

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7632484号
(P7632484)

(45)発行日 令和7年2月19日(2025.2.19)

(24)登録日 令和7年2月10日(2025.2.10)

(51)国際特許分類	F I
A 0 1 N 59/16 (2006.01)	A 0 1 N 59/16 Z
A 0 1 P 1/00 (2006.01)	A 0 1 P 1/00
A 0 1 N 25/02 (2006.01)	A 0 1 N 25/02

請求項の数 18 (全30頁)

(21)出願番号	特願2022-571383(P2022-571383)	(73)特許権者	000006231 株式会社村田製作所 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号
(86)(22)出願日	令和3年12月16日(2021.12.16)	(74)代理人	100145403 弁理士 山尾 憲人
(86)国際出願番号	PCT/JP2021/046578	(74)代理人	100132252 弁理士 吉田 環
(87)国際公開番号	WO2022/138456	(74)代理人	100136777 弁理士 山田 純子
(87)国際公開日	令和4年6月30日(2022.6.30)	(72)発明者	小河 佑介 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内
審査請求日	令和5年6月9日(2023.6.9)	(72)発明者	部田 武志 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内
(31)優先権主張番号	63/129,051		
(32)優先日	令和2年12月22日(2020.12.22)		
(33)優先権主張国・地域又は機関	米国(US)		

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ウイルス不活化液状剤およびウイルス不活化物品

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

ウイルス不活化液状剤であって、液状媒体と、1つまたは複数の層を含む層状材料の粒子とを含み、

前記層が、以下の式：

$$M_m X_n$$

(式中、Mは、少なくとも1種の第3、4、5、6、7族金属であり、

Xは、炭素原子、窒素原子またはそれらの組み合わせであり、

nは、1以上4以下であり、

mは、nより大きく、5以下である)

で表される層本体と、該層本体の表面に存在する修飾または末端T (Tは、水酸基、フッ素原子、塩素原子および酸素原子からなる群より選択される少なくとも1種である)とを含み、

前記粒子の厚さの平均値が、10nm以下である、ウイルス不活化液状剤。

【請求項2】

前記M_mX_nが、Ti₃C₂である、請求項1に記載のウイルス不活化液状剤。

【請求項3】

前記液状媒体が、水およびアルコールの少なくとも一方を含む、請求項1または2に記載のウイルス不活化液状剤。

【請求項4】

分散剤、バインダ、酸化防止剤、粘度調整剤および香料からなる群より選択される少なくとも1つの添加剤を更に含む、請求項1～3のいずれかに記載のウイルス不活化液状剤。

【請求項5】

前記ウイルス不活化液状剤における前記粒子の含有量が、0.5 mg/mL以上100 mg/mL以下である、請求項1～4のいずれかに記載のウイルス不活化液状剤。

【請求項6】

前記液状媒体のpHが、2.7以上7.0以下である、請求項1～5のいずれかに記載のウイルス不活化液状剤。

【請求項7】

前記粒子におけるLiの含有率が、20質量ppm以下である、請求項1～6のいずれかに記載のウイルス不活化液状剤。 10

【請求項8】

前記粒子における塩素と臭素の合計含有率が、1500質量ppm以下である、請求項1～7のいずれかに記載のウイルス不活化液状剤。

【請求項9】

前記粒子が、金属および金属酸化物の少なくとも一方を担持している、請求項1～8のいずれかに記載のウイルス不活化液状剤。

【請求項10】

前記粒子が、酸化チタンを担持している、請求項1～9のいずれかに記載のウイルス不活化液状剤。 20

【請求項11】

ウイルス不活物品であって、
基材と、
前記基材上に配置されたウイルス不活化層と
を含み、前記ウイルス不活化層が、1つまたは複数の層を含む層状材料の粒子を含み、
前記層が、以下の式：

$$M_m X_n$$

(式中、Mは、少なくとも1種の第3、4、5、6、7族金属であり、

Xは、炭素原子、窒素原子またはそれらの組み合わせであり、

nは、1以上4以下であり、

mは、nより大きく、5以下である)

で表される層本体と、該層本体の表面に存在する修飾または終端T (Tは、水酸基、フッ素原子、塩素原子および酸素原子からなる群より選択される少なくとも1種である)とを含み、

前記粒子の厚さの平均値が、10 nm以下である、ウイルス不活物品。

【請求項12】

前記基材が、フィルター、マスク、フェイスシールド、包帯、手袋、ガウン、タッチパネル、ディスプレイ、フィルムおよびシールからなる群より選択されるいずれかである、請求項11に記載のウイルス不活物品。

【請求項13】

前記M_mX_nが、Ti₃C₂である、請求項11または12に記載のウイルス不活物品。 40

【請求項14】

分散剤、バインダ、酸化防止剤、粘度調整剤および香料からなる群より選択される少なくとも1つの添加剤を更に含む、請求項11～13のいずれかに記載のウイルス不活物品。

【請求項15】

前記粒子におけるLiの含有率が、20質量ppm以下である、請求項11～14のいずれかに記載のウイルス不活物品。

【請求項16】

前記粒子における塩素と臭素の合計含有率が、1500質量ppm以下である、請求項1.1~1.5のいずれかに記載のウイルス不活化物品。

【請求項17】

前記粒子が、金属および金属酸化物の少なくとも一方を担持している、請求項1.1~1.6のいずれかに記載のウイルス不活化物品。

【請求項18】

前記粒子が、酸化チタンを担持している、請求項1.1~1.7のいずれかに記載のウイルス不活化物品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

10

【0001】

本開示は、ウイルス不活化液状剤およびウイルス不活化物品に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、種々の抗菌剤および抗菌剤を適用した物品が知られている。例えば、特許文献1には、抗菌剤の有効成分として銀を使用し、抗菌剤とバイнда（バイнда単体の水接触角は20°以下である）とを含む抗菌層が基材上に配置された抗菌シートが開示されている。特許文献1には、抗菌剤としては、黄色ブドウ球菌や大腸菌に代表される病原性細菌類に対して殺菌効果を発揮するものが好適に用いられる旨が記載されている。

【0003】

20

他方、ウイルス不活化液状剤は、エタノール、2-プロパノール等のアルコールを有効成分とすることが知られている。WHO（世界保健機構）は、手指消毒剤として、80体積%エタノールまたは75体積%2-プロパノールのアルコール濃度とした処方推奨している。しかし、これより低いアルコール濃度の処方でもウイルス不活化の効果が得られることが報告されている。例えば、非特許文献1では、SARS-CoV-2（いわゆる「新型コロナウイルス」）に対して、エタノールまたは2-プロパノールの濃度を30体積%とした処方でもウイルス不活化の効果が得られることが報告されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

30

【文献】国際公開第2016/047568号

【文献】国際公開第2017/083055号

【非特許文献】

【0005】

【文献】Annika Kratzel, et al., "Inactivation of Severe Acute Respiratory Syndrome Coronavirus 2 by WHO-Recommended Hand Rub Formulations and Alcohols", Emerging Infectious Diseases, 2020, Vol. 26, Issue 7, pp. 1592-1595

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

40

近年、新規材料としてMXeneが注目されている。MXeneは、いわゆる二次元材料の1種であり、後述するように、1つまたは複数の層の形態を有する層状材料である。一般的に、MXeneは、かかる層状材料の粒子（粉末、フレーク、ナノシート等を含み得る）の形態を有する。

【0007】

特許文献2には、MXeneを含む抗菌（antimicrobial）剤、およびかかる抗菌剤がポリフッ化ビニリデン（PVDF）の基材上にコートされた抗菌メンブレンが開示されている。特許文献2には、かかる抗菌剤が、大腸菌（E. coli）および枯草菌（B. subtilis）の各細菌に対して抗菌効果を示したことが記載されている。

【0008】

50

一般的に知られているように、細菌は、単細胞生物であり、ミクロンオーダーのサイズを有し、自己増殖が可能である。これに対して、ウイルスは、核酸（遺伝子）およびカプシド、ならびに場合によりエンベロープから構成され、ナノメートルオーダーのサイズを有し、自己増殖が不可能で、細胞（宿主）に寄生して増殖する。このように、細菌とウイルスとは、少なくとも、構造、サイズおよび増殖機構の点で全く相違するものである。ある物質が抗菌効果を示すものであっても、そのことのみをもって、当該物質がウイルス不活化の効果を示すかどうかを判断することはできない。事実、特許文献1および2では、ウイルスについて一切言及されていない。抗菌性は、例えば特許文献1に記載されているようにJIS Z 2801に従って評価され得る。ウイルス不活化能は、特定の規格はないが、例えば非特許文献1に記載されているようにTCID₅₀法により評価され得る。

10

【0009】

ウイルスには様々な種類のものが存在し、ウイルスによる感染症の拡大を防止することは国際的に極めて重要な課題となっている。かかる状況下、新規なウイルス不活化液状剤およびウイルス不活化物品に対する需要が高まっている。

【0010】

本開示の目的は、新規なウイルス不活化液状剤およびウイルス不活化物品を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0011】

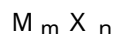
本発明者らは、鋭意研究の結果、MX_mX_nがウイルス不活化能を有することを独自に見出して、本開示を完成するに至った。

20

【0012】

本開示の第1の要旨によれば、ウイルス不活化液状剤であって、液状媒体と、1つまたは複数の層を含む層状材料の粒子とを含み、

前記層が、以下の式：



（式中、Mは、少なくとも1種の第3、4、5、6、7族金属であり、

Xは、炭素原子、窒素原子またはそれらの組み合わせであり、

nは、1以上4以下であり、

mは、nより大きく、5以下である）

30

で表される層本体と、該層本体の表面に存在する修飾または終端T（Tは、水酸基、フッ素原子、塩素原子および酸素原子からなる群より選択される少なくとも1種である）とを含む、ウイルス不活化液状剤が提供される。

【0013】

本開示の第1の要旨の1つの態様において、前記MX_mX_nが、Ti₃C₂であり得る。

【0014】

本開示の第1の要旨の1つの態様において、前記粒子の厚さの平均値が、10nm以下であり得る。

【0015】

本開示の第1の要旨の1つの態様において、前記液状媒体が、水およびアルコールの少なくとも一方を含み得る。

40

【0016】

本開示の第1の要旨の1つの態様において、前記ウイルス不活化液状剤が、分散剤、バインダ、酸化防止剤、粘度調整剤および香料からなる群より選択される少なくとも1つの添加剤を更に含み得る。

【0017】

本開示の第1の要旨の1つの態様において、前記ウイルス不活化液状剤における前記粒子の含有量が、0.5mg/mL以上100mg/mL以下であり得る。

【0018】

本開示の第1の要旨の1つの態様において、前記液状媒体のpHが、2.7以上7.0

50

以下であってよい。

【0019】

本開示の第1の要旨の1つの態様において、前記粒子におけるLiの含有率が、20質量ppm以下であってよい。

【0020】

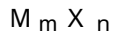
本開示の第1の要旨の1つの態様において、前記粒子における塩素と臭素の合計含有率が、1500質量ppm以下であってよい。

【0021】

本開示の第1の要旨の1つの態様において、前記粒子が、金属および金属酸化物の少なくとも一方を担持している。例えば、前記粒子が、酸化チタンを担持している。 10

【0022】

本開示の第2の要旨によれば、ウイルス不活化物品であって、
基材と、
前記基材上に配置されたウイルス不活化層と
を含み、前記ウイルス不活化層が、1つまたは複数の層を含む層状材料の粒子を含み、
前記層が、以下の式：



(式中、Mは、少なくとも1種の第3、4、5、6、7族金属であり、
Xは、炭素原子、窒素原子またはそれらの組み合わせであり、
nは、1以上4以下であり、
mは、nより大きく、5以下である)

で表される層本体と、該層本体の表面に存在する修飾または終端T (Tは、水酸基、フッ素原子、塩素原子および酸素原子からなる群より選択される少なくとも1種である)とを含む、ウイルス不活化物品が提供される。 20

【0023】

本開示の第2の要旨の1つの態様において、前記基材が、フィルター、マスク、フェイスシールド、包帯、手袋、ガウン、タッチパネル、ディスプレイ、フィルムおよびシールからなる群より選択されるいずれかであり得る。

【0024】

本開示の第2の要旨の1つの態様において、前記 $M_m X_n$ が、 $Ti_3 C_2$ であり得る。 30

【0025】

本開示の第2の要旨の1つの態様において、前記粒子の厚さの平均値が、10nm以下であり得る。

【0026】

本開示の第2の要旨の1つの態様において、前記ウイルス不活化物品が、分散剤、バインダ、酸化防止剤、粘度調整剤および香料からなる群より選択される少なくとも1つの添加剤を更に含み得る。

【0027】

本開示の第2の要旨の1つの態様において、前記粒子におけるLiの含有率が、20質量ppm以下であってよい。 40

【0028】

本開示の第2の要旨の1つの態様において、前記粒子における塩素と臭素の合計含有率が、1500質量ppm以下であってよい。

【0029】

本開示の第2の要旨の1つの態様において、前記粒子が、金属および金属酸化物の少なくとも一方を担持している。例えば、前記粒子が、酸化チタンを担持している。

【発明の効果】

【0030】

本開示によれば、ウイルス不活化液状剤が、そして、ウイルス不活化物品のウイルス不活化層が、所定の層状材料(本明細書において「 $M X_n$ 」とも言う)の粒子を含み、 50

これにより、ウイルスを不活化させることができる。よって、本開示によれば、新規なウイルス不活化液状剤およびウイルス不活化物品が提供される。

【図面の簡単な説明】

【0031】

【図1】本開示の1つの実施形態において利用可能な層状材料であるMXeneを示す概略模式断面図であって、(a)は単層MXeneを示し、(b)は多層(例示的に二層)MXeneを示す。

【図2】本開示の1つの実施形態におけるウイルス不活化物品を説明する図であって、(a)はウイルス不活化物品の概略模式断面図を示し、(b)はウイルス不活化物品のウイルス不活化層における層状材料の概略模式斜視図を示す。

10

【図3】実施例2の加熱処理(酸化処理)において部分酸化が進行していることを示すSEM写真であって、(a)は処理前の固形分(粒子)のSEM写真であり、(b)は処理後の固形分(粒子)のSEM写真である。

【発明を実施するための形態】

【0032】

(実施形態1:ウイルス不活化液状剤)

以下、本開示の1つの実施形態におけるウイルス不活化液状剤について詳述するが、本開示はかかる実施形態に限定されるものではない。

【0033】

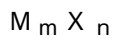
本実施形態のウイルス不活化液状剤は、液状媒体と、所定の層状材料の粒子とを含む。

20

【0034】

本実施形態において使用可能な所定の層状材料はMXeneであり、次のように規定される:

1つまたは複数の層を含む層状材料であって、該層が、以下の式:



(式中、Mは、少なくとも1種の第3、4、5、6、7族金属であり、いわゆる早期遷移金属、例えばSc、Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、MoおよびMnからなる群より選択される少なくとも1種を含み得、

Xは、炭素原子、窒素原子またはそれらの組み合わせであり、

nは、1以上4以下であり、

mは、nより大きく、5以下である)

30

で表される層本体(該層本体は、各XがMの八面体アレイ内に位置する結晶格子を有し得る)と、該層本体の表面(より詳細には、該層本体の互いに対向する2つの表面の少なくとも一方)に存在する修飾または終端T(Tは、水酸基、フッ素原子、塩素原子および酸素原子からなる群より選択される少なくとも1種である)とを含む層状材料(これは層状化合物として理解され得、「 $M_m X_n T_s$ 」とも表され、sは任意の数であり、従来、sに代えてxが使用されることもある)。代表的には、nは、1、2、3または4であり得るが、これに限定されない。

【0035】

MXeneの上記式中、Mは、Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、MoおよびMnからなる群より選択される少なくとも1つであることが好ましく、Ti、V、CrおよびMoからなる群より選択される少なくとも1つであることがより好ましい。

40

【0036】

MXeneは、上記の式: $M_m X_n$ が、以下のように表現されるものが知られている。

$Sc_2 C$ 、 $Ti_2 C$ 、 $Ti_2 N$ 、 $Zr_2 C$ 、 $Zr_2 N$ 、 $Hf_2 C$ 、 $Hf_2 N$ 、 $V_2 C$ 、 $V_2 N$ 、 $Nb_2 C$ 、 $Ta_2 C$ 、 $Cr_2 C$ 、 $Cr_2 N$ 、 $Mo_2 C$ 、 $Mo_{1.3} C$ 、 $Cr_{1.3} C$ 、 $(Ti, V)_2 C$ 、 $(Ti, Nb)_2 C$ 、 $W_2 C$ 、 $W_{1.3} C$ 、 $Mo_2 N$ 、 $Nb_{1.3} C$ 、 $Mo_{1.3} Y_{0.6} C$ (上記式中、「1.3」および「0.6」は、それぞれ約1.3(=4/3)および約0.6(=2/3)を意味する。)、

$Ti_3 C_2$ 、 $Ti_3 N_2$ 、 $Ti_3(CN)$ 、 $Zr_3 C_2$ 、 $(Ti, V)_3 C_2$ 、 $(Ti_2$

50

$Nb)_2C_2$ 、 $(Ti_2Ta)_2C_2$ 、 $(Ti_2Mn)_2C_2$ 、 Hf_3C_2 、 $(Hf_2V)_2C_2$ 、 $(Hf_2Mn)_2C_2$ 、 $(V_2Ti)_2C_2$ 、 $(Cr_2Ti)_2C_2$ 、 $(Cr_2V)_2C_2$ 、 $(Cr_2Nb)_2C_2$ 、 $(Cr_2Ta)_2C_2$ 、 $(Mo_2Sc)_2C_2$ 、 $(Mo_2Ti)_2C_2$ 、 $(Mo_2Zr)_2C_2$ 、 $(Mo_2Hf)_2C_2$ 、 $(Mo_2V)_2C_2$ 、 $(Mo_2Nb)_2C_2$ 、 $(Mo_2Ta)_2C_2$ 、 $(W_2Ti)_2C_2$ 、 $(W_2Zr)_2C_2$ 、 $(W_2Hf)_2C_2$ 、

Ti_4N_3 、 V_4C_3 、 Nb_4C_3 、 Ta_4C_3 、 $(Ti, Nb)_4C_3$ 、 $(Nb, Zr)_4C_3$ 、 $(Ti_2Nb_2)_2C_3$ 、 $(Ti_2Ta_2)_2C_3$ 、 $(V_2Ti_2)_2C_3$ 、 $(V_2Nb_2)_2C_3$ 、 $(V_2Ta_2)_2C_3$ 、 $(Nb_2Ta_2)_2C_3$ 、 $(Cr_2Ti_2)_2C_3$ 、 $(Cr_2V_2)_2C_3$ 、 $(Cr_2Nb_2)_2C_3$ 、 $(Cr_2Ta_2)_2C_3$ 、 $(Mo_2Ti_2)_2C_3$ 、 $(Mo_2Zr_2)_2C_3$ 、 $(Mo_2Hf_2)_2C_3$ 、 $(Mo_2V_2)_2C_3$ 、 $(Mo_2Nb_2)_2C_3$ 、 $(Mo_2Ta_2)_2C_3$ 、 $(W_2Ti_2)_2C_3$ 、 $(W_2Zr_2)_2C_3$ 、 $(W_2Hf_2)_2C_3$

10

【0037】

代表的には、上記の式において、Mがチタンまたはバナジウムであり、Xが炭素原子または窒素原子であり得る。例えば、MAX相は、 Ti_3AlC_2 であり、MXeneは、 $Ti_3C_2T_s$ である（換言すれば、MがTiであり、XがCであり、nが2であり、mが3である）。すなわち、上記の式： M_mX_n が、 Ti_3C_2 である。

【0038】

かかるMXeneの粒子（以下、単に「MXene粒子」と言う）は、MAX相からA原子（および場合によりM原子の一部）を選択的にエッチング（除去および場合により層分離）することにより合成することができる。MAX相は、以下の式：

20



（式中、M、X、nおよびmは、上記の通りであり、Aは、少なくとも1種の第12、13、14、15、16族元素であり、通常はA族元素、代表的にはIIIA族およびIVA族であり、より詳細にはAl、Ga、In、Tl、Si、Ge、Sn、Pb、P、As、SおよびCdからなる群より選択される少なくとも1種を含み得、好ましくはAlである）で表され、かつ、 M_mX_n で表される2つの層（各XがMの八面体アレイ内に位置する結晶格子を有し得る）の間に、A原子により構成される層が位置した結晶構造を有する。MAX相は、代表的に $m = n + 1$ の場合、 $n + 1$ 層のM原子の層の各間にX原子の層が1層ずつ配置され（これらを合わせて「 M_mX_n 層」とも称する）、 $n + 1$ 番目のM原子の層の次の層としてA原子の層（「A原子層」）が配置された繰り返し単位を有するが、これに限定されない。MAX相からA原子（および場合によりM原子の一部）が選択的にエッチング（除去および場合により層分離）されることにより、A原子層（および場合によりM原子の一部）が除去されて、露出した M_mX_n 層の表面にエッチング液（通常、含フッ素酸の水溶液が使用されるがこれに限定されない）中に存在する水酸基、フッ素原子、塩素原子および酸素原子等が修飾して、かかる表面を終端する。

30

【0039】

上記エッチングは、フッ素系樹脂容器を用いて、HF、HCl、HBr、HI、硫酸、リン酸、硝酸等の酸でエッチング処理を行う。特に、 F^- を含むエッチング液を用いて実施され得、例えば、フッ化リチウムおよび塩酸の混合液を用いた方法や、フッ酸を用いた方法などであってよい。

40

【0040】

所望される場合には、任意の適切な金属（例えばLi）等をMXene層間に挿入（インターカレーション）してもよい。インターカレーション処理は、エッチング処理の後に別途行っても、エッチング処理とあわせて行ってもよい。

【0041】

その後、適宜、任意の適切な後処理（例えば超音波処理、ハンドシェイクまたはオートマチックシェイカーなど）により、MXeneの層分離（デラミネーション、多層MXeneを単層MXeneに分離すること）を促進してもよい。例えば、機械式振とう器、ポルテックスミキサー、ホモジナイザー、超音波バス等を用いて、所定時間、デラミネーション処理を行い得る。次いで、遠心分離器で上澄みと沈殿を分離し、回収した上澄みを、

50

単層化されたMXene粒子の分散液として得ることができる。なお、超音波処理は、せん断力が大きすぎてMXeneが破壊され得るので、アスペクト比がより大きい二次元形状のMXene粒子（好ましくは単層MXene粒子）を得ることが望まれる場合には、ハンドシェイクまたはオートマチックシェイカーなどにより適切なせん断力を付与することが好ましい。

【0042】

なお、本開示において、MXene粒子は、残留するA原子を比較的少量、例えば元のA原子に対して10質量%以下で含んでいてもよい。A原子の残留量は、好ましくは8質量%以下、より好ましくは6質量%以下であり得る。しかしながら、A原子の残留量は、10質量%を超えていたとしても、ウイルス不活化の用途や使用条件によっては問題がない場合もあり得る。

10

【0043】

このようにして合成されるMXene粒子10は、図1に模式的に示すように、1つまたは複数のMXene層7a、7bを含む層状材料の粒子（MXene粒子10の例として、図1(a)中に1つの層のMXene粒子10aを、図1(b)中に2つの層のMXene粒子10bを示しているが、これらの例に限定されない）であり得る。より詳細には、MXene層7a、7bは、 M_mX_n で表される層本体（ M_mX_n 層）1a、1bと、層本体1a、1bの表面（より詳細には、各層にて互いに対向する2つの表面の少なくとも一方）に存在する修飾または終端 T_{3a} 、 $5a$ 、 $3b$ 、 $5b$ とを有する。よって、MXene層7a、7bは、「 $M_mX_nT_s$ 」とも表され、 s は任意の数である。MXene粒子10は、かかるMXene層が個々に分離されて1つの層で存在するもの（図1(a)に示す単層構造体、いわゆる単層MXene粒子10a）であっても、複数のMXene層が互いに離間して積層された積層体（図1(b)に示す多層構造体、いわゆる多層MXene粒子10b）であっても、それらの混合物であってもよい。MXene粒子10は、単層MXene粒子10aおよび/または多層MXene粒子10bから構成される集合体としての粒子（粉末またはフレークとも称され得る）であり得る。多層MXene粒子である場合、隣接する2つのMXene層（例えば7aと7b）は、必ずしも完全に離間していなくてもよく、部分的に接触していてもよい。本実施形態においては、後述するように、MXene粒子10は、多層MXene粒子よりも単層MXene粒子ができるだけ多い（単層MXene粒子の含有割合が高い）ことが好ましい。

20

30

【0044】

本実施形態を限定するものではないが、MXene粒子における各層（上記のMXene層7a、7bに相当する）の厚さは、例えば0.8nm以上5nm以下、特に0.8nm以上3nm以下であり（主に、各層に含まれるM原子層の数により異なり得る）、層に平行な平面（二次元シート面）内における最大寸法は、例えば0.1 μ m以上200 μ m以下、特に1 μ m以上40 μ m以下である。

【0045】

MXene粒子が積層体（多層MXene）粒子である場合、個々の積層体について、層間距離（または空隙寸法、図1(b)中に d にて示す）は、例えば0.8nm以上10nm以下、特に0.8nm以上5nm以下、より特に約1nmであり、積層方向に垂直な平面（二次元シート面）内における最大寸法は、例えば0.1 μ m以上100 μ m以下、特に1 μ m以上20 μ m以下である。

40

【0046】

MXene粒子における層の総数は、1または2以上であればよいが、例えば1以上100,000以下、特に1,000以上20,000以下であり、積層方向の厚さは、例えば0.1 μ m以上200 μ m以下、特に1 μ m以上40 μ m以下である。

【0047】

MXene粒子が積層体（多層MXene）粒子である場合、層数の少ないMXene粒子であることが好ましい。用語「層数が少ない」とは、例えばMXene粒子の積層数が6層以下であることを言う。また、層数の少ない多層MXene粒子の積層方向の厚さ

50

は、10 nm以下であることが好ましい。本明細書において、この「層数の少ない多層MXene」（狭義の多層MXene）を「少層MXene」とも称する。

【0048】

本実施形態において、MXene粒子は、その大部分が単層MXeneおよび/または少層MXeneから構成される粒子（ナノシートとも称され得る）であることが好ましい。本明細書において、単層MXeneと少層MXeneを併せて「単層・少層MXene」と称することがある。

【0049】

換言すれば、MXene粒子の厚さの平均値は、好ましくは10 nm以下である。この厚さの平均値は、より好ましくは7 nm以下であり、更により好ましくは5 nm以下である。一方、単層MXene粒子の厚みを考慮すると、MXene粒子の厚さの下限は1.0 nmとなり得る。よって、MXene粒子の厚さの平均値は、1 nm以上であり得る。

【0050】

別の観点から見れば、MXene粒子全体における、積層方向の厚さが10 nm以下の粒子（単層MXene粒子および/または少層MXene粒子）の割合は、好ましくは90体積%以上であり、より好ましくは95体積%以上である。

【0051】

なお、上述したこれら寸法は、走査型電子顕微鏡（SEM）、透過型電子顕微鏡（TEM）または原子間力顕微鏡（AFM）の写真に基づく数平均寸法（例えば少なくとも40個の数平均）あるいはX線回折（XRD）法により測定した（002）面の逆格子空間上の位置より計算した実空間における距離として求められる。

【0052】

他方、液状媒体は、任意の適切な液体を使用できる。例えば、液状媒体は、水性媒体であってよい。水性媒体は、代表的には水であり、場合により、水に加えて他の液状物質を比較的少量（水性媒体全体基準で例えば30質量%以下、好ましくは20質量%以下）で含んでいてもよい。液状媒体は、MXene粒子を分散させることができる分散媒として理解され得る。液状媒体には、イオン等の溶質が溶解していてもよい。

【0053】

また例えば、液状媒体は、水およびアルコールの少なくとも一方を含むものであってよい。代表的には、液状媒体は、水、または水とアルコールとの混合物であることが好ましい。アルコールは、特に限定されないが、例えばメタノール、エタノール、プロパノール（1-プロパノール、2-プロパノール）などであってよい。水とアルコールとの混合物において、水に対して溶解/混和可能なアルコール（メタノール、エタノール、プロパノール等）が使用される場合、液状媒体全体基準でのアルコールの含有量は特に限定されず、ウイルス不活化液状剤の使用態様等に応じて適宜選択され得る。

【0054】

ウイルス不活化液状剤の用途において可燃/引火リスクが問題になり得る場合には、液状媒体は、水、または水と比較的少量のアルコールとの混合物であることが好ましく、水であることがより好ましい。水は、不燃性であり、アルコールのような可燃/引火リスクがない。これに対して、従来一般的なアルコール系消毒液（エタノール等のアルコールを有効成分とする）の場合、アルコールの種類および濃度にもよるが、引火点は常温の範囲内にあり得、着火源があれば引火するリスクがある。

【0055】

本実施形態のウイルス不活化液状剤は、他の成分を更に含んでいてよい。例えば、ウイルス不活化液状剤は、分散剤、バインダ、酸化防止剤、粘度調整剤および香料からなる群より選択される少なくとも1つの添加剤を更に含んでいてよい。分散剤は、液状媒体に対するMXene粒子の分散性を高めるために添加され得る。バインダは、ウイルス不活化液状剤を対象物に適用して乾燥させた（液状媒体を少なくとも部分的に除去した）後に、MXene粒子と対象物（後述する実施形態2の場合は基材）との間の固着強度を高めたり、ウイルス不活化液状剤から形成され得るウイルス不活化層それ自体の強度を高めたり

10

20

30

40

50

するために添加され得る。酸化防止剤は、 $MXene$ 粒子の酸化（より詳細には、 $MXene$ 層を構成する金属（ M ）の酸化）を防止することが所望される場合に添加され得る。粘度調整剤は、ウイルス不活化液状剤の粘度を調整するために添加され得る。添加剤のより具体的な例としては、ポリウレタン（ PU ）、ポリビニルアルコール（ PVA ）、ポリエチレンジオキシチオフェン（ $PEDOT$ ）、アルギン酸ナトリウム（ SA ）、ポリアミド系樹脂（例えばナイロン）、エポキシ系樹脂、アクリル系樹脂、ヘキサメタリン酸ナトリウム、ポリアリルアミンなどが挙げられる。

【0056】

かかる他の成分は、ウイルス不活化液状剤の製造プロセスにおける任意の適切なタイミングで添加／混合され得る。例えば、他の成分は、合成された $MXene$ 粒子を液状媒体中に含む混合物（代表的にはスラリー）に添加され得、あるいは、合成された $MXene$ 粒子（代表的にはクレイ状または粉末状）に液状媒体と共に添加され得る。

10

【0057】

本実施形態のウイルス不活化液状剤は、ウイルス不活化能を有する $MXene$ 粒子を有効成分として含む。 $MXene$ 粒子がウイルス不活化能を有することは、本発明者らが独自に得た知見である。本開示はいかなる理論によっても拘束されないが、 $MXene$ 粒子がウイルスを不活化させるメカニズムは、次のように考えられる。 $MXene$ 粒子は、 M_mX_n で表される層本体の表面に修飾または終端 T （ T は、水酸基、フッ素原子、塩素原子および酸素原子からなる群より選択される少なくとも1種である）を有し、かかる構成によって電荷（負または正の電荷）を帯びたサイトが存在する。本開示を限定するものではないが、具体的には、 $MXene$ 粒子は、その層に平行な平面（二次元シート面）部分において負の電荷を帯び得、 $MXene$ 粒子の層の端部において正の電荷を帯び得る。一般的にウイルスも電荷（例えば正の電荷）を有し得、 $MXene$ 粒子に存在する反対の電荷（例えば負の電荷）を帯びたサイトにクーロン力によって吸着される。 $MXene$ 粒子は導電性を有することから、ウイルスが $MXene$ 粒子の上記サイトに吸着されると、ウイルスが電氣的に中和され、この結果、ウイルスが即時に不活化される。

20

【0058】

$MXene$ 粒子がウイルスを不活化させる上記メカニズムは、 $MXene$ 粒子が抗菌効果を示す（細菌の増殖を抑制する）メカニズムとは根本的に相違する。細菌は、 $MXene$ 粒子と同程度かそれ以上のサイズを有する。よって、細菌は、（ウイルスのように $MXene$ 粒子に吸着されるのではなく）複数の $MXene$ 粒子に取り囲まれる状態となる。かかる状態では、 $MXene$ 粒子の特定サイトが細菌に及ぼす効果は（ウイルスに及ぼす効果に比べて）非常に小さい。更に、細菌は、細胞壁および細胞膜を有しているため、複数の $MXene$ 粒子に取り囲まれることで、即時に増殖できなくなるのではなく、栄養摂取などの生命維持活動の阻害により緩やかに増殖抑制される。

30

【0059】

$MXene$ 粒子がウイルスを不活化させる上記メカニズムから、 $MXene$ 粒子の比表面積がより大きいほうが、ウイルスとの接触確率がより高く、より高いウイルス不活化効果を示し得ると考えられる。本実施形態を限定するものではないが、かかる観点から、 $MXene$ 粒子は、単層・少層 $MXene$ 粒子であることが好ましく、 $MXene$ 粒子の厚さの平均値は、好ましくは10nm以下である。

40

【0060】

ウイルスは、特に限定されない。ウイルスは、核酸（遺伝子）およびカプシド、ならびに場合によりエンベロープから構成され得、一般的に、ナノメートルオーダーのサイズを有し、例えば数十nm～数百nmのサイズを有し得る。エンベロープウイルス（エンベロープを有するウイルス）の例としては、 $SARS-CoV-2$ （いわゆる「新型コロナウイルス」）、インフルエンザウイルス、ヘルペスウイルス、風疹ウイルス、B型肝炎ウイルス、C型肝炎ウイルス、エイズウイルスなどが挙げられる。ノンエンベロープウイルス（エンベロープを有しないウイルス）の例としては、ノロウイルス、ロタウイルス、ポリオウイルス、アデノウイルスなどが挙げられる。なお、ウイルス不活化能の評価試験にお

50

いて、ノロウイルスの代替ウイルスとして、ネコカリシウイルスが利用され得る。

【0061】

本開示において「ウイルス不活化」（またはウイルスを不活化させる）とは、ウイルスの感染力を失わせることを意味し、「抗ウイルス」とも表現され得る。具体的には、ウイルス感染価をTCID₅₀法で評価した場合、ウイルス感染価が検出限界未満であれば、「ウイルス不活化」が達成されているとみなしてよい。ウイルス不活化能（ウイルスを不活化させる能力）は、ウイルス感染価が検出限界未満になるのに必要な作用時間が短いほど高いと理解され得る。

【0062】

また、本開示において「液状剤」とは、全体として液状の形態を有する薬剤を意味する。液状剤は、MXene粒子が液状媒体に分散（または懸濁）した分散物（または懸濁物）であり得、ウイルス不活化液状剤の使用態様等に応じて、例えばスプレー可能なスラリーや、ディスペンス可能なジェルなどであってよい。

10

【0063】

本実施形態のウイルス不活化液状剤は、高いウイルス不活化能を有し、例えば1分またはそれより短い作用時間でウイルス不活化が可能である。加えて、本実施形態のウイルス不活化液状剤は、有効成分としてMXene粒子を含むので、ウイルス不活化液状剤を対象物に適用した後、空気に曝されて液状媒体が揮発してもMXene粒子は対象物の表面に残存し、ウイルス不活化の効果を長時間に亘って持続的に、例えば24時間後も発揮できる。これに対して、従来一般的なアルコール系消毒液の場合、アルコールが揮発すると、ウイルス不活化の効果は得られなくなる。

20

【0064】

本実施形態のウイルス不活化液状剤は、有効成分であるMXene粒子の含有量が小さくても、十分なウイルス不活化の効果を示す。ウイルス不活化液状剤におけるMXene粒子の含有量は、例えば0.5mg/mL以上、好ましくは1mg/mL以上、より好ましくは5mg/mL以上であり得る。ウイルス不活化液状剤におけるMXene粒子の含有量の上限は、ウイルス不活化液状剤の使用態様等に応じて適宜選択され得るが、希薄なウイルス不活化液状剤が所望される場合、上記含有量は、例えば100mg/mL以下、要すれば50mg/mL以下、更に要すれば10mg/mL以下にすることができる。

【0065】

本実施形態のウイルス不活化液状剤において、液状媒体のpHは、ウイルス不活化液状剤に所望される特性や用途等に応じて適宜選択され得るが、例えば2.7以上7.0以下であり得る。2.7以上7.0以下のpH領域では、MXene粒子を液状媒体に安定して分散させることができ、MXene粒子の凝集および/または沈降を防止ないし低減することができる。分散安定性は、ウイルス不活化液状剤を使用する（対象物に適用する）うえで、および/または所望のウイルス不活化効果をウイルス不活化液状剤（またはそれを用いて形成されるウイルス不活化層等）全体で均等に得るうえで、重要である。MXene粒子についてより高い分散安定性を得るためには、液状媒体のpHは、2.7以上6.0以下であることが好ましい。

30

【0066】

特に、液状媒体のpHは、3.0以上5.0以下であることが好ましい。3.0以上5.0以下のpH領域では、MXene粒子について高い分散安定性が得られることに加えて、ウイルス不活化の効果をより長時間に亘って持続的に発揮できる。本開示はいかなる理論によっても拘束されないが、3.0以上5.0以下のpH領域では、MXene粒子の酸化が安定化し、これにより、上記のような効果が得られると考えられる。中性域を下回るpHでは、MXene粒子は、MXene層の端部から加水分解が起こり得、そして、MXene層を構成する金属(M)の酸化物を生じ得る（例えば、Ti₃C₂T_sで表されるMXene粒子の場合、TiO₂を生じ得、副生成物としてCH₄および/またはアモルファス状カーボンを生じ得る）。すなわち、MXene粒子は、その酸化が起こった部分では、層本体のM_mX_nが維持されずに化学的に分解され、上記金属(M)の酸化物

40

50

で被覆されることとなる（以下、かかる部分的な酸化を単に「部分酸化」とも称する）。M X e n e 粒子において部分酸化がある程度起こっても、M X e n e 粒子の上記電荷を帯びたサイトはその全部が失われるわけではないので、ウイルス不活化の効果は有意に失活しない。3.0以上5.0以下のpH領域では、M X e n e 粒子の部分酸化がある程度起こり得るものの、酸化が安定化する（換言すれば、見かけ上、酸化が実質的に進行しない状態となる）ので、ウイルス不活化の効果が完全に失活することを防止できて、ウイルス不活化に十分なレベルで、より長時間に亘って持続的に発揮することができる。また、上記のように酸化が安定化することより、M X e n e 粒子の分解が見かけ上進行しないことは、高い分散安定性が得られることにも資すると考えられる。

【0067】

別の観点から、ウイルス不活化液状剤の実用上、強酸性が好ましくない場合があり得る。この場合、液状媒体のpHは、3.0以上7.0以下（弱酸性領域pH=3.0以上6.0以下または中性領域pH=6.0超7.0以下）としてよい。

【0068】

液状媒体のpHは、液状媒体に溶解するイオンの種類および濃度によって調整することができる。本実施形態を限定するものではないが、例えば、エッチングおよび/またはインターカレーションの処理条件（例えば酸および/または塩基の種類および仕込み濃度）によって、これに引き続いて得られるウイルス不活化液状剤（代表的にはデラミネーション後のスラリー）における液状媒体のpHを調整することができる。上述のように、インターカレーション処理は、エッチング処理の後に別途行っても、エッチング処理とあわせて行ってもよい。また、例えば、合成されたM X e n e 粒子（代表的には水洗浄後に固形分として分離して得られるクレイまたは粉末）を液状媒体と混合する際に、液状媒体のpHを予め調節しておくことができる。

【0069】

本実施形態のウイルス不活化液状剤において、M X e n e 粒子におけるL iの含有率は、20質量ppm以下であることが好ましい。L iは、比較的多量に存在すると生体に影響を及ぼし得ることが知られているが、本実施形態のかかるウイルス不活化液状剤は、M X e n e 粒子におけるL iの含有率が20質量ppm以下であることにより、高い生体適合性を有し得る。M X e n e 粒子におけるL iの含有率の下限は特に限定されず、ゼロであり得る。

【0070】

例えば、L iのインターカレーションを行う場合であっても、M X e n e 粒子におけるL iの含有率を抑制して、20質量ppm以下にすることができる。この場合、M X e n e 粒子におけるL iの含有率は、例えば1質量ppm以上であり得る。

【0071】

L iのインターカレーションを行う場合、L iの含有率が抑制されたウイルス不活化液状剤は、例えば以下の第1製造方法または第2製造方法により製造可能である。

【0072】

ウイルス不活化液状剤の第1製造方法は、

- (a) M A X相から構成される前駆体を準備すること、
- (b1) エッチング液を用いて、前記前駆体から少なくとも一部のA原子を除去する、エッチング処理を行うこと、
- (c) 前記エッチング処理により得られたエッチング処理物と、L i含有化合物とを混合して攪拌する工程を含む、L iインターカレーション処理を行うこと、
- (d) 前記L iインターカレーション処理して得られたL iインターカレーション処理物を、遠心分離し、上澄み液を廃棄後に残りの沈殿物を水で洗浄する工程を含む、デラミネーション処理を行うこと、
- (e) 前記デラミネーション処理して得られたデラミネーション処理物と、酸溶液を混合して攪拌する工程を含む、酸処理を行うこと、
- (f) 酸処理して得られた酸処理物を、水で洗浄してM X e n e 粒子を得ること、および

10

20

30

40

50

(g) 得られたMXene粒子を液状媒体と混合して、ウイルス不活化液状剤を得ることを含む。この製造方法により、MXene粒子中のLi含有率が0.0020質量%(20質量ppm)以下である、ウイルス不活化液状剤を製造できる。

【0073】

ウイルス不活化液状剤の第2製造方法は、

(a) MAX相から構成される前駆体を準備すること、

(b2) Li含有化合物を含むエッチング液を用いて、前記前駆体から少なくとも一部のA原子をエッチングするとともに、Liインターカレーション処理を行うこと、

(d) 前記エッチングおよびLiインターカレーション処理して得られた(エッチング+Liインターカレーション)処理物を、遠心分離し、上澄み液を廃棄後に残りの沈殿物を水で洗浄する工程を含む、デラミネーション処理を行うこと、

(e) 前記デラミネーション処理して得られたデラミネーション処理物と、酸溶液を混合して攪拌する工程を含む、酸処理を行うこと、

(f) 酸処理して得られた酸処理物を、水で洗浄してMXene粒子を得ること、および

(g) 得られたMXene粒子を液状媒体と混合して、ウイルス不活化液状剤を得ることを含む。この製造方法により、MXene粒子中のLi含有率が0.0020質量%(20質量ppm)以下である、ウイルス不活化液状剤を製造できる。

以下、第1製造方法と第2製造方法の各工程について詳述する。これら2つの製造方法で共通する工程(a)と工程(d)~(g)はまとめて説明する。

【0074】

・工程(a)

まず、MAX相から構成される前駆体を準備する。MAX相は上述の通りである。前駆体は、MAX相に加えて、不可避免的に混入する微量の不純物を含んでいてもよい。

【0075】

・工程(b1)

第1製造方法では、エッチング液を用いて、前記前駆体から少なくとも一部のA原子を除去する、エッチング処理を行う。エッチング処理の条件は、特に限定されず、既知の条件を採用することができる。エッチングは、F⁻を含むエッチング液を用いて実施され得、例えば、フッ酸を用いた方法、フッ化リチウムおよび塩酸の混合液を用いた方法、これらに更にリン酸等を含むエッチング液を用いた方法が挙げられる。これらの方法では、溶媒として例えば純水との混合液を用いた方法が挙げられる。上記エッチング処理により得られたエッチング処理物として例えばスラリーが挙げられる。

【0076】

・工程(c)

前記エッチング処理により得られたエッチング処理物と、Li含有化合物とを混合して攪拌する工程を含む、Liインターカレーション処理を行う。

【0077】

Li含有化合物として、Liイオンを含む金属化合物が挙げられる。Liイオンを含む金属化合物として、Liイオンと陽イオンが結合したイオン性化合物を用いることができる。例えばLiイオンの、ヨウ化物、リン酸塩、硫酸塩を含む硫化物塩、硝酸塩、酢酸塩、カルボン酸塩が挙げられる。

【0078】

インターカレーション処理用配合物に占める、Li含有化合物の含有率は、0.001質量%以上とすることが好ましい。上記含有率は、より好ましくは0.01質量%以上、更に好ましくは0.1質量%以上である。一方、溶液中の分散性確保の観点からは、Li含有化合物の含有率を、10質量%以下とすることが好ましく、より好ましくは1質量%以下である。

【0079】

工程(c)では、例えば上記工程(b1)のエッチング処理で得られたスラリーを、遠心分離-上澄み液除去-残りの沈殿物に純水添加-再度遠心分離を繰り返すことで洗浄し

10

20

30

40

50

て得られた MXe_n の水分媒体クレイを、エッチング処理物として、インターカレーション処理に供することが挙げられる。

【0080】

インターカレーション処理の具体的な方法は特に限定されず、例えば、上記 MXe_n の水分媒体クレイに対して、 Li 含有化合物を混合し、例えば室温で攪拌することが挙げられる。

【0081】

第2製造方法では、以下に説明する通り、工程(b2)で、前駆体のエッチング処理と Li インターカレーション処理をあわせて行う。

【0082】

・工程(b2)

第2製造方法では、 Li 含有化合物を含むエッチング液を用いて、前記前駆体から、少なくとも一部の A 原子（および場合により M 原子の一部）をエッチング（除去および場合により層分離）するとともに、 Li インターカレーション処理を行う。

【0083】

工程(b2)では、 MAX 相からの少なくとも一部の A 原子（および場合により M 原子の一部）のエッチング（除去および場合により層分離）時に、 M_mX_n 層の層間に Li イオンを挿入する、 Li インターカレーション処理を行う。

【0084】

エッチング液中の Li 含有化合物の含有率は、0.001質量%以上とすることが好ましい。上記含有率は、より好ましくは0.01質量%以上、更に好ましくは0.1質量%以上である。一方、溶液中の分散性確保の観点からは、エッチング液中の Li 含有化合物の含有率を、10質量%以下とすることが好ましく、より好ましくは1質量%以下である。

【0085】

工程(b2)におけるエッチング液は、 Li 含有化合物を含んでいればよく、エッチング液のその他の構成は特に限定されず、既知の条件を採用することができる。例えば上記工程(b1)で述べた通り、 F^- を更に含むエッチング液を用いて実施され得、例えば、フッ酸を用いた方法、フッ化リチウムおよび塩酸の混合液を用いた方法、これらに更にリン酸等を含むエッチング液を用いた方法が挙げられる。これらの方法では、溶媒として例えば純水との混合液を用いた方法が挙げられる。上記エッチング処理により得られたエッチング処理物として例えばスラリーが挙げられる。

【0086】

第1製造方法と第2製造方法のうち、第1製造方法の通り、工程(b1)エッチング処理の工程と工程(c) Li インターカレーション処理の工程とを分けた製造方法によれば、 MXe_n をより単層化しやすいため好ましい。

【0087】

・工程(d)

第1製造方法における Li インターカレーション処理により得られた Li インターカレーション処理物、または第2製造方法におけるエッチングおよび Li インターカレーション処理により得られた（エッチング + Li インターカレーション）処理物を、遠心分離し、上澄み液を廃棄後に残りの沈殿物を水で洗浄する工程を含む、デラミネーション処理を行う。デラミネーション処理の条件は特に限定されず、既知の方法で行うことができる。例えば下記に示す方法で行うことが挙げられる。

【0088】

例えばスラリー状の Li インターカレーション処理物または（エッチング + Li インターカレーション）処理物を、遠心分離して上澄み液を廃棄後、残りの沈殿物を水で洗浄する工程として (i) 上澄み液を廃棄後の残りの沈殿物に、純水を追加して攪拌、(ii) 遠心分離し、(iii) 上澄み液を回収する。この (i) ~ (iii) の操作を、1回以上、好ましくは2回以上、10回以下繰り返して、デラミネーション処理物として、酸処理前の単層・少層 MXe_n 含有上澄み液を得ることが挙げられる。または、この上澄み液を遠心分離

10

20

30

40

50

して、遠心分離後の上澄み液を廃棄し、デラミネーション処理物として、酸処理前の単層・少層MXene含有クレイを得てもよい。

【0089】

・工程(e)

前記デラミネーション処理して得られた、デラミネーション処理物(単層・少層MXene含有上澄み液または単層・少層MXene含有クレイ)と、酸溶液とを、混合して攪拌する工程を含む、酸処理を行う。上記酸処理に用いる酸は限定されず、例えば鉱酸等の無機酸、および/または有機酸を用いることができる。前記酸は、好ましくは無機酸のみ、または無機酸と有機酸の混合酸である。前記酸は、より好ましくは無機酸のみである。上記無機酸として例えば、塩酸、硫酸、硝酸、リン酸、過塩素酸、ヨウ化水素酸、臭化水素酸、フッ酸等のうちの1以上を用いることができる。好ましくは、塩酸、硫酸のうちの1以上である。上記有機酸として例えば、酢酸、クエン酸、シュウ酸、安息香酸、ソルビン酸などが挙げられる。デラミネーション処理物と混合させる酸溶液の濃度は、処理対象となるデラミネーション処理物の量や濃度等に応じて調整すればよい。

10

【0090】

上記デラミネーション処理物と酸溶液を混合させて攪拌する。攪拌方法として、ハンドシェイク、オートマチックシェイカー、シェアミキサー、ポットミルなどを用いた攪拌が挙げられる。攪拌速度、攪拌時間等の攪拌の程度は、処理対象となるデラミネーション処理物の量や濃度等に応じて調整すればよい。

【0091】

上記酸溶液を混合して攪拌時、加熱の有無は問わない。酸溶液を混合し、加熱を行わずに攪拌してもよいし、液温が80以下となる範囲で加熱しながら攪拌してもよい。

20

【0092】

上記攪拌後は、例えば遠心分離を行い、上澄み液を除去し、スラリーとして酸処理物を得ることができる。上記酸溶液と混合させて攪拌する操作は1回以上行えばよい。MXene粒子中のLi含有率をより少なくする観点からは、上記酸溶液と混合させて攪拌する操作を2回以上、例えば10回以下の範囲内で行うことが好ましい。上記酸溶液と混合させて攪拌する操作を複数回行う態様として、(i)(デラミネーション処理物または下記(iii))で得られた残りの沈殿物と)酸溶液とを混合して攪拌する、(ii)攪拌物を遠心分離する、(iii)遠心分離後に上澄み液を廃棄する、の工程(i)~(iii)を2回以上、例えば10回以下の範囲内で行うことが挙げられる。

30

【0093】

上記酸処理して得られた酸処理物のpHは、2.5以下であることが好ましい。該pHは、より好ましくは2.0以下、更に好ましくは1.5以下、より更に好ましくは1.2以下である。なお、pHの下限は特に限定されないが、おおよそ1.0程度となる。酸処理物のpHがこのように十分低くなると、MXene粒子の分散性が低下し、その後の工程でMXene粒子が取り扱い難くなるが、かかる方法によれば、次工程で水洗浄を行うことにより該問題が解消される。

【0094】

本開示では、上記の通り酸処理を行って積極的にLiを除去しているため、MXene粒子中のLi含有率をより少なくすることができる。

40

【0095】

・工程(f)

酸処理して得られた酸処理物を、水で洗浄してMXene粒子を得る。酸処理物と混合させる水の量や洗浄方法は特に限定されない。例えば水を加えて攪拌、遠心分離等を行うことが挙げられる。攪拌方法として、ハンドシェイク、オートマチックシェイカー、シェアミキサー、ポットミルなどを用いた攪拌が挙げられる。攪拌速度、攪拌時間等の攪拌の程度は、処理対象となる酸処理物の量や濃度等に応じて調整すればよい。前記水での洗浄は1回以上行えばよい。好ましくは水での洗浄を複数回行うことである。例えば具体的に、(i)(酸処理物または下記(iii))で得られた残りの沈殿物に)水を加えて攪拌、(ii)

50

攪拌物を遠心分離する、(iii)遠心分離後に上澄み液を廃棄する、の工程(i)~(iii)を2回以上、例えば10回以下の範囲で行うことが挙げられる。

【0096】

・工程(g)

上記のようにして得られたMXene粒子を液状媒体と混合して、ウイルス不活化液状剤が得られる。液状媒体の詳細は、上述の通りである。液状媒体が水である場合、工程(f)の洗浄で使用する水(水での洗浄を2回以上実施する場合は最終回で使用する水)は、工程(g)で使用する液状媒体を兼ねていてもよい。

【0097】

得られたウイルス不活化液状剤において、液状媒体のpHは、上述のように、2.7以上7.0以下であり得、好ましくは2.7以上6.0以下、より好ましくは3.0以上5.0以下である。

10

【0098】

以上のようにして、Liのインターカレーションを行う場合であっても、MXene粒子におけるLiの含有率が20質量ppm以下であるウイルス不活化液状剤を製造することができる。

【0099】

MXene粒子におけるLiの含有率は、誘導結合プラズマ発光分光分析法(ICP-AES)や蛍光X線分析(XRF)などの元素(原子)分析により測定可能である。

【0100】

本実施形態のウイルス不活化液状剤において、MXene粒子における塩素と臭素の合計含有率は、1500質量ppm以下であることが好ましい。電子機器業界等では、グリーン調達の一環として、ハロゲンのうち、塩素と臭素の含有率が一定以下に抑えられていること、いわゆる「ハロゲンフリー」であることが求められている。本実施形態のかかるウイルス不活化液状剤は、MXene粒子において塩素と臭素の合計含有率が抑制されているため、ハロゲンフリーが求められる用途に好適に利用可能である。塩素と臭素の合計含有率は、好ましくは900質量ppm以下であり、最も好ましくは0質量ppm以下である。MXene粒子における塩素と臭素の合計含有率の下限は特に限定されず、ゼロであり得る。

20

【0101】

塩素と臭素の合計含有率が抑制されたウイルス不活化液状剤は、例えば以下の第3製造方法により製造可能である。

30

【0102】

ウイルス不活化液状剤の第3製造方法は、

(a)MAX相から構成される前駆体を準備すること、

(b3)エッチング液を用いて、前記前駆体からA原子をエッチングすることであって、前記エッチング液は、 H_3PO_4 濃度が5.5M以上、HI濃度が5.0M以上、および H_2SO_4 濃度が5.0M以上からなる群より選択される少なくとも1つを満たすこと、および

(g3)得られたMXene粒子を液状媒体と混合して、ウイルス不活化液状剤を得ることを含む。

40

【0103】

・工程(a)

まず、MAX相から構成される前駆体を準備する。この工程は、第1製造方法および第2製造方法と同様である。

【0104】

・工程(b3)

エッチング液を用いて、前記前駆体からA原子(および場合によりM原子の一部)をエッチング(除去および場合により層分離)する。前記エッチング液として、 H_3PO_4 濃

50

度が5.5 M以上、HI濃度が5.0 M以上、および H_2SO_4 濃度が5.0 M以上からなる群より選択される少なくとも1つを満たすエッチング液を用いる。

【0105】

工程(b3)では、MAX相からA原子(および場合によりM原子の一部)をエッチング(除去および場合により層分離)後の露出した M_mX_n 層の表面に、エッチング液中に存在する PO_4^{3-} 、I、および SO_4^{2-} からなる群より選択される少なくとも1種が吸着結合する。これら PO_4^{3-} 等が M_mX_n 層の表面に吸着することで、立体障害によりMXene層間距離が広がり、 M_mX_n 層間のファンデルワールス力が弱まると考えられる。その結果、多層の M_mX_n 層に対して強いせん断を与えなくとも、 M_mX_n 層を容易に単層化できると考えられる。また、強いせん断を与える必要がないため、 M_mX_n 層の平面内での破壊が抑制され、その結果、2次元面の大きな単層の M_mX_n 層を得ることができる。

10

【0106】

上記エッチング液は、塩酸を含まず、すなわち塩素原子を含まない。なお、エッチング液の「塩素原子を含まない」とは、エッチング液中の塩素濃度が、例えば燃焼-イオンクロマトグラフィーで測定したときに10質量ppm以下であることをいう。

【0107】

上記エッチング液は、塩酸を含まず、上記所定量の H_3PO_4 等の少なくともいずれかを含んでいればよく、エッチング液のその他の構成は特に限定されず、既知の条件を採用することができる。例えば、 F^- を更に含むエッチング液を用いて実施され得、例えば、フッ酸(HF)と上記所定量の H_3PO_4 等の少なくともいずれかとの混合液を用いた方法が挙げられる。この混合液中のフッ酸の濃度は1質量%以上、50質量%以下とすればよい。

20

【0108】

上記エッチング液中の、 H_3PO_4 濃度、HI濃度、 H_2SO_4 濃度は高ければ高いほど好ましいため、その上限は特に限定されないが、例えば H_3PO_4 濃度は13.2 M以下、HI濃度は6.5 M以下、 H_2SO_4 濃度は16.5 M以下とすることができる。

【0109】

上記エッチング後の工程は特に限定されず、既知の方法で、MXene粒子を得ることができる。例えば、上記エッチング後のスラリーを、遠心分離-上澄み液除去-残りの沈殿物に純水添加-再度遠心分離を繰り返して洗浄し、次いでインターカレーション処理、およびデラミネーション処理を行うことが挙げられる。

30

【0110】

例えば、工程(b3)の後、第2製造方法にて上述した工程(c)~(f)を実施してよい。

【0111】

・工程(g3)

上記のようにして得られたMXene粒子を液状媒体と混合して、ウイルス不活化液状剤が得られる。液状媒体の詳細は、上述の通りである。工程(b3)の後、上述した工程(c)~(f)を実施する場合、工程(g3)は、上述した工程(g)と同様の説明が当て嵌まり得る。

40

【0112】

以上のようにして、MXene粒子における塩素と臭素の合計含有率は、1500質量ppm以下であるウイルス不活化液状剤を製造することができる。工程(b3)の後、上述した工程(c)~(f)を実施する場合には、MXene粒子におけるLiの含有率を20質量ppm以下にできる。

【0113】

MXene粒子における塩素および臭素の各含有率は、燃焼-イオンクロマトグラフィーにより測定可能である。

【0114】

50

なお、第1～第3製造方法では、エッチング後にデラミネーションとして超音波処理を行わない。超音波処理を行わないため粒子破壊が生じ難く、2次元面の大きい単層・少層MXeneを含むMXene粒子を得ることができる。

【0115】

本実施形態のウイルス不活化液状剤において、MXene粒子は、金属および金属酸化物の少なくとも一方を担持してよい。これにより、担持する金属および/または金属酸化物に応じて、ウイルス不活化能を向上させること、および/または他の機能(抗菌性、触媒機能など)を付加することが可能となる。金属または金属酸化物を構成する金属は、例えばAgなどであってよい。MXene粒子が金属を担持する場合、例えば、MXene粒子に金属粒子を担持させてよい。MXene粒子が金属酸化物を担持する場合、例えば、MXene粒子に金属酸化物粒子を担持させても、MXene層を構成する金属(M)を部分的に酸化させて、MXene粒子に(上記部分酸化により生成した)金属酸化物を担持させてもよい。MXene粒子が金属および/または金属酸化物を担持していることは、粒子をX線回折(XRD)測定に付して得られたXRDプロファイルにおいて、MXeneに特有のピークと、金属および/または金属酸化物に特有のピークとが検出されることで確認できる。MXeneに特有のピークは、MXeneの(001)面(1は2の自然数倍の数、即ち、1=2、4、6、8、10、12・・・)、特に(002)面のピークであってよい。XRDプロファイルにおいて金属および/または金属酸化物に特有のピークが検出されることは、当該金属および/または金属酸化物の含有量(金属および/または金属酸化物担持MXene粒子の全体基準)が、数質量%以上であることを意味する。

【0116】

例えば、MXene粒子は、酸化チタンを担持してよい。MXene粒子が酸化チタンを担持することにより、ウイルス不活化液状剤に抗菌性を付加することが可能となる。この場合、例えば、MXene粒子に酸化チタン粒子を担持させても、MXene層を構成するTiを部分的に酸化させて、MXene粒子に(上記部分酸化により生成した)酸化チタンを担持させてもよい。本実施形態を限定するものではないが、具体的には、上記部分酸化は、酸素の存在下にて、例えば60～80(代表的には約70)にて50～250時間(代表的には70～200時間)、加熱することで実施され得る。酸化チタンは、特に限定されないが、アナターゼ型であり得る。例えば、MXene粒子がTi₃C₂T_sであり、これに含まれるTiを部分酸化させてTiO₂を生じさせ、TiO₂担持Ti₃C₂T_s粒子を得た場合、粒子をX線回折(XRD)測定に付して得られたXRDプロファイルにおいて、Ti₃C₂T_sに特有の(002)面のピークが2θ=5～8°付近に検出され、アナターゼ型TiO₂に特有のピークが2θ=24～26°付近に検出されることで確認できる。

【0117】

なお、MXene粒子における部分酸化は過度に進行すると分散安定性の観点から望ましくないが、上述したように、部分酸化がある程度起こっても、ウイルス不活化の効果は有意に失活しない。ウイルス不活化液状剤に所望される特性や用途等に応じて、部分酸化を適度に進行させて、ウイルス不活化の効果と抗菌性とを両立させてよい。

【0118】

(実施形態2：ウイルス不活化物品)

以下、本開示の1つの実施形態におけるウイルス不活化物品について詳述するが、本開示はかかる実施形態に限定されるものではない。

【0119】

図2を参照して、本実施形態のウイルス不活化物品20は、

基材11と、

基材11上に配置されたウイルス不活化層13と

を含み、ウイルス不活化層13が、所定の層状材料(MXene)の粒子10を含む。

【0120】

10

20

30

40

50

基材 1 1 は、ウイルス不活化の機能を付与することが所望され得る任意の適切な物品であり得る。基材 1 1 は、ウイルス不活化層 1 3 を支持する支持体としても理解され得る。

【 0 1 2 1 】

基材 1 1 の材質および形態等は特に限定されない。例えば、基材 1 1 は、繊維、ガラス、ポリマー/ポリマー組成物（樹脂、プラスチック等）、セラミック、金属などから構成されていてよい。

【 0 1 2 2 】

例えば、基材 1 1 は、フィルター、マスク、フェイスシールド、包帯、手袋、ガウン、タッチパネル、ディスプレイ（モニターを含む）、フィルム（保護フィルムを含む）およびシール（sticker）からなる群より選択されるいずれかであってよい。フィルターは、空気清浄機やエアコンディショナーに使用されるフィルター、浄水器や排水処理設備に使用されるフィルター（メンブレン）などであってよい。マスク、フェイスシールド、包帯、手袋、ガウン、タッチパネル、ディスプレイ、フィルムおよびシールは、一般的なものであり得る。なかでも、マスク、フェイスシールド、包帯、手袋、ガウン、タッチパネル、ディスプレイは、医療用のもの（医療現場において使用されるもの）であり得、特にウイルスに曝され易い場合に好適に利用される。フィルムおよびシールは、ウイルス不活化層が配置される面と反対側に粘着層を有し得、該粘着層を介して、任意の他の物品その他（例えばタッチパネル、ディスプレイ、多数の人が触れる可能性がある箇所等）に貼付可能であってよい。あるいは、フィルムは、粘着層を有していなくてもよく、例えば多孔性フィルムであってよい。

【 0 1 2 3 】

本実施形態において、ウイルス不活化層 1 3 は、実施形態 1 にて上述したウイルス不活化液状剤を用いて形成され得る。より詳細には、本実施形態のウイルス不活化物品 2 0 は、

（ a ）ウイルス不活化液状剤を基材 1 1 上に適用して、MXene の粒子を含むウイルス不活化層の前駆体を形成すること、および

（ b ）上記前駆体を乾燥させて（換言すれば、液状媒体を少なくとも部分的に除去して）、ウイルス不活化層 1 3 を形成することによって製造され得る。

【 0 1 2 4 】

上記（ a ）においてウイルス不活化液状剤を基材 1 1 上に適用する方法は、特に限定されず、例えばスプレー、スピンキャスト、ブレード法、印刷、刷毛塗り、浸漬などを利用できる。

【 0 1 2 5 】

上記（ a ）および上記（ b ）は、所望のウイルス不活化層厚さが得られるまで、合計 2 回以上繰り返し実施してもよい。

【 0 1 2 6 】

ウイルス不活化層 1 3 は、実質的にMXene 粒子 1 0（および場合により残存し得る液状媒体）のみから構成されていても、MXene 粒子 1 0（および場合により残存し得る液状媒体）に加えて、分散剤、バインダ、酸化防止剤、粘度調整剤および香料からなる群より選択される少なくとも 1 つの添加剤（図示せず）を更に含んでもよい。なお、ウイルス不活化の高い効果を得るには、図 2 に示すように基材表面 1 1 a が平坦である場合には、基材表面 1 1 a に対して、MXene 粒子 1 0 ができるだけ平行に配向した（平坦に並んだ）状態で存在してウイルス不活化層 1 3 を形成することが好ましいが、これに限定されない。例えば、基材表面が平坦でない（表面粗さが大きい）場合には、MXene 粒子 1 0 は、基材表面の状態に沿って配向した状態で存在してウイルス不活化層 1 3 を形成してよい。

【 0 1 2 7 】

これにより、基材 1 1 の表面 1 1 a がウイルス不活化層 1 3 でコートされる。ウイルス不活化層 1 3 は、基材表面 1 1 a の全面をコートしていても、基材表面 1 1 a の一部をコートしていてもよい。ウイルス不活化層 1 3 の厚さは、ウイルス不活化物品 2 0 の用途等

10

20

30

40

50

に応じて様々であり得、例えば $0.1 \mu\text{m}$ 以上 1mm 以下であり得る。

【0128】

本実施形態のウイルス不活化物品20によれば、実施形態1にて上述したものと同様のメカニズムによりMXene粒子がウイルスを不活化させ得、ウイルス不活化の効果を長時間に亘って持続的に発揮できる。

【0129】

その他については、本実施形態において特に説明のない限り、実施形態1と同様の説明が本実施形態にも当て嵌まり得る。

【実施例】

【0130】

10

(実施例1)

実施例1は、実施形態1にて上述したウイルス不活化液状剤の1つの例に関する。

【0131】

〔ウイルス不活化液状剤の調製〕

実施例1では、以下に詳述するように、(1)前駆体(MAX)の準備、(2)前駆体のエッチング、(3)洗浄、(4)デラミネーションおよび(5)濃度調整を順に実施して、ウイルス不活化液状剤を調製した。

【0132】

(1)前駆体(MAX)の準備

TiC粉末、Ti粉末およびAl粉末(いずれも株式会社高純度化学研究所製)を2:1:1のモル比で、ジルコニアボールを入れたボールミルに投入して24時間混合した。得られた混合粉末をAr雰囲気下にて1350で2時間焼成した。これにより得られた焼成体(ブロック)をエンドミルで最大寸法 $40 \mu\text{m}$ 以下まで粉砕した。これにより、前駆体(MAX)として Ti_3AlC_2 粒子を得た。

20

【0133】

(2)前駆体のエッチング

上記方法で調製した Ti_3AlC_2 粒子(粉末)を用い、下記エッチング条件でエッチングを行って、 Ti_3AlC_2 粉末に由来する固体成分を含む固液混合物(スラリー)を得た。

(エッチング条件)

30

- ・前駆体： Ti_3AlC_2 (目開き $45 \mu\text{m}$ ふるい通し)
- ・エッチング液組成：LiF 3gおよび塩酸(9モル/L) 30mLの混合物
- ・前駆体投入量：3.0g
- ・エッチング容器：100mLアイボーイ
- ・エッチング温度：35
- ・エッチング時間：24h
- ・スターラー回転数：400rpm

【0134】

(3)洗浄

上記スラリーを3分割して、50mL遠沈管3本にそれぞれ挿入し、遠心分離機を用いて相対遠心力(RCF)3500Gの条件で遠心分離を行った後(これによりクレイが沈降する)、上澄み液を分離除去(廃棄)した。各遠沈管(上澄み液が分離除去された残部が存在する)に純水40mLを追加し、再度3500Gで遠心分離を行って、上澄み液を分離除去するという操作を11回繰り返した。そして最終的に、上澄み液が分離除去された残部(沈殿物)として、MXene($\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_s$)粒子-水分媒体クレイを得た。

40

【0135】

(4)デラミネーション

上記MXene($\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_s$)粒子-水分媒体クレイに純水40mLを追加してからシェーカーで15分間攪拌後に、3500Gで遠心分離し、上澄み液を、単層・少層MXene(Ti_3C_2

50

T_s) 粒子含有液に含まれるMXene粒子の厚さの平均値は、1nm以上10nm以下であった(以下の実施例も同様)。

【0136】

(5) 濃度調整

上記単層・少層MXene(Ti₃C₂T_s)粒子含有液を純水で希釈して、固形分である粒子の濃度が5mg/mLとなるように調整して、ウイルス不活化液状剤を得た。

【0137】

以上により、単層・少層MXene(Ti₃C₂T_s)粒子を純水中に5mg/mLで含む、実施例1のウイルス不活化液状剤を調製した。このウイルス不活化液状剤における液状媒体のpHは、4.3であった。このウイルス不活化液状剤において、粒子が凝集/沈降せずに良好に分散していることが目視にて確認された。

10

【0138】

[評価:エンベロープウイルスに対する不活化]

実施例1で得られたウイルス不活化液状剤を検体(試料)とし、この検体のエンベロープウイルスに対する不活化試験を行って、ウイルス不活化能を評価した。エンベロープウイルスにはインフルエンザウイルスを使用した。試験の詳細は下記の通り。

【0139】

(1) 試験に使用したウイルス等

試験ウイルス:

Influenza A virus (H1N1) A/PR/8/34 ATCC VR-1469

20

使用細胞:

MDCK(NBL-2)細胞JCRB 9029株

使用培地:

・細胞増殖培地

イーグルMEM培地「ニッスイ」(1)(日水製薬株式会社)に牛胎仔血清を10%加えたものを使用した。

・細胞維持培地

下記組成のものを使用した。

イーグルMEM培地「ニッスイ」(1) 100mL

10%炭酸水素ナトリウム 14mL

30

L-グルタミン(30g/L) 9.8mL

MEM用ビタミン液(100x) 30mL

10%アルブミン 20mL

0.25%トリプシン 20mL

【0140】

(2) ウイルス液の調製

・細胞の培養

細胞培養用フラスコ内にて、細胞増殖培地を用いて、使用細胞を単層培養した。

・ウイルスの接種

単層培養後、上記フラスコ内から細胞増殖培地を除き、試験ウイルスを接種した。次に、細胞維持培地を加えて37 ± 1 の炭酸ガスインキュベーター(CO₂濃度:5%)内で1~5日間培養した。

40

・ウイルス液の調製

上記培養後、倒立位相差顕微鏡を用いて細胞の形態を観察し、細胞に形態変化(細胞変性効果)が起こっていることを確認した。次に、培養液を遠心分離(3000rpm、10分間)し、上澄み液を分離回収した。得られた上澄み液を精製水で10倍希釈して、ウイルス液を得た。

【0141】

(3) 試験操作

検体(ウイルス不活化液状剤)1mLに、上記ウイルス液0.1mLを添加、混合して

50

混合液（以下、「作用液」と言う）を得た。

作用液を室温にて維持することで作用させ、開始から1分、5分、15分、24時間後に、作用液を細胞維持培地で1000倍に希釈し、ウイルス感染価を測定した。（なお、予備試験において、作用液を細胞維持培地で1000倍に希釈することにより、検体の影響を受けずにウイルス感染価を測定できることを予め確認した。）

また、対照として精製水を用いて同様に試験し、開始時（開始直後）および開始から1分、5分、15分、24時間後に、ウイルス感染価を測定した。

【0142】

（4）ウイルス感染価の測定

組織培養用マイクロプレート（96穴）内にて、細胞増殖培地を用いて、使用細胞を単層培養した後、細胞増殖培地を除き、細胞維持培地を（各穴に）0.1mLずつ加えた。次に、上記100倍希釈後の作用液および上記対照を、細胞維持培地を用いて10倍ずつ段階的に希釈した。得られた希釈液0.1mLを、各希釈倍率につき4穴ずつに接種し、 37 ± 1 の炭酸ガスインキュベーター（CO₂濃度：5%）内で4～7日間培養した。

上記培養後、倒立位相差顕微鏡を用いて細胞の形態変化（細胞変性効果）の有無を観察し、Reed-Muench法により50%組織培養感染量（TCID₅₀）を算出して、作用液1mL当たりのウイルス感染価（log₁₀TCID₅₀/mL）に換算した。

ウイルス感染価（log₁₀TCID₅₀/mL）の測定結果を表1に示す。

【0143】

【表1】

	log ₁₀ TCID ₅₀ /mL				
	開始時	1分	5分	15分	24時間
検体	-	<3.5	<3.5	<3.5	<3.5
対照	6.5	6.3	6.5	6.3	6

表中、「3.5」は、検出下限未満であった（ウイルス感染が検出されなかった）ことを示す。

【0144】

表1から理解されるように、実施例1のウイルス不活化液状剤（検体）は、作用開始からわずか1分で、ウイルス感染価が検出下限未満となり、短時間でウイルスを不活化できることが確認された。更に、実施例1のウイルス不活化液状剤（検体）は、作用開始から24時間後でも、ウイルス感染価が検出下限未満であり、ウイルスを持続的に不活化できることが確認された。かかる結果は、実施例1のウイルス不活化液状剤が、エンベロープウイルスに対して高いウイルス不活化能を有することを示すものであった。

【0145】

〔評価：ノンエンベロープウイルスに対する不活化〕

実施例1のウイルス不活化液状剤は、ノンエンベロープウイルスに対しても高いウイルス不活化能を有するものと考えられる。

【0146】

（実施例2）

実施例2は、実施例1の改変例に関する。

【0147】

〔ウイルス不活化液状剤の調製〕

実施例2では、以下に詳述するように、実施例1の（4）デラミネーションの後に、追加工程として部分酸化を実施し、その後、（5'）濃度調整を実施して、ウイルス不活化液状剤を調製した。

【0148】

まず、実施例1にて詳述した（1）前駆体（MAX）の準備、（2）前駆体のエッチング、（3）洗浄、（4）デラミネーションまでと同様の操作を実施して、単層・少層MX

10

20

30

40

50

e n e (T i ₃ C ₂ T _s) 粒子含有液を得た。

【 0 1 4 9 】

これにより得られた単層・少層 M X e n e (T i ₃ C ₂ T _s) 粒子含有液は、固形分である粒子の濃度が 1 2 5 m g / m L であった。

【 0 1 5 0 】

(追加工程) 部分酸化

上記単層・少層 M X e n e (T i ₃ C ₂ T _s) 粒子含有液を、酸素を含む相対湿度 9 0 % の環境下にて 7 0 の加熱処理 (酸化処理) に付して、処理液を得た。処理時間は 1 9 4 . 5 時間とした。

【 0 1 5 1 】

上記加熱処理 (酸化処理) において部分酸化が進行していることを確認するため、上記単層・少層 M X e n e (T i ₃ C ₂ T _s) 粒子含有液 (処理前) および上記処理液 (処理後) からそれぞれ固形分 (粒子) を採取して、走査型電子顕微鏡 (S E M) により観察した。得られた S E M 写真を図 3 に示す。図 3 (a) に示す処理前の状態に比べて、図 3 (b) に示す処理後の状態では、低温酸化により得られる T i O ₂ に特有の細長い像 (S E M 写真において白い伸長像の粒子として観察される) が認められた。また、上記固形分 (粒子) を X 線回折 (X R D) 測定に付して X R D プロファイルを得た。処理前の固形分 (粒子) の X R D パターンに比べて、処理後の固形分 (粒子) の X R D パターンでは、 T i ₃ C ₂ T _s に特有の 2 θ = 5 ~ 8 ° 付近のピークの高さが減少し、新たに、アナターゼ型 T i O ₂ に特有の 2 θ = 2 4 ~ 2 6 ° 付近のピークが検出された。

【 0 1 5 2 】

(5 ') 濃度調整

上記加熱処理 (酸化処理) 後の処理液を純水で希釈して、固形分である粒子の濃度が 5 m g / m L となるように調整して、ウイルス不活化液状剤を得た。

【 0 1 5 3 】

以上により、 T i O ₂ を担持した単層・少層 M X e n e (T i ₃ C ₂ T _s) 粒子を純水中に 5 m g / m L で含む、実施例 2 のウイルス不活化液状剤を調製した。このウイルス不活化液状剤における液状媒体の p H は、 4 . 3 であった。このウイルス不活化液状剤において、粒子が凝集 / 沈降せずに良好に分散していることが目視にて確認された。

【 0 1 5 4 】

〔 評価 : エンベロープウイルスに対する不活化 〕

実施例 2 で得られたウイルス不活化液状剤を検体 (試料) とし、この検体のエンベロープウイルスに対する不活化試験を、実施例 1 と同様にして行って、ウイルス不活化能を評価した。これにより得られた結果は、実施例 2 のウイルス不活化液状剤が、エンベロープウイルスに対して高いウイルス不活化能を有することを示すものであった。

【 0 1 5 5 】

〔 評価 : ノンエンベロープウイルスに対する不活化 〕

実施例 2 のウイルス不活化液状剤は、ノンエンベロープウイルスに対しても高いウイルス不活化能を有するものと考えられる。

【 0 1 5 6 】

(実施例 3)

実施例 3 は、実施形態 2 にて上述したウイルス不活物品に関する。

【 0 1 5 7 】

〔 ウイルス不活物品の製造 〕

実施例 3 では、以下に詳述するように、ウイルス不活化液状剤を基材上に適用して、ウイルス不活化層を形成し、これにより、基材上にウイルス不活化層が配置されたウイルス不活物品を製造した。

【 0 1 5 8 】

まず、上記 (5) 濃度調整にて、純水による希釈度を変更したこと以外は、実施例 1 と同様の操作を実施して、単層・少層 M X e n e (T i ₃ C ₂ T _s) 粒子を純水中に 3 4 m g

10

20

30

40

50

／mLで含む、ウイルス不活化液状剤を調製した。

このウイルス不活化液状剤において、MXene粒子の厚さの平均値は、1nm以上10nm以下であり、MXene粒子の二次元シート面内における平均寸法は、3μmであった。

このウイルス不活化液状剤は、MXene(Ti₃C₂T_s)粒子が純水中に分散した分散液であり、バインダや分散剤などの添加剤を含まないものとした。

【0159】

別途、基材として、UV処理により表面を親水化したガラス基板を準備した。

【0160】

そして、ガラス基板の親水化表面に対して、上記で調製したウイルス不活化液状剤をスプレーし、その後、ドライヤーで温風を吹き付けるという操作を30回繰り返し、その後更に、常圧オープン内で80℃にて2時間の予備乾燥および真空オープン内で150℃にて18時間の本乾燥に付した(乾燥により、液状媒体である純水は実質的に除去された)。これにより、ガラス基板の親水化表面上に、単層・少層MXene(Ti₃C₂T_s)粒子から構成されるウイルス不活化層を形成した。ウイルス不活化層の厚さは、約2μmであった。

【0161】

以上により、単層・少層MXene(Ti₃C₂T_s)粒子から構成されるウイルス不活化層がガラス基板上に配置された、実施例3のウイルス不活物品が得られた。

【0162】

〔評価：エンベロープウイルスに対する不活化〕

実施例3のウイルス不活物品は、エンベロープウイルスに対して高いウイルス不活化能を有するものと考えられる。

【0163】

〔評価：ノンエンベロープウイルスに対する不活化〕

実施例3のウイルス不活物品は、ノンエンベロープウイルスに対しても高いウイルス不活化能を有するものと考えられる。

【0164】

(実施例4)

実施例4は、実施形態1にて上述したウイルス不活化液状剤のもう1つの例に関する。

【0165】

実施例4では、以下に詳述する、(1)前駆体(MAX)の準備、(2)前駆体のエッチング、(3)エッチング後の洗浄、(4)Liのインターカレーションおよび(5)デラミネーションを順に実施して、ウイルス不活化液状剤を調製した。

【0166】

(1)前駆体(MAX)の準備

実施例1と同様にして、前駆体(粉末状MAX)としてTi₃AlC₂粒子を得た。

【0167】

(2)前駆体のエッチング

エッチング条件におけるエッチング液組成を下記としたこと以外は、実施例1と同様にして、Ti₃AlC₂粉末に由来する固体成分を含む固液混合物(スラリー)を得た。

・エッチング液組成：49%HF 6mL

H₂O 18mL

HCl(12M) 36mL

【0168】

(3)エッチング後の洗浄

上記スラリーを2分割して、50mL遠沈管2本にそれぞれ挿入したこと以外は、実施例1と同様にして、MXene(Ti₃C₂T_s)粒子-水分媒体クレイを得た。

【0169】

(4)Liのインターカレーション

10

20

30

40

50

上記方法で調製したMXene (Ti₃C₂T_s) 粒子 - 水分媒体クレイに対し、下記条件の通り、所定温度範囲で所定時間攪拌して、Liのインターカレーションを行った。

(Liのインターカレーションの条件)

・仕込み組成：

MXene (Ti₃C₂T_s) 粒子 - 水分媒体クレイ：固形分 0.75 g

LiCl 1.00 g

HCl 約 0.67 g

純水 19.42 g

・インターカレーション容器：100 mL アイボーイ

・温度：20 以上 25 以下 (室温)

・時間：12 h

・スターラー回転数：800 rpm

【0170】

(5) デラミネーション

Liのインターカレーションを行って得られたスラリーを、50 mL 遠沈管に投入し、遠心分離機を用いて3500 Gの条件で遠心分離を行った後、上澄み液を廃棄した。次いで、(i) 残りの沈殿物に純水40 mLを追加してからシェーカーで15分間攪拌後に、(ii) 3500 Gで遠心分離し、(iii) 上澄み液を単層・少層MXene含有液として回収した。この(i) ~ (iii)の操作を、合計4回繰り返して、単層・少層MXene含有上澄み液を得た。さらに、この上澄み液を、遠心分離機を用いて4300 G、2時間の条件で遠心分離を行った後、上澄み液を廃棄し、単層・少層MXene含有クレイを得た。これにより得られたクレイを1 mgとり、10 mLの純水に再分散させた。

【0171】

以上により、単層・少層MXene (Ti₃C₂T_s) 粒子を純水中に約3 mg/mLで含む、実施例4のウイルス不活化液状剤を調製した。このウイルス不活化液状剤における液状媒体のpHは、2.7であった。このウイルス不活化液状剤において、粒子が凝集/沈降せずに良好に分散していることが目視にて確認された。

【0172】

(実施例5)

実施例2は、実施例4の改変例に関する。

【0173】

実施例5では、上記(4) Liのインターカレーションにて、Liのインターカレーションの条件における仕込み組成を下記としたこと以外は、実施例4と同様にして、ウイルス不活化液状剤を調製した。

・仕込み組成：

MXene (Ti₃C₂T_s) 粒子 - 水分媒体クレイ：固形分 0.75 g

LiCl 0.97 g

LiOH + H₂O 約 0.03 g

純水 20.00 g

【0174】

以上により、単層・少層MXene (Ti₃C₂T_s) 粒子を純水中に約2 mg/mLで含む、実施例5のウイルス不活化液状剤を調製した。このウイルス不活化液状剤における液状媒体のpHは、6.9であった。このウイルス不活化液状剤において、粒子が凝集/沈降せずに良好に分散していることが目視にて確認された。

【0175】

(実施例6)

実施例6は、実施形態1にて上述したウイルス不活化液状剤の更にもう1つの例に関する。

【0176】

実施例6では、上記(4) Liのインターカレーションにて、Liのインターカレーシ

10

20

30

40

50

ヨンの条件における仕込み組成を下記としたこと、および上記(5)デラミネーションに代えて、下記(5')デラミネーションを行ったこと以外は、実施例4と同様に実施し、その後更に、(6)酸処理、および(7)水洗浄を順に実施して、ウイルス不活化液状剤を調製した。

(Liのインターカレーションの条件)

・仕込み組成：

MXene (Ti₃C₂T_s) 粒子 - 水分媒体クレイ：固形分 0.75 g

LiCl 0.75 g

【0177】

(5')デラミネーション

Liのインターカレーションを行って得られたスラリーを、50 mL 遠沈管に投入し、遠心分離機を用いて3500 Gの条件で遠心分離を行った後、上澄み液を廃棄した。次いで、(i)残りの沈殿物に純水40 mLを追加してからシェーカーで15分間攪拌後に、(ii)3500 Gで遠心分離し、(iii)上澄み液を単層・少層MXene含有液として回収した。この(i)～(iii)の操作を、合計4回繰り返して、単層・少層MXene含有上澄み液を得た。さらに、この上澄み液を、遠心分離機を用いて4300 G、2時間の条件で遠心分離を行った後、上澄み液を廃棄し、単層・少層MXene含有クレイを得た。

10

【0178】

(6)酸処理

上記の単層・少層MXene含有クレイに、(i)1.8 Mの塩酸を35 mL追加してからシェーカーで5分間攪拌後に、(ii)3500 Gで遠心分離を行い、(iii)上澄み液を廃棄した。この(i)～(iii)の操作を合計5回繰り返した。

20

【0179】

(7)水洗浄

上記酸処理後の単層・少層MXene含有クレイに、(i)水を35 mL追加してからシェーカーで5分間攪拌後に、(ii)3500 Gで遠心分離を行い、(iii)上澄み液を廃棄した。この(i)～(iii)の操作を合計5回繰り返して、単層・少層MXene含有試料として単層・少層MXene含有クレイを得た。上記上澄み液は最終的にpHが4以上になっていることを確認した。これにより得られたクレイを1 mgとり、10 mLの純水に再分散させた。

30

【0180】

以上により、単層・少層MXene (Ti₃C₂T_s) 粒子を純水中に約3 mg/mLで含む、実施例6のウイルス不活化液状剤を調製した。このウイルス不活化液状剤における液状媒体のpHは、4.3であった。このウイルス不活化液状剤において、粒子が凝集/沈降せずに良好に分散していることが目視にて確認された。

【0181】

[MXene粒子中のLi含有率の測定]

MXeneをアルカリ熔融法により溶液化し、誘導結合プラズマ発光分光分析法を用いたICP-AES(サーモフィッシャーサイエンティフィック社製のiCAP7400を使用)でLi含有率を測定した。その結果、Li含有率は4質量ppmであった。

40

【0182】

(実施例7)

実施例7は、実施形態1にて上述したウイルス不活化液状剤の更にもう1つの例に関する。

【0183】

実施例7では、以下に詳述する、(1)前駆体(MAX)の準備、(2)前駆体のエッチング、(3)エッチング後の洗浄、(4)Liのインターカレーションおよび(5)デラミネーションを順に実施して、ウイルス不活化液状剤を調製した。

【0184】

(1)前駆体(MAX)の準備

50

実施例 1 と同様にして、前駆体（粉末状 MAX）として Ti_3AlC_2 粒子を得た。

【0185】

（2）前駆体のエッチング

エッチング条件におけるエッチング液組成を下記としたこと以外は、実施例 1 と同様にして、 Ti_3AlC_2 粉末に由来する固体成分を含む固液混合物（スラリー）を得た。

（エッチング条件）

- ・エッチング液組成：HF 濃度 2.8 M
 H_3PO_4 濃度 7.4 M

【0186】

（3）エッチング後の洗浄

上記スラリーを 2 分割して、50 mL 遠沈管 2 本にそれぞれ挿入したこと以外は、実施例 1 と同様にして、MXene ($Ti_3C_2T_s$) 粒子 - 水分媒体クレイを得た。

【0187】

（4）Li のインターカレーション

上記方法で調製した MXene ($Ti_3C_2T_s$) 粒子 - 水分媒体クレイに対し、 Li_3PO_4 、 H_3PO_4 および純水を加え、所定温度範囲で所定時間攪拌して、Li のインターカレーションを行った。

（Li インターカレーションの条件）

・仕込み組成：

- MXene ($Ti_3C_2T_s$) 粒子 - 水分媒体クレイ：固形分 0.75 g
- Li_3PO_4 ：0.68 g
- 85 質量% H_3PO_4 ：3.1 mL
- 純水：31.9 mL

・インターカレーション容器：100 mL アイボーイ

・温度：20 以上 25 以下（室温）

・時間：15 h

・スターラー回転数：800 rpm

【0188】

（5）デラミネーション

Li のインターカレーションを行って得られたスラリーを、50 mL 遠沈管に投入し、遠心分離機を用いて 3500 G の条件で遠心分離を行った後、上澄み液を廃棄した。次いで、上澄みを除いた残りの沈殿物に純水 40 mL を追加してからシェーカーで 15 分間攪拌後に、3500 G で遠心分離し、上澄み液を、単層・少層 MXene 含有液として回収する操作を、4 回繰り返して、単層・少層 MXene 含有液状物を得た。

【0189】

以上により、単層・少層 MXene ($Ti_3C_2T_s$) 粒子を純水中に約 3 mg/mL で含む、実施例 7 のウイルス不活化液状剤を調製した。このウイルス不活化液状剤における液状媒体の pH は、4.3 であった。このウイルス不活化液状剤において、粒子が凝集 / 沈降せずに良好に分散していることが目視にて確認された。

【0190】

〔MXene 粒子中の塩素含有率と臭素含有率の測定〕

実施例 7 で得られた MXene 粒子中の塩素含有率と臭素含有率を、サーモフィッシャーサイエンティフィック社製の燃焼 - イオンクロマトグラフィー装置 (Dionex IC5-5000) を用いて測定した。その結果、塩素含有率は 50 質量 ppm 以下であり、臭素含有率も 50 質量 ppm 以下、すなわち、塩素と臭素の合計含有率は 100 質量 ppm 以下であった。

【0191】

〔評価：ウイルスに対する不活化〕

実施例 4 ~ 7 のウイルス不活化液状剤は、実施例 1 のウイルス不活化液状剤と同様に、エンベロープウイルスおよびノンエンベロープウイルスに対して高いウイルス不活化能を

10

20

30

40

50

有するものと考えられる。

【産業上の利用可能性】

【0192】

本開示のウイルス不活化液状剤およびウイルス不活化物品は、ウイルスを不活化させ得るので、人間およびその他の生物がウイルスに感染することを防止するために利用可能である。

【0193】

本願は、2020年12月22日付けで米国にて出願された出願No. 63/129051に基づく優先権を主張し、その記載内容の全てが、参照することにより本明細書に援用される。

10

【符号の説明】

【0194】

1 a、1 b 層本体 ($M_m X_n$ 層)

3 a、5 a、3 b、5 b 修飾または終端 T

7 a、7 b MXene層

10、10 a、10 b MXene (層状材料) 粒子

11 基材

11 a 基材表面

13 ウイルス不活化層

20 ウイルス不活化物品

20

30

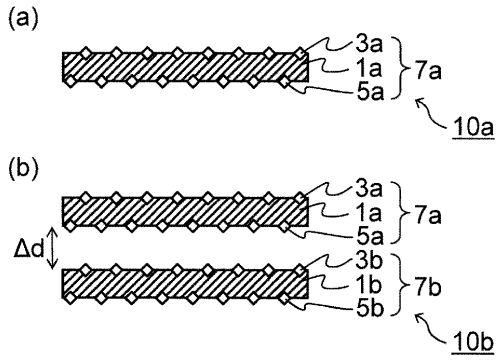
40

50

【 図面 】

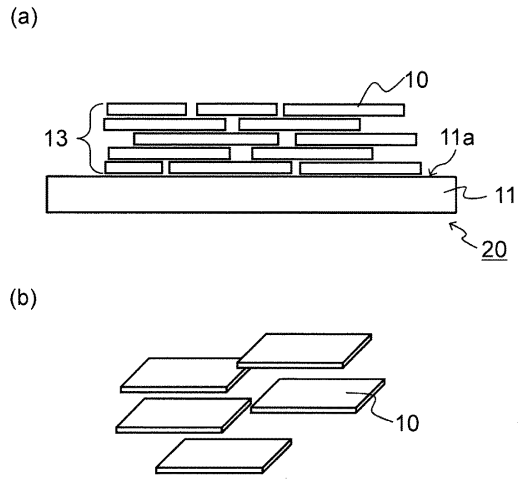
【 図 1 】

図1



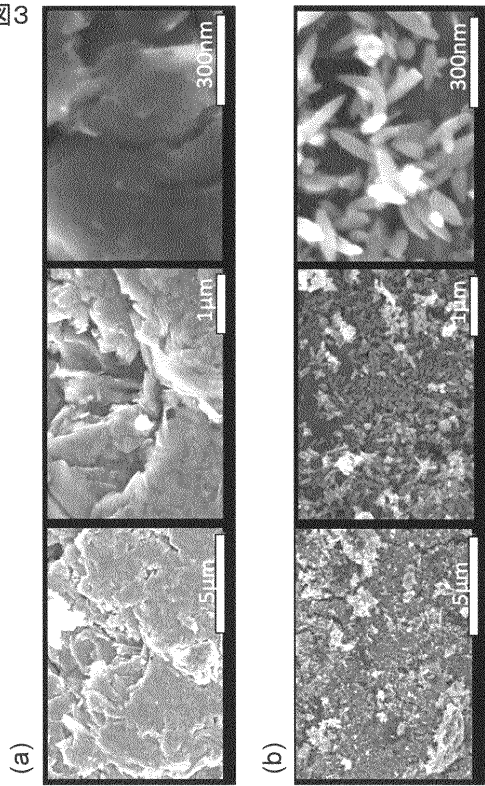
【 図 2 】

図2



【 図 3 】

図3



10

20

30

40

50

フロントページの続き

- (72)発明者 岡村 一太郎
京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内
- (72)発明者 コーブ, ジェラルド リー
アメリカ合衆国30080ジョージア州スマーナ、レイク・パーク・ドライブ2200、ムラタ・
エレクトロニクス・ノース・アメリカ・インコーポレイテッド内
- 審査官 長谷川 大輔
- (56)参考文献 中国特許出願公開第111905829(CN, A)
特表2009-526828(JP, A)
UNAL, M. A. et al., 2D MXenes with antiviral and immunomodulatory properties: A pilot study against SARS-CoV-2, Nano Today, 2021年03月18日, 38, 101136
- (58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)
A01N1/00-65/48
A01P1/00-23/00
JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamIII)