chosen for inactivation under the treatment by argon atmospheric pressure plasma jet (Ar APPJ). Three commonly used sterilization kinetic models (Log-linear, Geeraerd and Weibull) are employed to investigate the inactivation efficiency of plasma against bacteria on food contact materials surface. The results indicate that the killing effects of Ar APPJ on bacteria gradually increase as plasma treatment time prolongs. Compared with the control groups, there are significant differences in the bacterial inactivation rates after plasma treatment for 90 s, 120 s and 150 s ($P<0.05$). Among the three sterilization kinetics models, the R^2 value of the Weibull model is close to 1, indicating high fitting accuracy. Also, the correlation between predicted and measured values is the best. These data indicate that the Weibull model can better reflect the inactivation rule of plasma on bacteria than the Log-linear and Geeraerd models, and it is more suitable for describing the sterilization process of plasma treatment. The research can provide guidance for the application of low-temperature plasma technology in food industry.

Key words: low-temperature plasma jet; bacteria; food contact material; kinetic model; inactivation efficiency

0 引言

食品接触材料作为与食品直接或间接接触的物质,在食品的加工、包装、盛放等过程中极易附着各种致病微生物,这些微生物会迁移到食品中造成污染,进而影响食品安全和食用者的健康^[1-3]。因此,快速有效地灭活食品接触材料表面的微生物,对于提高食品的安全性至关重要。

目前常用的食品接触材料消毒杀菌方法包括化学(消毒剂)、高温、超声波清洗以及紫外发光二极管等。消毒剂虽然使用方便、价格低廉,但存在有异味、有毒性残留等问题;其他方法则存在处理时间长、能耗高和成本高等问题^[4-6]。近年来,作为一种新型高效的非热杀菌技术,低温等离子体在食品工业领域得到极大关注与应用^[7-8]。低温等离子体能够在大气压条件下便捷产生,富含多种活性成分,杀菌效率高并且无有害物质残留^[9]。此外,等离子体的宏观温度低、接近室温,不会对被处理物体造成热损害,在食品生产加工领域展现出广阔的应用前景^[10]。

在引发食源性疾病的致病菌中,金黄色葡萄球菌和鼠伤寒沙门氏菌分别是具有代表性的革兰氏阳性菌和革兰氏阴性菌^[11]。Gounadaki 等人检测了香肠加工过程中使用的刀具、案板和绞肉机等设备表面的致病微生物,发现金黄色葡萄球菌和沙门氏菌的检出率分别为 11.7%和 26.4%^[12],这会给食品消费者的健康带来威胁。黄明明等利用介质阻挡放电等离子体对上述 2 种细菌进行处理,探究了不同等离子体工作条件(电压幅值、频率、工作气体、静置时间)、不同菌体环境(细菌悬液、接种到固体表面)对等离子体杀菌性能的影响,明确了等离子体中的含氧氮活性成分在细菌杀灭中的关键作用^[11]。刘雅夫等以金黄色葡萄球菌和铜绿假单胞菌悬液为研究对象,利用 Linear、Weibull 和 Log-linear+Shoulder+Tail 这 3 种数学模型,研究了介质阻挡放电产生低温等离子体的杀菌动力学特性^[13]。Samioti 等则选取了 6 种食品致病菌和 6 种非致病菌,利用 kINPen 等离子体射流进行处理,结合 log-linear、Geeraerd 和 Weibull 模型,考查了等离子体的灭菌效果与动力学特性^[14]。

虽然国内外关于利用低温等离子体处理各种细菌悬液的研究已经比较广泛深入,包括等离子体直接处理和间接处理、不同的等离子体产生方

式^[15-19],但是利用等离子体处理食品接触材料表面致病菌的效果、影响因素以及灭菌动力学特性的研究还不够完善,有必要进一步开展相关研究。因此,本文以常用的食品接触材料(牛皮纸、304 不锈钢片、玻璃片)和典型的致病菌(金黄色葡萄球菌和沙门氏菌)为研究对象,利用大气压等离子体射流(atmospheric pressure plasma jet, APPJ)处理表面接种细菌的材料,分析等离子体杀菌效果的影响因素;选用 Log-linear、Geeraerd 和 Weibull 这 3 种常用的灭菌动力学模型,考查等离子体灭活食品接触材料表面细菌的效率,确定可以更好描述等离子体杀菌过程的动力学模型,从而为低温等离子体技术在食品工业中的应用提供参考。

1 实验材料与方法

1.1 食品接触材料与表面特性检测

3 种常用的食品接触材料牛皮纸、304 不锈钢片、玻璃片均从市场购买。

为考查食品接触材料表面特性对不同细菌粘附与低温等离子体灭菌效果的影响,分别利用光学接触角测量仪(型号为 OCA20)和激光共聚焦显微镜(型号为 OLS4100)对未涂布细菌材料表面的水静态接触角、表面形貌与平均粗糙度进行测量。激光共聚焦显微镜的视野范围为 $1\ 280\ \mu\text{m} \times 1\ 285\ \mu\text{m}$ 。每个材料均取 5 个不同位置作为测试点,结果用平均值 $\pm$ 标准差表示。

1.2 细菌悬液制备与材料表面细菌涂布

将金黄色葡萄球菌(型号为 ATCC 6538)和鼠伤寒沙门氏菌(型号为 CICC 21484)分别在大豆酪蛋白琼脂培养基中活化 2 次;然后挑取单菌落接种在大豆酪蛋白液体培养基中,在 $37\ ^\circ\text{C}$ 、 $120\ \text{r/min}$ 摇床中培养 12 h 后,在 $4\ 000\ \text{r/min}$ 、 $4\ ^\circ\text{C}$ 条件下离心 10 min,去除上清液,用无菌生理盐水洗涤菌体 2 次;最后,用无菌生理盐水重悬浮,调整细菌悬液浓度至约 $10^8\ \text{CFU/mL}$ ^[3]。

在材料表面涂布细菌的步骤如下:先用 75% 的酒精擦拭材料表面晾干,再用疏水笔在材料表面绘制直径为 4 mm 的圆形区域;然后吸取上述制备好的细菌悬液 $10\ \mu\text{L}$,滴于圆形区域内;最后将材料放置在超净工作台中通风干燥 2 h,使细菌完全附着于材料的表面。

1.3 Ar APPJ 处理材料表面细菌与细菌计数

利用与文献[20]中相同的装置产生 APPJ 进行

灭菌实验。其中, 2 个同轴双环电极为厚度为 0.15 mm、宽度为 10 mm 的铜箔, 上下电极之间的距离为 20 mm; 工作气体为体积分数为 99.999% 的 Ar; 驱动电源为中心频率为 10 kHz 的正弦高压谐振电源(型号为 CTP-2000K)。

电极两端的外施电压(本文中外施电压幅值均用峰峰值 U_{p-p} 表示)和回路电流波形分别由高压探头(Tektronix P6015A)和电流线圈(Pearson 2877)采集测量, 并通过数字示波器(Tektronix TBS2000B)记录保存; 利用数码相机(Canon EOS60D)拍摄等离子体射流图像(曝光时间为 1 s)。

实验时, 分别调节电源的频率、电压幅值、气体体积流量为 10.24 kHz、20.8 kV、5 L/min, 以产生稳定的 Ar 等离子体射流。然后, 将涂布了细菌的材料置于等离子体射流的正下方(材料表面与管口的距离为 10 mm), 进行不同时间(10、30、60、90、120、150 s)的处理。以不处理的材料表面细菌作为对照(0 s)。

等离子体处理结束后, 用无菌采样拭子擦拭各组材料表面的物质放入离心管中, 离心振荡使细菌完全脱落。取洗脱液进行 100 倍系列梯度稀释, 再取 100 μ L 在平板计数培养基上均匀涂抹, 在 37 $^{\circ}$ C 恒温培养箱中培养 48 h 后进行菌落计数, 结果用 lg(CFU/mL)表示。

1.4 细菌灭活动力学模型及拟合度比较

采用 3 种常见的细菌灭活模型(Log-linear、Geeraerd 和 Weibull)对等离子体射流的杀菌效果进行拟合分析^[3, 13-14]。

1.4.1 Log-linear 模型

该模型按照式(1)计算。

$$\lg N = \lg N_0 - t/D \quad (1)$$

式中: N_0 为材料上的初始菌落数, CFU/mL; N 为等离子体处理后的菌落数, CFU/mL; t 为等离子体处理时间, s; D 为灭活 90% 的细菌所需要的时间, s。

1.4.2 Geeraerd 模型

该模型按照式(2)计算, 即:

$$\lg N = \lg N_0 - \lg(e^{-kt}(1-p) + p) \quad (2)$$

式中: p 为存活细菌数量与初始细菌数量的比; k 为灭活速率常数。

1.4.3 Weibull 模型

该模型按照式(3)计算, 即:

$$\lg N = \lg N_0 - bt^{n_1} \quad (3)$$

式中: b 为尺度参数; n_1 为形状参数。

1.4.4 动力学模型拟合度评价

上述 3 种细菌灭活动力学模型的拟合度利用精确因子 A_f 、偏差因子 B_f 、决定系数 R^2 和均方根误差(root-mean-square error, RMSE, 设为 E_{RMS})进行评价。 A_f 、 B_f 和 E_{RMS} 分别按照式(4)—式(6)计算, 即:

$$A_f = 10^{\frac{\sum \lg(N_m/N_p)}{n}} \quad (4)$$

$$B_f = 10^{\frac{\sum \lg(N_m/N_p)}{n}} \quad (5)$$

$$E_{RMS} = \sqrt{\frac{\sum (N_m - N_p)^2}{n-1}} \quad (6)$$

式中: N_m 为材料表面细菌数量的实测值, CFU/mL; N_p 为材料表面细菌数量的预测值, CFU/mL; n 为实验组个数。

以上参数中, A_f 表示实测值与预测值之间的一致性, 该数值越小, 说明模型的拟合度越高; B_f 表示实测值与预期值偏差的程度, 该数值越接近 1, 说明模型的拟合度越高; R^2 和 E_{RMS} 表示模型的拟合度, R^2 越接近 1、 E_{RMS} 越小, 意味着模型的拟合度越高^[12, 21]。

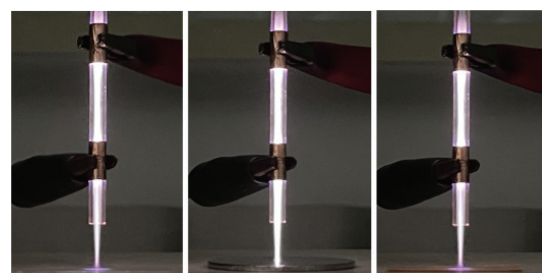
1.5 数据统计与分析

本文所有实验重复 3 次。利用 Origin 2022 软件对实验数据进行模型拟合, 利用 SPSS 23.0 软件进行数据处理和单因素方差分析($P < 0.05$)。

2 实验结果与讨论

2.1 Ar APPJ 光电特性

记录 Ar APPJ 处理 3 种材料表面细菌的放电图像, 如图 1 所示。可见 Ar APPJ 处理 3 种材料时管内的放电均以细丝为主, 都发出白色的亮光。处理玻璃片和牛皮纸时, 距离管口较近位置的发光为白色, 与材料表面接触处的发光为紫色, 等离子体在材料表面铺开; 而处理不锈钢片时, 管口到材料表面都是白色的等离子体通道, 放电强度明显增加,



(a) 玻璃片 (b) 不锈钢片 (c) 牛皮纸

图 1 Ar APPJ 处理 3 种材料的放电图像

Fig.1 Images of Ar APPJ treatment with three materials

并且等离子体通道在材料表面收缩,这主要归因于不锈钢片为金属导体,其相对介电常数远大于非导体的玻璃片和牛皮纸。根据 Norberg 等关于等离子体射流处理不同相对介电常数物体的仿真结果可知:当被处理物体的相对介电常数较低时,有利于等离子体在物体表面形成水平方向的表面电离波;而被处理物体的相对介电常数较高时,将有利于在等离子体与物体表面之间形成导电性通道,使得放电发生收缩^[22]。

图2为 $U_{p-p}=20.8\text{ kV}$ 时、处理玻璃片的 Ar APPJ 的电压、电流波形。从图2中可以看出,在外施正弦电压的正半周期与负半周期均有脉冲电流出现,且脉冲电流的幅值不固定;对比电流与电压波形零点的相对位置,发现电流脉冲所出现的位置亦不固定,说明每个电压周期内,介质阻挡放电电流的产生与传播过程并不完全相同,从而导致放电呈现出一定的随机性^[23-24]。需要说明的是,相同外施电压下,Ar APPJ 处理3种材料时的电压、电流波形相似,说明被处理物体的改变对管内的放电影响较小。

2.2 Ar APPJ 对细菌的灭活效果

Ar APPJ 处理对3种材料表面细菌的灭活效果如图3所示。由图3中可以看出,等离子体对接种在3种食品接触材料表面的2种细菌的杀灭效果均随等离子体处理时间的增加而逐渐增强。

对于金黄色葡萄球菌,等离子体处理90 s后,玻璃片、不锈钢片、牛皮纸表面的细菌数量分别从初始的 5.806 ± 0.056 、 5.853 ± 0.019 、 $5.950\pm0.018\text{ lg(CFU/mL)}$ 减少到 4.412 ± 0.047 、 4.467 ± 0.074 、 $4.839\pm0.006\text{ lg(CFU/mL)}$;等离子体处理120 s后,玻璃片、不锈钢片、牛皮纸表面的细菌数量分别减少到 3.491 ± 0.130 、 3.544 ± 0.121 、 $3.690\pm0.067\text{ lg(CFU/mL)}$;随着等离子体处理时间达到150 s后,玻璃片、不锈钢片、牛皮纸表面的细菌数量分别减少到 1.544 ± 0.095 、 1.865 ± 0.060 、 $2.385\pm0.115\text{ lg(CFU/mL)}$ 。与各组的对照相比,细菌灭活率均具有显著差异($P<0.05$)。随着处理时间的延长,等离子体与细菌的作用时间增加,细菌受损程度增强,因此具有更好的杀菌效果。

对于鼠伤寒沙门氏菌,等离子体处理90 s后,3种材料表面的细菌数量分别从初始的 5.730 ± 0.025 、 5.738 ± 0.024 、 $5.681\pm0.009\text{ lg(CFU/mL)}$ 减少到 3.892 ± 0.017 、 4.213 ± 0.093 、 $4.615\pm0.035\text{ lg(CFU/mL)}$;等离子体处理120 s后,3种材料表面的细菌数量分别为 3.204 ± 0.104 、 3.301 ± 0.088 、 $3.417\pm0.096\text{ lg(CFU/mL)}$;

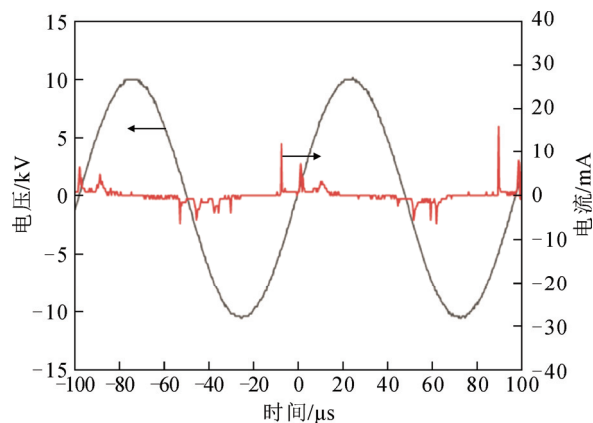
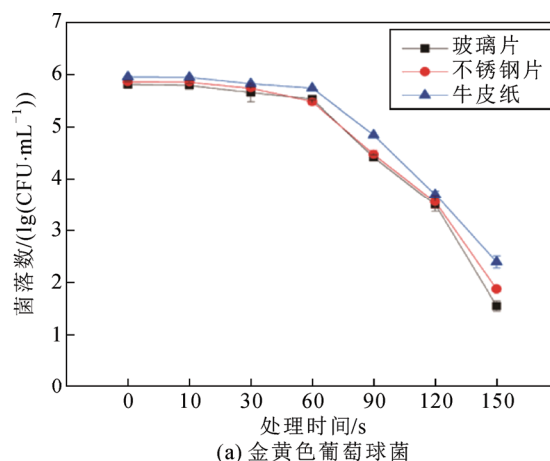
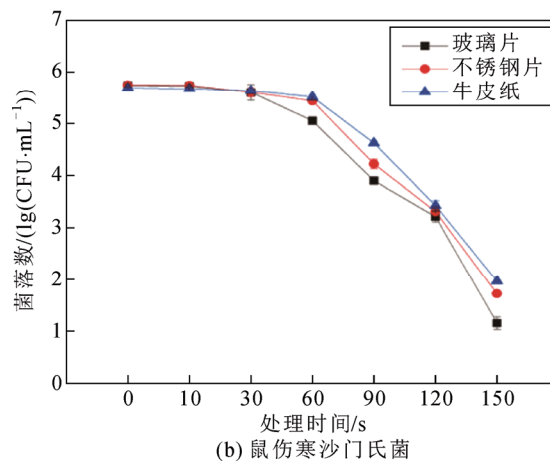


图2 Ar APPJ 处理玻璃片时的电压、电流波形

Fig.2 Voltage and current waveforms of Ar APPJ treatment with the glass



(a) 金黄色葡萄球菌



(b) 鼠伤寒沙门氏菌

图3 Ar APPJ 对3种材料表面细菌的处理效果

Fig.3 Effect of Ar APPJ treatment on bacteria on three materials surface

当等离子体处理时间为150 s时,3种表面的细菌数量分别为 1.146 ± 0.120 、 1.716 ± 0.008 、 $1.959\pm0.017\text{ lg(CFU/mL)}$ 。相比于金黄色葡萄球菌,鼠伤寒沙门氏菌表现出较

弱的抗等离子体能力, 这与其他团队的研究结果相符^[25]。不同菌株对等离子体处理的敏感程度不同, 可能是由革兰氏阳性菌和革兰氏阴性菌细胞壁之间的差异引起^[26-27]。革兰氏阴性菌的细胞壁比较薄、疏松, 而革兰氏阳性菌的细胞壁比较厚, 有更致密的肽聚糖层和大量磷壁酸, 使等离子体中具有杀菌作用的活性成分更不容易穿透细胞^[28-29]。因此, 在相同的作用条件下, 鼠伤寒沙门氏菌比金黄色葡萄球菌更容易被等离子体杀灭。

2.3 Ar APPJ 对细菌的灭活动力学分析

采用 3 种模型分别对 Ar APPJ 处理不同材料细菌的灭活效果进行动力学曲线拟合, 结果如图 4—图 6 所示, 其对应的拟合参数和评价参数 R^2 分别在表 1 和表 2 中列出。

由图 4 和表中数据可以发现, 各组 Log-linear 模型的 R^2 中, 仅有玻璃片和不锈钢片表面的鼠伤寒沙门氏菌(分别为 0.92、0.902)大于 0.9, 其余组均小于 0.9。分析各组的 A_f 、 B_f 和 E_{RMS} 数值, 可以得到结论为: Log-linear 模型不适用于描述等离子体对材

料表面细菌的作用规律。

分析图 5、图 6 和表中各实验组的数据发现, 采用 Geeraerd 和 Weibull 模型的拟合参数 R^2 均大于 0.9, 其中 Weibull 模型的 R^2 数值都接近为 1, 说明该模型具有较高的拟合精度。此外, 比较 A_f 、 B_f 和 E_{RMS} , 发现 Weibull 模型中的数值均小于 Geeraerd 模型, 因此可以认为 Weibull 模型能够更好地反映等离子体对食品接触材料表面细菌的灭活规律。此外, 由于尺度参数 b 与灭活效果有关, 比较各组的 b 值可以得到: 等离子体对牛皮纸、不锈钢片和玻璃片表面 2 种细菌的灭活效果都是依次增强的。

进一步, 以实测值为横坐标、预测值为纵坐标作相关性图, 通过线性拟合得到决定系数 R^2 , 以比较 3 种模型拟合方程的预测值和实测值之间的差异。当曲线的斜率和决定系数 R^2 越趋于 1, 截距越小、接近于 0, 说明实测值和预测值具有更好的一致性^[30]。从由图 7 所示代表性的相关性图中可以看出, 对于玻璃片表面的 2 种细菌而言, Weibull 模型的 R^2 均最大、接近于 1, 该模型的拟合效果最好,

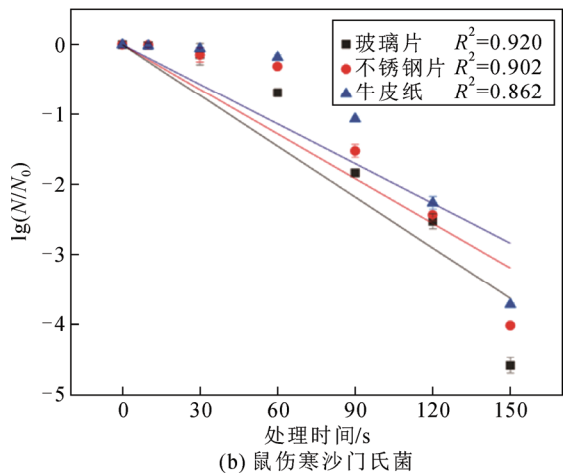
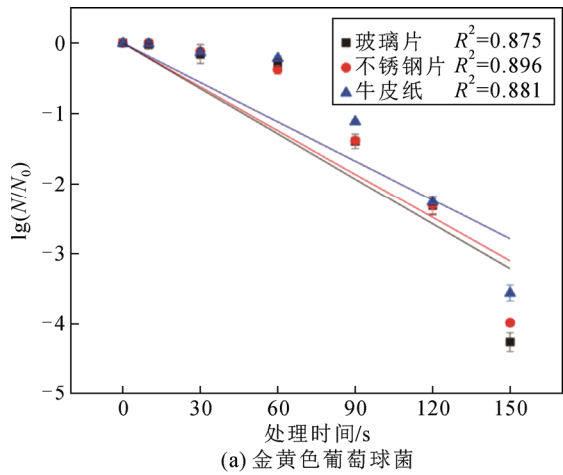


图 4 Log-linear 模型拟合曲线
Fig.4 Fitting curves of Log-linear model

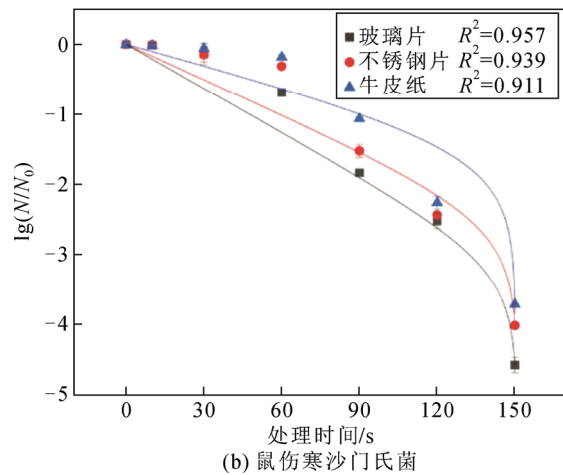
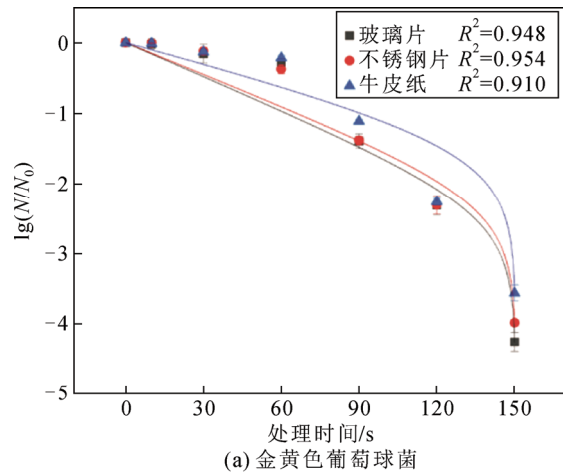


图 5 Geeraerd 模型拟合曲线
Fig.5 Fitting curves of the Geeraerd model

预测值和实测值之间的相关性最好,说明该模型比 Log-linear 和 Geeraerd 模型更适合描述等离子体杀菌过程。

2.4 食品接触材料表面特性分析

3 种未涂布细菌的材料表面水静态接触角 θ 测量结果如图 8 所示。通过测量仪器的系统软件计算可得,玻璃片、不锈钢片、牛皮纸表面的水接触角分别为 $10.27^{\circ}\pm1.15^{\circ}$ 、 $69.6^{\circ}\pm1.54^{\circ}$ 和 $94.9^{\circ}\pm1.82^{\circ}$,数值差异较大。

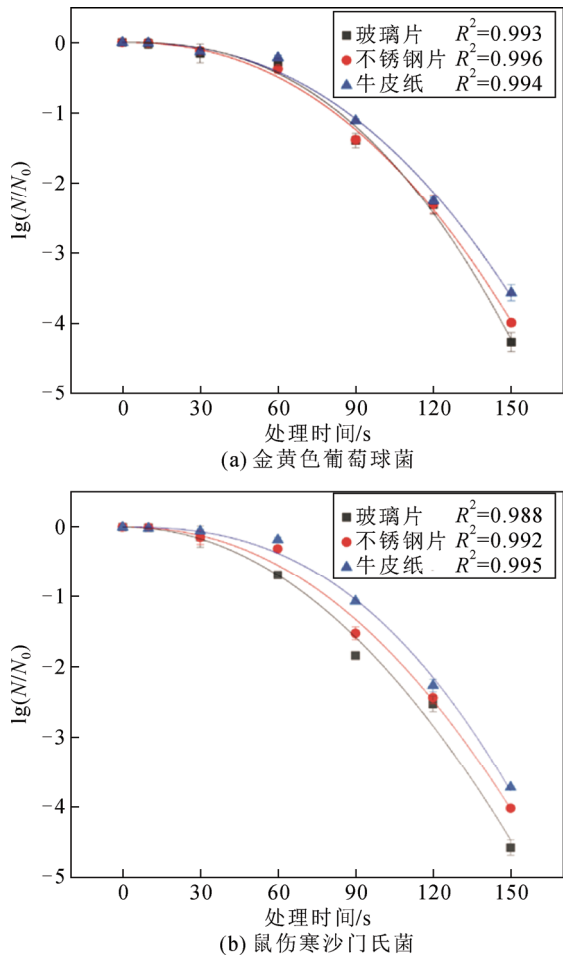


图 6 Weibull 模型拟合曲线

Fig.6 Fitting curves of the Weibull model

通常认为水接触角小于 65° 的为表面亲水性材料,水接触角大于 65° 的为表面疏水性材料^[31]。由此可知本文使用的 3 种材料中,玻璃片为表面亲水材料,不锈钢片和牛皮纸均为表面疏水性材料,其中牛皮纸表面具有最强的疏水性。研究表明细菌在亲水性材料的表面具有较强的粘附能力^[32-33]。对于亲水性材料玻璃片,细菌悬液更容易在其表面附着和展开,使得更多的细菌受到等离子体活性物质的接触与作用;而当细菌悬液滴在疏水性材料不锈钢片和牛皮纸表面时,细菌悬液更容易形成上下堆积结构,从而使部分细菌不能与等离子体活性物质充分接触^[3]。因此,在相同的条件下,等离子体对玻璃片表面细菌的灭活效果最强,对不锈钢片表面细菌的灭活效果次之,对牛皮纸表面细菌的灭活效果最弱。

此外,利用激光共聚焦显微镜测量得到玻璃片、不锈钢片、牛皮纸的表面平均粗糙度 R_a 分别为 $0.170\pm0.064\text{ }\mu\text{m}$ 、 $1.175\pm0.032\text{ }\mu\text{m}$ 和 $3.232\pm0.401\text{ }\mu\text{m}$ 。图 9 展示了 3 种材料表面的 3D 形貌。从 R_a 数据和图 9 中可以明显看出:玻璃片的表面比较光滑,不锈钢片的表面较为粗糙,而牛皮纸的表面最粗糙。与玻璃片相比,不锈钢片和牛皮纸的表面粗糙结构会限制细菌与等离子体活性物质的接触,使得等离

表 1 不同等离子体处理条件下的模型参数

Table 1 Model parameters under different plasma treatment

		conditions				
细菌	材料	Log-linear 模型	Geeraerd 模型		Weibull 模型	
		D	k	p	b	n_1
金黄色葡萄球菌	玻璃片	46.620	0.037	-0.004	2.691×10^{-4}	2.474
	不锈钢片	48.333	0.034	-0.006	4.392×10^{-5}	2.278
	牛皮纸	53.763	0.023	-0.035	1.754×10^{-5}	2.357
鼠伤寒沙门氏菌	玻璃片	41.271	0.048	-0.004	1.635×10^{-4}	2.039
	不锈钢片	46.970	0.039	-0.003	7.278×10^{-5}	2.180
	牛皮纸	52.826	0.023	-0.034	1.242×10^{-5}	2.519

表 2 不同等离子体处理条件下的模型评价参数

Table 2 Model evaluation parameters under different plasma treatment conditions

细菌	材料	Log-linear 模型				Geeraerd 模型				Weibull 模型			
		A_f	B_f	R^2	$ERMS$	A_f	B_f	R^2	$ERMS$	A_f	B_f	R^2	$ERMS$
金黄色葡萄球菌	玻璃片	3.200	1.611	0.875	0.676	1.630	1.397	0.948	0.333	1.218	0.985	0.993	0.120
	不锈钢片	2.772	1.550	0.896	0.588	1.565	1.251	0.954	0.297	1.134	1.006	0.996	0.083
	牛皮纸	2.570	1.517	0.881	0.569	1.736	1.020	0.910	0.379	1.163	0.906	0.994	0.101
鼠伤寒沙门氏菌	玻璃片	2.923	1.563	0.920	0.599	1.606	1.605	0.957	0.324	1.266	0.994	0.988	0.172
	不锈钢片	2.682	1.557	0.902	0.587	1.664	1.391	0.939	0.348	1.183	1.018	0.992	0.128
	牛皮纸	2.823	1.580	0.861	0.630	1.801	1.033	0.911	0.394	1.143	1.023	0.995	0.095

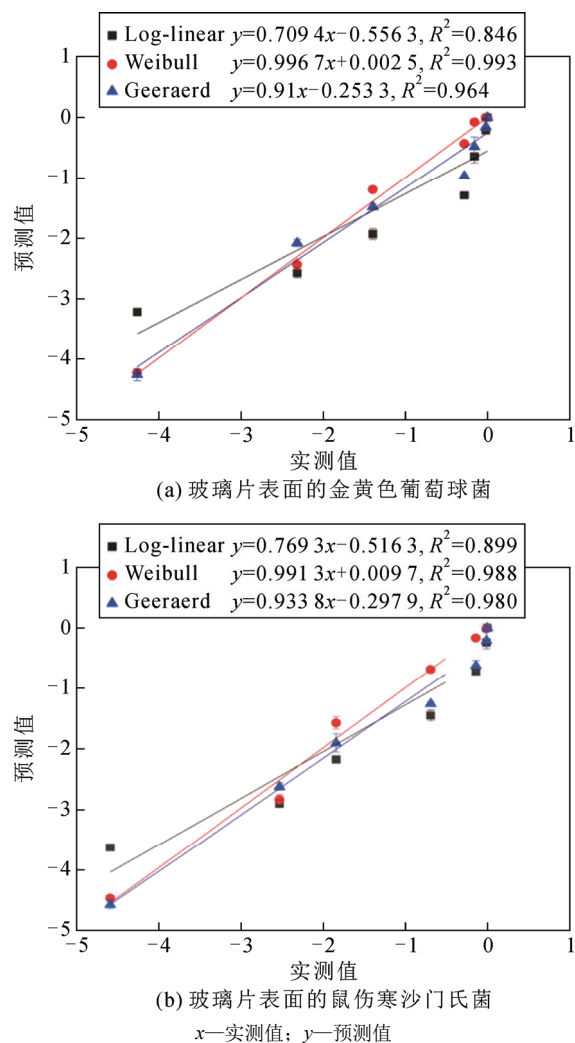


图7 Ar APPJ 对玻璃片细菌灭活效果预测值与实测值的相关性

Fig.7 Correlation between predicted and measured data for Ar APPJ inactivation of bacteria on glass

子体对其表面细菌表现出较低的灭活效果^[34]。Han 等利用大气压低温等离子体对不同粗糙度食品(蔬菜、水果、坚果和粉状食品)的致病菌进行处理,发现食品表面的粗糙度与微生物的失活率负相关^[35]。

3 结论

1) 在相同的实验条件下, Ar APPJ 对接种在 3 种食品接触材料(玻璃片、不锈钢片、牛皮纸)表面的 2 种致病菌(金黄色葡萄球菌、鼠伤寒沙门氏菌)的杀灭效果均随等离子体处理时间的增加而逐渐增强。与各组的对照相比, 等离子体处理 90、120、150 s 的细菌灭活率均具有显著差异($P<0.05$)。2 种细菌表现出不同的抗等离子体能力, 可能与革兰氏阳性菌和革兰氏阴性菌的细胞壁差异有关。使得相

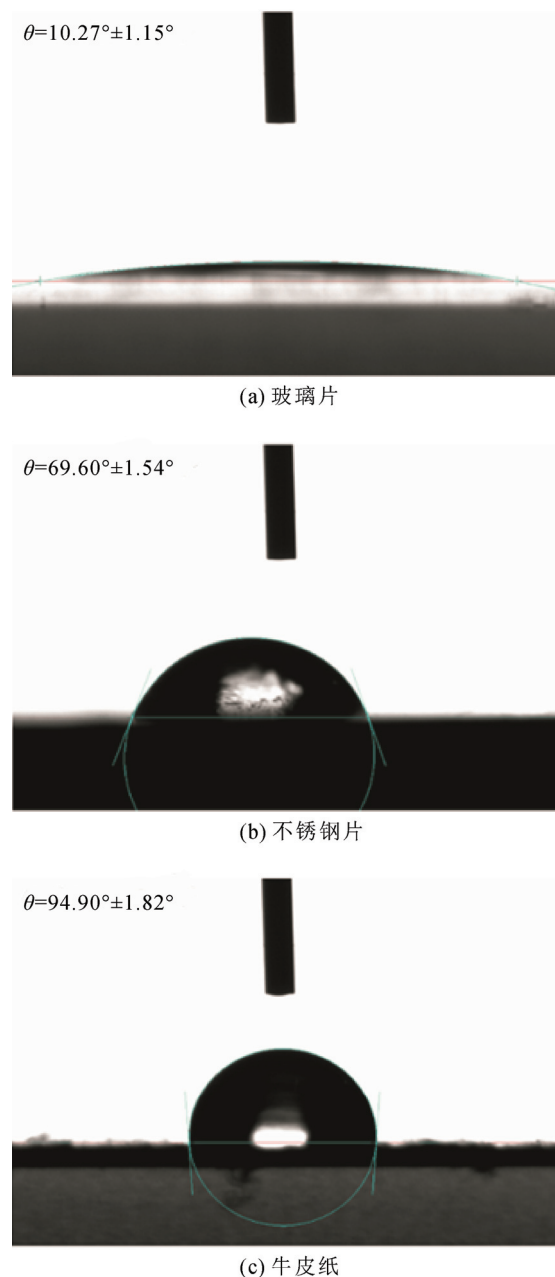


图8 3 种材料表面的水接触角测量结果

Fig.8 Water contact angle results of three material surfaces

同作用条件下, 鼠伤寒沙门氏菌比金黄色葡萄球菌更容易被等离子体杀灭。

2) 玻璃片、不锈钢片、牛皮纸表面的水接触角分别为 $10.27^\circ\pm1.15^\circ$ 、 $69.6^\circ\pm1.54^\circ$ 和 $94.9^\circ\pm1.82^\circ$, 亲水性能差异较大。激光共聚焦检测结果显示上述 3 种材料的表面粗糙度 R_a 分别为 $0.17\pm0.064\ \mu\text{m}$ 、 $1.175\pm0.032\ \mu\text{m}$ 和 $3.232\pm0.401\ \mu\text{m}$, 牛皮纸的表面最为粗糙。对于表面亲水的材料, 细菌悬液更容易在其表面附着和展开, 使得更多的细菌会受到等离子体的处理; 而对于表面粗糙的材料, 细菌悬液更

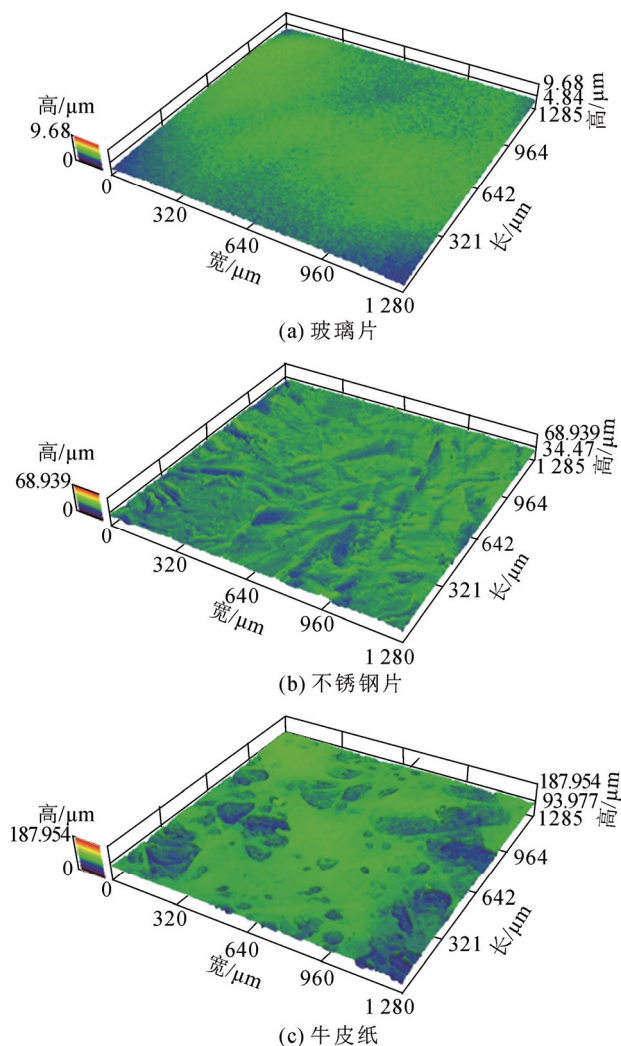


图9 3种材料表面的激光共聚焦图像

Fig.9 Confocal laser images of three material surfaces

容易在上面形成堆积结构,从而使部分细菌免受等离子体的处理。但材料表面特性对细菌分布和附着影响的具体机制还有待深入研究。

3) 对比3种模型的评价参数和实测值与预测值相关性结果,得到Log-linear模型不适用于描述等离子体对食品接触材料表面细菌的灭活规律,Weibull模型能够更好地反映等离子体对材料表面细菌的灭活规律。相同条件下,等离子体对牛皮纸、不锈钢片和玻璃片表面2种细菌的灭活效果依次增强。

参考文献 References

[1] VINK A A, ROZA L. Biological consequences of cyclobutane pyrimidine dimers[J]. Journal of Photochemistry and Photobiology B: Biology, 2001, 65(2/3): 101-104.

[2] ASENSIO E, MONTAÑÉS L, NERÍN C. Migration of volatile compounds from natural biomaterials and their safety evaluation as food contact materials[J]. Food and Chemical Toxicology, 2020, 142:

111457.

- [3] 相启森, 董闪闪, 范刘敏, 等. 紫外发光二极管对食品接触材料的杀菌动力学及影响因素[J]. 食品科学, 2022, 43(5): 17-25.
- XIANG Qisen, DONG Shanshan, FAN Liumin, et al. Bactericidal kinetics of ultraviolet C light-emitting diodes against bacteria on food contact materials and factors influencing it[J]. Food Science, 2022, 43(5): 17-25.
- [4] GILCA A F, TEODOSIU C, FIORE S, et al. Emerging disinfection byproducts: a review on their occurrence and control in drinking water treatment processes[J]. Chemosphere, 2020, 259: 127476.
- [5] OTTO C, ZAHN S, ROST F, et al. Physical methods for cleaning and disinfection of surfaces[J]. Food Engineering Reviews, 2011, 3(3/4): 171-188.
- [6] PRASAD A, DU L H, ZUBAIR M, et al. Applications of light-emitting diodes(LEDs) in food processing and water treatment[J]. Food Engineering Reviews, 2020, 12(3): 268-289.
- [7] 梅丹华, 方志, 邵涛. 大气压低温等离子体特性与应用研究现状[J]. 中国电机工程学报, 2020, 40(4): 1339-1358.
- MEI Danhua, FANG Zhi, SHAO Tao. Recent progress on characteristics and applications of atmospheric pressure low temperature plasmas[J]. Proceedings of the CSEE, 2020, 40(4): 1339-1358.
- [8] 刘非凡, 温纪平, 展小彬, 等. 冷等离子体处理在食品中的应用研究进展[J]. 食品研究与开发, 2024, 45(12): 181-188.
- LIU Feifan, WEN Jiping, ZHAN Xiaobin, et al. Research progress on the application of cold plasma treatment in food[J]. Food Research and Development, 2024, 45(12): 181-188.
- [9] 许桂敏, 穆海宝, 林芳妃, 等. 基于印刷电路板的沿面型介质阻挡放电特性[J]. 高电压技术, 2022, 48(9): 3784-3793.
- XU Guimin, MU Haibao, LIN Fangfei, et al. Characteristics of surface dielectric barrier discharge based on a printed circuit board[J]. High Voltage Engineering, 2022, 48(9): 3784-3793.
- [10] EKEZIE F G C, SUN D W, CHENG J H. A review on recent advances in cold plasma technology for the food industry: current applications and future trends[J]. Trends in Food Science & Technology, 2017, 69: 46-58.
- [11] HUANG M M, ZHUANG H, WANG J M, et al. Inactivation kinetics of *Salmonella typhimurium* and *Staphylococcus aureus* in different media by dielectric barrier discharge non-thermal plasma[J]. Applied Sciences, 2018, 8(11): 2087.
- [12] GOUNADAKI A S, SKANDAMIS P N, DROSINOS E H, et al. Microbial ecology of food contact surfaces and products of small-scale facilities producing traditional sausages[J]. Food Microbiology, 2008, 25(2): 313-323.
- [13] 刘雅夫, 符腾飞, 刘宸成, 等. 低温等离子体对金黄色葡萄球菌和铜绿假单胞菌的杀菌效果及动力学特性[J]. 现代食品科技, 2021, 37(12): 127-135.
- LIU Yafu, FU Tengfei, LIU Chencheng, et al. Bactericidal efficacy and kinetics of cold plasma against *Staphylococcus aureus* and *Pseudomonas aeruginosa*[J]. Modern Food Science and Technology, 2021, 37(12): 127-135.
- [14] SAMIOTI V, KRITI E, SPANOU A, et al. Inactivation kinetics of pathogenic and nonpathogenic bacteria upon in vitro treatment with cold atmospheric pressure plasma (CAPP)[J]. International Journal of Food Science, 2024, 2024: 7464133.
- [15] LAROUSSE M. Sterilization of contaminated matter with an atmospheric pressure plasma[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 1996, 24(3): 1188-1191.
- [16] 卢新培, 罗婧怡, 聂兰兰, 等. 等离子体医学研究进展[J]. 高电压技术, 2024, 50(8): 3555-3579.

- LU Xinpei, LUO Jingyi, NIE Lanlan, et al. Progresses in plasma medicine research[J]. High Voltage Engineering, 2024, 50(8): 3555-3579.
- [17] LI Y Q, LIU J L, ZHAO F, et al. Plasma-activated ethanol solution and its decontamination effect[J]. High Voltage, 2023, 8(4): 833-840.
- [18] 郝悦, 许桂敏, 石兴民, 等. 低温等离子体消毒灭菌技术的应用研究进展[J]. 中国消毒学杂志, 2024, 41(1): 51-56.
- HAO Yue, XU Guimin, SHI Xingmin, et al. Research progress on the application of low-temperature plasma disinfection and sterilization technology[J]. Chinese Journal of Disinfection, 2024, 41(1): 51-56.
- [19] 郭莉, 赵鹏瑜, 黄玲玲, 等. 等离子体活化水用于微生物消杀的意义和现状[J]. 高电压技术, 2024, 50(7): 2955-2971.
- GUO Li, ZHAO Pengyu, HUANG Lingling, et al. Significance and current status of plasma-activated water for microbial inactivation[J]. High Voltage Engineering, 2024, 50(7): 2955-2971.
- [20] 许桂敏, 张冠军, 姚聪伟, 等. 大气压氩气等离子体射流在不同作用状态下的光电特性[J]. 高电压技术, 2019, 45(5): 1375-1386.
- XU Guimin, ZHANG Guanjin, YAO Congwei, et al. Optical and electrical characteristics of atmospheric pressure argon plasma jet under different interaction states[J]. High Voltage Engineering, 2019, 45(5): 1375-1386.
- [21] 王旭娟, 刘月, 李佳佳, 等. 高压热杀菌处理结合溶菌酶对枯草杆菌芽孢的灭活动力学研究[J]. 食品与发酵工业, 2023, 49(22): 57-63.
- WANG Xujuan, LIU Yue, LI Jiajia, et al. Inactivation kinetics of *Bacillus subtilis* spores by high-pressure thermal sterilization combining with lysozyme[J]. Food and Fermentation Industries, 2023, 49(22): 57-63.
- [22] NORBERG S A, JOHNSEN E, KUSHNER M J. Helium atmospheric pressure plasma jets touching dielectric and metal surfaces[J]. Journal of Applied Physics, 2015, 118(1): 013301.
- [23] 夏凌寒, 常泽洲, 李伊濛, 等. 开放环境中大气压氩气微等离子体射流特性[J]. 高电压技术, 2024, 50(12): 5638-5647.
- XIA Linghan, CHANG Zezhou, LI Yimeng, et al. Characteristics of atmospheric pressure argon microplasma jet in open environment[J]. High Voltage Engineering, 2024, 50(12): 5638-5647.
- [24] 周雄峰, 陈彬, 刘坤. 氩气等离子体射流特性: 电压、气流、外磁场的综合影响[J]. 物理学报, 2024, 73(22): 225201.
- ZHOU Xiong feng, CHEN Bin, LIU Kun. Characteristics of argon discharge plasma jet: comprehensive effects of discharge voltage, gas flow rate, and external magnetic field[J]. Acta Physica Sinica, 2024, 73(22): 225201.
- [25] HUANG M M, ZHUANG H, ZHAO J Y, et al. Differences in cellular damage induced by dielectric barrier discharge plasma between *Salmonella typhimurium* and *Staphylococcus aureus*[J]. Bioelectrochemistry, 2020, 132: 107445.
- [26] GAUNT L F, BEGGS C B, GEORGHIOU G E. Bactericidal action of the reactive species produced by gas-discharge nonthermal plasma at atmospheric pressure: a review[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2006, 34(4): 1257-1269.
- [27] XU Z M, CHENG C, SHEN J, et al. In vitro antimicrobial effects and mechanisms of direct current air-liquid discharge plasma on planktonic *Staphylococcus aureus* and *Escherichia coli* in liquids[J]. Bioelectrochemistry, 2018, 121: 125-134.
- [28] HAN L, PATIL S, BOEHM D, et al. Mechanisms of inactivation by high-voltage atmospheric cold plasma differ for *Escherichia coli* and *Staphylococcus aureus*[J]. Applied and Environmental Microbiology, 2016, 82(2): 450-458.
- [29] XU Z M, TANG Y D, HU S H, et al. Inactivation of *Staphylococcus aureus* in water by dielectric barrier discharge plasma jet: The role of inorganic ions, organic matter, and turbidity[J]. Journal of Water Process Engineering, 2023, 56: 104449.
- [30] 雷玉洁, 周良付, 李宇坤, 等. 大肠杆菌射流加热杀菌效果及动力学模型拟合[J]. 中国食品学报, 2018, 18(4): 132-138.
- LEI Yujie, ZHOU Liangfu, LI Yukun, et al. Inactivation effect and inactivation kinetics of *Escherichia coli* by radio frequency heating[J]. Journal of Chinese Institute of Food Science and Technology, 2018, 18(4): 132-138.
- [31] TIAN Y L, LI H Y, WANG M, et al. Insights into the stability of fluorinated super-hydrophobic coating in different corrosive solutions[J]. Progress In Organic Coatings, 2021, 151: 106043.
- [32] YANG K, SHI J R, WANG L, et al. Bacterial anti-adhesion surface design: Surface patterning, roughness and wettability: a review[J]. Journal of Materials Science & Technology, 2022, 99: 82-100.
- [33] ARIMA Y, IWATA H. Effect of wettability and surface functional groups on protein adsorption and cell adhesion using well-defined mixed self-assembled monolayers[J]. Biomaterials, 2007, 28(20): 3074-3082.
- [34] HADINOTO K, YANG H X, ZHANG T Q, et al. The antimicrobial effects of mist spraying and immersion on beef samples with plasma-activated water[J]. Meat Science, 2023, 200: 109165.
- [35] HAN J Y, SONG W J, EOM S, et al. Antimicrobial efficacy of cold plasma treatment against food-borne pathogens on various foods[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2020, 53(20): 204003.



XU Guimin
Post-doctorate
Associate professor



SHI Xingmin
Ph.D., Professor



ZHANG Guanjin
Ph.D., Professor
Corresponding author

许桂敏

1984—, 男, 博士(后), 副教授, 硕导
主要从事放电等离子体技术及应用、电气节能与智能控制、光储直柔技术等方面的教学和科研工作
E-mail: gmxu@chd.edu.cn

石兴民

1974—, 男, 博士, 教授, 博导
主要从事等离子体医学应用、肿瘤毒理及食品安全等方面的教学和科研工作
E-mail: shixingmin142@163.com

张冠军(通信作者)

1970—, 男, 博士, 教授, 博导
主要从事高压绝缘放电与劣化特性、电力设备状态检测与诊断、放电等离子体技术及应用等方面的教学和科研工作
E-mail: gjzhang@xjtu.edu.cn