

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4520983号
(P4520983)

(45) 発行日 平成22年8月11日 (2010. 8. 11)

(24) 登録日 平成22年5月28日 (2010. 5. 28)

(51) Int. Cl.	F I
CO 1 B 31/02 (2006. 01)	CO 1 B 31/02 1 O 1 F
BO 1 J 20/20 (2006. 01)	BO 1 J 20/20 A
B8 2 B 1/00 (2006. 01)	B 8 2 B 1/00

請求項の数 35 (全 35 頁)

(21) 出願番号	特願2006-509181 (P2006-509181)	(73) 特許権者	508062177
(86) (22) 出願日	平成16年3月8日 (2004. 3. 8)		セルドン テクノロジーズ, インコーポレ
(65) 公表番号	特表2006-524177 (P2006-524177A)		イテッド
(43) 公表日	平成18年10月26日 (2006. 10. 26)		アメリカ合衆国, バーモント州 O 5 O 8
(86) 国際出願番号	PCT/US2004/006811		9, ウィンザー, エバレット レーン 7
(87) 国際公開番号	W02004/080578		, スイート ワン
(87) 国際公開日	平成16年9月23日 (2004. 9. 23)	(74) 代理人	100079108
審査請求日	平成19年3月5日 (2007. 3. 5)		弁理士 稲葉 良幸
(31) 優先権主張番号	60/452, 530	(74) 代理人	100093861
(32) 優先日	平成15年3月7日 (2003. 3. 7)		弁理士 大賀 眞司
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100109346
(31) 優先権主張番号	60/468, 109		弁理士 大賀 敏史
(32) 優先日	平成15年5月6日 (2003. 5. 6)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ナノ物質による流体の浄化

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

流体中の汚染物質を減らすための物質であって、
カーボンナノチューブと、

前記流体の流れに対して透過性がある、前記カーボンナノチューブ用の多孔質支持媒質と、を備え、

複数の前記カーボンナノチューブは、格子変形と、少なくとも1つの官能基と、を含むとともに、前記多孔質支持媒質、別のカーボンナノチューブ、またはその組合せに溶融または結合されている、物質。

【請求項 2】

前記多孔質支持媒質が、繊維、基質および粒子から選択される少なくとも1つの成分を含む、請求項 1 に記載の物質。

【請求項 3】

前記繊維、基質、および粒子が、セラミックおよびポリマー物質から選択される、請求項 2 に記載の物質。

【請求項 4】

前記ポリマー物質が、単一または多成分ポリマー類、ナイロン、ポリウレタン、アクリル、メタクリル、ポリカーボネート、エポキシ、シリコーンゴム類、ポリスチレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリパラフィレン (paraphylene) テレフタルアミド、ポリ (p-フェニレンテレフタルアミド)、ポリエ

ステルエステルケトン、バイトンフルオロエラストマー、ポリテトラフルオロエチレン、ポリ塩化ビニル、ポリエステル、ポリプロピレン、ポリクロロブレン、アセテート類、およびその組合せ、を含む、請求項 3 に記載の物質。

【請求項 5】

前記多成分ポリマーが、少なくとも 2 つの異なるガラス転移温度または融解温度を示す、請求項 4 に記載の物質。

【請求項 6】

前記セラミック物質が、以下の少なくとも 1 つ、すなわち、炭化ホウ素、窒化ホウ素、酸化ホウ素、リン酸ホウ素、スピネル、ガーネット、フッ化ランタン、フッ化カルシウム、炭化ケイ素、炭素およびその同素体、酸化ケイ素、ガラス、水晶、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、酸化ジルコニウム、炭化ジルコニウム、ホウ化ジルコニウム、亜硝酸ジルコニウム、ホウ化ハフニウム、酸化トリウム、酸化イットリウム、酸化マグネシウム、酸化リン、コーディエライト、ムライト、窒化ケイ素、フェライト、サファイア、ステアタイト、炭化チタン、窒化チタン、ホウ化チタン、およびその組合せから選択される、請求項 3 に記載の物質。

【請求項 7】

前記粒子が、100 ミクロンまでの直径を有する、請求項 2 に記載の物質。

【請求項 8】

前記カーボンナノチューブが、前記物質と接触する流体中の汚染物質の濃度を下げるのに十分な量で、前記物質に存在する、請求項 1 に記載の物質。

【請求項 9】

前記カーボンナノチューブが、非カーボンナノチューブ物質に、さらにドーブまたは含浸されている、請求項 1 に記載の物質。

【請求項 10】

前記官能基が、少なくとも 1 つの有機官能基、無機官能基、またはその組合せを含む、請求項 1 に記載の物質。

【請求項 11】

前記官能基が、前記カーボンナノチューブの表面に付着されている、請求項 10 に記載の物質。

【請求項 12】

前記官能基が、前記カーボンナノチューブの端に位置しており、かつ、重合している、請求項 11 に記載の物質。

【請求項 13】

前記少なくとも 1 つの有機官能基が、直鎖基または分岐基、飽和基または不飽和基を含む、請求項 10 に記載の物質。

【請求項 14】

前記少なくとも 1 つの有機官能基が、カルボキシル類、アミン類、ポリアミド類、ポリ両親媒性物質類、ジアゾニウム塩類、ピレニル類、シラン類、およびその組合せから選択される少なくとも 1 つの化学基を含む、請求項 10 に記載の物質。

【請求項 15】

前記少なくとも 1 つの無機官能基が、ホウ素、チタン、ニオブ、タングステン、およびその組合せの少なくとも 1 つのフッ素化合物を含む、請求項 10 に記載の物質。

【請求項 16】

前記少なくとも 1 つの有機または無機官能基が、ハロゲン原子またはハロゲン化合物を含む、請求項 10 に記載の物質。

【請求項 17】

前記カーボンナノチューブが、前記カーボンナノチューブの表面上および／または前記物質の少なくとも 1 つの面積上の官能基の組成および／または密度における非均一性を含む、請求項 10 に記載の物質。

【請求項 18】

前記カーボンナノチューブが、前記カーボンナノチューブの表面上および／または前記物質の少なくとも1つの面積上の官能基の実質的に均一の勾配を含む、請求項10に記載の物質。

【請求項19】

前記カーボンナノチューブが、炭素環のスクロール管状または非管状ナノ構造を有する、請求項11に記載の物質。

【請求項20】

炭素環のスクロール管状または非管状ナノ構造を有する前記カーボンナノチューブが、シングルウォール、マルチウォール、ナノスクロール、またはその組合せである、請求項19に記載の物質。

10

【請求項21】

スクロール管状または非管状ナノ構造を有する前記カーボンナノチューブが、ナノホーン、円筒、ナノらせん、樹状、木、スパイダーナノチューブ構造、ナノチューブYジャンクション、および竹の形態から選択される形態を有する、請求項20に記載の物質。

【請求項22】

前記流体が、少なくとも1つの液体または気体を含む、請求項1に記載の物質。

【請求項23】

前記液体が、水を含む、請求項22に記載の物質。

【請求項24】

前記液体が、石油およびその副産物、体液、食料品、アルコール飲料、および医薬品から選択される、請求項22に記載の物質。

20

【請求項25】

前記石油およびその副産物が、航空機、自動車、船舶、および機関車用燃料、ロケット燃料、工業および機械油および潤滑油、および暖房用石油および気体を含む、請求項24に記載の物質。

【請求項26】

前記石油およびその副産物が航空機燃料を含み、かつ、前記汚染物が細菌を含む、請求項24に記載の物質。

【請求項27】

前記体液が、動物、ヒト、植物由来であり、またはバイオ技術の処理において使用される成長ブロス、または医薬品を含む、請求項24に記載の物質。

30

【請求項28】

前記体液が、血液、乳、および両方の成分を含む、請求項24に記載の物質。

【請求項29】

前記食料品が、料理または食品産業において使用される動物副産物、果汁、天然シロップ、並びに天然および合成油から選択される、請求項24に記載の物質。

【請求項30】

前記動物副産物が、乳および卵を含む、請求項24に記載の物質。

【請求項31】

料理または食品産業において使用される天然および合成油が、オリーブ油、ピーナッツ油、花油、および植物油を含む、請求項24に記載の物質。

40

【請求項32】

前記アルコール飲料が、ビール、ワイン、または蒸留酒を含む、請求項24に記載の物質。

【請求項33】

前記汚染物質が以下の少なくとも1つ、すなわち、塩、金属、病原体、微生物、DNA、RNA、天然有機分子、かび、菌類、および天然および合成毒素、内毒素、タンパク質、および酵素から選択される、請求項1に記載の物質。

【請求項34】

前記天然および合成毒素が、化学および生物兵器を含む、請求項33に記載の物質。

50

【請求項 35】

前記気体が、空気を含む、請求項 22 に記載の物質。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本出願は、2003年3月7日出願の米国仮特許出願第60/452,530号明細書、2003年5月6日出願の米国仮特許出願第60/468,109号明細書、および2003年9月3日出願の米国仮特許出願第60/499,375号明細書への国内優先権の利益を請求するものであり、そのすべてはその全体が参照することにより本明細書に含まれる。

10

【0002】

本開示は、含浸、機能化、ドーピング、荷電、被覆、および照射ナノチューブから選択される欠陥カーボンナノチューブを含むナノ構造物質に関する。本開示は、ナノ構造物質を用いる液体や気体などの流体の浄化にも関する。本開示は、ナノ構造物質を用いる水の浄化にも関する。

【背景技術】

【0003】

消費、使用、廃棄および他の必要のために流体を処理する多くの手順および工程がある。そのうち最も一般的なのは、食料品を滅菌する低温殺菌、水を滅菌する化学的処理、液体を浄化する蒸留、微粒子を除去する遠心分離およびろ過、流体の2相を分離するデカンティング、液体を脱塩する逆浸透、液体を脱塩する電気透析、および望ましくない反応物を有用な製品へ変換する触媒工程である。これらの方法の各々は特定の用途に適しており、通常、各方法の組合せが完成品のために使用される。

20

【0004】

ナノ技術物質の1つの見込みは、それらがその従来の対応物よりも物をより費用効率高くすることである。液体浄化の分野においては、全体的なコストを低下させ、工程を簡単にし、効率を改善する技術がきわめて有利となろう。

【0005】

これらの工程の多くは、ナノ物質浄化技術を用いることによって改善されるであろう。ナノ多孔質物質は、微生物、マイクロサイズ微粒子、および他のきわめて微細な物質を除去するのに有用であろう。ナノ物質で製造される逆浸透膜は、その膜を通じた水の流れを改善するのに役立つ。強力なナノ物質を上記工程のいずれかに組み込むことにより、以上の成分のすべての重量が低下するであろう。しかし、2つの工程は、特にナノ物質流体浄化、滅菌、および脱塩に有望であるように見える。

30

【0006】

滅菌

液体の滅菌のために利用可能な多くの異なる技術がある。吸着、化学的処理、オゾン滅菌、およびUV照射はすべて病原微生物の除去に確実に実施される。しかし、これら技術の各々は、全体的な有効性、初期および操業コスト、副産物リスク、液体の必要な前処理、使用または製造される有害な化合物、および他の制限を含む制限を有する。

40

【0007】

化学的方法是は最も広範囲に使用されているが、それらには多くの欠点がある。かかる不利点としては、その破壊効果への微生物的適応の増大（たとえば、クリプトスポリジウム・パルバム（*Cryptosporidium parvum*））、塩素の使用および貯蔵に関連した安全上の問題、環境への影響が挙げられる。UVは人気を得ているが、液体はそれが有効であるためにきれいでなければならず、それが生物膜形成を破壊することはなく、設置して操作することはきわめて費用がかかる。

【0008】

水および廃水植物など工業および都市の用途において、液体滅菌の3つの最も広く使用されている方法は、オゾン、塩素、および紫外線照射である。米国環境保護局の最近の刊

50

行物は、各方法の是非を特定した。

【0009】

オゾンは、ウイルスおよび細菌の破壊において塩素より有効であり、有効性のための短い接触時間（10－30分）を有し、迅速に破壊するので有害な残留物を残さず、現場で生成されるため、輸送上のリスクがない。他方、少量ではオゾンは有効でありえず、UVまたは塩素のいずれかよりも複雑であり、きわめて反応性かつ腐食性であり、毒性であり、資本コストが高く、所要電力が高くなりうる。

【0010】

塩素は、オゾンまたはUVよりも費用効率が高く、その残留物は滅菌を延長しうるとともに、一連の病原生物に対して確実かつ有効であり、かつ、柔軟な投与制御を提供する。しかし、塩素はそれとともに、塩素の残留物が水生生物に対して毒性であることを含む重要なリスクを有し、塩素は腐食性かつ毒性であり、有機物の塩素の酸化は有害な化合物を生成し、かつ一部の寄生種は抵抗性を示した。また、塩素は天然有機物質と結合し、消費に有害な発癌性化合物を生成しうる。

10

【0011】

紫外線照射は、大部分の孢子、ウイルスおよび嚢胞を有効に不活性化し、化学薬品を取扱うリスクを削減し、有害でありうる残留物を残さず、操作者に利用しやすく、有効性のためのきわめて短い接触時間（20－30秒）を必要とし、かつ少ない空間を必要とするため、かねて使用されている。UV照射の不利な面としては、少量では有効でありえないこと、生物がしばしばUV損傷を逆転かつ修復しうることで、チューブが汚染し、頻繁な予防的保守を必要としうることで、濁度がUVを無効にしうることで挙げられ、エネルギー要件がきわめて高い。さらに、有害なUVランプの廃棄には費用がかかりうる。

20

【0012】

既知の滅菌法の欠点に対して、多くの新しい方法が試みられている。たとえば、米国特許第6,514,413号明細書は、参照によって本明細書に含まれるが、複合殺菌吸着物質の使用を開示している。しかし、かかる殺菌吸着物質は、連続生殖に対して生物付着および細菌成長の傾向があることが示されている。米国特許出願第09/907,092号明細書は、汚染飲料水を滅菌するための塩素または塩素酸素溶液を生成するための携帯型酸化発生剤を開示している。米国特許第6,495,052号明細書は、殺菌剤を水の中へ導入し、次いで消費前にそれを除去する水を処理するためのシステムおよび方法を開示している。米国特許出願第10/029,444号明細書は、滅菌の手段としてレーザーからの光に水が当てられる方法を開示している。

30

【0013】

しかし、これらの方法はさらに、電気の高い入力、毒性化学薬品、または有効性のための長い接触時間に依拠する。さらに必要とされるのは、最小のエネルギー要件を有し、毒性化学薬品を使用せず、きわめて短い接触時間を必要とし、かつ携帯型機器の中へ内蔵可能である方法である。

【0014】

脱塩

液体の脱塩は、飲料水、体液、医薬品、化学薬品、石油およびその誘導体、および他の多くの液体にきわめて有用であろう。また、水の脱塩は、0.5%未満の地球上の水が食用、農業用、または工業用に直接適しているため有益であろう。したがって、他の約99.5%水を利用可能にするという点で、世界中で汽水性の地下水および海水から飲料水を製造する脱塩の恩恵が増大している。

40

【0015】

世界中には35億ガロン／日（mgd）超の複合容量の推定4,000種類の塩水脱塩植物が存在する。この容量の約55%は中東にあり、17%は米国にあり、その多くは工業用である。脱塩水は現在、家庭および工業目的に米国において消費される水の約1.4%を占める。

【0016】

50

実質的に5つの基本的な脱塩法がある。すなわち、熱、逆浸透、電気透析、イオン交換、および冷凍である。熱および冷凍工程は、淡水を塩水から除去し、濃縮塩水を残す。逆浸透および電気透析では膜を使用し、淡水から塩を分離する。イオン交換は、望ましくない溶解イオンに対してより望ましいイオンを交換する樹脂上に塩水を通すことを含む。熱および逆浸透工程のみが現在、商業的に実現可能である。

【0017】

参照によって本明細書に含まれる米国特許第5, 217, 581号明細書および米国特許第6, 299, 735号明細書において説明されているように、熱工程は、塩水を煮沸または蒸発させ、蒸気を淡水として凝縮させ、より濃縮された塩水溶液を残すことを含む。滅菌のためのエネルギー要件は、他の方法と比べ比較的高い。部分的に滅菌に必要とされるエネルギーは、給水の塩度の上昇とともに目につくほど増大することはないため、海水を処理するのに中東で広く使用されている。

10

【0018】

米国特許第3, 462, 362号明細書に記載されているように、逆浸透は、淡水が半透膜を通過して食塩水の中へ入り、それによってより塩水を希釈する傾向を使用する膜工程である。淡水は、浸透圧と呼ばれる圧力がその上にあるかのように膜の中を移動する。きわめて高い圧力を半透膜の片側の塩水にかけることによって、淡水は膜の中を強制的に浸透流の反対の方向へ通されうる。この工程は逆浸透と呼ばれる。これは（高圧を生成するのに）エネルギー集約的ではあるものの、逆浸透のエネルギー要件は一般に滅菌のものよりも低い、給水のその使用は他の方法よりも非効率的である。また、膜はきわめて高価であり、繊細であり、かつ汚染する傾向がある。

20

【0019】

電気透析による脱塩は、電流を用いて液体から汚染物質および塩を除去し、イオン不純物をイオン選択膜に貫通させ、処理液体から離す膜工程である。2種類のイオン選択膜が使用される一電解細胞の電極間で、1つは陽イオンの通過を可能にし、1つは陰イオンの通過を可能にする。電気はイオン選択膜を通るイオンの抵抗を克服するのに使用される。抵抗が大きいほど電力需要は高くなり、したがってエネルギーコストは抵抗の増大につれて上昇する。電流がイオンを駆動するのに適用されると、淡水は膜間に残される。電気透析に必要な電気の量、したがって、その操業コストは、給水の塩度の上昇とともに増大する。

30

【0020】

イオン交換樹脂は、水素および水酸化イオンを塩イオンと交換する。多くの自治体が硬水軟化のためにイオン交換を使用し、工業では通常、逆浸透または電気透析後の最終処理としてイオン交換樹脂を使用し、きわめて純粋な水を製造する。イオン交換の直接費は、樹脂の維持または交換におけるものである。水中の溶解塩の濃度が高いほど頻繁に樹脂は再生される必要があり、したがって、イオン交換は大規模の塩除去のために稀に使用される。

【0021】

冷凍工程は3つの段階を含む。すなわち、淡水の水結晶が形成される塩水の部分的冷凍、これらの水結晶の塩水からの分離、および水結晶の融解である（たとえば、米国特許第4, 199, 961号明細書）。冷凍は、エネルギーをあまり必要とせず、その低い使用温度が腐食やスケール形成問題を最小に抑えるため、他の工程に対していくつかの利点を有する。冷凍工程のエネルギー要件は高く、一般に逆浸透のものと同等である。冷凍技術は依然として研究、開発中であり、広く展開されていない。冷凍技術は携帯型脱塩機器用に適合性の技術ではない。

40

【0022】

脱塩の目的のために発明された多くのコンデンサもある。米国特許第4, 948, 514号明細書は、イオンを液体から分離するための方法および装置を開示している。米国特許第5, 192, 432号明細書は、イオンを液体から分離するための同様の「流入コンデンサ」法を開示している。しかし、これらの機器は、経済的に実行可能ではないため広

50

範囲に使用されていない。

【発明の開示】

【課題を解決するための手段】

【0023】

発明の概要

本開示は、ナノ技術に基づく液体浄化法に関するように上記の問題を解決する。本開示の1つの態様は、含浸、機能化、ドーピング、荷電、被覆、および照射ナノチューブから選択される欠陥カーボンナノチューブを含んでなるナノ構造物質に関する。「ナノ構造」は、原子または分子レベルなど、ナノスケール（たとえば、10億分の1メートル）の構造を指す。「ナノ構造物質」は、上記カーボンナノチューブ成分の少なくとも1つを含んでなる物質である。「ナノ膜」は、ナノ構造物質から成る膜である。欠陥カーボンナノチューブは、少なくとも1つの炭素環において格子変形を含有するものである。格子変形は、管状シート構造を形成するカーボンナノチューブ原子の結晶格子のひずみを意味する。非限定的実施例は、非弾性変形、または5および／または7員の炭素環の存在、または化学的相互作用後の炭素原子結合の sp^2 ハイブリダイゼーションの変化による原子の移動を含む。

10

【0024】

本発明の別の態様は、本質的に炭素から成る細長いナノチューブに関し、このナノチューブは上述されているものと同様の結晶欠陥によって変形されている。本実施形態においては、ナノチューブは、処理される場合、変形されていないかつ／または処理されていないナノチューブと反応、またはこれに結合しない化学種とナノチューブが反応し、またはこれに結合することを可能にする顕著に大きな化学的活性を有する程度に、欠陥により変形されている。

20

【0025】

本発明の1つの態様においては、カーボンナノチューブは、ナノ構造物質と接触する流体中の汚染物質を実質的に破壊し、改変し、除去し、または分離するのに十分な量でナノ構造物質中に存在する。カーボンナノチューブは、かかる特性を達成するように処理される。たとえば、カーボンナノチューブの化学的処理は、少なくとも部分的に開放している少なくとも1つの端を有する結果として生じるナノチューブをもたらす。かかる端を有するナノチューブは、流体流の観点から、または、たとえば、その端が、たとえば、特に機能化される能力を有する機能化の観点から独特の特性を提供する。

30

【0026】

本発明の別の態様においては、カーボンナノチューブを含浸し、機能化し、ドーピング、または被覆するのに使用される物質は、流体またはその成分のカーボンナノチューブの中へ、その中から外へ、それを通じて、それに沿って、またはその周りの活性かつ／または選択的な輸送を達成するのに十分な量で存在する。この物質は、カーボンナノチューブの中へ、その中から外へ、それを通じて、それに沿って、またはその周りに選択的に輸送される同じ物質を含んで成りうる。

【0027】

たとえば、流体からヒ素を除去するのに使用されるナノ構造物質は、最初にヒ素イオンと含浸される。これらのヒ素イオンは、「ターゲットイオン」と称される。「ターゲットイオン」は一般に、カーボンナノチューブの中へ含浸（機能化、ドーピング、または被覆）され、かつきれいにされ、または浄化されるべき流体中に存在する汚染物質のイオンと同じであるイオンを包含する。

40

【0028】

本明細書で使用する「含浸」は、カーボンナノチューブが、前掲のように、汚染流体から除去されるべき汚染物質の同じイオンを含んで成りうる当該物質で少なくとも部分的に充填されることを意味する。ターゲットイオンをカーボンナノチューブの中へ含浸させることによって、ナノチューブ、かつ実際にナノチューブで製造されたナノ構造物は、プライムされ、または「チャレンジされ」、汚染流体内に見られる同じイオンを受入れ、か

50

つ／または引き付ける。

【0029】

上記の例は含浸イオンを指すが、同じ方法は、記載された手順、たとえば、機能化、ドーピング、コーティング、およびその組合せのいずれかによる所望のイオンでのカーボンナノチューブのチャレンジし、またはプライムするために適用される。ドーピングカーボンナノチューブは、ナノ構造物質における炭素以外の原子の存在を指す。

【0030】

含浸に関して、ターゲットイオン含浸カーボンナノチューブから成るイオン特異的分離機器が製造されうる。この機器のために、含浸ナノチューブは、電子またはフォノン流が、電磁、または音響手段によって、または直接の電氣的または物理的接続によって誘導されうるように製造され、かつ機能化化学を通じて開放されてイオンチャンネルを生成する欠陥部位を有する。

【0031】

ターゲット汚染イオンでカーボンナノチューブを少なくとも部分的に充填することによってカーボンナノチューブをチャレンジすることにおいて、その形態によって規定されるカーボンナノチューブの擬一次元性質によりナノチューブの中空範囲内にイオン特異的量子井戸が生成されることになる。これにより、イオンが移動し、またはナノチューブを通じてインデックス化されると、「プレプログラム化」またはイオン特異的トラップが生成される。イオンがナノチューブ内を移動すると、イオン特異的トラップは、ナノチューブの擬一次元量子構造で後に残される。

【0032】

イオン汚染流体がターゲットイオンを含有する処理「プレプログラム化」ナノ構造物質と接触すると、ターゲットイオンはナノチューブ内のイオン特異的トラップを吸着および充填することによってその自由エネルギーを最小限にすることができることになる。ナノチューブにおけるターゲットイオンの添加は抵抗の変化を誘発し、これはナノチューブを通じ、かつシステムの中から外へ少なくとも1つのイオンを移動させる電気および／またはフォノン流反応の誘引となる。この物質は、どんなイオンでナノチューブ、ナノ構造物機器が充填されているかによってプログラム化または再プログラム化されうる。

【0033】

イオン濃度が変化すると、電力はターゲットイオンが存在している場合にのみ必要とされるため、機器は電力を消費する必要がなくなる。ビルトイン自己制御工程は、流体中にターゲットイオンが存在しない場合に、電力がそれらを除去する必要があるという事実を巧みに利用することになる。

【0034】

汚染流体から除去されるべき汚染物質によって、ターゲット物質またはカーボンナノチューブを含浸し、機能化、ドーピングし、または被覆するのに使用される物質は、酸素、水素、イオン化合物、ハロゲン化合物、糖、アルコール、ペプチド、アミノ酸、RNA、DNA、内毒素、有機金属化合物、酸化物、ホウ化物、炭化物、窒化物、および元素金属およびその合金から選択される少なくとも1つの化合物を含んで成りうる。

【0035】

酸化物は、炭素、イオウ、窒素、塩素、鉄、マグネシウム、シリコン、亜鉛、チタン、またはアルミニウムの酸化物など技術的に一般に使用されるいずれかの公知の酸化物を含んでなる。

【0036】

1つの態様においては、ナノ構造物質は、液体、固体または気体媒質に配置され、かつ場合により超音波処理を介してそこに分散されているカーボンナノチューブを含んでなる。カーボンナノチューブは、機械力、または機械場、化学場、電磁場、音場、および光場、またはその組合せから選択される場によってかかる媒質中に維持されうる。当業者は、音場が空洞内部に一定周波数のノイズを含んで成り、実質的に静止位置でカーボンナノチューブを保持する定常波を形成することを理解するであろう。

【0037】

同様に、光場は、レーザー光をホログラムに通過させることによって生成される光ピンセットの単一または活性アレイを含んで成りうる。

【0038】

カーボンナノチューブが存在しうる固体媒質は一般に繊維、基質、および粒子から選択される少なくとも1つの成分を含んで成り、その各々は金属、セラミック、および／またはポリマー物質を含んで成りうる。固体媒質においては、カーボンナノチューブは、100ミクロンまでの直径を有するものなどの繊維、基質、および粒子に相互接続および／または接続され、ナノ膜を形成する。

【0039】

粒子サイズは、数分布によって、たとえば、特定のサイズを有する粒子の数によって決定される。この方法は通常、校正光学顕微鏡、校正ポリスチレンビーズ、および校正走査型力顕微鏡もしくは走査型電子顕微鏡または走査型トンネル顕微鏡および走査型電子顕微鏡など顕微鏡技術によって測定される。本明細書に記載されているサイズの粒子を測定する方法は、ウォルター (Walter) C. マッククロンズ (McCrone's) ら、The Particle Atlas、(小粒子識別用技術の百科事典 (An encyclopedia of techniques for small particle identification))、第I巻、原理と技術 (Principles and Techniques)、第2版 (Ann Arbor Science Publishers) において開示されており、これは参照することにより本明細書に含まれる。

【0040】

本発明の異なる態様においては、固体媒質のポリマー物質は単一または多成分ポリマー (多成分ポリマーが少なくとも2種類のガラス転移温度または融解温度を有する場合に有利)、ナイロン、ポリウレタン、アクリル、メタクリル、ポリカーボネート、エポキシ、シリコーンゴム、天然ゴム、合成ゴム、硫化ゴム、ポリスチレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、NOMEX (ポリーパラフィレンテレフタルアミド)、Kevlarポリ (p-フェニレンテレフタルアミド)、PEEK (ポリエステルエステルケテン)、Mylar (ポリエチレンテレフタレート)、バイトン (バイトンフルオロエラストマー)、ポリエトラフルオロエチレン、ポリエトラフルオロエチレン)、ポリ塩化ビニル (PVC) などハロゲン化ポリマー、ポリエステル (ポリエチレンテレフタレート)、ポリプロピレン、およびポリクロロプレンを含んでなる。

【0041】

本明細書に記載されている多成分ポリマーの少なくとも2種類のガラス転移温度または融解温度は、物質が非弾性変形を有する温度に加熱することによって測定される。

【0042】

本発明の態様においては、固体媒質のセラミック物質は以下の少なくとも1つ、すなわち、炭化ホウ素、窒化ホウ素、酸化ホウ素、リン酸ホウ素、スピネルまたはガーネット構造を有する化合物、フッ化ランタン、フッ化カルシウム、炭化ケイ素、炭素、およびその同素体、酸化ケイ素、ガラス、水晶、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、酸化ジルコニウム、炭化ジルコニウム、ホウ化ジルコニウム、窒化ジルコニウム、ホウ化ハフニウム、酸化トリウム、酸化イットリウム、酸化マグネシウム、酸化リン、コーディエライト、ムライト、窒化ケイ素、フェライト、サファイア、ステアタイト、炭化チタン、窒化チタン、ホウ化チタン、およびその組合せを含んでなる。

【0043】

本発明の別の態様においては、固体媒質の金属物質は以下の少なくとも1つ、すなわち、アルミニウム、銅、コバルト、金、プラチナ、シリコン、チタン、ロジウム、インジウム、鉄、パラジウム、ゲルマニウム、スズ、鉛、タングステン、ニオブ、モリブデン、ニッケル、銀、ジルコニウム、イットリウム、および、鉄の合金、すなわち鋼を含むその合金を含んでなる。

【0044】

カーボンナノチューブが存在しうる液体媒質としては、水、油、有機および無機溶媒、および窒素および二酸化炭素の液体形態が挙げられる。

【0045】

カーボンナノチューブが存在しうる気体媒質としては、空気、またはアルゴン、窒素、ヘリウム、アンモニア、および二酸化炭素から選択される気体が挙げられる。

【0046】

本開示の1つの態様は、炭素環のスクロール管状または非管状ナノ構造を有するカーボンナノチューブの使用に関する。これらのカーボンナノチューブは通常、シングルウォール、マルチウォール、またはその組合せであり、さまざまな形態をとりうる。たとえば、本開示において使用されるカーボンナノチューブは、ナノホーン、ナノらせん、樹状、木、スパイダーナノチューブ構造、ナノチューブYジャンクション、および竹の形態から選択される形態を有しうる。かかる形状は一般にナノ膜用のカーボンナノチューブの使用に加える傾向がある。上記の形状は、そのいずれもが参照によって本明細書に含まれる、M. S. ドレスセルハウス (Dresselhaus)、G. ドレスセルハウス (Dresselhaus)、およびP. アボリス (Avouris) 編、カーボンナノチューブ：合成、構造、特性、および用途、応用物理学におけるトピックス (Carbon Nanotubes: Synthesis, Structure, Properties, and Applications, Topics in Applied Physics)、第80巻、2000年、シュプリングァー・フェアラーク (Springer-Verlag)、および「カーボンナノスクロールへの化学的ルート (A Chemical Route to Carbon Nanoscrolls)」、リサ (Lisa) M. ビクリス (Viculis)、ジュリア (Julia) J. マック (Mack)、およびリチャード (Richard) B. カナー (Kaner)、Science 28 (2003年2月、299) においてより具体的に規定されている。

【0047】

前述されているように、カーボンナノチューブは所望の化学的または生物学的活性を達成するように機能化されうる。本明細書で使用される機能化カーボンナノチューブは、カーボンナノチューブの表面に付着された無機および／または有機化合物を含んでなるものである。

【0048】

有機化合物は、直鎖基または分岐基、飽和基または不飽和基を含んで成りうる。かかる有機化合物の非限定的例としては、カルボキシル、アミン、ポリアミド、ポリ両親媒性物質、ジアゾニウム塩、ピレニル、シラン、およびその組合せから選択される少なくとも1つの化学基が挙げられる。

【0049】

無機化合物の非限定的例としては、ホウ素、チタン、ニオブ、タングステン、およびその組合せの少なくとも1つのフッ素化合物が挙げられる。無機化合物および有機化合物はハロゲン原子またはハロゲン化合物を含んで成りうる。

【0050】

本発明の態様においては、機能化カーボンナノチューブは、上記の無機基および有機基のいずれか1つまたはいずれかの組合せを含んでなる。これらの基は一般にカーボンナノチューブの端に位置しており、かつ場合により重合されている。

【0051】

たとえば、機能化カーボンナノチューブは、カーボンナノチューブの表面上および／またはナノ構造物質の少なくとも1つの面積上の官能基の組成および／または密度における非均一性を含んで成りうる。同様に、機能化カーボンナノチューブは、カーボンナノチューブの表面上および／またはナノ構造物質の少なくとも1つの面積上の官能基の実質的に均一の勾配を含んで成りうる。

【0052】

本開示の1つの態様によれば、カーボンナノチューブは、ACまたはDC電磁場などで、所望の特性を達成するのに十分なレベルに荷電されている。所望の特性としては、ナノチューブの表面のコーティングの促進、またはカーボンナノチューブに接触または隣接する流体中に存在する汚染物質の破壊、改変、除去、または分離における補助が挙げられる。「除去」は、以下の機序、すなわち、サイズ排除、吸収、および吸着の少なくとも1つを意味すると理解される。

【0053】

また、荷電は、以下の方法のいずれか1つ、すなわち、化学的、照射、容量荷電、またはカーボンナノチューブに隣接した、かつ／またはそれを通じた流体流を用いて起こりうる。ナノチューブの荷電は、上記の機能化工程の前またはそれと同時に起こりうる。

10

【0054】

ナノチューブの荷電は、金属および／またはポリマー物質によるそのコーティングを促進させる傾向がある。カーボンナノチューブを被覆するのに使用されうるかかる金属物質の例としては、金、プラチナ、チタン、ロジウム、イリジウム、インジウム、銅、鉄、パラジウム、ガリウム、ゲルマニウム、スズ、鉛、タングステン、ニオブ、モリブデン、銀、ニッケル、コバルト、ランタン基の金属、およびその合金が挙げられる。

【0055】

カーボンナノチューブを被覆するのに使用されうるかかるポリマー物質の例としては、多成分ポリマー（多成分ポリマーが少なくとも2種類のガラス転移温度または融解温度を有する場合に有利）、ナイロン、ポリウレタン、アクリル、メタクリル、ポリカーボネート、エポキシ、シリコーンゴム、天然ゴム、合成ゴム、硫化ゴム、ポリスチレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、N o m e x（ポリパラフィレンテレフタルアミド）、K e v l a rポリ（p-フェニレンテレフタルアミド）、P E E K（ポリエステルエステルケテン）、M y l a r（ポリエチレンテレフタレート）、バイトン（バイトンフルオロエラストマー）、ポリテトラフルオロエチレン、ポリ塩化ビニル（PVC）などハロゲン化ポリマー、ポリエステル（ポリエチレンテレフタレート）、ポリプロピレン、およびポリクロロプレンが挙げられる。

20

【0056】

照射を用いてカーボンナノチューブを処理し、かつ／またはカーボンナノチューブ、ナノ構造物質を融合する場合、光子、電子、核、およびイオン粒子から選択される少なくとも1種類の粒子が、少なくとも1つの炭素-炭素および／または炭素-ドーパント結合を破壊するに十分な量でカーボンナノチューブ上に含浸し、ナノ構造物を活性化し、またはイオン注入を実行する。

30

【0057】

流体から駆除されうる汚染物質としては、病原体、微生物、DNA、RNA、天然有機分子、かび、菌類、天然および合成毒素（化学および生物兵器など）、重金属（ヒ素、鉛、ウラン、タリウム、カドミウム、クロミウム、セレンウム、銅、およびトリウムなど）、内毒素、タンパク質、酵素、およびマイクロおよびナノ粒子汚染物質が挙げられる。

【0058】

本開示は、流体からこれら汚染物質の少なくとも1つを除去することによって液体および気体の両方を含む流体を浄化する方法にも関する。かかる方法においては、汚染流体は上記のナノ構造物質、たとえば、含浸、機能化、ドーピング、荷電、被覆、および照射ナノチューブ、およびその組合せから選択される欠陥カーボンナノチューブを含んでなるナノ構造物質と接触される。

40

【0059】

本明細書に記載されている方法によれば、活性化ナノ構造物質は、きれいにされるべき液体の生物または化学的活性を改変する成分で処理および／または活性化されうる。

【0060】

また、この方法は、処理液体から汚染物質を部分的に分離し、汚染物質および処理液体の明らかな流体流を形成することを可能にする。

50

【0061】

1つの実施形態においては、きれいにされるべき流体は、水、天然および／または合成石油、およびその副産物、体液、食料品、アルコール飲料、および医薬品などの液体である。

【0062】

石油製品に関して、1つの主な問題は、貯蔵中の石油における細菌の潜在的増殖である。これは従来、特に航空機燃料の問題である。かかる細菌の存在は、燃料を激しく汚染し、最終的に燃料を破壊する。したがって、液体浄化の分野の懸念の主要点は、天然および／または合成石油製品からの細菌の駆除である。天然および／または合成石油およびその副産物としては、航空機、自動車、船舶、および機関車用燃料、ロケット燃料、工業および機械油および潤滑油、および暖房用石油および気体が挙げられる。

10

【0063】

本明細書に記載されている体液は、動物、ヒト、植物由来であり、またはバイオ技術の処理において使用される成長ブロス、または医薬品を含んでなる。1つの実施形態においては、体液は血液、人乳、および両方の成分を含んでなる。

【0064】

別の実施形態においては、食料品は、乳および卵などの動物副産物、果汁、天然シロップ、料理または食品産業において使用されるオリーブ油、ピーナッツ油、花油（ヒマワリ、ベニバナ）、および植物油などを含むがこれらに限定されない天然および合成油を含んでなる。

20

【0065】

食料品に加えて、本発明の1つの実施形態は、アルコール飲料の処理を含む。まさにその性質上、アルコール飲料の発酵は、結果として完成品における汚染をもたらす。たとえば、酸素はワイン製造工程の1つの望ましくない汚染物質である。酸素はワインを腐らせうるが、瓶には亜硫酸塩剤が通常、添加されてこの過剰な酸素を吸収または除去する。しかし、健康上の懸念により、亜硫酸塩剤は避けるべきである。本発明の1つの態様は、上記のナノ構造物質を用いて、酸素などの望ましくない汚染物質を除去するワインを処理するステップを含む。この工程はワインにおける亜硫酸塩剤の必要を排除し、または実質的に削減するため、ワイン産業が本明細書に記載されている浄化工程から恩恵を受けるであろう。

30

【0066】

本発明の別の態様は、空気をきれいにして上記の汚染物質を除去する方法を含む。

【0067】

本開示は、本明細書に記載された活性化ナノ構造物質と汚染水を接触させることによって水を浄化する方法にも関する。塩、細菌、およびウイルスなどの汚染物質は、少なくとも3ログ（99.9%）、たとえば少なくとも4ログ（99.99%）、および少なくとも5ログ（99.999%）、および現在利用可能な検出レベル、すなわち7ログ（99.99999%）までなどのレベルに水から除去されうるということが明らかにされている。

【0068】

汚染物質はさらに、病原体、微生物、DNA、RNA、天然有機分子、かび、菌類、天然および合成毒素、重金属（たとえば、ヒ素、鉛、ウラン、タリウム、カドミウム、クロミウム、セレンウム、銅、およびトリウム）、内毒素、タンパク質、酵素、およびマイクロおよびナノ粒子汚染物質を含んでなる。水の脱塩（すなわち、汚染物質が塩を含んでなる場合）にも関する。

40

【発明を実施するための最良の形態】

【0069】

発明の詳細な説明
流体滅菌

本明細書に記載されているように、カーボンナノチューブ、金属酸化ナノワイヤー、および金属ナノワイヤーなどナノ構造物質を組込む流体滅菌は、少なくとも部分的に、集中

50

的な力を使用して微生物および他の病原体を殺傷する独自のナノスケール殺傷力圏の形成における結果であると考えられている。

【0070】

たとえば、流体の滅菌中、微生物は、本明細書に記載されているナノ物質と接触し、微生物にかけられる集中的な力を引き起こし、これにより開放した細胞膜が破壊され、内細胞損傷をもたらし、それによって微生物を破壊し、またはその生殖能を破壊すると考えられている。このようにして、液体は微生物から滅菌されうる。一般的な微生物は長さが1ー5ミクロンであり、そのようなものとしてカーボンナノチューブなどナノ構造物質よりも少なくとも100倍の大きさである。これら生物の既知の例としては、大腸菌 (*E. coli*)、クリプトスポリジウム・パルバム (*Cryptosporidium parvum*)、ジアルジア・ランブリア (*Giardia lamblia*)、赤痢アメーバ (*Entamoeba histolytica*)、およびその他多くが挙げられる。

10

【0071】

大きなサイズ差により、ナノスケールでの力は、たとえば、規模の順によって、顕微鏡技術に基づくよりも集中的に何度もかけることができる。ほぼ同じように、集中的な光がレーザーに強度を与え、集中的な力は微生物のナノスケールの破壊に強度を与える。したがって、他のスケールでの機械的および電氣的力は有効であるには小さすぎるか、またはきわめて集中的であり、ナノスケールは有効に用いて微生物を効果的に破壊することができる。

20

【0072】

このナノレジメンにおいて微生物を破壊する能力があると考えられている機序は、独立して、または互いに呼応して作用しうる。かかる機序の非限定的例としては以下が挙げられる。

【0073】

- ・風船を破壊するピンとほぼ同様に、集中的な力による細胞壁の機械的破壊

【0074】

- ・DNA、RNA、タンパク質、細胞小器官等への内細胞損傷を引き起こす振動波

【0075】

- ・細胞壁および輸送チャンネルへの損傷を引き起こす振動波

【0076】

- ・ファン・デル・ワールス力

30

【0077】

- ・電磁力

【0078】

- ・ナノ構造物質の近くでの水素結合の分布による細胞壁およびDNAの損傷

【0079】

- ・細胞構造に損傷を及ぼす液体中の衝撃波からのバブルキャビテーション

【0080】

通常の微生物細胞内の浸透圧は周囲の液体のものよりも高いため、非生理的条件を仮定すれば、細胞壁へのわずかな損傷でも高圧から低圧への細胞流の内容として全体の破壊を誘発しうる。

40

【0081】

通常、飲料水を処理するために考えられた膜の処理能の評価における代用として使用されるMS2は、直径0.025 μm および20面体の形状を有する一本鎖RNAウイルスである。そのサイズおよび形状は、ポリオウイルスおよび肝炎など他の水関連性ウイルスとほぼ同じである。

【0082】

液体脱塩

本開示による液体脱塩の工程もカーボンナノチューブ、金属酸化ナノワイヤー、および金属ナノワイヤーなどナノ物質に基づく。ナノ物質で液体を脱塩することが可能である考

50

えられている1つの機序は、2つのナノ物質膜間のイオン分離勾配の生成である。1つのナノ物質膜が正電荷を有し、他の膜が負電荷を有する場合、これら2つのプレート間の電荷差は、そのゾーンの片側へ移動する陽イオンおよび他方へ移動する陰イオンを引き起こすイオン分離勾配を生成する。ナノ物質膜上のきわめて大きい表面積は、きわめて高いキャパシタンスを生成するのに使用され、きわめて有効なイオン勾配の生成を可能にする。

【0083】

脱塩ユニットは、互いから電氣的に単離される2つもしくはそれ以上の支持導電性ナノ物質膜の平行層を組込みうる。この層状化ナノ構造物質は、Y接合チャンネルの交差点でアセンブリされうる。2つもしくはそれ以上の層は、静的モードで、または動的モードで電氣的に荷電されうるが、ここで各プレート上に電荷は連続的に正から中立ないし負から中立への—1つは正に、かつ1つは負に—指標化し、それらの間に塩トラップを生成するか、または構造物における移動コンデンサを電氣的に生成し、水の流れとは異なる方向での塩の移動を引き起こす。濃縮塩水はY接合部の一方の脚から水路が開かれ、淡水は他方の脚から水路が開かれることになる。

【0084】

機器の形状、容量、および形態は、残留物、適応機能、および最適化アルゴリズムの方法など複雑な分析を用いて流体力学的流のために最適化されうる。機器の基本ユニットは広い接合部形状で変形となり、ここで液体の大部分は継続して主要チャンネルに沿って流れるが、少量の液体は出口チャンネルを通じて取出される。

【0085】

かかる基本ユニットの多くは、同時にかつ／または連続して使用され、塩濃度を削減し、加工される全体の液体を増大させうる。塩—液体流出液をさらに濃縮させるには、加熱ポンプを使用し、近超飽和塩液体を冷却し、入ってくる原水を加熱する。かかるシステムは積極的にモニタリングされ、冷却が適用される前に適切な濃度を確実にすることができる。塩結晶化は、飽和溶液がより冷たい温度でより迅速に超飽和状態へ転移するため、溶液が冷却されると起こる。塩水においては、これは塩水における塩の結晶化を加速する効果を有する。

【0086】

結晶化塩または濃縮塩水混合物を含むが限定されない汚染物質を除去するなど、脱塩工程の最終生成物は、少なくともログ4（99．99％）およびログ7（99．99999）までかつこれを含むレベルにほぼ塩を含まない液体となり、中間レベルがログ5およびログ6の純度を有する。1つの実施形態においては、冷凍保存された塩水保持タンクは結晶化を加速し、残った液体が工程の中を再び通されることを可能にする。

【0087】

本開示の1つの態様によれば、生体材料および他の不純物または汚染物質の影響を受けやすい表面は、ナノ物質の層において被覆され、微生物の増殖を予防しうる。かかるナノ物質の非限定的例としては、銀、または酸化アルミニウムなど抗菌特性を有する要素または化合物で機能化されている機能化ナノチューブナノ構造物質が挙げられる。

【0088】

本発明はさらに、本明細書に記載されているナノ構造物質を製造する方法に関する。かかる方法としては、有機溶媒蒸発工程、金属酸化ナノワイヤー工程、幾何学的編み（geometric weave）工程、真空ろ過工程、およびナノ構造重合工程が挙げられる。これらの工程の各々は、それらに組込まれた、またはそれらから成るナノ物質でナノ構造物を生成しうる。さらに、これらの膜の各々は、本明細書に記載された液体浄化処理技術を可能にする。

【0089】

1つの実施形態においては、本開示により製造される膜は、高い液体流量を可能にする高い浸透性を有する。ナノ物質膜の浸透性は一般にその厚さおよび繊維密度によって制御される。したがって、低繊維密度の極薄、超強度ナノ物質膜が、厚いナノ物質膜よりも流体の流れに対してより透明である。したがって、本発明の1つの実施形態は、主に高強度

10

20

30

40

50

カーボンナノチューブから成る融合ナノ物質膜に関する。

【0090】

その構造的支持および他の存在物への結合を強化するには、全体のナノ物質膜を金属、プラスチック、またはセラミックで被覆することができる。欠陥は、化学的、電氣的、熱的または機械的手段によってナノ物質膜から除去され、その構造的完全性を強化しうる。

【0091】

全体のナノ物質膜は、静的または動的電磁場で刺激され、微調整されると一部の分子の特定の吸収または拒絶を引き起こしうる。高周波電気刺激は、超音波自己浄化効果を生成しうる。ナノチューブ、ナノ構造物質の強度、ヤング率、導電率、および圧電効果を利用することによって、汚染を削減するために、物質を全体として刺激して振動させ、表面から汚染物を排出することができる。

10

【0092】

開始カーボンナノチューブは一般に、ナノチューブの製造後に残留する残留鉄粒子または他の触媒粒子を含有する。一部の実施形態においては、ナノ構造物質を形成する前に、酸および／または過酸化物あるいはその組合せなど強力な酸化剤でカーボンナノチューブを洗浄することが望ましい。強力な酸化剤での洗浄時には、カーボンナノチューブにおいて一般に存在する鉄は、 Fe^{++} および Fe^{+++} に酸化される。また、酸洗浄は、ナノチューブの表面化学に干渉する無定形炭素を除去する利点を有する。

【0093】

不動態化、または正荷電鉄は、正味負電荷を有することが周知である微生物の除去において役割を果たすと考えられている。この理論に基づき、微生物は機能化された正荷電ナノチューブに引き付けられる。ここで部分的に鉄で充填およびドーピングされる荷電カーボンナノチューブの結果として生じる電場は、生物病原体を破壊する。酸洗浄からでき、かつナノチューブ内にトラップされた正荷電水素イオンも電場の一因となる。

20

【0094】

この酸洗浄手順は、これら機能化カーボンナノチューブおよび結果として生じるカーボンナノ構造物質の高い程度の親水性の一因となるとも考えられている。洗浄されたカーボンナノチューブは一般に、以下の工程の1つを用いてナノ構造物質に加工される。注目されるのは、以下の工程、および実施例において記載されている工程のいずれか1つを用いて、多層または単層状に関係なく、ナノ構造物質を生成することができる点である。

30

【0095】

有機溶媒蒸発工程

有機溶媒蒸発工程においては、滅菌膜などナノ構造物質は接着剤でナノ物質を結合することによって製造されうる。接着剤の例は、グルーなどの化学的接着剤、金などの金属接着剤、およびアルミナなどのセラミック接着剤である。ナノ物質の例は、カーボンナノチューブ、シリコンおよび他の金属ナノワイヤー、および金属酸化ナノワイヤーである。

【0096】

本工程によれば、カーボンナノチューブはキシレンなどの溶媒と混合されうる。1つの実施形態においては、この分散液は次に5-10分間、超音波バスに配置され、カーボンナノチューブを解凝集する。結果として生じる分散液は次に繊維紙にたらされ、場合により適度の熱を加えて、有機溶媒を蒸発させる。蒸発とともに、カーボンナノチューブは繊維紙上に溶着する。また、他のポリマー物質が有機溶媒に添加され、結果として生じる構造物の機械的安定性を強化し、この接着物質の濃度は使用される溶媒の重量の0.001-10%でありうる。

40

【0097】

金属酸化ナノワイヤー工程

本開示の別の態様においては、滅菌膜が金属酸化ナノワイヤーで製造される。この種類の工程においては、金属メッシュが酸化環境下に230-1000℃の範囲の温度に加熱され、金属メッシュの金属ワイヤ上に金属酸化ナノワイヤーを生成する。金属メッシュは、銅、アルミニウム、およびシリコンから選択される金属を含んで成りうる。金属酸化ナ

50

ノワイヤーは、直径10－30ナノメートルを含む、直径1－50ナノメートルなど、直径1－100ナノメートルの範囲のサイズでありうる。有利には、メッシュの表面は摩耗され、良好な基質付着を生成するナノチューブアリコート沈殿物を受入れて保持する表面テクスチャを提供する。

【0098】

本工程により製造される膜は、単独で使用されて液体を滅菌し、その全体的な構造を強化するのに処理され、またはさらなる活性のためにカーボンナノチューブまたは他のナノ構造物で被覆されうる。カーボンナノチューブのコーティングにおいては、十分に分散したシングルまたはマルチウォールカーボンナノチューブの溶液が、それらが金属酸化物表面に付着するメッシュの中を通過する。この結果として生じるメッシュは、構造的完全性を強化させるために、熱的、機械的（たとえば、油圧によって）、化学的に、または迅速なレーザー加熱によって処理してもしなくてもよい。また、その構造的活性を強化するために金属、セラミック、プラスチック、またはポリマーで被覆してもしなくてもよい。結果として生じるメッシュは、適切な設計基準に達するまでの時間、このナノチューブ溶液処理にかけることもできる。カーボンナノチューブおよび／またはこの膜の支持へのさらなる改変を行い、それらが生体分子と化学的に反応し、それらを破壊し、改変し、除去し、または分離するように物質を機能化することができる。

10

【0099】

本工程においては、銅メッシュなど金属メッシュが酸化環境下に化学的蒸着チャンバーに配置される。反応ゾーンは、230－1000℃の範囲に加熱され、金属酸化ナノワイヤーの生成をもたらすが、チャンバーは30分ないし2時間、大気中にある。一部の実施形態においては、液体中のカーボンナノチューブの分散液は、次いで形成された構造物の中を通過されうる。この処理の後、全体の構造物は真空下、1000℃で熱アニールされ、全体的な構造を強化しうる。カーボンナノチューブは、場合により、硝酸およびイオウ酸の溶液中で処理され、カーボンナノチューブ上にカルボキシル官能基を生成しうる。

20

【0100】

蒸着工程

本工程においては、滅菌膜がカーボンナノチューブ分散液の真空蒸着によって製造され、少なくとも1つの基質上にカーボンナノチューブの層を配置することができる。超音波処理を用いて蒸着中のカーボンナノチューブの分散および／または解凝集を補助することができる。

30

【0101】

蒸着法の想定される工程は、適切な有機溶媒または液体中にカーボンナノチューブを配置し、超音波処理により蒸着中のカーボンナノチューブを分散するステップを含んでなる。溶液は、超音波処理で装備された真空ろ過機器中に配置され、さらに確実にカーボンナノチューブが解凝集されるようにできる。溶液中のナノ物質は、その孔が十分に小さくカーボンナノチューブをトラップするが、汚染流体から除去されるべき微生物よりも大きい基質に蒸着されうる。結果として生じるナノメッシュ（NanoMesh）（商標）は、支持金属メッシュを使用することによって除去され、除去中の平面度を維持することができる。カーボンナノチューブをトラップするのに使用される多孔基質も酸または塩基中で溶解することによって除去され、または酸化され、自立カーボンナノチューブ膜を残しうる。

40

【0102】

本開示の態様によれば、真空ろ過工程は電磁場を用いて改変され、蒸着中のナノ構造物を整列させることができる。既述された工程におけるように、ナノ構造物は適切な溶媒（有機溶媒または液体）に配置され、超音波処理され、それらを溶媒中に分散させ、これは次いで超音波プローブを装備した真空ろ過装置に配置され、それらが蒸着中に凝集化しないようにする。既述された工程とは異なり、センチメートルサイズまでの細孔サイズを有するものなど多孔基質に混合物が真空蒸着される場合、電磁場が適用されてその蒸着中のナノ構造物を整列させる。この電磁場は任意に隣接した3つの空間で調節され、結果とし

50

て織った、または部分的に織った一部分的に不織の構造物がもたらされうる。次いで、結果として生じる膜は支持金属メッシュの助けを借りて除去され、全体の膜は酸に浸漬され、犠牲的な支持として作用した初期基質を除去する。

【0103】

真空ろ過工程は、ナノ構造物の多層を生成するために改変されうる。ナノ構造物の懸濁液は、基質上の有機溶媒中で形成されうる。たとえば、きわめて低い真空圧によって、溶媒は除去され、その後に、20ミクロンの銅メッシュなど、銅メッシュ上にきわめて薄いナノチューブの層が残る。次いで、この層は保存処理され、かつ乾燥される。この工程は、ナノメッシュ (NanoMesh) (商標) のいくつかの層を生成するために複数回反復されうる。

10

【0104】

エアレイド (Air Laid) 製造工程

この工程においては、ナノ構造物は、気体または液体溶液に関係なく、均一に分散されうる。たとえば、密閉チャンバーにおいて、多数のナノ構造物がファンとして放出され、気体を攪拌し、チャンバー内にカーボンナノチューブの分散をもたらす。この気体は、分散を引き起こすに十分な頻度で機械的に調節もされうる。カーボンナノチューブがチャンバーに添加されると、それらは、高い表面積電極を通じてナノチューブを通すことによって、誘引ファン・デル・ワールス力を克服するのに十分な電圧に荷電される。これは凝集を妨げることになる。次に、ナノチューブ含浸気体が気体相蒸着に備える。異なる圧力をかけることによって、気体を接地メッシュ電極へ通す。ナノチューブはこの接地メッシュ電極に粘着する。この時点で、カーボンナノチューブ、ナノ構造物質はその最も壊れやすい状態にある。次に、ナノ構造物質は電離放射線に曝露され、化学的蒸発蒸着 (CVD)、プラズマ助長化学的蒸発、蒸着 PECVD、または物理的蒸発蒸着 (PVD) 処理法によって、または化学的融合法によって融合および／または表面を被覆する構造物をもたらす。次いで、表面は除去され、かつナノ構造物を覆うのに十分なスパッター工程にかけられ、それらを固定させる。次いで、結果として生じる膜は、表面の電荷を逆転させることによって表面から除去され、膜を捨てることができる。

20

【0105】

ナノ構造物重合工程

重合工程においては、ポリマー結合を通じて互いにナノ構造物を結合することによってナノ物質膜が製造される。

30

【0106】

この方法の想定される工程は、最初に多数のナノ構造物 (カーボンナノチューブなど) の酸溶液中での超音波処理を含む。カーボンナノチューブを使用する場合、酸はナノチューブの長さを切断し、それらの端を曝露し、カルボキシルイオン (COOH) をそれらに移植することを可能にするように作用する。次いで、結果として生じるカルボキシル機能化生成物は濃縮酸で処理され、縮合など架橋結合のためにより反応性であるカルボキシル基 (COOH) を生成する。次いで、COOH機能化ナノ構造物はカルボキシル基で反応し、2つのナノ構造物を架橋結合させる。次いで、この混合物は全体の架橋結合ネットワークが形成されて融合ナノ物質膜となるまで反応が可能となる。

40

【0107】

水中の細菌を測定するための方法

大腸菌 (E. coli) 細菌およびMS-2バクテリオファージなどの細菌を用いた一般に上述された方法を用いて製造された試料で多数の試験を行った。MS-2はオス特集、一本鎖RNAウイルスであり、直径が0.025 μmおよび20面体の形状を有する。そのサイズおよび形状は、ポリオウイルスおよび肝炎など他の水関連性ウイルス、およびヒト以外の病原体とほぼ同じである。

【0108】

以下の実施例における大腸菌 (E. coli) およびMS-2バクテリオファージおよび水からの細菌の除去試験に使用されたプロトコールは、以下と一致し、かつ一般に忠実

50

に守られた。すなわち (i) MS-2 バクテリオファージ増殖／計数の標準操作手順 (Standard Operating Procedure for MS-2 Bacteriophage Propagation/Enumeration)。マルゴリン (Margolin)、アロン (Aaron)、2001年、ニューハンプシャー (New Hampshire) 大学、ニューハンプシャー州 (NH)、ダーハム (Durham)、および (ii) 水および廃水の検査のための標準法 (Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater)、第20版、Standard Methods、1998年。APHA、AWWA、WEF、ワシントン (Washington) D. C.。これらの標準には一般に以下の手順が含まれていた。

10

【0109】

1) チャレンジされるナノ構造物質を保持するように設計された試験ハウジングにナノ構造物質を配置する。ハウジングを締付けてチャレンジ溶液の漏れを防ぐ

【0110】

2) 滅菌排出チューブを滅菌エリレンマイヤー (Erlenmeyer) フラスコにゴムストッパーを用いて接続する。

【0111】

3) 流入ポートを開放し、チャレンジ物質を開放ポートを通じて導入する。

【0112】

4) チャレンジの導入後、流入ポートを閉鎖し、市販のポンプを介して、ハウジングに接続された流出ホースを通じて一定の流れをポンピングする。

20

【0113】

5) すべてのチャレンジ物質が滅菌エリレンマイヤー (Erlenmeyer) フラスコの中へ入り、ポンプが止まる時点まで継続的にポンピングする。

【0114】

6) 15ml 円錐遠心分離管中水またはリン酸緩衝生理食塩溶液 (市販) 9.9ml 中にチャレンジ物質 0.1ml を配置する。

【0115】

7) 15ml 円錐遠心分離管を市販のボルテックスミキサーに配置し、これを約15秒間混合する。

30

【0116】

8) 遠心分離管から混合液約 0.1ml を除去し、これを水またはリン酸緩衝生理食塩溶液 (市販) 9.9ml を含有する第2の遠心分離管に添加し、上記のボルテックス混合を反復する。

【0117】

9) 遠心分離管から混合液 0.1ml を除去し、これをトリプシンソイ寒天 (TSA) プレート、(Remel Cat. No. 01917) 上に配置し、ここで寒天表面にわたって滅菌スプレッダーで広げられうる。表面を15秒間乾燥させた後、市販のインキュベーターに36℃に配置し、18-24時間インキュベートする。

【0118】

10) インキュベーション後、プレートをインキュベーターから除去し、それらをバックリットプレートカウンターに配置する。プレート当たり 25-300 cfu/プレート (1:10, 000 希釈) を有すると思われるプレートをカウントする。対照および被験プレートを同じようにしてカウントした。

40

【0119】

11) カウントされたウイルスまたは細菌の数、およびそれらがカウントされた希釈係数を記録し、プレートカウントの平均はその対応する希釈係数が掛けられ、プレート当りに使用された希釈の量で割られている。この計算は、以下に示されているが、元の試料におけるウイルスまたは細菌の量を示す。

【0120】

50

以下は、MS-2 による試験の実施において使用された手順のより詳しい説明である。

【0121】

1%溶液 $MgCl_2$ (または $CaCl_2$) を最初に所望量の DI 水を $MgCl_2$ (または $CaCl_2$) に添加することによって調製する。典型例は、 $1.0 g MgCl_2 / 99 ml$ DI 水である。溶液は加圧滅菌され、冷却される。

【0122】

次に、リン酸緩衝生理食塩水溶液 ($1 \times PBS$) を所望量の DI 水にリン酸緩衝生理食塩粉末濃縮物を添加することによって調製する。典型例は、 $4.98 g PBS / 500 ml$ DI 水である。この溶液も加圧滅菌され、冷却される。

【0123】

次に、ストレプトマイシン／アンピシリン抗生物質溶液 ($Strep / Amp$) を所望の DI 水に硫酸ストレプトマイシンを添加することによって製造する。典型例は、 $0.15 g Strep / 100 ml$ DI 水である。次いで、アンピシリンナトリウム塩を溶液に添加する。典型例は、 $0.15 g Amp / 100 ml$ DI 水である。この溶液を $0.22 \mu m$ シリンジフィルターを通じてろ過して滅菌容器の中へ入れる。

【0124】

大腸菌 (*E. coli*) 保存培養の調製を最初に所望量のトリプシンソイブロスを製造することによって製造する。以前に製造したストレプトマイシン／アンピシリン抗生物質溶液を $1:100$ の比で T-ソイと混合する ($1.0 ml strep / amp / 100 ml$ T-ソイ)。

【0125】

次に、1%溶液の $MgCl_2$ を $1:200$ の比で添加 ($0.5 ml MgCl_2 / 100 ml$ T-ソイ) 後、大腸菌 (*E. coli*) を $1:10$ の比で添加する ($10 ml$ 大腸菌 (*E. coli*) / $100 ml$ T-ソイ)。本明細書で使用される大腸菌 (*E. coli*) 株は、HS (pF amp) R 株である (挿入 $strep / amp$ 抵抗プラスミドを有する大腸菌 (*E. coli*))。市販 (アメリカン タイプ カルチャー コレクション (American Type Culture Collection (ATCC)) である大腸菌 (*E. coli*) 株 C3000 も使用されうる。

【0126】

次いで、T-ソイブロス／大腸菌 (*E. coli*) 培養を $37^\circ C$ の振とう恒温水槽 (または $37^\circ C$ インキュベーター中のオービタルシェーカー) へ配置し、 $2.5 - 3.0$ 時間 (または大腸菌 (*E. coli*) がその対数増殖期の間中部に達する時点) 強く攪拌する。この攪拌ステップにより、酸素が培養全体に提供され、嫌気性になることがなく、増殖を抑制しない。次いで、培養をインキュベーターから出し、 $10^\circ C$ に保存する。

【0127】

MS2 バクテリオファージ増殖を最初に MS2 の液体培養 (約 $1 \times 10^{10} - 1 \times 10^{11}$ MS2 / $500 ml$ T-ソイブロス) を T-ソイブロスに添加し、次いで $37^\circ C$ に $12 - 18$ 時間インキュベートする。使用した MS2 株は市販の標本であった (ATCC (アメリカン タイプ カルチャー コレクション (American Type Culture Collection)、カタログ番号、15597-B1))。

【0128】

培養を適切なサイズの遠心分離管に移し、以下の条件下に遠心分離する。すなわち、 $10,000 rpm$ 、 $4^\circ C$ 、 10 分間。遠心分離後、ペレットを妨げないように注意して、上清をデキャンティングすることができる。MS2 ストックは一般に $10^\circ C$ に保存される。

【0129】

MS2 計数は一般に以下のようにして行われる。 $1 \times$ 重層を以下を DI 水 $1000 ml$ 中で混合し、煮沸することによって製造する

【0130】

a. 15 グラムの T-ソイブロス

10

20

30

40

50

【0131】

b. 7. 5グラムのバクト寒天

【0132】

c. 5グラムの酵母エキス

【0133】

d. 2. 5グラムのNaCl

【0134】

e. 0. 075グラムのCaCl₂

【0135】

次に、4ないし5mlの重層を試験管の中へ分散し、121℃で、15分間、加圧滅菌し、その後、試験管をオートクレーブから除去し、57℃の水浴に即時使用のために配置し、またはその後の使用のために室温に保存する。貯蔵する場合は、重層を硬化させ、再加圧滅菌される必要がある。重層は、色がきわめて濃く、ほとんど黒になるまで数回のみ、再加圧滅菌されうる。

10

【0136】

当業者は、PBS中の試料で所望の希釈点を達成するために10倍連続希釈をいかにして行うかが分かるであろう。既述された重層を含有する試験管を水浴から除去した直後に、所望の試料を約0. 1mlおよび既述された大腸菌（E. coli）宿主0. 2mlを重層の中へ供給することができる。ストレプトマイシン／アンピシリン抗生物質溶液約30μlを混合培養試料のために添加されうる。希釈試料0. 1mlの注入が追加の10倍の希釈を示すことに注意することが重要である。したがって、10⁻¹希釈の0. 1mlが重層に配置される場合、結果として生じるT-ソイプレート上の希釈は10⁻²である。10⁻¹希釈をプレーティングするためには、元の希釈されていない試料0. 1mlを重層に注入する。10⁰希釈をプレーティングするためには、同量の大腸菌（E. coli）宿主（0. 2ml）を用いて、元の希釈されていない試料1. 0mlを重層に注入する。

20

【0137】

攪拌せずに、希釈試料およびMS2を重層の全体にわたって混合する。重層およびその内容物をT-ソイプレート上に添加し、これは円運動で渦巻いて寒天の表面上に重層を均一に分布する。数分後、重層は、37℃に12－18時間インキュベートされる時点で硬化する。

30

【0138】

インキュベーションが完了すると、MS2プラークは大腸菌（E. coli）ローンにおける円形クリアリングゾーンとして出現する。

【0139】

陽性および陰性の対照が一般にこのアッセイで使用される。陰性対照としては、大腸菌（E. coli）は適切に増殖しているか、かつ何らかのファージまたは細菌汚染が存在するかどうかを判定する大腸菌（E. coli）のみの重層（試料ではない）への添加が挙げられる。これらの因子を判定するのにも使用されうる追加の対照を、T-ソイプレート上に少量の大腸菌（E. coli）宿主（MS2または重層ではない）を配置し、結果として生じるコロニー形態を検査することによって実行されうる。

40

【0140】

陽性対照としては、重層（試料ではない）への大腸菌（E. coli）のみの添加およびその後のプレーティングが挙げられる。重層がプレートの表面上に均一に分布されると、少量のMS2ストックが重層の表面の全体にわたって種々のスポット上に配置される。インキュベーション後、これらスポットにおけるプラークの存在は、大腸菌（E. coli）宿主がMS2ファージによって有効に感染されうることを明確に示している。

【0141】

元の希釈されていない試料におけるPFU/ml（プラーク形成単位/ml）の測定：

【数 1】

$$\text{PFU/ml} = \frac{\text{プレート上の確認プラークの数 (\#)}}{\text{プレートの希釈係数}}$$

たとえば、希釈係数 10^{-8} を有するプレート上で 35 個のプラークが観察された場合は、PFU は以下のとおりである。

【数 2】

$$\frac{35 \text{ プラーク}}{10^{-8}} = \text{元の試料中 } 3.5 \times 10^9 \text{ PFU/ml}$$

【0142】

上述された方法を用いて、かつ以下の試料において例示されているように、細菌とカーボンナノチューブ、ナノ構造物質との間に強い付着力がある。細菌は、超音波処理でカーボンナノチューブ、ナノ構造物質の表面に付着した。大腸菌 (*E. coli*) 懸濁液の同じ付着は、カーボンナノチューブ、ナノ構造物質のナノメッシュを通過すると起こると考えられる。

【0143】

また、細菌細胞の完全性はカーボンナノチューブ、ナノ構造物質と相互作用すると破壊されることが考えられる。たとえば、本明細書に記載されているナノ構造物質を用いる細菌試験は、外皮／細胞壁が完全に破壊された破壊機序を示す。この破壊は、細胞壁の壊滅的な機能不全をもたらす細胞壁の完全性のブリーチ (Breach) により、完全な細胞の内部の浸透圧と細胞の外部の浸透圧との差により起こることは明らかである。したがって、細胞壁／外皮の完全性が危険にさらされると、結果としてその浸透圧の差により細菌の崩壊が生じる。

【0144】

たとえば、実施例 3 は、ろ過液中に存在する遊離細菌 DNA およびタンパク質の存在によって明らかであるように、大腸菌 (*E. coli*) 細菌の破壊を示す。損傷細胞は、実施例 3 に見られるように水流によって消散される。したがって、本発明によるカーボンナノチューブ、ナノ構造物質は完全に細菌を破壊するだけでなく、本発明による物質は生物負荷の増加による汚染はなく、これにより現在使用されている物資よりも長い寿命が提供されうる。

【0145】

本発明をさらに、本発明の単なる例示を目的とする以下の非限定的実施例によって明らかにする。

【実施例】

【0146】

実施例 1：活性化欠陥ナノ構造物質の製造

活性化ナノ構造物質を市販の精製カーボンナノチューブから製造した。これらのナノチューブを 50 ml 円錐遠心分離管中に配置し、これに濃縮硝酸を 45 ml の量まで添加した。管を強く 2-3 分間攪拌し、酸とナノチューブを混合し、次いで 2,500 RPM で 5 分間遠心分離し、ナノチューブをペレット化した。

【0147】

黄色の上清をデカンティングし、硝酸洗浄を反復した。次いで、カーボンナノチューブを水で 2-3 回洗浄し、以下のステップで使用されるイソプロパノールと酸が反応しな

10

20

30

40

50

った点よりも低く酸濃度を削減した。

【0148】

次に、硝酸で洗浄／水でリンスしたカーボンナノチューブ100mgを市販のイソプロパノール原液400mlで添加し、カーボンナノチューブが十分に分散されるまで（約10分間）ブランソン（Branson）900B超音波破碎機80%出力で超音波処理した。さらに、イソプロパノール2リットルを添加して混合物を希釈し、結果として生じる混合液の総量が2.4リットルとなるようにした。この希釈混合液をさらに10分間、超音波処理した。

【0149】

次に、市販の直径200nmの酸化ケイ素ナノ繊維800mgを市販のミキサーにおいて全出力で10分間、市販のイソプロパノール原液500ml中で均質化した。次いで、均質化された混合物を市販のイソプロパノール原液1リットルをさらに添加することによって希釈した。

【0150】

先に調製したカーボンナノチューブと酸化ケイ素ナノ繊維の混合物を混合し、次いで量的十分（Q. S.）な量のイソプロパノールを添加し、4リットルを得た。次いで、この4リットル溶液を「ブランソン（Branson）900B超音波破碎機」80%出力で15分間、超音波処理し、これによりカーボンナノチューブ、ナノ物質の均一の分散が生じた。

【0151】

次いで、4リットル溶液の全体を市販の5ミクロンのポリプロピレン不織融合繊維上の16平方インチ面積へ蒸着した。溶液の約半分を1/2Hgの真空圧下にポリプロピレン繊維に通過させた。次に、溶液の残りの2リットルを5Hgの圧力下に、残りの溶液がポリプロピレン繊維に通過し、カーボンナノチューブ酸化ケイ素懸濁液が繊維上に蒸着されるまで繊維に通過させた。

【0152】

結果として生じるナノ構造物質（ナノメッシュ（NanoMesh）（商標）と称す）をファブリケーターから除去し、室温で2時間、風乾させ、活性化カーボンナノチューブ、ナノ構造物質を形成した。

【0153】

実施例2：大腸菌（E. coli）細菌を含むナノ構造物質の浄化試験

本実施例では、アメリカン タイプ カルチャー コレクション（American Type Culture Collection）（ATCC）から購入された大腸菌（E. coli）細菌保存培養で汚染された水での浄化試験を記載する。

【0154】

実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質を、最初に再構成された大腸菌（E. coli）保存培養ATCC#25922のチャレンジ（ $(4 \times 10^7 \pm 2 \times 10^7)$ コロニー形成単位パーml（cfu/ml））でチャレンジすることによって、バクテリアアッセイを行った。滅菌バイオループ（市販）を用いることによって、再構成ストックのループを除去し、市販の血液寒天プレート上に画線し、12-18時間、36℃にインキュベートした。次いで、培養物をインキュベーターから除去し、純度について検査した。

【0155】

滅菌バイオループ（市販）を用いることによって、インキュベートした培養物のループを除去し、滅菌市販トリプシンソイブロス（Remel cat. No. 07228）10ml中に配置した。次いで、大腸菌（E. coli）を結果として生じるトリプチケースーソイブロス中で一夜増殖させ、 1×10^9 cfu/mlの保存培養を形成した。保存培養1mlをチャレンジ試験に使用される水100mlに添加した。次いで、結果として生じるチャレンジ水を、実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質に通過させた。

【0156】

上記引用された「水および廃水の検査のための標準法 (Standard Methods for the Examination of Water and Waste Water)」に従って試験を行った。上述されたプロトコールに従った試験の結果により、実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質にチャレンジ物質を通過させた場合、6ログ (>99.99995%) 超ないし7ログ (>99.99995%) 超の大腸菌 (E. coli) 細菌の一貫した除去が証明された。

【0157】

試験結果により、水からの細菌の除去のEPA飲用水標準を超える除去レートが証明された。EPA標準は、飲用水を達成するために大腸菌 (E. coli) 細菌の6ログ除去 (>99.99995%) を規定している。大腸菌 (E. coli) 細菌の大きなログ除去による改善された浄化が、かかる試験において、上述したように製造された高濃度の大腸菌 (E. coli) 細菌チャレンジ物質でカーボンナノチューブ、ナノ構造物質をチャレンジすることによって達成されている。高濃度でのかかる試験により7ログを超える除去レートが確認される。実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質の本実施例に記載された試験手順を用いる独立試験では、この物質が大腸菌 (E. coli) 細菌に対する完全なバリアとして証明される。

【0158】

実施例3：滅菌チャレンジ後ろ過液の化学的分析

本実施例では、実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質で、実施例2に記載されているように行われた大腸菌 (E. coli) チャレンジ試験からのろ過液の化学的分析が記載される。本実施例により、本発明によるカーボンナノチューブ、ナノ構造物質を通過する大腸菌 (E. coli) 細菌の破壊による浄化が確認された。汚染物質、(大腸菌 (E. coli) 細菌) の破壊による浄化の証拠は、チャレンジろ過液におけるDNAとタンパク質の存在によって証明された。

【0159】

チャレンジ物質の組成物が 1×10^8 cfu/ml の大腸菌 (E. coli) であったことを除き、実施例2に従ってチャレンジ試験を行った。合計100ml (合計 = 1×10^{10} cfu) のこのチャレンジ溶液を、1/2Hgによる真空圧を用いてカーボンナノチューブ、ナノ構造物質を通じて取出した。大腸菌 (E. coli) チャレンジろ過液を市販の0.45ミクロンミリポアフィルターに通過させることによって対照ろ過液を得た。次いで、対照およびチャレンジの結果として生じるろ過液を市販のスペクトル光度計で分析し、タンパク質とDNAの存在を判定した。被験チャレンジろ過液は濃縮されなかった。しかし、市販のスペクトル光度によるろ過液の分析は、 $40 \mu\text{g/ml}$ のDNAおよび 0.5 mg/ml のタンパク質を示した。非濃縮チャレンジろ過液におけるこれらレベルでのタンパク質およびDNAの濃度は、対照被験物質の6倍の高さであった。これらの濃度によりカーボンナノチューブ、ナノ構造物質によるチャレンジにおける大腸菌 (E. coli) の破壊が確認された。

【0160】

実施例4：MS-2バクテリオファージウイルスで汚染された水での浄化試験

本実施例では、上述された手順を用い、かつ「MS-2バクテリオファージ増殖/計数の標準操作手順 (Standard Operating Procedure for MS-2 Bacteriophage Propagation/Enumeration)、マルゴリン (Margolin)、アロン (Aaron)、2001年、EPA基準プロトコール (EPA Reference Protocol) におけるMS-2バクテリオファージウイルスで汚染された水での浄化試験が記載される。ME-2バクテリオファージウイルスは通常、飲料水の処理用に設計された膜の処理能の評価において使用される (NSF1998年)。本実施例のための圧力チャレンジは、上述されたプロトコールを用いて100mlチャレンジ溶液で行われた。MS-2チャレンジ物質は、上記ステップに従って調製された。

【0161】

本試験では、実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブナノ構造物質から成る80の膜をチャレンジした。使用したチャレンジ物質は、 $4 \times 10^6 \pm 2 \times 10^6$ pfu/mlの濃度にMS-2バクテリオファージウイルスで汚染された水であった。

【0162】

試験した80単位のうち、50単位が5ログ(99.999%)または5ログよりも大きい(>99.9995%)MS-2除去を達成した。残りの30単位は、4ログ(99.99%)または4ログよりも大きい(>99.995%)MS-2の除去を明らかに示した。EPA標準では飲用水を達成するMS-2バクテリオファージの4ログの除去を推奨しているが、より良い感度(より高いログ除去)がMS-2のより高いログチャレンジによるチャレンジによって達成されうると考えられる。MS-2バクテリオファージのより大きなログ除去による改善された浄化が、かかる試験において、上記のように製造された高濃度のMS-2バクテリオファージチャレンジ物質で実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質をチャレンジすることによって達成されている。実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質の独立試験では、この物質がMS-2バクテリオファージに対する完全なバリアとして証明される。

10

【0163】

実施例5：ヒ素(As)で汚染された水での浄化試験

本実施例では、ヒ素で汚染された水での浄化試験が記載される。本試験では、水100ml中150パートパービリオンヒ素の保存溶液を、実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質に通過させた。EPA方法#SM183113Bに従って処理水の試料を分析した。チャレンジろ過液の分析により、本発明によるカーボンナノチューブナノ構造物質に1回、チャレンジ処理水の通過後、ヒ素レベルの86%±5%の低下が確認される。

20

【0164】

実施例6：航空機燃料からの汚染物質の除去

汚染ジェット燃料(JP8)の試料を、ライトパターソン(Wright Patterson)空軍基地における米国空軍研究施設に設置された33,000ガロン貯蔵タンクから得た。収集後、試料をトリプチケースーソイ寒天上に培養し、3種類の細菌、すなわち2種類のバチルス種と1種類のミクロコッカス種を含有することがわかった。試料を各々2リットルの2つの容器に分離した。両方の容器は2つの明らかな層、上部のジェット燃料と下部の水の層を示した。容器Aは、水と燃料との間の界面に激しく汚染された成長層を含有した。容器Bは、わずかな汚染のみを示した。チャレンジ試験細菌を容器Bからの燃料と水の界面から得た。

30

【0165】

チャレンジ試験燃料/水/細菌を強く1分間攪拌することによって達成された均質化の後、燃料/水/細菌チャレンジ混合物200mlを1回、3インチHgの真空圧を用いて、実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブナノ構造物質に通過させた。

【0166】

燃料/水/細菌チャレンジろ過液試料をその燃料-水成分に分離させ、各成分から4つの試験試料を得た。各試験試料を寒天上にプレーティングした。次いで、試料をインキュベートし、37℃に細菌の生育を分析し、かつ試料を室温にインキュベートし、かびの生育を分析した。細菌またはかびの培養増殖は、24時間および48時間の試料のインキュベーション後にチャレンジろ過液試験プレート上には確認されなかった。対照試料は、24時間および48時間でのインキュベーション後に細菌およびかびの生育の活発なコロニーを示した。それらの結果により、実施例1に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質が、試験プロトコールによる測定の限界以上に燃料からの細菌およびかびの除去が達成されたため、燃料中の細菌に対する完全なバリアであったことが確認される。

40

【0167】

実施例7：大腸菌(E.coli)のカーボンナノチューブ、ナノ構造物質との相互作用

50

の試験

実施例 1 に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質を D I 水で 6 回リンスした。リンスしたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質を D I 水中で 10, 000 ppm の濃度に希釈した。

【0168】

大腸菌 (E. coli) 懸濁液の調製：

上述された大腸菌 (E. coli) の培養を純水中 5×10^9 CFU/ml の濃度に調製した。

【0169】

対照スライド試料 # 1 の調製：

調製大腸菌 (E. coli) 懸濁液 1 滴を、硫酸で清浄にして D I 水でリンスした市販のガラス顕微鏡スライド (アメリカン サイエンティフィック プロダクツ (American Scientific Products)、マイクロ スライド (Micro Slides)、プレーン、Cat. M6145、サイズ 75×25 mm) 上に配置した。大腸菌 (E. coli) 懸濁液の液滴を塗布して風乾させ、かつ 4°C に 48 時間、冷凍保存した。技術的に周知のやり方でフレイムを通過させることによって調製スライドを加熱固定した。

【0170】

被験懸濁液の調製：

次いで、上記概要どおり調製した大腸菌 (E. coli) 懸濁液の残りを 2 つのエリレンマイヤー (Erlenmeyer) フラスコ (懸濁液 # 1 および # 2) に分離することによって 2 等分に分けた。

【0171】

被験懸濁液 # 1 の調製：

懸濁液 # 1 を D I 水で大腸菌 (E. coli) の濃度を 2×10^9 CFU/ml に希釈した。

【0172】

被験懸濁液 # 2 の調製：

実施例 1 に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質を懸濁液 # 2 に添加した。懸濁液 # 2 を D I 水で大腸菌 (E. coli) を懸濁液 # 1 と同じ濃度に希釈した。実施例 1 に従って製造されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質の濃度は 625 ppm であった。

【0173】

超音波処理および遠心分離：

懸濁液 # 1 および # 2 をブランソン (Branson) - 2510 超音波破碎機で 3 分間同時に超音波処理した。これらの懸濁液を市販の遠心分離機において 2500 rpm で 2 分間遠心分離し、それらをペレット化し、その後にデカンティングして上清 1 ml を残し (かつペレットを懸濁液 # 1 および # 2 に懸濁) した。次いで、懸濁液 # 1 および # 2 のペレットを下記試料において使用した。

【0174】

試料 # 2：

上記のガラススライド上に配置した懸濁液 # 1 の 1 滴を上記のガラススライド上に配置することによって試料 2 を調製し、19 時間冷凍保存した。19 時間の冷凍保存の後、原子間力顕微鏡 (AFM) を用いて固定せずに試料を調査した。次いで、試料 # 2 を上記と同じ温度で冷蔵庫に 24 時間配置した。24 時間の冷凍保存後、技術的に周知の方法によって、試料 # 2 を熱固定した。グラムクリスタルバイオレット (Gram Crystal Violet) 染料を用いて技術的に周知の方法で試料 # 2 を染色した。次いで、光学顕微鏡で調査した。

【0175】

試料 # 3：

10

20

30

40

50

試料#2の1滴をガラススライド上に配置（および塗布）することによって試料#3を調製した。超音波処理後3時間以内に熱固定を行った。グラムクリスタルバイオレット（Gram Crystal Violet）染料を用いて技術的に周知の方法で試料#3を染色する。試料#3を上記と同じ温度で冷蔵庫に配置した。19時間後、試料#3を冷蔵庫から除去し、固定せずにAFMで分析した。試料#3を冷蔵庫に戻して24時間配置し、その後に顕微鏡検査を行った。

【0176】

試料#4：

懸濁液#2（懸濁液#1ではなく）を使用したことを除き、試料#2について述べたやり方で試料#4を調製した。

10

【0177】

光学顕微鏡検査

試料を1000倍の倍率でオリンパス（Olympus）光学顕微鏡下、および液浸油下に調査した。デジタル画像をオリンパス（Olympus）DP10 CCDで作成した。

【0178】

試料#1と#2（カーボンナノチューブ、ナノ構造物質を含まない細菌の懸濁液）の両方は、スライドの表面全体にわたって均一に分布した大腸菌（E. coli）細胞の画像を明らかに示した（図1および2を参照）。画像は明確な縁を有する細菌を示し、細菌細胞が無傷であったことを示す。その形状の無変化の状態は、冷蔵庫における乾燥状態で保存された2日後に見られた。加熱固定して試料調製後3時間に染色し、または加熱固定して冷蔵庫に乾燥状態で保存した2日後に染色した試料間に細菌細胞の形態における変化は検出できなかった。

20

【0179】

試料#3は、ナノチューブが確認されなかったスライド領域上の細菌の完全な不在を明らかに示した。塗布部の周辺にはほんのわずかなカーボンナノチューブ、ナノ構造物質が確認された。カーボンナノチューブ、ナノ構造物質の大部分は、過剰なバイオレット染色液がスライドから洗われたときにスライドから洗い流されていた。細菌濃縮物がカーボンナノチューブ、ナノ構造物質の境界で確認された（図3）。細菌領域はバイオレットで示されているように粒子を分離する。

30

【0180】

試料#4は、カーボンナノチューブ、ナノ構造物質の境界で大腸菌（E. coli）の存在をも明らかに示すが、画像では不鮮明な斑点として現れる（図4）。

【0181】

原子間力顕微鏡分析

原子間力顕微鏡検査（AFM）は、タッピングモードのビーコディメンション（Veeco Dimension）3100走査型プローブシステムで行った。

【0182】

試料#2は、大腸菌（E. coli）が密にぎっしり詰まっていることを明らかに示した（図5）。すべての細胞ははっきりとした境界を有した。細菌のサイズおよび充填密度の減少は、加熱前（図5）試料#2のAFM像および加熱処理後（図2）のこの試料の光学像を比較すると確認できること注目されたい。

40

【0183】

試料#3は、カーボンナノチューブ、ナノ構造物質内部の一部の細胞を示す（図6）。画像の上中央部における少なくとも1つの個別細胞の存在が明らかである。大腸菌（E. coli）細胞の境界は拡散している。

【0184】

大腸菌（E. coli）細胞の不完全な構造は、3D画像（図7）においても認識可能である。また、われわれにはカーボンナノチューブ、ナノ構造物質内の一部の拡散物質が確認できる。

50

【0185】

試料#4の図10に示されているよりも大きな表面積を調査し、大腸菌(E. coli)細胞のすべてが認識の点を越えて不完全である。しかし、われわれにはカーボンナノチューブ、ナノ構造物質内の拡散大腸菌(E. coli)断片の存在が確認できる。

【0186】

大腸菌(E. coli)およびカーボンナノチューブ、ナノ構造物質のDI水中での超音波処理時に、2つの成分が静電およびファン・デル・ワールス力により凝集した。検出の許す限り、懸濁液中のすべての細菌がカーボンナノチューブ、ナノ構造物質と接触し、付着したことが確認された。懸濁液#2中に自由な大腸菌(E. coli)はもう見られなかった。

10

【0187】

大腸菌(E. coli)細胞の不完全性は、細胞がナノチューブと密接に接触した直後、またはその後間もなく開始した。その結果、細菌はそのはっきりした境界を失ったように見え、細菌の内部内容は細胞から広がったように見えた。この経過の開始は結果的に固定の3時間後に生じ(図6および8)、かつ22時間後には広がりはいくつかの細菌を認識するのが困難であるほどに進んだ(図10)。

【0188】

他に指示がない限り、明細書および特許請求の範囲において使用されている成分の量、反応条件などを表す数字のすべては「約」という表現によってすべての場合に変更されると理解すべきである。したがって、反対が示されていない限り、以下の明細書および添付の特許請求の範囲に記載された数値パラメータは、本発明によって得られることが追求された所望の特性によって変動しうる近似値である。

20

【0189】

本発明の他の実施形態は、本明細書に開示されている本発明の明細および実施の検討から当業者には明らかであろう。明細および実施例は例示としてのみ考察されることが意図されており、本発明の真の範囲および精神は以下の特許請求の範囲によって示されている。

【図面の簡単な説明】

【0190】

図面の簡単な説明

30

【図1】試料1：カーボンナノチューブ、ナノ構造物質を含まない(非超音波処理、48時間後固定)大腸菌(E. coli)を示す光学像である。

【図2】試料2：カーボンナノチューブ、ナノ構造物質を含まない(超音波処理、48時間後固定)大腸菌(E. coli)を示す光学像である。

【図3】試料3：カーボンナノチューブ、ナノ構造物質を含む(超音波処理、3時間後固定)大腸菌(E. coli)を示す光学像である。

【図4】試料4：カーボンナノチューブ、ナノ構造物質を含む(超音波処理、48時間後固定)大腸菌(E. coli)を示す光学像である。

【図5】試料2：カーボンナノチューブ、ナノ構造物質を含まない(超音波処理、非固定)大腸菌(E. coli)を示すAFM像である。

40

【図6】試料#3：カーボンナノチューブ、ナノ構造物質を含む(超音波処理、3時間以内に固定)大腸菌(E. coli)を示すAFM像である。

【図7】試料#3：図6の三次元変換を示すAFM像である。

【図8】試料#3：カーボンナノチューブ、ナノ構造物質を含む(超音波処理、3時間以内に固定)大腸菌(E. coli)を示すAFM像である。

【図9】試料#3：図8の三次元変換を示すAFM像である。

【図10】試料#4：カーボンナノチューブ、ナノ構造物質を含む(超音波処理、非固定)大腸菌(E. coli)を示すAFM像である。

【図11】試料#4：図10の三次元変換を示すAFM像である。

【図12】液体流れによる静止時(左)および振動時(右)の垂直ナノチューブを示す写

50

真である。

【図13】20ミクロンの金属メッシュ超構造物に取付けられたナノ構造物質の縁を示す顕微鏡写真である。

【図14】支持構造物の繊維の周りに巻き付けられる支持超構造物（セルロースアセテート）の細孔におけるナノチューブを示す顕微鏡写真である。

【図15】カーボンナノチューブ、ナノ構造物質の裂けた縁を示す顕微鏡写真である。

【図16】25×25ミクロンの開口に掛かる支持ワイヤに伸ばされ、かつ融合されたカーボンナノチューブ、ナノ構造物質の融合単層を示す顕微鏡写真である。

【図17】自己編みカーボンナノチューブ、ナノ構造物質を示す写真である。

【図18】交点で融合されてナノ構造物質を形成する自立カーボンナノチューブを示す顕微鏡写真である。 10

【図19】自立自己編みナノ構造物質を示す顕微鏡写真である。

【図20】ナノ構造物質におけるカーボンナノチューブ周囲の流体流力学を示すシミュレーションである。

【図21】細菌除去試験の結果を示す画像である。

【図1】

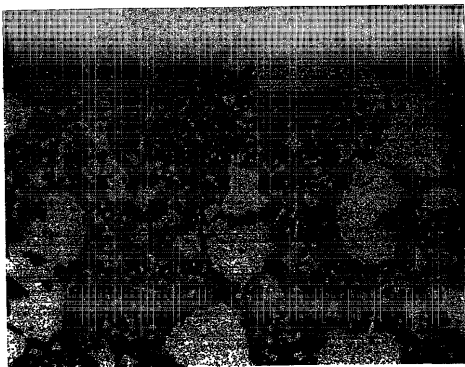


FIG. 1

【図2】

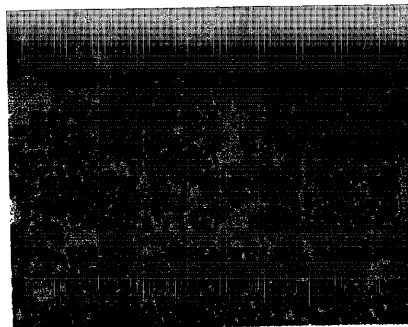


FIG. 2

【図 3】

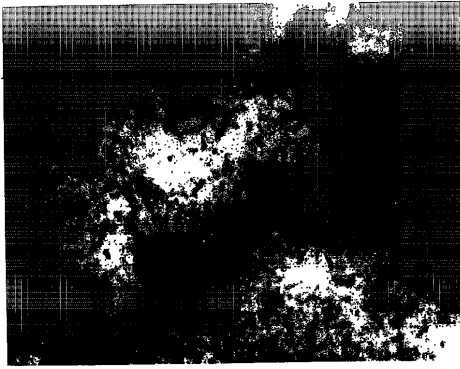


FIG. 3

【図 4】

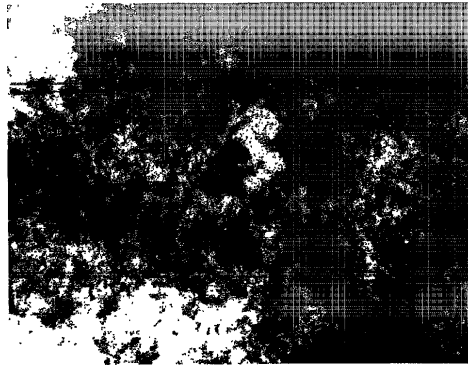


FIG. 4

【図 5】

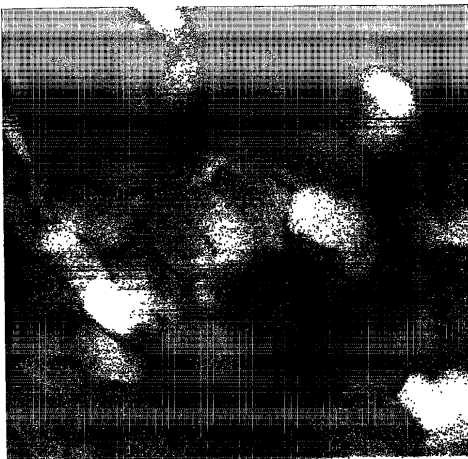


FIG. 5

【図 6】

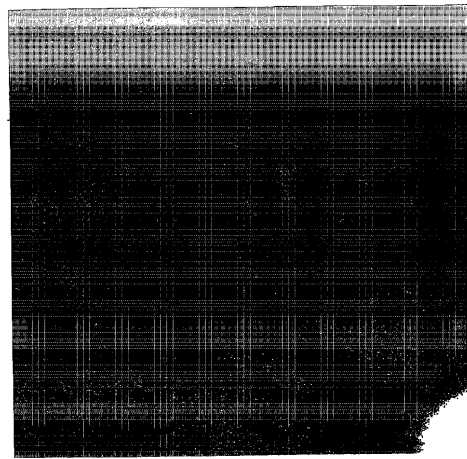


FIG. 6

【図 7】



FIG. 7

【図 8】

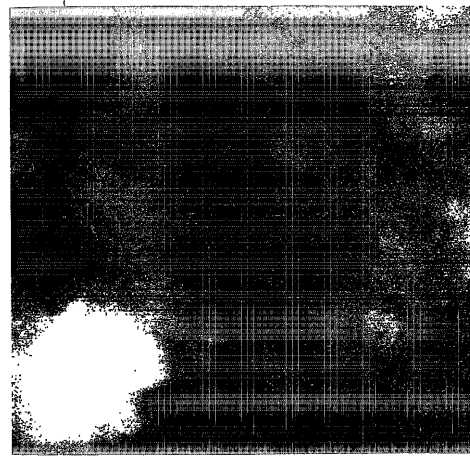


FIG. 8

【図 9】

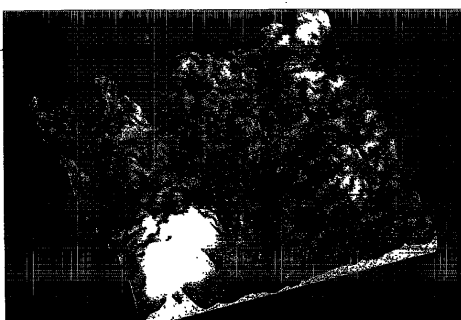


FIG. 9

【図 10】

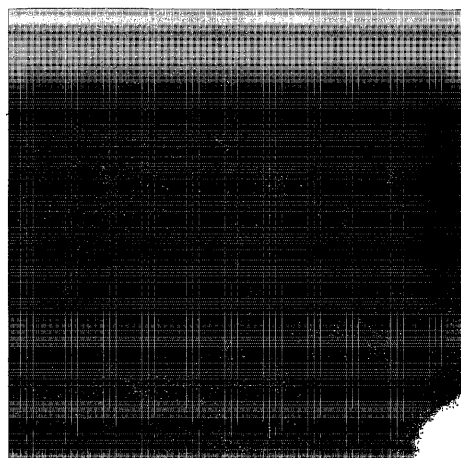


FIG. 10

【図 1 1】

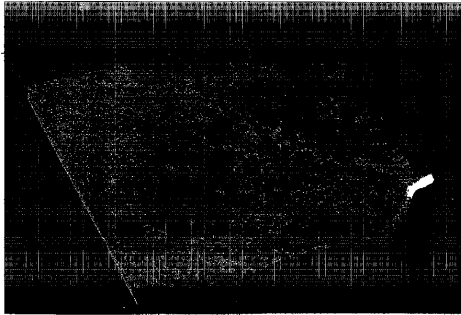


FIG. 11

【図 1 2】

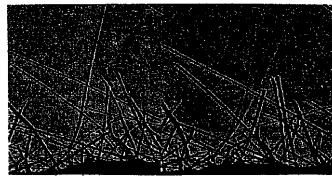


FIG. 12

【図 1 3】



FIG. 13

【図 1 4】

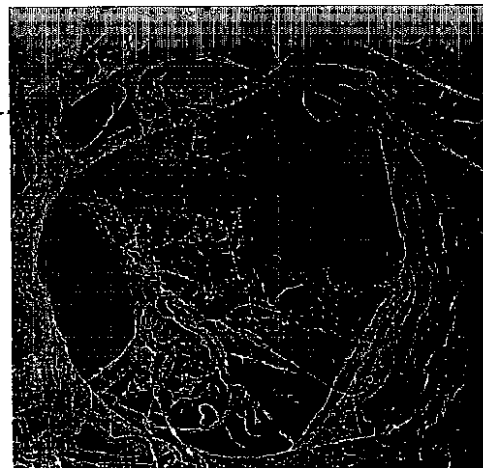


FIG. 14

【図 15】

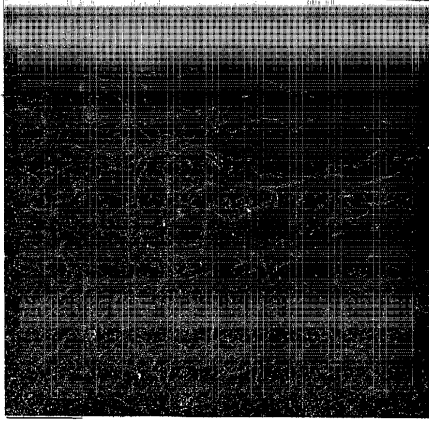


FIG. 15

【図 16】

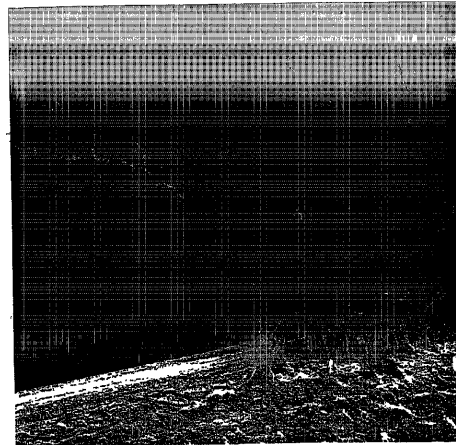


FIG. 16

【図 17】

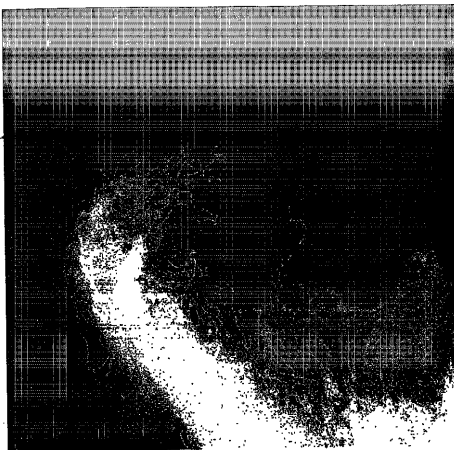


FIG. 17

【図 18】



FIG. 18

【図 19】

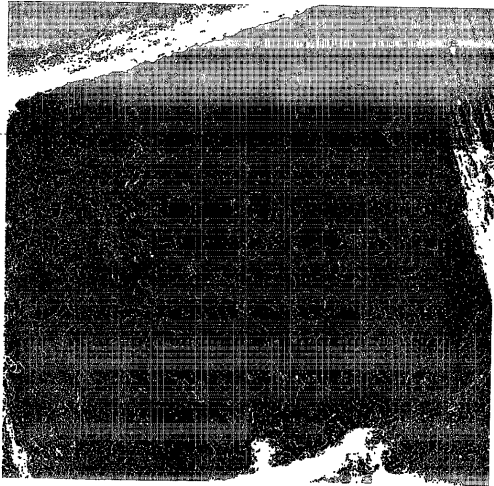


FIG. 19

【図 21】

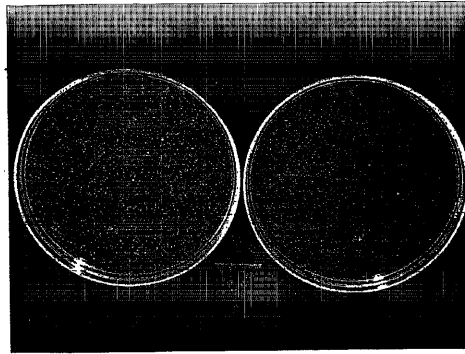


FIG. 21

【図 20】

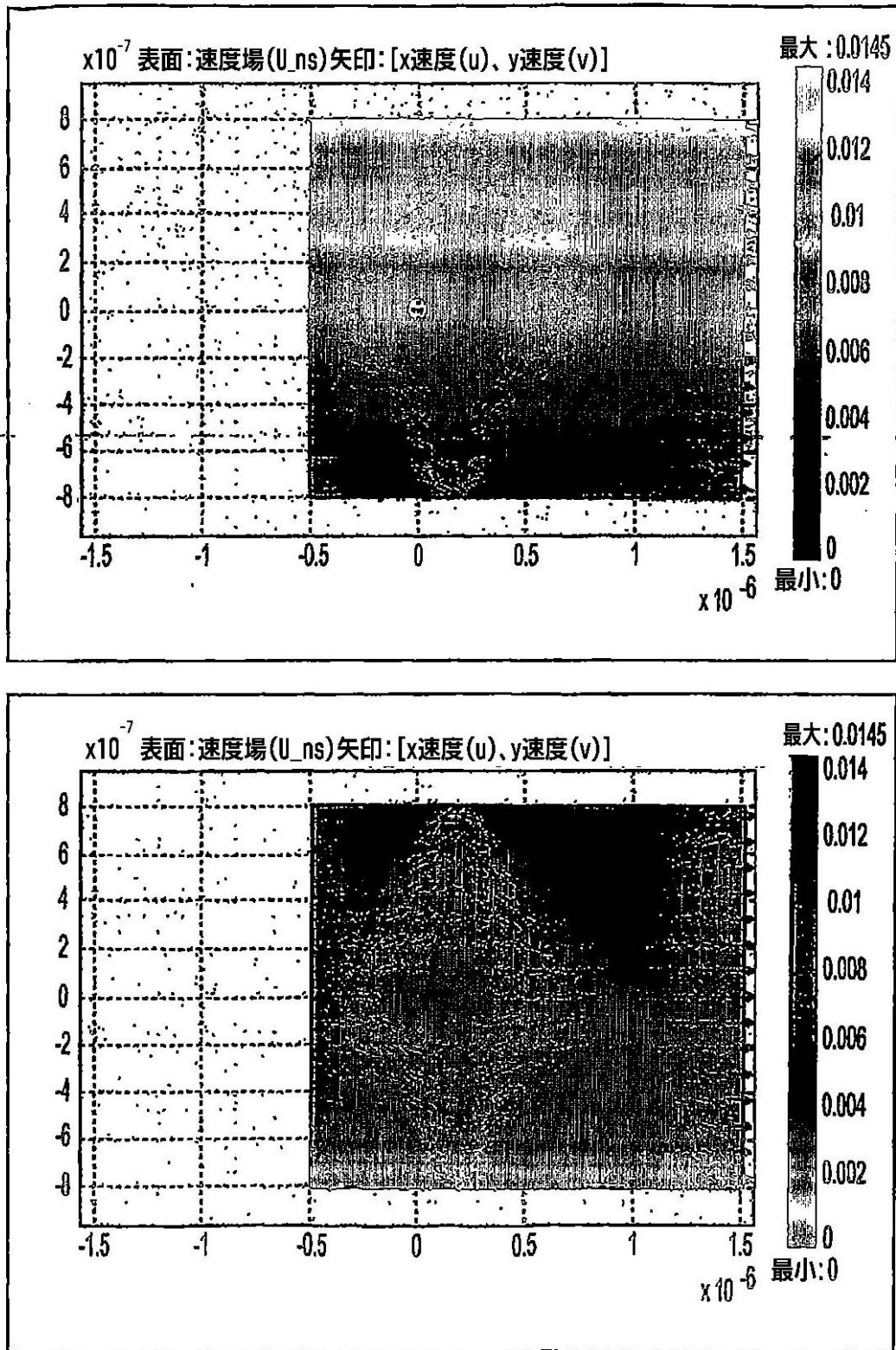


図 20

フロントページの続き

(31)優先権主張番号 60/499,375

(32)優先日 平成15年9月3日(2003.9.3)

(33)優先権主張国 米国(US)

(72)発明者 クーパー, クリストファー, エイチ.

アメリカ合衆国, バーモント州 05089, ウィンザー, ザ ヴィレッジ グリーン 40

(72)発明者 カミングス, アラン, ジー.

アメリカ合衆国, バーモント州 05049, ハートランド, リーヴス ロード 46

(72)発明者 スタロステイン, ミクハイル, ワイ.

アメリカ合衆国, ニューハンプシャー州 03755, ハンオーバー, イースト ウィーロック
ストリート 44

(72)発明者 ホンシンガー, チャールズ, ピー.

アメリカ合衆国, バーモント州 05089, ウィンザー, オータム レーン 48

審査官 岡田 隆介

(56)参考文献 特開2004-148305 (JP, A)

特開2004-148304 (JP, A)

特開2003-238451 (JP, A)

特開平11-216327 (JP, A)

特開2003-034516 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C01B 31/00-31/36

WPI

JSTPlus(JDreamII)

JST7580(JDreamII)