



3. プラズマ滅菌

永津 雅章

静岡大学 創造科学技術大学院

(原稿受付：2007年4月8日)

エチレンオキシドガス滅菌，高圧蒸気滅菌，紫外線やガンマ線による滅菌などの従来の方法に比べ，プラズマ滅菌は有毒なガスを用いることなく，医療器具の高速・常温滅菌が可能な方法として注目されている．現在までに，低圧力放電や大気圧放電などの種々のプラズマを用いた滅菌技術に関する研究が行われている．本稿では，プラズマ滅菌実験に関する最近の動向を紹介する．

Keywords:

plasma sterilization, low-pressure plasma, atmospheric pressure plasma, microwave plasma, dielectric barrier discharge

3.1 はじめに

近年，プラズマ滅菌に代表される医療分野へのプラズマ応用に関する研究が注目され，国内外において研究開発に凌ぎが削られている．放電を用いて細菌などを殺滅する研究の歴史は意外に古く，1960年代後半にはすでにパルスRF源を用いた大気圧コロナ放電によるガラス瓶の内面滅菌処理する方法がMenashiによって特許出願されている[1]．その後，彼の一連の実験では，主にArやHeなどの希ガスが用いられたが，1987年にJacobsとLinは過酸化水素を放電ガスとして用いたRF放電による滅菌法を提案した．これが，1993年に米国メーカーから製品化され，現在，市場を拡大しつつあるSTERRADと呼ばれる過酸化水素ガスプラズマ装置の原型である[2]．当初，過酸化水素ガスをプラズマ化することによる滅菌効果として注目されたが，現在ではSTERRAD装置の主な滅菌要因は濃度約60%の過酸化水素カプセルを用いたガス滅菌であって，RFプラズマは単に過酸化水素ガスを安全物質に分解するだけの役割であるといわれている[3,4]．その後，1990年代から低圧力放電プラズマを用いた滅菌実験[3-14]や大気圧放電プラズマを用いた滅菌実験[15-21]など，様々なタイプのプラズマを用いた低温滅菌に関する研究が活発に行われるようになった．

ここで，プラズマ滅菌の研究において忘れてはいけないのが，1998年に米国の別メーカーで製品化されたPlazlyteと呼ばれるプラズマ滅菌器で起きた眼科医療事故である．このプラズマ滅菌装置は過酢酸，酢酸および過酸化水素を蒸気化したRFプラズマを用いるもので，プラズマ滅菌処理した銅，真鍮，亜鉛製の眼科用医療器具を用いた手術の後，角膜不全を引き起こした事例が10件以上報告されたのである．このように，プラズマ滅菌の実用化に際しては，プラズマを使って単に細菌を死滅させるだけでなく，対象

物の滅菌処理後の改質の問題や，大腸菌などのグラム陰性菌のように滅菌処理した菌体成分が原因で起きる内毒素性(エンドトキシン)ショックの問題など，滅菌処理した後に起こる諸問題についても留意すべきであることをこの事故は暗示している．

以下，本稿ではまず医療分野において広く用いられている滅菌法の既存技術およびプラズマを用いた滅菌法の最近の研究動向を紹介する．

3.2 従来の滅菌法

3.2.1 滅菌

「滅菌(sterilization)」とは，“病原性および非病原性を問わず，芽胞を含む全ての微生物を殺滅(芽胞をも死滅させることを含む)あるいは除去すること”を意味している[22]．しかし，滅菌は厳密な意味での「細菌数がゼロである」ことを保証するものではない．一般に菌の死滅過程は確率的に取り扱われ，図1のように処理時間とともに生存菌個数が指数関数的に減少するため，いつまで経っても菌個数は完全にゼロにはならない．このため，無菌性保証レベル(sterility assurance level: SAL)を採用し，あるレベルに達したときに滅菌と定義している．現在ではSALとして 10^{-6} が国際的に採用されており，平成11年に厚生労働省より通知された「厚生省生衛発第956号」では同様に生残菌個数 $=10^{-6}$ を採用している[23]．ここで，生残菌個数をある値からその10分の1の数にするために必要な時間をD値(Decimal Value)と定義している．多くの場合，初期菌個数 10^6 個を用い， 10^{-6} の生残菌個数になるまでの時間，即ちD値を12倍した時間を滅菌保証に用いている．

なお，参考までに「滅菌」と類似した表現の「消毒(disinfection)」とは“対象物に存在している病原性のある微生物を無害なレベルまで減らすことであり，必ずしもすべて

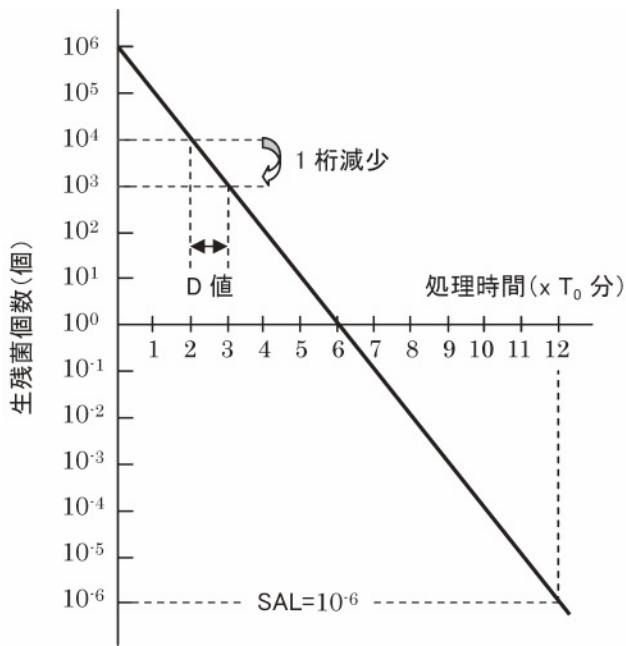


図1 菌生残特性の説明図.

の微生物を殺滅, 除去するものではない”ことを意味している. また, 「殺菌」は“菌を殺すこと”という一般的な意味であって, 対象や程度を含まない概念とされている. このように, 「滅菌」とは定義上, 明確に区別されている.

3.2.2 滅菌法の比較

従来, 医療現場あるいは医療関連製品メーカーにおいて用いられている主な滅菌方法としては,

- (1) 火炎滅菌法, 乾熱滅菌法, オートクレーブを用いる高圧蒸気滅菌法, 煮沸滅菌法などの加熱による滅菌法,
- (2) γ 線などの放射線, 波長 260~280 nm の紫外線, 高エネルギーの電子線を用いる照射滅菌法,
- (3) エチレンオキシドガス (EOG) や過酸化水素を用いるガス滅菌法,
- (4) ろ過フィルターを用いるろ過滅菌法

などがあり, 滅菌対象物の材質, 形状により, それぞれ適した滅菌方法が用いられている. これらの中で現在広く用いられている主な滅菌法の比較を表1に示す. エチレンオ

キシドガス (EOG) 滅菌では, Tyvek などの通気性のある特殊な医療用包装紙にパックされた医療器具を 50~60 °C で処理できる特徴を有しているが, 用いるガス自身が極めて毒性であり, さらに爆発性を有することから不活性ガスによる希釈が必要である. EOG はまた発がん性が指摘されており, 滅菌後の残留量も極めて重要な問題となっている. このため, 対象物によってはガス脱気に要する時間が 1~2 週間必要とされる場合もある. 次に電子線やガンマ線を用いる滅菌では, 常温での滅菌が可能であり, 包装したままで滅菌できる利点があるが, 設備がきわめて大型となるため, 一般に滅菌コストが高くなるなどの問題がある. さらに滅菌対象物の改質も無視できないため, カテーテルのようなきわめてデリケートな柔軟性が必要とされる樹脂材には適していないといわれている. また, オートクレーブに代表される高圧蒸気滅菌法は, 小型から中型規模の装置が病院などの医療現場で広く用いられている. オートクレーブ滅菌は滅菌コストが低い利点があるが, 滅菌温度が 121 °C と高温になるため金属やガラス類の医療器具に使用が制限され, プラスチックのような樹脂材には使用できない問題がある.

このように, 従来の滅菌方法ではそれぞれ一長一短があり, これらの問題を解決する新しい滅菌技術が, 病院などの医療施設あるいは医療品をはじめ飲食品などの製造メーカーなどで求められている. このような背景のもと, 有害な物質を用いず, 低温下において高速に滅菌処理が可能な新しい滅菌法としてプラズマを用いた低温滅菌法に期待が寄せられている. 次節では, 低圧力放電プラズマおよび大気圧放電プラズマを用いたプラズマ滅菌に関する研究動向をそれぞれ紹介する.

3.3 プラズマ滅菌の研究動向

3.3.1 低圧力放電プラズマを用いた滅菌実験

低圧力放電プラズマを用いた滅菌実験は, 1990年代後半にウクライナの Khomich らの研究グループが低圧力 DC グロー放電を用いた一連の滅菌実験の結果を報告している [5-7]. その後, マイクロ波プラズマ [8-12] や RF プラズマ [13-14] を用いた滅菌実験の結果が数多く報告されている.

表1 各種滅菌法の比較.

滅菌方法 項目	EOG 滅菌	電子線滅菌	ガンマ線滅菌	高圧蒸気滅菌	低圧力プラズマ滅菌	大気圧プラズマ滅菌
装置設備	小~大型	大型	大型	小~中型	小~中型	小~中型
透過力	密閉不可	小 (梱包可)	大 (梱包可)	密閉不可	密閉不可	密閉不可
材料の選択	幅広	耐放射線性	耐放射線性	耐熱・耐水性	幅広	幅広
滅菌温度	50~60 °C	常温	常温	121 °C	70 °C 以下	70 °C 以下
対象物の処理方法	バッチ式	連続式	連続式	バッチ式	バッチ式	連続式
処理時間	数時間	数十分	数時間	数時間	数分~数十分	数分~数十分
滅菌後の処理	ガス抜き	不要	不要	乾燥	不要	不要
残留物の問題	残留ガス	なし	なし	なし	なし	なし
滅菌の確認方法	BI 無菌試験	線量確認	線量確認	BI 無菌試験	BI 無菌試験	BI 無菌試験
コスト	小~中	中	大	小	小	小
備考	毒性ガスの問題 通気性包装が必要	材料改質の問題	材料改質の問題	樹脂材の使用不可	容器内滅菌の必要	真空排気系不要 容器内滅菌の必要

低圧力プラズマを用いた滅菌研究の最適なレビュー論文としては、少し古いですが2001年に報告された Moisan らのレビュー論文[3]や2004年に防菌防黴誌に報告された玉澤による解説論文[4]が挙げられる。

ここで、マイクロ波プラズマを用いた Moisan らのグループによる滅菌実験の結果を紹介する[3, 8, 9]。彼らは枯草菌 (*B. Subtilis*, 現在の呼称は *B. Atropheus*) を対象菌として用い、酸素を 0.7% 添加した窒素・酸素混合ガスのアフターグロープラズマによる滅菌実験の結果を報告している。ここで興味ある結果は、図 2 に示したように生残菌個数を処理時間に対してプロットしたコロニーカウントの測定結果において 3 つの傾斜が得られている点である。菌死滅の最初の段階での滅菌要因としては、プラズマから放射される紫外線による枯草菌の DNA の不活化によるものとし、2 段目の傾斜が緩やかになる理由としては、菌がシャーレ内で積層しているため、表面を覆われた内部の菌は紫外線による効果が効かず、酸素ラジカルによる表面層の菌のエッチングと紫外線照射による不活化により緩やかに生存菌個数が減少するとした。酸素ラジカルによるエッチングが最も内部の菌の層を残すまでになったとき、再び紫外線により急激に菌の不活化が起きるモデルを提案している。彼らの滅菌方法は、表面滅菌にもかかわらず、菌処

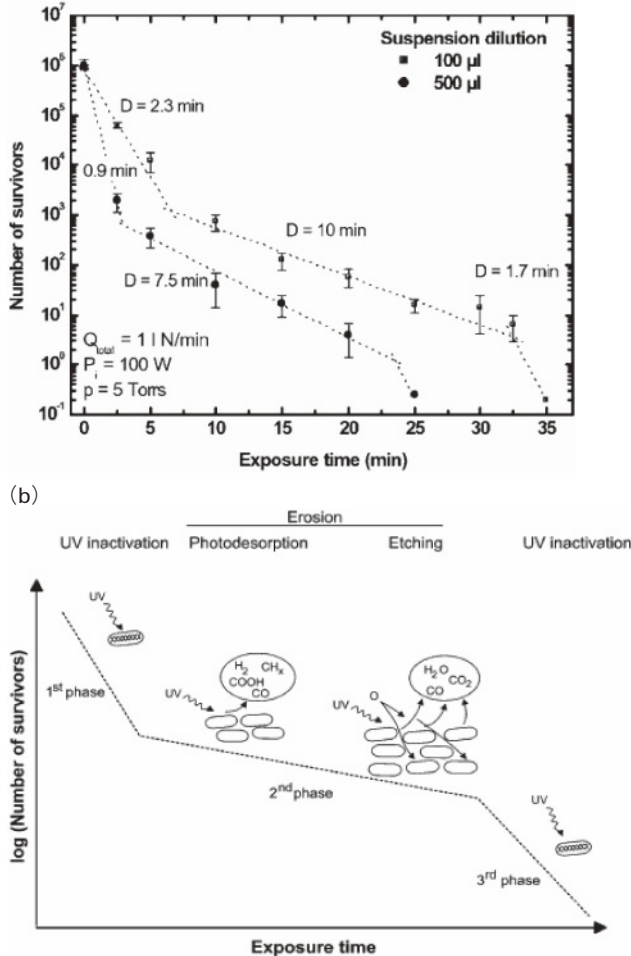


図 2 マイクロ波プラズマアフターグローを用いた Moisan らの実験結果(上図 a)と生残特性解釈のためのモデル(下図 b)。

理に要する時間が30~40分程度と長く、装置の大容量化に課題が残されている。

これに対して著者らのグループは、同様な低圧力下におけるマイクロ波励起表面波プラズマ装置において各種放電ガスを用いたプラズマ照射の実験的検証を行い、表面滅菌ではあるが、酸素プラズマおよび窒素プラズマにおいて3~5分間の照射で 10^6 個の芽胞菌を70℃以下の温度において死滅させることが可能であることを報告した[11, 12]。マイクロ波パワー 700 W, ガス圧力 50~100 mTorr における酸素、水素およびアルゴンガスを用いてプラズマ照射した *Bacillus Stearothermophilus* 菌のコロニーカウント法による生残曲線の測定結果を図 3 (a) に示す。また、酸素プラズマにおいてパンチングプレートによりプラズマを遮断し、中性粒子の酸素ラジカルのみを菌に照射した場合と窒素プラズマを照射した場合の結果を図 3 (b) に示す。図からわかるように酸素プラズマおよび窒素プラズマではほぼ同様な高速滅菌の特性が確認できたが、水素およびアルゴンガスでは10分間のプラズマ照射でも $10^3 \sim 10^4$ 個の菌が生存する結果が得られた[11, 12]。走査電子顕微鏡 (SEM) による観測から、酸素プラズマ照射の場合には、図 4 および図 5 に示したように菌形状の枯草菌が照射時間とともに小さくなり、5分照射後の菌形状は照射前の菌の大きさに比

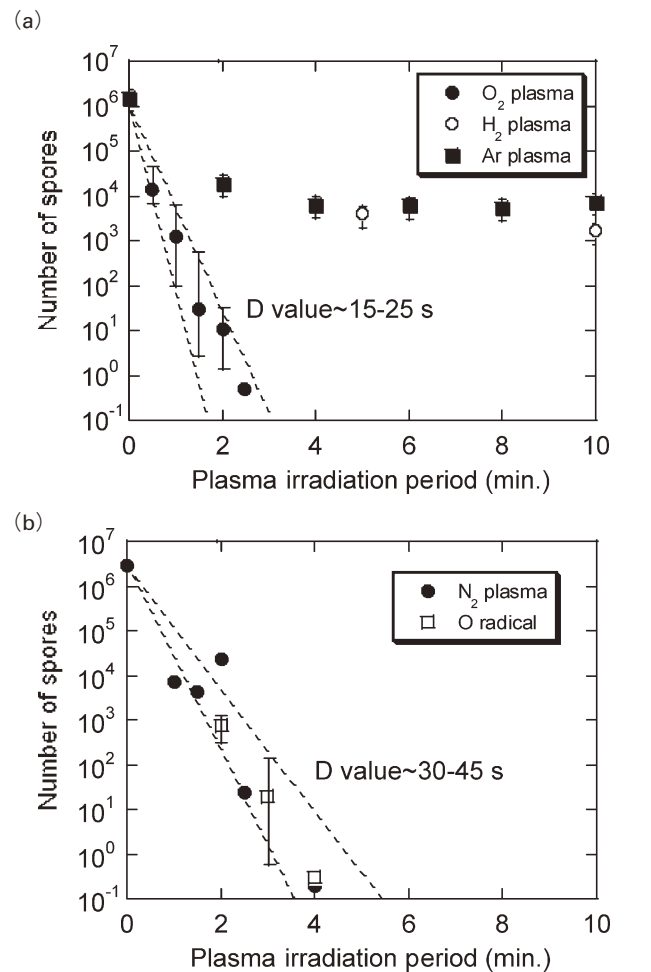


図 3 各種ガスを用いたマイクロ波表面波プラズマの生残特性測定結果. 上図 (a) : O₂, H₂ および Ar プラズマ, 下図 (b) : N₂ プラズマ, 酸素プラズマにおいて O ラジカルのみ照射.

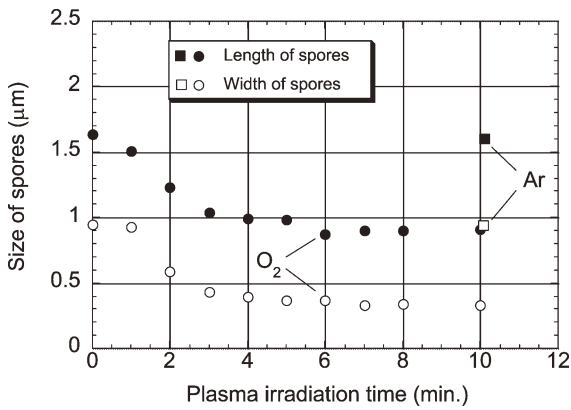


図4 表面波励起酸素プラズマ照射後の菌サイズの変化の様子 (参考のため, Ar プラズマ10分照射後の結果も示す)。

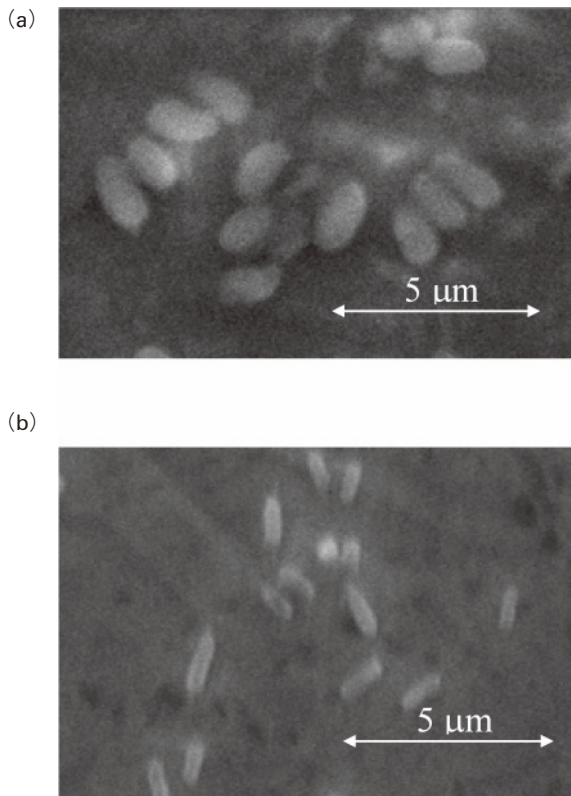


図5 マイクロ波励起酸素プラズマ照射前(a)および10分間照射後(b)の *G. Stearothermophilus* 菌の SEM 写真。

べ, 長さおよび幅ともに大幅に縮小し, 特に幅の大きさは 1/2 以下に縮んだ結果となった. このような酸素プラズマを用いた場合の菌形状の変化は, 多くの論文でも報告されており, 生成された酸素ラジカルにより菌細胞壁がエッチングされ, さらに内部に侵入したラジカルによりコア部の DNA が破壊されて結果として菌の不活化が起きると考えられている [3, 4, 8, 11]. 一方, 窒素プラズマの場合においても酸素プラズマよりは時間はかかるものの高速な滅菌特性の結果が得られている. これは, 図 6 に示したように, 酸素プラズマでは紫外域に強い発光は観測されないが, 窒素プラズマでは窒素分子の second positive system による紫外線発光が観測されており [8, 24], これらの紫外線が主な滅菌要因であると考えられる. 最近の我々の研究では,

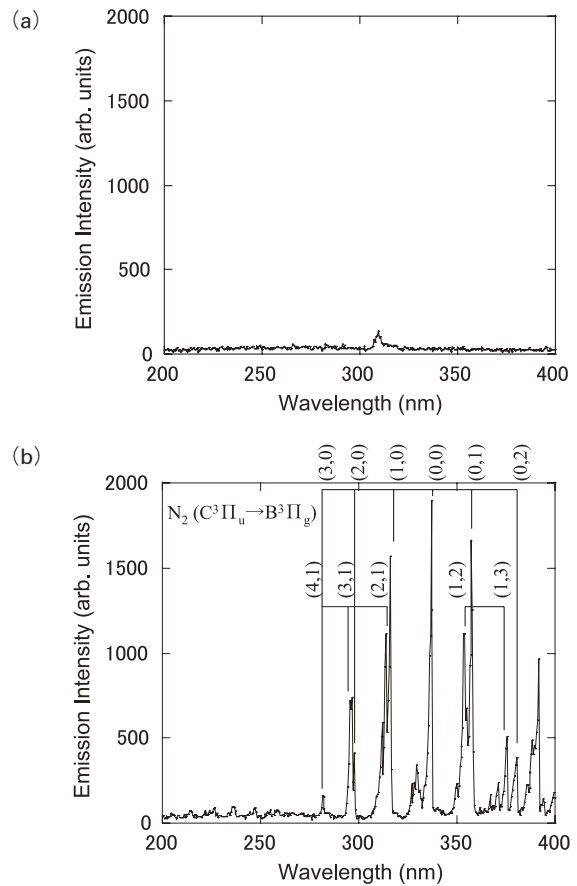


図6 表面波プラズマの紫外域発光スペクトルの測定結果. 上図 (a): O₂ プラズマ, 下図 (b): N₂ プラズマ.

放電ガスを酸素 100% から空気組成比の窒素・酸素混合ガスに置き換えたプラズマ照射実験を行っており, 酸素ガスの場合よりも高速の滅菌結果が得られている [24]. この要因としては, 窒素・酸素混合ガスを用いた場合, 酸素ラジカルによるエッチング効果にプラズマから放射される紫外線の殺菌効果が相乗的に作用するためであると考えられ, これらの結果から我々はプラズマ滅菌機の放電ガスとして空気を用いることを提案している [24]. また, 最近では窒素と酸素ガス以外にも水蒸気を添加した実験も行われており [13], 酸素ラジカルに加えて OH ラジカルも滅菌過程において重要な役割を果たしていると考えられている.

このように, マイクロ波プラズマに限らず DC グロー放電や RF 放電プラズマにおいても, プラズマを直接に対象菌に照射した場合には, 同様な高速の滅菌特性が得られるが, プラズマ照射した表面のみの滅菌に限定される問題がある. 医療器具の滅菌工程では, 通常, Tyvek 紙などの滅菌袋に包装したままで内部の医療器具を滅菌する必要があるため, どのように包装容器の内部をプラズマ滅菌するかが実用化の鍵となっている.

3.3.2 大気圧放電プラズマを用いた滅菌実験

大気圧放電プラズマを用いる滅菌の利点は, 原則として真空排気装置が不要であること, 滅菌対象物の流れ作業的に処理できることである. 大気圧放電では一般にグロー放電からアーク放電に移行しやすいが, アークに移行する前に電圧を取り除いたり, 放電空間を小さくしたり, あるい

はガス流量を増加することによってガスとプラズマとの接触時間を短くすることによって熱的除去を行うなど、非平衡プラズマを実現することが可能である[25]。1988年に岡崎、小駒らのグループにより平行平板電極に誘電体シートを取り付けた電極に数kHzの交流電圧を印加して生成される大気圧グロー放電が報告されて以来[26]、この大気圧グロー放電は様々な材料プロセスに利用されている。

大気圧放電プラズマを用いた滅菌実験では、RF 駆動コロナ放電を用いた Menashi の実験[1]や誘電体バリア放電を用いた大気圧グロー放電あるいはそれに類似した電極構造である高抵抗物質を電極に貼り付けた抵抗バリア放電を用いた Laroussi らの実験[15, 21, 27]、さらに RF あるいはマイクロ波を用いた大気圧プラズマジェットによる滅菌実験[17, 18, 28]など、数多く報告されている。一般にプラズマ照射後に菌形状の変化が報告されており、低圧酸素放電プラズマの場合と同様に、酸素ラジカルによるエッチングが支配的と考えられている。しかしながら、最近 Moisan らのグループは N_2-N_2O 混合ガスを用いた誘電体バリア放電を用い、紫外線のみあるいはラジカルのみでも滅菌がそれぞれ可能であることを実験的に示しており、紫外線の効果も無視できないことを主張している[29]。

真空排気系が不要であることから大気圧下での滅菌プロセスが今後求められることが予想されるが、大気圧下において生成される非平衡プラズマの計測が十分でなく、生成されたプラズマと雰囲気ガスとの相互作用など、まだ解明すべき点も多い。

3.4 包装容器内部の低温プラズマ滅菌技術

現在、病院等の医療現場では、Tyvek などの滅菌袋に入れたまま医療器具を EOG 滅菌あるいはオートクレーブ滅菌処理し、手術等が行われるまで保管することが一般的に行われるため、EOG 滅菌やオートクレーブをプラズマ滅菌で置き換えるには、同様に Tyvek 紙などで包装された容器の内部を滅菌処理する技術が必要となる。これまでのプラズマ滅菌実験では、そのほとんどが直接プラズマを菌に照射した場合の結果であり、つい最近になって包装された医療器具のプラズマ滅菌法について提案が行われるようになってきた[19, 30-32]。著者らのグループでは、低圧マイクロ波励起プラズマ放電を用いた包装容器の内部滅菌と大気圧下でのシート状誘電体バリア放電を用いた包装容器内部滅菌実験の両者の技術開発を進めている。ここでは紙面の都合上、最近行った大気圧誘電体バリア放電による包装容器内滅菌の実験結果を簡単に紹介する。

図7に包装容器の外面に密着させるフレキシブルシート状誘電体バリア放電電極の構造を示す。図のように包装用紙側に密着させる電極として柔軟なステンレス製メッシュを用い、絶縁体層として耐圧性の高いテフロンシートなどの樹脂シートに外側電極としてアルミ箔テープなどの金属箔テープを貼り付けたサンドウィッチ構造としている。このシート状の誘電体バリア放電を Tyvek シートに貼り付け、メッシュ電極と金属箔電極の間に周波数1~10 kHz、印加電圧 $\pm 2\sim 5$ kV の交流電圧を印加することによって

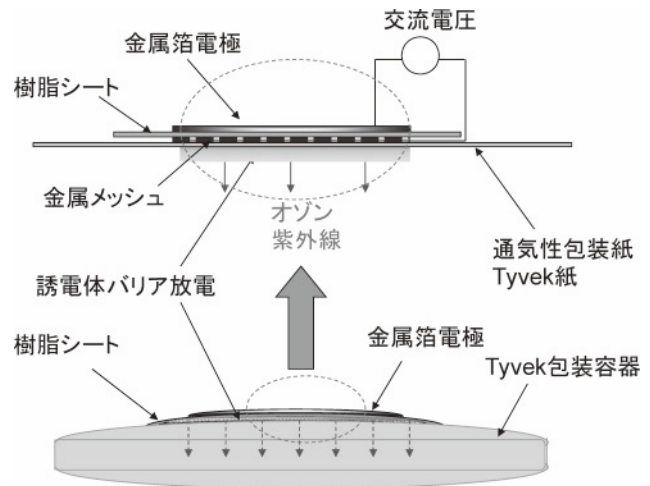


図7 医療用包装容器に密着させたフレキシブルシート状誘電体バリア放電電極の概略図。

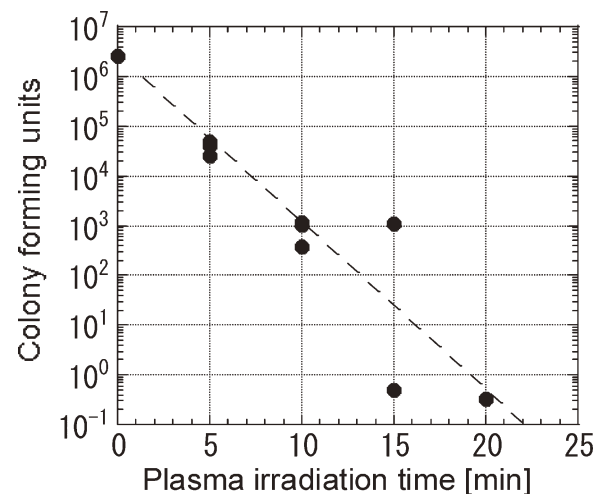


図8 フレキシブルシート状誘電体バリア放電による包装容器内の *B. Stearothermophilus* 菌の生残特性。

メッシュ側に誘電体バリア放電を生成した。なお、Tyvek 包装用紙の中に滅菌確認用の生物指標体として、*Geobacillus Stearothermophilus* 菌あるいは *Bacillus Atropheus* 菌を用いて死滅の確認を行っている。

大気中での誘電体バリア放電の発光スペクトルの測定を行ったところ、波長 280 nm から 400 nm 領域に見られる窒素分子の励起発光であり、低圧放電の場合と類似している。図8はTyvekシートの包装用紙内部に設置した *Geobacillus Stearothermophilus* 菌のサンプルのプラズマ照射後のコロニーカウントの測定結果を示している。データにばらつきはあるものの、20分後に10⁰個の菌の死滅を確認している。なお、照射後の包装用紙の温度はサーモラベルの測定より65℃以下であり、照射による変形はほとんど目視では確認できない。本実験での滅菌要因としては、通常のオゾン殺菌の原理と同様であると考えられ、通気性のTyvek紙を透過して容器内に導入されるオゾンが直接酸化作用で細胞壁を破壊するか、あるいは菌細胞壁で空気中の水蒸気と反応してOHラジカルとして菌細胞を破壊しているものと考えられる。また、シートの微細な穴を透過する紫外線も確認でき、紫外線による殺菌効果も照射される面では効

果が期待される。今後はオゾン濃度と滅菌速度との関係、容器内の水蒸気との関係を明らかにする必要がある。

3.5 おわりに

本稿では医療滅菌技術の現状とプラズマを用いた低温滅菌の最近の研究動向について紹介した。今後、ますますプラズマの医療関連あるいはバイオ関連への応用が盛んに行われるものと予想される。当然のことであるが、プラズマをどのようなプロセスに用いるかなど、その目的によって用いられるプラズマの特性は様々である。例えば、動作圧力に関して言えば、低圧力から大気圧、さらには超臨界状態、サイズで言えばメートルのオーダーからマイクロメートルあるいはナノメートルのオーダーまで、さらには電子密度、電子エネルギー分布関数、イオンエネルギー、ガス温度、ラジカル種の制御など、必要とされるプラズマの動作領域も多次元のパラメータ空間に及ぶ。さらに研究対象もプラズマ物理のみではカバーできず、化学あるいは生物学の分野にまで拡大する。非常に想像を掻き立てられる未踏領域へのプラズマ科学の展開である。この実現には、プラズマ理工学に携わる研究者が異分野の研究者と協力して新学術領域を目指す必要があると感じている。

謝辞

本研究は平成14年度および平成16年度科学技術振興機構「地域研究開発促進拠点支援事業」、平成16～18年度科学研究費補助金基盤研究B、平成18～19年度特定領域研究公募研究、平成16～17年度経済産業省「地域新生コンソーシアム研究プロジェクト」の採択を受け行われた。本研究の遂行に際し多大なるご協力をいただきました浜松医科大学の小出幸夫教授、永田年助教授、ジーマ株式会社の倉脇一郎氏、株式会社ニッシンの各位をはじめとする関係者各位に、そして日頃実験に協力いただいた共同研究者の荻野明久氏および大学院博士課程徐蕾氏にも厚く謝意を表する次第である。

参考文献

- [1] W.P. Menashi, Treatment of surfaces, US Patent 3383163 (1968).
- [2] P.T. Jacobs and S.M. Lin, *Disinfection, Sterilization and Preservation*, Ed. S.S. Block, 5th ed. (Lippincott Williams & Wilkins, 2000) Chap. 38, p.747.
- [3] M. Moisan, J. Barbeau, S. Moreau, J. Pelletier, M. Tabrizian and L.H. Yahia, *Int. J. Pharm.* **226**, 1 (2001).
- [4] 玉澤かほる：防菌防黴誌 **32**, 13 (2004).
- [5] V.A. Khomich, I.A. Soloshenko, V.V. Tsiolko and I.L. Mikhno, *Proc. of 12th Int'l. Conf. on Gas Discharges & Their Applications*, Greifswald, Germany (1997) Vol. 2, p.740.
- [6] I.A. Soloshenko, V.V. Tsiolko, V.A. Khomich, A.I. Shchedrin, A.V. Ryabtsev, V.Yu. Bazhenov and I.L. Mikhno, *Plasma Phys. Report* **26**, 792 (2000).
- [7] I.A. Soloshenko, V.V. Tsiolko, V.A. Khomich, V.Yu. Bazhenov, A.V. Ryabtsev, A.I. Shchedrin and I.L. Mikhno, *Proc. of 15th Int'l. Symposium on Plasma Chemistry*, Orleans, France (2001) Vol. II, p.735.
- [8] N. Philip, B. Saoudi, M.C. Crevier, M. Moisan, J. Barbeau and J. Pelletier, *IEEE Trans. Plasma Science* **30**, 1429 (2002).
- [9] M. Moisan, B. Saoudi, M.C. Crevier, N. Philip, E. Fafard, J. Barbeau and J. Pelletier, *Conf. Proc. of 5th Int. Workshop Microwave Discharges: Fundamentals and Applications*, Greifswald, Germany, July 8-12 (2003) p.210.
- [10] J. Feichtinger, A. Schulz, M. Walker and U. Schumacher, *Surf. Coat. Technol.* **174-175**, 564 (2003).
- [11] M. Nagatsu, F. Terashita and Y. Koide, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, L.856 (2003).
- [12] M. Nagatsu, F. Terashita, H. Nonaka, L. Xu, T. Nagata and Y. Koide, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 211502 (2005).
- [13] N. Hayashi, W. Guan, S. Tsutsui, T. Tomari and Y. Hanada, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, 8358 (2006).
- [14] O. Kylian, T. Sasaki and F. Rossi, *Eur. Phys. Appl. Phys.* **34**, 139 (2006).
- [15] M. Laroussi, I. Alexeff and W.L. Kang, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **28**, 184 (2000).
- [16] T.C. Montie, K. Kelly-Wintenberg and J.R. Roth, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **28**, 41 (2000).
- [17] V.Yu. Bazhenov, A.I. Kuzmichev, V.I. Kryzhanovskiy, I. L. Mikhno, A.V. Ryabtsev, I.A. Soloshenko, V.A. Khomich, V.V. Tsiolko and A.I. Shchedrin, *Proc. of 15th Int'l. Symposium on Plasma Chemistry*, Orleans, France (2001) Vol. II, p.3005.
- [18] B.J. Park, D.H. Lee, J.C. Park, I.S. Lee, K.Y. Lee, S.O. Hyun, M.S. Chun and K.H. Chung, *Phys. Plasmas*, **10**, 4539 (2003).
- [19] T. Akitsu, H. Ohkawa, M. Tsuji, H. Kimura and M. Kogoma, *Surf. Coat. Technol.* **193**, 29 (2005).
- [20] Q.S. Yu, C. Huang, F.H. Hsieh, H. Huff and Y. Duan, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 013903 (2005).
- [21] M. Laroussi, *Plasma Process. Polym.* **2**, 391 (2005).
- [22] 小林寛伊, 大久保憲, 尾家重治：消毒と滅菌のガイドライン (へるす出版, 2004).
- [23] 厚生省生衛発第 956 号「廃棄物処理法に基づく感染性廃棄物処理マニュアルの一部改正について」平成 11 年 6 月 25 日.
- [24] L. Xu, H. Nonaka, H.Y. Zhou, A. Ogino, T. Nagata, Y. Koide, S. Nanko, I. Kurawaki and M. Nagatsu, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40**, 803 (2007).
- [25] 板谷良平：“非平衡大気圧プラズマ (NTAPP) の課題と展望”, *プラズマ・核融合学会誌* **79**, 1029 (2003).
- [26] S. Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki and S. Okazaki, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **21**, 838 (1988).
- [27] M. Laroussi, J.P. Richardson and F.C. Dobbs, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 772 (2002).
- [28] R. Ramasamy, K. Fujioka, T. Urayama and S. Fujii, *Proc. of Plasma Science Symposium 2005/22th Symp. on Plasma Processing*, Nagoya (2005) S3-4.
- [29] M.K. Boudam, M. Moisan, B. Saoudi, C. Popovici, N. Gheradi and F. Massines, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39**, 3494 (2006).
- [30] M. Nagatsu, F. Terashita, L. Xu, H. Nonaka, K. Ninomiya et al., Abstracts and Full Papers CD of *17th Int. Symp. on Plasma Chemistry*, Tronto, Canada (2005) 1100.
- [31] 永津雅章：“包装物の滅菌方法および滅菌装置”, 特願 2007-16513 (2007. 1. 26).
- [32] J. Engemann, *private communication*.