

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2015-533828

(P2015-533828A)

(43) 公表日 平成27年11月26日 (2015. 11. 26)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
AO 1 N 59/00 (2006. 01)	AO 1 N 59/00 A	4 H O 1 1
AO 1 N 37/16 (2006. 01)	AO 1 N 37/16	
AO 1 N 25/02 (2006. 01)	AO 1 N 25/02	
AO 1 P 3/00 (2006. 01)	AO 1 P 3/00	
AO 1 P 1/00 (2006. 01)	AO 1 P 1/00	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 16 頁)		

(21) 出願番号 特願2015-535797 (P2015-535797)  
 (86) (22) 出願日 平成25年10月4日 (2013. 10. 4)  
 (85) 翻訳文提出日 平成27年6月3日 (2015. 6. 3)  
 (86) 国際出願番号 PCT/US2013/063360  
 (87) 国際公開番号 W02014/055812  
 (87) 国際公開日 平成26年4月10日 (2014. 4. 10)  
 (31) 優先権主張番号 13/842, 574  
 (32) 優先日 平成25年3月15日 (2013. 3. 15)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)  
 (31) 優先権主張番号 61/710, 263  
 (32) 優先日 平成24年10月5日 (2012. 10. 5)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 515092194  
 イービー・テクノロジーズ・エルエルシー  
 アメリカ合衆国 44311 オハイオ  
 アクロン スイート 2455 サウス・  
 メイン・ストリート 520  
 (74) 代理人 100082647  
 弁理士 永井 義久  
 (72) 発明者 グレイ, ロバート  
 アメリカ合衆国 44236 オハイオ  
 ハドソン ジェファーソン・ドライブ 8  
 (72) 発明者 ペルフリー, キース・エー  
 アメリカ合衆国 44281 オハイオ  
 ワズワース ペガン・ドライブ 828

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 芽胞、微生物、細菌および真菌を殺滅または不活化するための溶液および同溶液の製造方法

## (57) 【要約】

本明細書ではプラズマ活性化水とペルオキシ酢酸の溶液の例示的实施形態を開示する。加えて、溶液を製造するための方法の例示的实施形態も、本明細書に開示する。いくつかの方法は、水をプラズマガスに曝露して水を活性化すること、活性化された水に酢酸を加えること、および酢酸と活性化された水とを混合して溶液を形成させることを含む。さらなる例示的方法は、酢酸を水に加えて溶液を形成させること、酢酸と水の溶液を混和すること、および溶液をプラズマガスに曝露して溶液を活性化することを含む。もう一つの例示的实施形態は、水をプラズマガスに曝露して水を活性化すること、活性化された水にアセチル基供与体を加えること、およびアセチル基供与体と活性化された水とを混合して溶液を形成させることを含む。

200 →

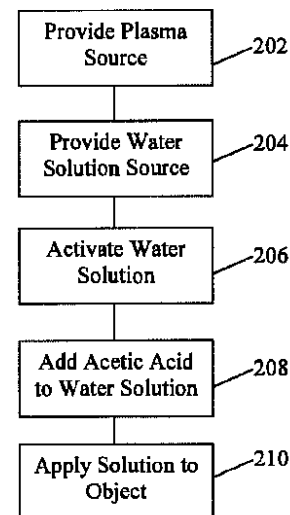


FIGURE 2

**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

活性化された流体とペルオキシ酢酸とを含み、前記流体がプラズマガスによって活性化される溶液。

**【請求項 2】**

流体が間接プラズマによって活性化される、請求項 1 に記載の溶液。

**【請求項 3】**

溶液がさらに過酸化水素および酢酸を含む、請求項 1 に記載の溶液。

**【請求項 4】**

溶液が約 200 ppm 未満のペルオキシ酢酸を含む、請求項 1 に記載の溶液。

10

**【請求項 5】**

溶液が約 160 ppm 未満のペルオキシ酢酸を含む、請求項 1 に記載の溶液。

**【請求項 6】**

さらに約 3.5 未満の pH を有する、請求項 1 に記載の溶液。

**【請求項 7】**

さらに約 2.5 未満の pH を有する、請求項 1 に記載の溶液。

**【請求項 8】**

さらに界面活性剤を含む、請求項 1 に記載の溶液。

**【請求項 9】**

水をプラズマガスに曝露することによって前記水を活性化すること、  
活性化された水に酢酸を加えること、および  
前記酢酸と活性化された水とを混合して溶液を形成させること  
を含む、溶液の製造方法。

20

**【請求項 10】**

前記水が間接プラズマによって活性化される、請求項 9 に記載の方法。

**【請求項 11】**

前記酢酸が希酢酸溶液である、請求項 9 に記載の方法。

**【請求項 12】**

前記酢酸が 35% 未満の酢酸溶液を含む、請求項 9 に記載の方法。

**【請求項 13】**

前記酢酸が前記溶液の約 8% 未満を占める、請求項 9 に記載の方法。

30

**【請求項 14】**

前記プラズマガスを窒素から生成させる、請求項 9 に記載の方法。

**【請求項 15】**

プラズマが発生させる 1 つ以上の種に水を曝露して前記水を活性化すること、  
活性化された水とペルオキシ酢酸の溶液を芽胞、微生物、ウイルス、細菌または真菌に  
適用することを含む、  
芽胞、ウイルス、微生物、細菌または真菌を不活化または殺滅する方法。

**【請求項 16】**

前記溶液を、約 1 分未満にわたって、芽胞、微生物、細菌または真菌と接触したままに  
しておき、殺滅率が約 2log 殺滅より大きい、請求項 15 に記載の方法。

40

**【請求項 17】**

前記溶液を、約 30 秒未満にわたって、芽胞、微生物、細菌または真菌と接触したまま  
にしておき、殺滅率が約 2log 殺滅より大きい、請求項 15 に記載の方法。

**【請求項 18】**

前記活性化された水に酢酸を加えることをさらに含む、請求項 15 に記載の方法。

**【請求項 19】**

酢酸を水に加えて混合物を形成させ、前記混合物をプラズマガスに曝露して前記混合物  
を活性化することによって、前記プラズマ活性化水とペルオキシ酢酸の溶液を生成させる  
ことをさらに含む、請求項 15 に記載の方法。

50

## 【請求項 20】

流体をプラズマまたは間接プラズマに曝露して水を活性化すること、  
 活性化された水にアセチル基供与体を加えること、および  
 前記アセチル基供与体と活性化された水とを混合して溶液を形成させること  
 を含む、溶液の製造方法。

## 【請求項 21】

前記アセチル基供与体が酢酸である、請求項 20 に記載の溶液の製造方法。

## 【請求項 22】

前記アセチル基供与体がアセチルサリチル酸である、請求項 20 に記載の溶液の製造方法。

10

## 【発明の詳細な説明】

## 【関連出願】

## 【0001】

本願は、米国非仮特許出願第 13 / 842 , 574 号（出願日 2013 年 3 月 15 日、  
 発明の名称「SOLUTIONS AND METHODS OF MAKING SOLUTIONS TO KILL OR DEACTIVATE SPORES, MICROORGANISMS, BACTERIA AND FUNGUS」）に基づく優先権  
 およびその利益、ならびに米国仮特許出願第 61 / 710 , 263 号（出願日 2012 年  
 10 月 5 日、発明の名称「SOLUTIONS AND METHODS OF MAKING SOLUTIONS TO KILL OR DEACTIVATE SPORES, MICROORGANISMS, BACTERIA AND FUNGUS」）に  
 基づく優先権およびその利益を主張する。これらの出願はどちらも参照によりそのまま本  
 明細書に組み込まれる。

20

## 【技術分野】

## 【0002】

本発明は概して、芽胞(spore)、微生物、細菌および真菌を殺滅または不活化するため  
 に使用することができる溶液に関する。より具体的には、本発明は、プラズマ活性化水と  
 ペルオキシ酢酸とを含む溶液に関する。

## 【背景技術】

## 【0003】

30

ペルオキシ酢酸は、過酢酸または PAA と呼ばれ、式  $\text{CH}_3\text{CO}_3\text{H}$  または  $\text{C}_2\text{H}_4\text{O}_3$   
 を持つ有機化合物である。ペルオキシ酢酸は、硫酸などの触媒の存在下に、溶液中で、酢  
 酸 ( $\text{CH}_3\text{COOH}$ ) と過酸化水素 ( $\text{H}_2\text{O}_2$ ) との反応生成物によって形成される。この  
 化学反応を以下に示す。



40

## 【0004】

ペルオキシ酢酸は強い酸化剤であり、スペクトルの広い抗菌活性も有している。ペルオ  
 キシ酢酸混合物は、生鮮果物および生鮮野菜などの食品と接触する表面上の沈着物、にお  
 いおよびバイオフィルムを抑制することができるので、食品産業において殺菌剤として使  
 用することができる。ペルオキシ酢酸を使用することの利点は、分解過程において形成さ  
 れる生成物である酢酸、過酸化水素、水および酸素が有害ではないことである。

## 【0005】

一般に、ペルオキシ酢酸は、硫酸触媒を含有する水性反応媒質に酢酸および過酸化水素  
 を供給することにより、パッチプロセスで生産される。高い生成物収率が達成されるよう

50

に、最長１０日にわたって、反応を継続させる。加えて、ペルオキシ酢酸は一般に高濃度でエンドユーザーに輸送され、使用前に希釈される。濃ペルオキシ酢酸は危険区分(class) 5.2の酸化剤として輸送され、軟質金属および皮膚に対する腐食性が高く、肺への損傷を引き起こしうる。希ペルオキシ酢酸の輸送には法外な費用がかかり、希薄なペルオキシ酢酸は安定性に欠け、分解しやすい。

【発明の概要】

【０００６】

本明細書ではプラズマ活性化水とペルオキシ酢酸の溶液の例示的实施形態を開示する。

【０００７】

加えて、溶液を製造するための方法の例示的实施形態も、本明細書に開示する。いくつかの方法は、水をプラズマガスに曝露して前記水を活性化すること、活性化された水に酢酸を加えること、および前記酢酸と活性化された水とを混合して溶液を形成させることを含む。さらなる例示的方法は、酢酸を水に加えて溶液を形成させること、酢酸と水の溶液を混和すること、および前記溶液をプラズマガスに曝露して前記溶液を活性化することを含む。もう一つの例示的实施形態は、水をプラズマガスに曝露して前記水を活性化すること、活性化された水にアセチル基供与体を加えること、および前記アセチル基供与体と活性化された水とを混合して溶液を形成させることを含む。

【０００８】

加えて、ペルオキシ酢酸溶液を製造する例示的方法も、本明細書に開示する。この方法は、水をプラズマガスに曝露して前記水を活性化すること、活性化された水に酢酸を加えること、および前記酢酸と活性化された水とを混和することを含む。

【０００９】

芽胞、ウイルス、微生物、細菌または真菌を不活化または殺滅する方法の例示的实施形態も、本明細書に開示する。いくつかの実施形態は、プラズマ活性化水とペルオキシ酢酸の溶液を芽胞、微生物、ウイルス、細菌または真菌に適用することを含む。

【００１０】

加えて、芽胞、ウイルス、微生物、細菌または真菌を殺滅または不活化するための溶液を生成させるための装置の例示的实施形態も本明細書に開示する。この装置は、筐体内に置かれた、プラズマを発生させるためのプラズマ発生器、水を受け取るための注入口、前記プラズマ発生器から発生したプラズマで前記水を活性化するための活性化チャンバー、酢酸を受け取るための注入口、前記水と前記酢酸とを混和して溶液を生成させるための混合チャンバー、および前記溶液を排出するための排出口を含む。

【図面の簡単な説明】

【００１１】

本発明のこれらの特徴および利点ならびに他の特徴および利点は、以下の説明と添付の図面とを考慮すれば、より良く理解されるであろう。

【００１２】

【図１】芽胞、微生物、細菌および真菌を殺滅または不活化するための溶液を生成させるためのシステムの例示的实施形態を説明する図である。

【００１３】

【図２】芽胞、微生物、細菌および真菌を殺滅または不活化するための溶液を生成させるための例示的方法を説明する図である。

【図３】芽胞、微生物、細菌および真菌を殺滅または不活化するための溶液を生成させるための例示的方法を説明する図である。

【図４】芽胞、微生物、細菌および真菌を殺滅または不活化するための溶液を生成させるための例示的方法を説明する図である。

【発明を実施するための形態】

【００１４】

本発明の実施形態は、水と酢酸をプラズマで処理することによって、ペルオキシ酢酸を生成させる。前記溶液をプラズマで処理すると、ペルオキシ酢酸および他のラジカルを含

10

20

30

40

50

有する溶液を生成する。いくつかの例では、水をプラズマで処理して水を活性化し、活性化された水に酢酸を加えてペルオキシ酢酸を含有する溶液を生成させる。別の例では、酢酸を水に加え、その溶液をプラズマで処理して水を活性化すると共に、溶液中にペルオキシ酢酸を生成させる。その結果得られる活性化水とペルオキシ酢酸とを含有する溶液は、芽胞、微生物、細菌、ウイルスおよび真菌を現在の方法より効率よく不活化または殺滅するのに有効であることがわかった。

#### 【 0 0 1 5 】

プラズマ、すなわち電離ガスは、原子または分子に束縛されていない1つ以上の遊離電子を有する。非熱プラズマは高濃度の高エネルギーなそして化学的に活性な種を与える。それらは熱力学的平衡からは程遠い状態で作動し、高濃度の活性種を伴うが、実質上室温と同じ温度にとどまることができる。

10

#### 【 0 0 1 6 】

遊離電子からのエネルギーを別のプラズマ構成成分に与えるとさらなる電離、励起および/または解離を起こしうる。プラズマと接触させた流体は「活性化」された状態になるが、本明細書ではこれをプラズマ活性化流体といい、いくつかの実施形態では、プラズマ活性化流体がプラズマ活性化水である。

#### 【 0 0 1 7 】

いくつかの実施形態において、プラズマはスーパーオキシドアニオン  $[O_2 \cdot^-]$  を含有する場合があります、これは酸性媒質中で  $H^+$  と反応してヒドロペルオキシラジカル  $HO_2 \cdot$  を形成する： $[O_2 \cdot^-] + [H^+] \rightarrow [HO_2 \cdot]$ 。他のラジカル種としては、水相での、または空気もしくはガスの存在下での、 $OH \cdot$  および  $NO \cdot$  を挙げることができる。水をプラズマで処理すると、 $H_2O_2$ 、硝酸塩および亜硝酸塩の1つ以上が濃縮されたプラズマ活性化水がもたらされる。

20

#### 【 0 0 1 8 】

プラズマ活性化水は  $H_2O_2$  を含有するので、酢酸 ( $CH_3COOH$ ) の添加は、ペルオキシ酢酸を含む溶液をもたらす：



30

いくつかの実施形態では、水をプラズマで活性化した後に、酢酸を加える。いくつかの実施形態では、酢酸を加えてから、その溶液をプラズマで活性化する。いくつかの実施形態では、プラズマ活性化水と酢酸とを混合することによるペルオキシ酢酸の形成が、触媒の使用を必要としない。

#### 【 0 0 1 9 】

プラズマで水を活性化してプラズマ活性化水を得ることは、同時係属中の米国仮特許出願第 61 / 621078 号 (発明の名称「Sanitization Station Using Plasma Activated Fluid」、出願日 2012 年 4 月 6 日)、ならびに他のいくつかの特許および特許出願、例えば PCT 出願 WO 02 / 059046 (発明の名称「Method of Activation of Chemically Pure and Potable Water」、出願日 2002 年 1 月 25 日)、WO 2007 / 048806 (発明の名称「Method for the Preparation of Biocidal Activated Water Solutions」、出願日 2006 年 10 月 25 日)、WO 2012 / 018891 (発明の名称「Materials for Disinfection Produced by Non-Thermal Plasma」、出願日 2011 年 8 月 3 日)、および米国特許第 7,291,314 号 (発明の名称「Activated Water

40

50

Apparatus and Methods」、出願日2000年12月20日)において示され、説明されている。これらの特許および特許出願のそれぞれは、プラズマの発生および水の活性化に関するその開示について、参照によりそのまま本明細書に組み込まれる。

【0020】

加えて、ラジカルの濃度を増加または減少させるために、プラズマによる活性化に先立って、流体、例えば水の性質を改変してもよい。例えば、水のpHは、酸性または塩基性になるように調節することができる。ある実施形態では、水のpHが約2~3.5であり、別の実施形態では、約2~3.5であり、さらに別の実施形態では、約2.7である。pHは例えば活性化に先立って水に酸を加えることなどによって調節することができる。pHレベルは活性化過程で下がりうる。ある実施形態では、pHレベルを調節することで、ラジカルの濃度が調節され、よって芽胞、微生物、細菌などを不活化または殺滅するプラズマ活性化水の効力の調節が可能になる。

10

【0021】

ある実施形態では、活性化水のpHレベルが約2.0~3.5であり、別の実施形態では、pHが約2.0~3.5であり、さらに別の実施形態では、約2.7である。さらにもう一つの実施形態では、pHが約3未満であり、別の実施形態では、約2.0未満である。ある実施形態では、pHが約2.0である。

【0022】

加えて、電離させるガスを変えることにより、活性化過程そのものの間に、活性化水の性質を調節することもできる。例えば電離させるガスは、通常の空気、窒素、N<sub>2</sub>、酸素、O<sub>2</sub>、Heまたはそれらの組み合わせにすることができる。

20

【0023】

さらに、結果として得られる溶液の効力または安定化を増大させるために、流体を活性化する前または流体を活性化した後に、例えばアルコールなどの添加物を加えてもよい。

【0024】

図1に、芽胞、細菌、微生物などを不活化または殺滅するための溶液を生成させるためのシステム100の例示的实施形態を説明する。結果として得られる溶液はペルオキシ酢酸を含む。例示的システム100は流体源101からの液体を受け取る。流体源101は、水の供給源であるか、追加の添加物を含む水の供給源であることができる。ある実施形態では、流体が水道水であるが、水は蒸留水、水道水、ろ過水、酸性の性質を持つ水、塩基性の性質を持つ水、または例えばアルコールなどの添加物と混合された水であってもよい。加えて、発生を最適化し、または性能を高め、および/または安定性を増加させるために、他の添加物を使用してもよい。これらの添加物としては、例えば金属分解を低減するためのキレート剤、溶液の浸透を高めて有機物処理負荷の影響を和らげるための界面活性剤、および/またはpHを調節するための緩衝剤を挙げることができる。加えて、いくつかの実施形態では、例えば無機硫酸塩、無機リン酸塩などの腐食防止剤を加えてもよい。いくつかの実施形態では、ゼオライト緩衝系を使用してもよい。いくつかの実施形態では、これらの添加物の1つ以上を水の活性化に先立って加える。いくつかの実施形態では、これらの添加物の1つ以上を水の活性化後に加える。

30

40

【0025】

ポンプ102はノズル104を通して流体を送り出す。ノズル104からの排出流体114はプラズマガス112を通過する。排出流体114としては排出流体流れ、排出流体ミスト、排出流体噴霧等が可能である。

【0026】

システム100は、誘電体バリア108A、110Aをそれぞれ有する一対の電極108、110を含んでいる。電極108は高圧電源106に接続されている。この実施形態では、電極を活性化すると、プラズマガス112が2つの電極間に形成される。プラズマガス112は、周囲の空気から発生させるか、または例えば窒素などのガスもしくはガス混合物から発生させることができる。流体114は、流れ、ミストまたは噴霧蒸気の形態

50

でプラズマガス 1 1 2 を通過し、活性化される。場合により、プラズマガス 1 1 2 は、例えば表面接触、マイクロバブルとしての流体内でのプラズマの形成など、他の手段によって流体と接触してもよい。この例示的实施形態では、流体 1 1 4 が活性化され、活性化流体 1 1 6 として容器 1 1 5 (活性化チャンバーともいう)の底に集まる。活性化流体 1 1 6 は、ポンプ 1 1 8 により、ライン 1 1 7 および 1 2 0 を通して、第 2 容器 1 2 2 (混合チャンバーともいう)に送り込まれる。ある実施形態では、ポンプ 1 1 8 が定量ポンプであり、これによって比較的正確な量の活性化流体を容器 1 2 2 に送り込むことができる。酢酸は容器 1 2 4 から、ポンプ 1 2 8 により、ライン 1 2 6、1 2 6 A を通して送り出される。容器 1 2 4 中の酢酸 1 2 3 は任意の濃度を有してよく、ある実施形態では約 3 5 % 酢酸である。ある実施形態では、ポンプ 1 2 8 が定量ポンプであり、これによって比較的正確な量の酢酸を容器 1 2 2 に送り込むことができる。

10

#### 【0027】

活性化流体 1 1 7 と酢酸 1 2 3 の溶液 1 3 0 は、モーター 1 3 2 によって運転される攪拌機 1 3 4 により、容器 1 2 2 内で混合される。活性化水中の  $H_2O_2$  は酢酸と反応して、溶液 1 3 0 内でペルオキシ酢酸を形成させる。ある実施形態では、溶液 1 3 0 が約 2 5 ~ 2 0 0 p p m のペルオキシ酢酸を含有する。もう一つの実施形態では、溶液 1 3 0 が約 8 0 ~ 1 8 0 p p m を含有する。さらにもう一つの実施形態では、溶液 1 3 0 が約 8 0 ~ 1 2 0 p p m のペルオキシ酢酸を含有する。いくつかの実施形態では、溶液 1 3 0 が約 0 . 0 0 2 5 % ~ 0 . 0 2 % のペルオキシ酢酸を含有する。いくつかの実施形態は約 0 . 0 2 % 未満のペルオキシ酢酸を含有し、いくつかの実施形態は約 0 . 0 1 % のペルオキシ酢酸を含有する。いくつかの実施形態では、溶液 1 3 0 が、1 . 0 % より低い濃度のペルオキシ酢酸溶液を有する。

20

#### 【0028】

加えて、いくつかの実施形態では、プラズマ水活性化によって発生した溶液 1 3 0 に窒素種が追加されていると、細菌、真菌および芽胞の殺滅または不活化を促進するのを助けると考えられる。

#### 【0029】

溶液 1 3 0 は、ポンプ 1 3 8 により、容器 1 2 2 から、ライン 1 3 6、ヘッダー 1 4 0 および噴射ノズル 1 4 2 を通して送り出される。ノズル 1 4 2 は、例えば噴射ノズル、圧電素子、噴霧ノズル、ミスト化ノズル、ジェットノズルなどであることができる。ノズル 1 4 2 は、飛沫、ミスト、霧、噴霧ミスト、蒸気などを供することができる。いくつかの実施形態では、溶液 1 3 0 が、芽胞、微生物、細菌、真菌などを殺滅または不活化するために、対象に噴射される。

30

#### 【0030】

殺菌性 / 殺芽胞性の溶液 1 3 0 を、水および酢酸などの安全な材料から現場で生成できる例示的システム 1 0 0 では、濃ペルオキシ酢酸の輸送および取り扱いに伴う危険が排除される。加えて、溶液 1 3 0 は、分解過程において、有害ではない酢酸、過酸化水素、水および酸素へと分解する。いくつかの実施形態では、溶液 1 3 0 は製造から 2 4 時間以内に、対象に適用される。いくつかの実施形態では、溶液 1 3 0 は製造から 1 時間以内に、対象に適用される。さらにいくつかの実施形態では、溶液 1 3 0 は製造から 5 分以内に、対象に適用される。

40

#### 【0031】

ある実施形態において、容器 1 1 5 は空気で満たされるか、または空気注入口供給源空気注入源を有する。ただし、場合によっては、容器 1 1 5 を例えば  $N_2$ 、 $O_2$  または  $He$  などの他のガスで満たしてもよく、あるいはこれらのガスの 1 つ以上の組み合わせを使用してもよい。ガスは大気圧下で供給するか、または大気圧より高いまたは低い圧力下で供給することができる。容器 1 1 5 へのガス注入通路 (図示されていない) を設けることができる。場合によっては、ガスで容器 1 1 5 を満たすのではなく、ガスをプラズマ発生の場所に導いてもよい。使用するガスを変えて活性化水を調整し、細菌、芽胞、微生物または真菌いずれをも殺滅する活性化水の効果をより高める、あるいは使用するガスを変え

50

て活性化水を調整し、細菌、芽胞、微生物または真菌の異なる種類ごとに殺滅する活性化水の効果を変えることができる。

【0032】

溶液130の処理対象は、例えば部屋、病院ベッド、器具、手、皮膚、創傷、農産物、肉製品などである。

【0033】

システム100の例示的实施形態では、容器115の活性化チャンバーが、容器122の混合チャンバーの上流に図示されている。いくつかの例示的实施形態では、活性化チャンバーが混合チャンバーの下流に置かれる。

【0034】

この例示的实施形態では酢酸を使用し、酢酸について説明したが、例えばアセチルサリチル酸などといった他のアセチル基供与体や、過ホウ酸塩などのペルオキシド発生剤も、プラズマによってさらに活性化することができる。加えて、この例示的实施形態ではアセチル基供与体としての液体の使用を説明したが、固形のものなど、他の形態のアセチル基供与体も使用することができる。

【0035】

図2に、芽胞、真菌および細菌を殺滅するための溶液を生成させるための例示的手順200を説明する。この例示的手順はブロック202においてプラズマ供給源を用意することによって始まる。ブロック204において水の供給源を用意し、ブロック206では、水を前記プラズマ供給源が生成させるプラズマガスと接触させることによって、水を活性化する。ブロック208では活性化水溶液に酢酸を加え、その溶液を混和する。次に、その溶液を、ブロック210において、対象に適用する。

【0036】

活性化水と酢酸の混合物は芽胞を殺滅または不活化することがわかった。活性化水と酢酸の混合物は、クロストリジウム・ディフィシレ (*Clostridium difficile*) (「C diff」) を、漂白剤でC diffを殺滅するのに要する時間(これは少なくとも約5分を要する)より短い時間で殺滅または不活化することもわかった。ある実施形態では、C diff芽胞が約30秒で不活化された。

【0037】

図3に、芽胞、真菌および細菌を殺滅するための溶液を生成させるためのもう一つの例示的手順300を説明する。この例示的手順は、ブロック302においてプラズマ供給源を用意することによって始まる。ブロック304では水の供給源を用意する。ブロック306において前記水供給源からの水に酢酸を加え、その溶液を混和する。ブロック308では、その溶液をプラズマ供給源が発生させるプラズマガスと接触させることによって、溶液を活性化する。次に、その溶液を、ブロック310において、対象に適用する。

【0038】

図4に、芽胞、真菌および細菌を殺滅するための溶液を生成させるためのもう一つの例示的手順400を説明する。この例示的手順はブロック402においてプラズマ供給源を用意することによって始まる。ブロック404では水の供給源を用意する。ブロック406では、溶液をプラズマ供給源が発生させるプラズマガスと接触させることによって、水を活性化する。ブロック408ではアセチル基供与体を活性化水に加える。これにより、ペルオキシ酢酸を含有する溶液が形成される。次に、その溶液を、ブロック410において、対象に適用する。

【0039】

実験の結果、C diff芽胞は約30秒以内に不活化または殺滅できることが実証される。ある実験では、1.5 mlの精製水の溶液を、周波数3500 Hz、パルス幅10  $\mu$ sおよび100%デューティーサイクルで作動する誘電バリア放電プラズマ発生器に曝露した。電極ギャップは、90秒間、1.5 mm  $\pm$  0.5 mmとした。水のpHは6から2に低下した。0.2 mlの35%希酢酸溶液を活性化から20秒以内の活性化水に加えた。その結果得られた溶液は、約85 ~ 160 ppmのペルオキシ酢酸を含有していた。この溶液

10

20

30

40

50



を5分以内に試験培地（芽胞、細菌など）に対して使用した。この溶液は約30秒以内にC d i f f芽胞を不活化することがわかった。

#### 【0040】

追加の実験には同じプラズマ供給源を含め、やはり1.5mlの水を使用した。水の活性化に先立って0.1mlの希酢酸を水に加えたところ、その結果得られた溶液は、30秒でC d i f fの2.34log殺滅(log kill)を、また5分で2.81log殺滅を示した。水の活性化後に0.1mlの希酢酸を水に加えたところ、その結果得られた溶液は、30秒でC d i f fの1.08log殺滅を、また5分で1.33log殺滅を示した。水の活性化に先立って0.2mlの希酢酸を水に加えたところ、その結果得られた溶液は、30秒でC d i f fの2.41log殺滅を、また5分で2.81log殺滅を示した。水の活性化後に0.2mlの希酢酸を水に加えたところ、その結果得られた溶液は、30秒でC d i f fの2.81を上回るlog殺滅を、また5分で2.81を上回るlog殺滅を示した。

10

#### 【0041】

ペルオキシ酢酸を含む溶液を得るために、活性化水にアセチル基供与体を加えることによって、例えば活性化水に酢酸を加えることによって形成させた溶液は、活性化水だけまたはペルオキシ酢酸だけの場合より優れた殺滅率または不活化率を有する。加えて、いくつかの実施形態において、非熱プラズマを使ってペルオキシ酢酸溶液を生成させることの利点は、これらの溶液を加熱する必要がないことである。溶液を加熱すると、多くの場合、化合物の分解速度または分解率が増加する。

20

#### 【0042】

プラズマ活性化水と酢酸とを含有する流体で大腸菌（「E. coli」）細菌を処理したところ、プラズマ活性化水だけまたは水と酢酸の溶液だけのどちらの場合よりも優れた殺滅力を有する流体が得られた。

#### 【0043】

以下の実験は溶液中の大腸菌で行った。プラズマ機構は誘電体バリア放電プラズマシステムであった。この実験では交流電圧パルス電源を使って、プラズマを生成させるためのパルス電圧を発生させた。パルス周波数は3.5kHzとし、パルス持続時間は10μsとした。電圧パルスの振幅は、5V/ns立ち上がり時間で20kVピークツーピークであった。プラズマ発生システムと被処理表面との間のギャップ距離は約1~2mmとした。この実験ではプラズマ作動ガスとして1気圧（周囲圧）の圧力下で空気を使用した。

30

#### 【0044】

E. coli不活化試験には、標準試験法であるASTME2315を利用した。生理食塩水（8.5g/L NaCl）に10<sup>8</sup>CFU/mlのE. coli懸濁液を調製した。10μlのE. coli細菌溶液を取り出し、990μlのプラズマ活性化水に加えた。30秒間ボルテックスした後、E. coli溶液とプラズマ活性化水との混合物0.1mlを9.9mlの中和剤に加えた。次に、E. coli細菌を含有する中和剤溶液を希釈してトリプティックソイ寒天にプレーティングした。24時間のインキュベーションを37℃で行った後、コロニー形成単位（CFU）の評価を行った。

#### 【0045】

2.0mlの水道水をプラズマで活性化した。990μlのプラズマ活性化水を10μlのE. coli細菌溶液と混合した。次に、上述の試験手法を使って、プラズマ活性化水を使った処理後のE. coliのCFUを得た。その試験結果により、プラズマ活性化水（プラズマに3分間曝露した水）だけでE. coliを30秒間処理すると、0.77という、細菌の1ミリリットルあたりのコロニー形成単位「CFU/ml」のlog減少(log reduction)が得られることが、実証された。プラズマ活性化水（プラズマに5分間曝露した水）だけでE. coliを30秒間処理すると、細菌の0.84log減少(CFU/ml)が得られた。加えて、2.0mlの水道水と0.2mlの35%酢酸とで構成される流体でE. coli細菌を処理した。水道水と酢酸でE. coliを30秒間処理した場合は、E. coli細菌の0.31log減少(CFU/ml)

40

50

しか得られなかった。

【表 1】

溶液	直接プラズマ活性化時間	処理時間	log 減少 (CFU / ml)
2.0 ml の水	3 分	30 秒	0.77
2.0 ml の水	5 分	30 秒	0.84
2.0 ml の水道水と 0.2 ml の 35% 酢酸	—	30 秒	0.31

10

【0046】

2.0 ml のプラズマ活性化水と 0.267 ml の 35% 酢酸とで構成される流体で処理した E. coli 細菌は、プラズマ活性化水単体、または酢酸単体で構成される流体よりも優れた殺滅率が得られた。プラズマ活性化水（プラズマに 3 分間曝露した水）と酢酸とから構成される流体で E. coli を 30 秒間処理すると、細菌の 4.44\* log 減少 (CFU / ml) が得られた。加えて、プラズマ活性化水（プラズマに 5 分間曝露した水）と酢酸とから構成される流体で E. coli を 30 秒間処理すると、4.44\* を上回る細菌の log 減少 (CFU / ml) が得られた。（4.44 log 減少は使用した試験機器の上限であり、したがって E. coli 細菌の実際の log 減少は、おそらく 4.44 log 減少をかなり上回っていただろう）。したがってこれらの実験結果は、プラズマ活性化水と酢酸の効力がプラズマ活性化水だけまたは酢酸だけの効力より優れていることを実証している。

20

【表 2】

溶液	直接プラズマ活性化時間	処理時間	log 減少 (CFU / ml)
2.0 ml の水道水と 0.267 ml の 35% 酢酸	3 分	30 秒	4.44*
2.0 ml の水道水と 0.267 ml の 35% 酢酸	5 分	30 秒	4.44*

30

【0047】

活性化流体は、直接プラズマだけでなく、「アフターグロー」とも呼ばれる間接プラズマによって活性化された流体であってもよい。直接プラズマは上述のように発生させる。間接プラズマは、例えば銅メッシュなどの接地フィルターの存在下でプラズマを発生させることによって得られる。ある実施形態では、銅メッシュを、DBD プラズマ発生器の誘電体バリアの直近に置く。接地された銅メッシュは荷電イオンおよび電子の通過は妨げるが、中性種が通過して流体を活性化することを可能とする。このように、活性化流体または活性化水はプラズマによって活性化してもよいし、間接プラズマによって活性化してもよい。図 1～4 を参照して説明する実施形態はいずれも、直接プラズマであっても間接プラズマであってもよい。

40

【0048】

E. coli 細菌を 2.0 ml の間接プラズマ活性化水で処理した。その試験結果により、間接プラズマ活性化水（間接プラズマに 3 分間曝露した水）だけで E. coli を 30 秒間処理すると、1.01～1.43 という、細菌の 1 ミリリットルあたりのコロニー形成単位（「CFU / ml」）の log 減少が得られることが、実証された。プラズマ活性化水（間接プラズマに 5 分間曝露した水）だけで E. coli を 30 秒間処理すると、

50

細菌の 1.43 log 減少 (CFU/ml) が得られた。

【表 3】

溶液	活性化時間	処理時間	log 減少 (CFU/ml)
2.0 ml の水道水	3 分	30 秒	1.01、1.43
2.0 ml の水道水	5 分	30 秒	1.43

10

【0049】

間接プラズマ活性化水（間接プラズマに 3 分間曝露した水）と酢酸とから構成される流体で E. coli を 30 秒間処理すると、細菌の 4.29 log 減少 (CFU/ml) が得られた。加えて、プラズマ活性化水（間接プラズマに 5 分間曝露した水）と酢酸とから構成される流体で E. coli を 30 秒間処理すると、4.44\* を上回る細菌の log 減少 (CFU/ml) が得られた。

【表 4】

溶液	活性化時間	処理時間	log 減少 (CFU/ml)
2.0 ml の水道水 と 0.267 ml の 35% 酢酸	3 分	30 秒	4.29
2.0 ml の水道水 と 0.267 ml の 35% 酢酸	5 分	30 秒	4.44*

20

【0050】

本発明をその実施形態を説明することによって例示し、またそれらの実施形態をかなり詳しく説明したが、本願のクレームの範囲をそのような詳細に制限し、またはいかなる形でも限定することは、本発明者らの意図するところではない。さらなる利点および変更態様は当業者には明白であるだろう。さらにまた、ある実施形態で説明した要素は、他の実施形態での仕様に容易に適合させることができる。したがって本発明は、その最も広い態様において、ここに示し説明した具体的詳細、代表的装置および/または実例には限定されない。したがって、本出願人の一般的発明概念の本旨または範囲から逸脱することなく、そのような詳細から逸脱することができる。

30

【図 1】

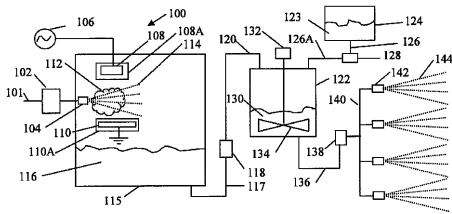
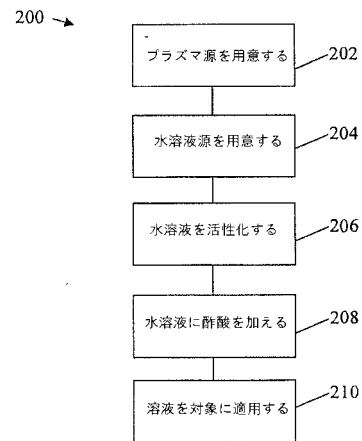
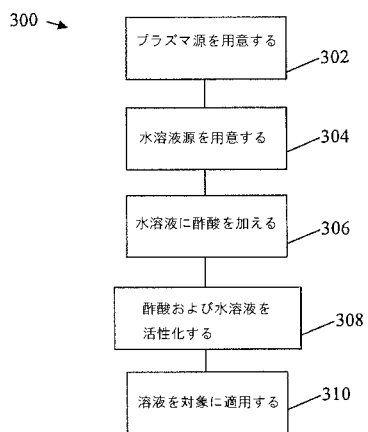


FIGURE 1

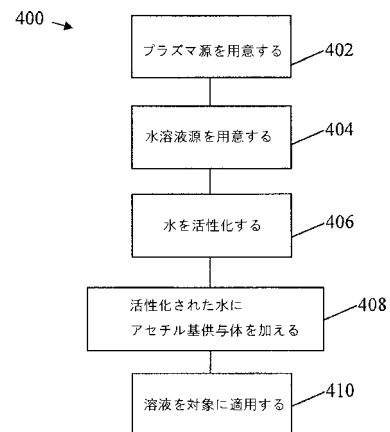
【図 2】



【図 3】



【図 4】



## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/US2013/063360

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. A01N59/00 A01N37/16 A01P1/00  
ADD.

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 01/10215 A1 (STERIS INC [US]) 15 February 2001 (2001-02-15)	1,4-6, 10, 13-15,17
Y	page 2, line 12 - line 15 page 2, line 31 - line 33 page 5, line 8 - line 24 claims 1-3 examples 6,7 figure 6 table 4	1-24
X	----- WO 2006/076334 A1 (CLEAN EARTH TECH LLC [US]; MARTIN CHARLES W [US]; STADER JOAN A [US];) 20 July 2006 (2006-07-20) paragraphs [0087], [0088] ----- -/-	1,9, 17-19

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☒ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

\*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

\*E\* earlier application or patent but published on or after the international filing date

\*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

\*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

\*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

\*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

\*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

\*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

\*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

4 December 2013

Date of mailing of the international search report

11/12/2013

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel: (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Habermann, Jörg

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/US2013/063360

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	<p>R. BURLICA ET AL: "Formation of H<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> in a Water-Spray Gliding Arc Nonthermal Plasma Reactor",  INDUSTRIAL &amp; ENGINEERING CHEMISTRY RESEARCH,  vol. 49, no. 14, 24 June 2010 (2010-06-24)  , pages 6342-6349, XP055091408,  ISSN: 0888-5885, DOI: 10.1021/ie100038g  page 6343, column 2, line 8 - line 11  page 6345, column 1, line 7 - line 22  equation (1)-(3)  figure 9  figure 1</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1-24

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No

PCT/US2013/063360

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 0110215	A1	15-02-2001	AR 032590 A1	19-11-2003
			AT 245351 T	15-08-2003
			AU 764557 B2	21-08-2003
			AU 6757900 A	05-03-2001
			BR 0013008 A	03-12-2002
			CA 2378601 A1	15-02-2001
			CN 1377229 A	30-10-2002
			CO 5231238 A1	27-12-2002
			DE 60004060 D1	28-08-2003
			DE 60004060 T2	22-04-2004
			EP 1199931 A1	02-05-2002
			ES 2203505 T3	16-04-2004
			JP 2003506120 A	18-02-2003
			MX PA02001162 A	21-05-2004
			NZ 517172 A	26-09-2003
			US 6387238 B1	14-05-2002
			WO 0110215 A1	15-02-2001
-----				
WO 2006076334	A1	20-07-2006	CA 2593822 A1	20-07-2006
			EP 1851271 A1	07-11-2007
			US 2006229225 A1	12-10-2006
			WO 2006076334 A1	20-07-2006
-----				

---

 フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US

(72)発明者 フリッカー, クリス

アメリカ合衆国 4 4 3 2 1 オハイオ コブリー プレントウッド・ブルヴァード 7 2 6

(72)発明者 ビンガム, ジェームス

アメリカ合衆国 4 4 3 1 3 オハイオ アクロン キャッスル・ブルヴァード 3 3

Fターム(参考) 4H011 AA02 AA03 AA04 BA01 BA06 BB06 BB18 BC06 DA13 DC05  
DF04