

(様式2)

## 学位論文の概要及び要旨

氏 名 本 池 紘 一 印

題 目 ドロマイトの抗ウイルス性能に及ぼす加工条件の影響に関する研究

学位論文の概要及び要旨

天然化合物であるドロマイト ( $\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$ ) は炭酸マグネシウム ( $\text{MgCO}_3$ ) と炭酸カルシウム ( $\text{CaCO}_3$ ) の複塩であり、これを焼成・水和などの加工を行った材料が強力な抗菌抗ウイルス性能を発現することを見出してきた。しかしながら、これまでドロマイト加工材料自身の焼成・水和などの加工条件の最適化は行われてこなかった。本研究では、近年世界的に問題となっている鳥インフルエンザウイルスに焦点を絞り、ドロマイト加工材料の抗ウイルス性能が最も向上する加工条件の探索を目指した。ドロマイトの焼成による熱分解過程や水和過程を見直して、これらの条件によってドロマイト加工材料の物性と抗ウイルス性がどのように変化するか検討した。

また、加工条件の検討とともに、ドロマイト加工材料の安定性に関する評価も行った。安定性に関する知見は製造、貯蔵の際に重要なデータとなりうるため、本研究では材料自身の安定性と抗ウイルス性能への影響を対応させて評価を試みた。

ドロマイトを焼成すると  $700^\circ\text{C}$  付近からの熱分解反応で  $\text{MgO}$ 、 $\text{CaO}$  の順に出現し、それによって抗ウイルス性も発現した。特に試料中に  $\text{CaO}$  が現れた時点で強力な抗ウイルス効果を示した。焼成ドロマイト中の結晶子径及び比表面積が抗ウイルス性能と相関していることを見出し、結晶子径が小さく、比表面積が大きな試料ほど、優れた抗ウイルス性を示すことが確認できた。分解直後の温度 ( $800^\circ\text{C}$ ) での焼成、または遊星型ボールミル装置を用いた粉碎などを行い、結晶子径が小さく、高比表面積の試料について性能が向上することを明かにした。

本研究で用いたドロマイトは栃木県産であるが、比較のため産地の異なるノルウェー産についても検討した。栃木県産の試料がノルウェー産よりわずかに高い効果を示した。試薬中の  $\text{Ca/Mg}$  モル比が栃木県産で 1.31、ノルウェー産で 1 であり、 $\text{Ca}$  含有率が抗ウイルス性に影響を及ぼしていると推察された。

ドロマイト加工物は  $\text{CaO}$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 、 $\text{CaCO}_3$  などの混合物であり、個々の成分の抗ウイルス性について評価した結果、試験条件が  $4^\circ\text{C}$  10 分間では、 $\text{CaO}$ 、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 、試薬のみ強い抗ウイルス性を示したのに対して、 $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$  試薬は抗ウイルス性を示さなかった。また、ドロマイト中の主成分である  $\text{Ca}$  と  $\text{Mg}$  の組成比の異なる試料を調製して抗ウイルス性を比較した結果、 $\text{Ca}$  含有量が多い試料ほどわずかな差ではあるが、抗ウイルス性が優れており、 $\text{Ca}$  を含有しない試料では抗ウイルス性をほとんど示さなかった。 $\text{Mg}$  成分について試験温度  $4^\circ\text{C}$  では、抗ウイルス性能を示さなかったが、 $37^\circ\text{C}$  に変更すると効果が発現した。同時に、XRD 測定によって  $37^\circ\text{C}$  では  $\text{MgO}$  の水和反応が進行するが、 $4^\circ\text{C}$  では進行しないことも確認した。 $\text{CaO}$  について  $37^\circ\text{C}$  において  $\text{MgO}$  より早く水和が進行し、抗ウイルス性についても  $\text{MgO}$  より早く出現した。それらの結果から、水和反応の進行が性能の発現に関係しているものと推察された。

続いて、焼成ドロマイトの水和過程について検討した。焼成温度の異なる 3 種類の焼成物をさらに水和処理した試料に関して抗ウイルス試験を行った結果、 $800$ 、 $1100^\circ\text{C}$  焼成水和品は同程度の効果を示し、 $1400^\circ\text{C}$  焼成水和品は他の温度ものに比べて効果が低くなった。

焼成のみ行った試料の場合と同様に抗ウイルス性は試料中の結晶子径，比表面積と関係していることが明らかになった。

加工材料の有する抗ウイルス性能について安定性を評価した。加工ドロマイト中の酸化物または水酸化物は炭酸塩化合物に変化することで，抗ウイルス性が低下することを確認し，その炭酸化は水蒸気共存  $\text{CO}_2$  雰囲気でのみ進行することが明らかになった。ドロマイトを焼成・水和・粉碎した粉末の炭酸化反応に関する活性化エネルギー  $E$  を求めたところ， $29.6\text{KJ/mol}$  であると算出できた。また，焼成温度の異なるドロマイト焼成水和品についての安定性を評価した結果，焼成温度が  $1400^\circ\text{C}$  の試料は  $800$ ， $1100^\circ\text{C}$  の試料よりも高い抗ウイルス性を保持していることがわかった。 $1400^\circ\text{C}$  では結晶子径の大きな  $\text{Ca(OH)}_2$  が得られたことで炭酸化反応の進行が妨げられたため， $\text{Ca(OH)}_2$  が残存したものと考えられる。

類縁化合物の消石灰の安定性と比較した結果，水蒸気共存  $\text{CO}_2$  雰囲気下で炭酸化させたドロマイト焼成水和品は，同じ条件で炭酸化させた消石灰より高い抗ウイルス性を示した。抗ウイルス性の差異には，ドロマイトにのみ存在する  $\text{Mg}$  成分が性能の安定性に関わっているものと推察された。

本論文において，抗ウイルス性の粒径（比表面積）依存性や  $\text{Ca}$  含有率が高い試料ほど性能が高いこと，また消石灰と比較したところドロマイト加工物が消石灰より優れた点が明らかになり，実用的な面で有益なデータが得られた。現在世界規模で流行している鳥インフルエンザ対策の手段の一つとして強力な抗ウイルス性能をもつ加工ドロマイトは有望な材料であると言える。