

塩化セチルピリジニウムと酸化グラフェン処理によるマスクの抗菌性向上

岡山大学 大学院医歯薬学総合研究科 病態制御科学専攻
病態機構学講座 歯周病態学分野

越宗 朋隆

Improving antibacterial properties of masks treated with cetylpyridinium chloride
and graphene oxide

Department of Pathophysiology – Periodontal Science,
Graduate School of Medicine, Dentistry and Pharmaceutical Sciences, Okayama
University

KOSHIMUNE Tomotaka

(令和7年2月27日受付)

1. 緒言

2019年に初めて報告された新型コロナウイルス（SARS-CoV-2）の流行は、感染症予防に対する公衆衛生政策について世界的に大きなインパクトを残した^{1,2)}。世界保健機関（WHO）やアメリカ疾病予防管理センター（CDC）などの各国公衆衛生機関は、飛沫感染や接触感染によって拡散する SARS-CoV-2 に対して、主に手洗いの励行や社会的距離の確保、そしてマスクの着用による対策を提唱した^{3,4)}。マスク着用による感染症対策は、既存研究においてウイルスの飛沫感染を減少させることが実証⁵⁾されており、更に SARS-CoV-2 に対しても一定の感染予防効果が示された⁶⁾。そのため、マスクに対する感染症予防を目的とした個人防護具(PPE)としての価値が向上し、世界的な規模で一時的に供給不安が生じるという事態にまで陥った⁷⁾。

一般的にマスクは、単回使用、もしくは再使用が可能な種類のものが存在し、使用目的や頻度に応じていずれかを選択することが多い。前者は、ディスポーザブルのため衛生面において優れており、特に医療用途で使用されることが多く、前述の通り PPE の一つとして必須のものであることから、パンデミックレベルの感染症の流行が起こった場合であっても安定的な供給が求められる⁷⁾。他方で、後者は経済的な理由で選択されることが多いが、洗浄処理等による適切な衛生管理が必須である。マスクを長時間使用することによって生じる汚染は、マスク自体が使用者の呼気や口腔からの微粒子を含む空気をフィルタリングする性質のものであることから、その内部に微生物やその他の汚染物質が集積し、これらの微生物が時間とともに増殖することが主な原因として報告されている^{8,9)}。さらに、呼気に含まれる湿気がマスク内面に付着することによって、集積した微生物の増殖が助長される要因と言われている⁹⁾。これらの背景を踏まえると、今後広くマスクに求められる要件として、PPE として使用できるレベルの感染症予防効果を十分に担保した上で、再利用が可能な洗浄方法や表面処理方法を模索する必要がある。

現在、マスク表面に対する表面処理は複数の方法が実用化されているが、主なものとして、マスク表面に抗菌剤を塗布する方法やフィルター機能の向上を図る工夫が採用されている⁷⁾。前者では、銀ナノ粒子や抗菌剤等を噴霧することによってマスク表面に塗布する形式で種々の製品が市販化されている。後者は、マスクのフィルター自体に高性能の素材を使用し、微粒子やウイルスの濾過効率を向上させる方法であり、採用されている例としては N95 マスクが知られている。すなわち、マスク表面に対して抗菌処理等を施すにあたっては、その効果が長期に維持されると同時に、マスクが有するフィルター機能、すなわち捕集能を阻害しないことが求められる。

以上を鑑みた上で、マスク表面における新規の抗菌処理方法を検討するにあたり、広く一般に普及させることを考慮し、取り扱いが容易でかつ安価、そして安全に使用することが可能な材料を用いることを考えた。そこで、使用する殺菌剤として使用例が多く、使用歴の長い塩化セチルピリジニウム（cetylpyridinium chloride : CPC）を、さらに CPC をマスク表面に維持させる担体として炭素が主成分である酸化グラフェン（graphene oxide : GO）を応用することに着目した。

CPC は、優れた抗菌作用をもつ陽イオン性の物質¹⁰⁾で、歯磨剤や洗口剤、さらには喉飴（トローチ）に含まれる殺菌成分として活用されていることから、一定の安全性が既に担保されている殺菌剤である。一方で、GO は仁科らの技術革新によって黒鉛を原料した合成方法が確立され、量産化が可能となった¹¹⁾。GO は、安定したシート上の構造で多量の極性官能基を有し、あらゆる物質に対して 1,000 m²/g を超える高い比表面積を持つ¹²⁾。昨今、多様な分野での応用が期待されている材料であり、低濃度における GO 単体の安全性については既に実験動物を用いた研究で示されている¹³⁾。さらに、藤井らは CPC と GO の複合体（CPC-GO）に関する先行研究を行っており、CPC は GO に複合化された状態であっても抗菌性能が失われないことを報告¹⁴⁾している。

上記背景の下、本研究では一般に頻用される不織布マスクに対して、CPC および GO を応用することによる抗菌効果の向上について *in vitro* における検討を行った。

2. 材料と方法

2-1. CPC と GO によるポリプロピレン不織布の処理

既に市販されているマスクに対して CPC（シグマ アルドリッチ ジャパン、東京、日本）と GO を表面処理して使用することを想定し、実験を行った。GO は、岡山大学異分野融合先端コアから供与を受けた。250 mm × 300 mm のポリプロピレン不織布（不織布ロールウエス、トラスコ中山、東京）を用意し、100 mL の 0.045% CPC 水溶液（CPC）または 0.1% GO 水分散液（GO）へ 1 分間浸漬した後、16 時間、25℃ で乾燥させた。さらに、CPC 処理不織布を 100 mL の 0.1% GO 水分散液へ（CPC-GO）、GO 処理不織布を 0.045% CPC 水溶液へ（GO-CPC）、それぞれ 1 分間浸漬し、16 時間、25℃ で乾燥させた（図 1）。乾燥後は遮光した状態で保存し、全ての試験において同日に作製した各不織布を使用した。作製した不織布を光学顕微鏡（DM2700M、ライカマイクロシステムズ、東京、日本）で観察した。

2-2. 走査型電子顕微鏡

ポリプロピレン不織布に対する GO の処理状態を確認するために、10 kV の条件下で走査型電子顕微鏡（scanning electronic microscope : SEM, S-5200, 日立製作所、東京、日本）を用いて表面構造を観察した^{15, 16)}。

2-3. ラマン分光解析

不織布表面の分子構造をラマン分光法によって評価した。ラマン分光計（NRS-3100, 日本分光、東京、日本）を使用して、測定時における励起レーザー（532 nm）と対物レンズ（UMPLFL 100 x）を用いた。測定時間は、10 秒間で、積算は 3 回行った。ラマンスペクトルは 100~4,000 cm⁻¹ の範囲で測定した。スペクトルの帰属は、Infrared and Raman Spectroscopy を参考にした¹⁷⁾。

2-4. エックス線光電子分光法（X-ray photoelectron spectroscopy : XPS）

CPC と GO 処理したポリプロピレン不織布の試料表面における元素比率 (C, O, N, Cl) を, XPS (JPS-9030, 日本電子株式会社, 東京, 日本) を用いて調べた。MgK α 放射線 (1,253.6 eV) で励起し, XPS の取得のために, 10 eV のパスエネルギーを使用した^{16, 18)}。

2-5. 炭素・水素・窒素 (CHN) 元素分析

不織布サンプル中の CPC の存在を確認するために, CHN 元素分析を行った。元素分析装置 (2400II, パーキンエルマー, MA, USA) を用いて, 不織布サンプル 1~2 mg 中の CHN の 3 元素を対象に成分解析を行った¹⁹⁾。

2-6. 赤外吸収分光法 (infrared absorption spectrometry : IR)

不織布上の CPC の存在を IR で評価した^{20, 21)}。フーリエ変換赤外分光光度計 (Shimadzu, IR Tracer-100) を用いて, 400~4,000 cm⁻¹ の範囲で, 1 分間解析を行った。積算回数は, 3 回とした。

2-7. CPC 溶出試験

CPC を処理した不織布からの CPC の溶出を調べるために, 溶出試験を行った。100 mL の電解水中に前処理した不織布を浸漬した。浸漬 7 時間後まで, 1 時間ごとに 4 mL の電解水を採取し, 紫外可視近赤外分光光度計 (V-670, 日本分光, 東京, 日本) を用いて, 190~300 nm の範囲で吸光度を測定した²²⁾。

2-8. CPC と GO 処理マスクの機能評価試験

CPC または GO で処理された不織布の機能を評価するために, 細菌飛沫捕集効率 (bacterial filtration efficiency : BFE) とウイルス飛沫捕集効率 (viral filtration efficiency : VFE) を計測した²³⁾。計測はカケンテストセンター (大阪, 日本) へ依頼した。日本産業規格 (JIS) で指定された手法^{24, 25)}に則って行い, 具体的には, 細菌懸濁液もしくはウイルス懸濁液を粒子系 3 μ m のエアロゾル化し, 低流量吸引ポンプによって 28.3 L/分でチャンバー内を移動させ, サンプルを通過させた。捕集されなかったエアロゾルをシャーレへ捕集し, 16 時間, 37°C で培養した。シャーレ上のコロニー (BFE) またはプラーク (VFE) をコントロールと比較して, BFE と VFE を算出した。BFE 計測のための供試菌は *Staphylococcus aureus* ATCC 6538 を用い, VFE 計測では, 宿主を *Escherichia coli* ATCC 13706 としたバクテリオファージ Phi X174 ATCC 13706-B1 を用いた。

2-9. 微生物の培養

GO と CPC によって処理された不織布の抗菌性を検討するために, *Streptococcus mutans* ATCC25175 (*S. mutans*)²⁶⁾, *Escherichia coli* BL21 (DE3) (*E. coli*)²⁷⁾, そして *Candida albicans* ATCC10231 (*C. albicans*)²⁸⁾ の 3 種類の微生物を用いた。*S. mutans* について, 培養条件は 37°C, 嫌気培養とし, 液体培地には tryptic soy broth + 1% yeast extract (TSBY, Becton Dickinson and Company, NJ, USA) 培地を, 寒天培地には Mitis-Salivarius 寒天培地 (Becton Dickinson and Company)

を用いた。*E. coli* では、37°C、好気培養を行い、培養培地は、LB (Becton Dickinson and Company) 培地を用いた。*C. albicans* は、37°C で好氣的に Sabouraud 培地を用いて培養した。

2-10. 抗菌性試験

1×10^7 /mL へ調整した微生物をオートクレーブ滅菌後 45°C に維持した soft agar へ播種し、攪拌した。微生物を含有した soft agar を、予め作製した寒天培地上へ 4 mL 添加した。検体として用いる不織布は CPC, GO, CPC-GO, そして GO-CPC でそれぞれ前処理した。さらに、前処理したうち、半数の不織布を、1 分間、蒸留水中で洗浄した（洗浄群）。処理された不織布は直径 6 mm の円形にパンチし、オートクレーブで滅菌（滅菌群, 121°C, 20 分間）乾燥後に、agar plate 上に静置して、48 時間、37°C で各微生物に応じて培養した。生成された阻止円の直径を計測した²⁹⁾。

2-11. 統計解析

すべてのデータは平均±標準偏差（SD）として示した。すべての統計処理には GraphPad Prism ver.9.5.1 (GraphPad Software, Boston, MA, USA) を使用した。各実験における統計処理は、3 群以上の差の検定には one-way analysis variance (one-way ANOVA) を用いて、さらに多重比較検定を Tukey's test で行った。 $p < 0.05$ を有意差ありと判定した。

3. 結果

3-1. CPC または GO 処理不織布の表面構造の観察

光学顕微鏡像において、弱拡大 ($\times 100$) では、CPC および GO 処理によって構造上の明らかな変化は観察できなかった（図 2A）。強拡大 ($\times 400$) では、GO または CPC-GO によって、不織布繊維上に黒色の構造物が観察された（図 2B）。SEM 像において、GO, CPC-GO, そして GO-CPC では、不織布の繊維上に GO と考えられる構造物の沈着を確認した（図 2C）。

3-2. ポリプロピレン不織布上の GO の評価

不織布上の CPC および GO の存在を確認するためにラマン分光法で解析を行った。CPC では、未処理不織布と比較して特異的なシフトはなかった。一方で、GO, CPC-GO, そして GO-CPC では、 $1,200 \text{ cm}^{-1}$ でシフトを検出した（図 3）。

3-3. GO または CPC 処理した不織布の元素分析

XPS を用いて、不織布上の元素組成（C, O, N, Cl）を評価した。いずれのサンプルでも、C (285 eV) と O (534 eV) のピークを確認した一方で、N (402 eV) のピークは確認できなかった（図 4）。CHN 元素分析では、未処理での C と H が最も多く検出されたが、各サンプルで有意な差はなかった（表 1）。

3-4. IR による不織布の解析

未処理不織布と比較して、GO または CPC 処理不織布で明らかなスペクトルの差はなかった（図 S1）。

3-5. ポリプロピレン不織布からの CPC の溶出試験

0.005% CPC 溶液の吸光度を測定すると 190, 215, そして 260 nm にピークを検出した（図 5A）。未処理および GO では、260 nm 付近のピークはなかった。一方で、CPC および GO-CPC では、260 nm 付近のピークを確認し、浸漬後 7 時間まで検出された。CPC-GO では、260 nm 付近のピークは検出されなかった（図 5B）。

3-6. GO および CPC 処理不織布の機能評価

BFE（図 6A）と VFE（図 6B）は、未処理の場合と比較して、CPC, GO, CPC-GO, そして GO-CPC で有意な差はなかった。

3-7. GO および CPC 処理不織布の抗菌活性評価

未処理不織布および GO では、すべての微生物で阻止円は観察できなかった（図 S2）。*S. mutans* では、CPC, GO-CPC, CPC-GO で、いずれも阻止円を確認したが、CPC-GO と比較して CPC, GO-CPC では、洗浄の有無に関わらず、有意に大きな阻止円が確認された。*E. coli* では、洗浄なしの場合、他の群と比較して CPC と GO-CPC は有意に大きな阻止円を形成した。洗浄ありでは CPC のみ阻止円の形成があった。*C. albicans* では、洗浄の有無に関わらず、CPC, GO-CPC において、他の群と比較して有意に大きな阻止円の形成があったが、CPC-GO では阻止円の形成はなかった。（図 7）

4. 考察

個人による感染予防が可能な防護器具としてマスクの需要が増加しているが、昨今の SARS-Cov2 によるパンデミックでは、急速な需要増加による供給不足にも陥って生物分解性や再利用するマスクの開発に必要性まで考えられた³⁰⁾。マスクによる SARS-Cov2 感染の予防効果は一定のコンセンサスが得られており³¹⁾、従来よりも装着が容易で感染予防効果の高いマスクの開発が求められる。抗菌性マスクとして、これまでに多数の製品が市販されているが、安価で取り扱いやすく、また反復使用に耐えられるマスクの開発は、新たに発生する可能性のあるパンデミックに備えるためにも必要不可欠である³⁰⁾。そこで、本研究では CPC と GO をマスクへ配合し、マスクの抗菌性の向上が可能なかを検討することを目的として、実験を行った。既に上市されているマスクへ簡便に CPC と GO を付与することを想定し、ポリプロピレン不織布を溶液に浸漬することによって CPC と GO へ付与し、その有効性を検討した。

今回用いた方法では、不織布上に、光学顕微鏡で黒色像が観察され、SEM 画像で GO 様の構造物が確認できたことに加えて、ラマン分光法で GO に特徴的なシフトを検出できたことから、GO が不織布上へ存在することが示され、GO をポリプロピレン不織布へ、1 分間の浸漬によって付与できることが確認された。

一方で CPC の存在は、ラマン分光法で検出できなかったことから、XPS, CHN 元素分析、そして IR で検出することを試みた。しかし、いずれの方法においても未処理不織布と比較して、有意な変化は確認できず、CPC の検出は困難であった。これは、不織布が繊維状の構造であることから形態的に検出が困難であることやポリプロピレンが $(C_3H_6)_n$ の構造であり、C や H の含有量が多いために、有意な差を検出することが難しいためと考えられる。これらのことから、CPC の存在を検出するために、溶出試験を行った。0.005% CPC の吸光度を測定すると、約 200 nm と 260 nm で吸光度のピークが検出された。そこで対象サンプルで測定すると、未処理および GO 処理サンプルではピークが観察されなかったのに対し、CPC または GO-CPC 処理サンプルでは浸漬後 7 時間まで 0.005% CPC に類似した吸光度のピークが観察されたので、不織布から CPC が溶出されている可能性が示唆された。浸漬後 7 時間まででは、CPC 処理サンプルと GO-CPC 処理サンプルの吸光度に有意な差はなかったため、今後さらに浸漬時間を延長など、両者間での溶出を比較する必要がある。一方で、CPC-GO 処理サンプルではピークが確認できなかったため、CPC は溶出していないと考えられる。

さらに、CPC または GO で処理されたマスクの機能を評価するために、BFE と VFE を計測した。すべての不織布の間で、BFE と VFE に有意な差はなく、CPC と GO による前処理はマスクの機能を阻害しないことが示された。このことは、市販のマスクに CPC 処理や GO 処理を実施したとしても、マスク自体の機能に影響することなく、その有効性を発揮できる可能性を示した。

最後に、CPC または GO のマスクへの付与によって抗菌性作用が発揮されるかを検討した。未処理および GO 処理のみでは抗菌活性は発揮されなかった。処理後の洗浄が無い場合では、CPC 処理と GO-CPC 処理では、他群と比較して有意に微生物に対する抗菌活性を示した。一方で、処理後に洗浄を行った場合では、CPC 処理と GO-CPC 処理は、*S. mutans* と *C. albicans* に対して他群と比較して有意に抗菌活性を発揮したが、GO-CPC 処理は、*E. coli* に対する抗菌活性を示さなかった。このことは、CPC を不織布に処理することで、抗菌性を付与することが可能であるが、本研究による手法では、GO に CPC の有効性を増大させる作用はないことを示している。しかし、先行研究¹⁴⁾では、GO-CPC 複合体はより高い抗菌作用を発揮することが示されており、GO 処理によって、CPC の抗菌作用自体は変化しないが、その効果がより持続される可能性はあり、今後の検討が必要である。また、CPC-GO 処理サンプルの抗菌活性は、CPC 処理サンプルおよび GO-CPC 処理サンプルと比較して有意に低かった。上述の溶出試験においても CPC-GO 処理サンプルでは、CPC の溶出が確認できず、CPC 処理後の GO 処理の間に、CPC が不織布上から放出されている、または CPC と未反応の GO の層が不織布表面に存在しているために CPC の溶出が見られなかったのではないかと考えられる。このため、CPC の有効性を発揮するためには、CPC 処理に先んじて GO 処理を行う必要があると考えられるが、その理由については検討の必要がある。

以上をまとめると、本研究で用いた方法によって、CPC を不織布上へ滞留させ、不織布に抗菌活性を持たせることが可能となった。このことは、市販のマスクを CPC へ

浸漬するだけで、マスク自体の機能を低下させることなく、短時間で簡便に抗菌性を付与することを可能にすることを示している。また、GO 処理後に CPC 処理を行うことで、両者を不織布上へ滞留させ、一定の抗菌活性を不織布に保持させることが可能であると考えられた。しかし、長期的な抗菌性の維持や、GO と CPC を不織布上に同時に存在させることの有用性に関しては、今後のさらなる検討が必要である。本研究で用いた手法では、GO と CPC を順番に不織布上へ付与しており、浸漬時間も 1 分間と短時間で、反応する GO と CPC の正確な定量化もできていないため、両者は個別に不織布上へ存在している可能性があり、そのため両者の相互作用が十分に発揮できていないかもしれない。そこで、藤井らの方法¹⁴⁾を用いて GO と CPC を前もって化学的に結合させて、不織布上へ付与することで CPC の有効性を高めるといった方法を採用することで、GO の有用性を高めること、そして今回使用した代表的な菌種以外の飛沫感染を主とする菌への抗菌活性、およびマスク中に捕集された微生物の増殖抑制効果についても今後検討していく必要がある。

5. 結論

本研究では、CPC を不織布へ付与して抗菌性を向上させる手法を開発した。本法を用いれば、市販のマスクに簡便に CPC を付与することが可能であると考えられる。一方で、CPC と GO を同時に不織布上へ保持させることも可能であるが、その有効性については今後の検討が必要である。

6. 謝辞

稿を終えるにあたり、終始御懇篤なるご指導とご校閲を賜った岡山大学 学術研究院 医歯薬学域 歯周病態学分野の高柴教授に心から感謝致します。また、GO をご提供下さった岡山大学 異分野基礎科学研究所の仁科勇太教授、様々な面にわたって貴重な助言とご協力を下さいました岡山大学病院 歯科・歯周科部門の大久保圭祐助教、岡山大学 学術研究院 医歯薬学域 歯周病態学分野の中村心助教、ならびに歯周病態学分野と歯科・歯周科部門の諸先生に厚く御礼申し上げます。

6. 参考文献

- 1) Pan A, Liu L, Wang C, Guo H, Hao X, Wang Q, Huang J, He N, Yu H, Lin X, Wei S, Wu T. Association of public health interventions with the epidemiology of the COVID-19 outbreak in Wuhan, China. *The Journal of the American Medical Association*. 2020; 323(19): 1915-1923.
- 2) Courtemanche C, Garuccio J, Le A, Pinkston J, Yelowitz A. Strong social distancing measures in the United States reduced the COVID-19 growth rate. *Health Aff (Millwood)*. 2020; 39(7): 1237-1246.
- 3) World Health Organization. COVID-19 advice for the public. Retrieved July 23, 2024. <https://www.who.int/emergencies/diseases/novel-coronavirus-2019/advice-for-public> (Accessed Nov 7, 2024)
- 4) Centers for Disease Control and Prevention. (n.d.). COVID-19 prevention. Retrieved July 23, 2024. <https://www.cdc.gov/coronavirus/2019-ncov/prevent-getting-sick/index.html> (Accessed Nov 7, 2024)
- 5) Jefferson T, Dooley L, Ferroni E, Al-Ansary LA, van Driel ML, Bawazeer GA, Jones MA, Hoffmann TC, Clark J, Beller EM, Glasziou PP, Conly JM. Physical interventions to interrupt or reduce the spread of respiratory viruses. *Cochrane Database of Systematic Reviews*. 2023; 1(1): CD006207.
- 6) Leffler CT, Ing E, Lykins JD, Hogan MC, McKeown CA, Grzybowski A. Association of country-wide coronavirus mortality with demographics, testing, lockdowns, and public wearing of masks. *American Journal of Tropical Medicine and Hygiene*. 2020; 103(6): 2400-2411.
- 7) Deng W, Sun Y, Yao X, Subramanian K, Ling C, Wang H, Chopra SS, Xu BB, Wang JX, Chen JF, Wang D, Amancio H, Pramana S, Ye R, Wang S. Masks for COVID-19. *Advances in Science*. 2022; 9(3): e2102189.
- 8) Biryukov J, Boydston JA, Dunning RA, Yeager JJ, Wood S, Reese AL, Ferris A, Miller D, Weaver W, Zeitouni NE, Phillips A, Freeburger D, Hooper I, Ratnesar-Shumate S, Yolitz J, Krause M, Williams G, Dawson DG, Herzog A, Dabisch P, Wahl V, Hevey MC, Altamura LA. Increasing temperature and relative humidity accelerates inactivation of SARS-CoV-2 on surfaces. *mSphere*. 2020; 5(4): e00441-20.
- 9) Konda A, Prakash A, Moss GA, Schmoldt M, Grant GD, Guha S. Aerosol filtration efficiency of common fabrics used in respiratory cloth masks. *ACS Nano*. 2020; 14(5): 6339-6347.
- 10) Mao X, Auer DL, Buchalla W, Hiller KA, Maisch T, Hellwig E, Al-Ahmad A, Cieplik F. Cetylpyridinium chloride: mechanism of action, antimicrobial efficacy in biofilms, and potential risks of resistance. *Antimicrobial Agents and Chemotherapy*. 2020; 64(8): e00576-20.

- 11) Morimoto N, Suzuki H, Takeuchi Y, Kawaguchi S, Kunisu M, Bielawski CW, Nishina Y. Real-time, in situ monitoring of the oxidation of graphite: lessons learned. *Chemistry of Materials*. 2017; 29(5): 2150-2156.
- 12) Stankovich, S., Dikin, D. A., Dommett, G. H. B., Kohlhaas, K. M., Zimney, E. J., Stach, E. A., Piner, R. D., Nguyen, S. T., & Ruoff, R. S. Graphene-based composite materials. *Nature*. 2006; 442(7100): 282-286.
- 13) Wang K, Ruan J, Song H, Zhang J, Wo Y, Guo S, Cui D. Biocompatibility of graphene oxide. *Nanoscale Research Letters*. 2011; 6(1): 8.
- 14) Fujii R, Okubo K, Takashiba S, Bianco A, & Nishina Y. Tailoring the interaction between graphene oxide and antibacterial pyridinium salts by terminal functional groups. *Carbon*. 2020; 160: 204-210.
- 15) Samuel H, Ekpan FD. The use of scanning electron microscopy SEM for medical application: a mini review. *Eurasian Journal of Science and Technology*. 2024; 4(4): 289-294.
- 16) Nizami M, Nishina Y, Yamamoto T, Shinoda-Ito Y, Takashiba S. Functionalized graphene oxide shields tooth dentin from decalcification. *Journal of Dental Research*. 2019; 99(2): 182-188.
- 17) Law KP, Larkin JR. Recent advances in SALDI-MS techniques and their chemical and bioanalytical applications. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*. 2011; 399(8): 2597-622.
- 18) Baird C, Novakov W, Brtgstrom S. Surface analysis and angular distributions in x-ray photoelectron spectroscopy. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*. 1974; 4(2): 93-137.
- 19) Fadeeva V, Tikhova V, Nikulicheva O. Elemental analysis of organic compounds with the use of automated CHNS analyzers. *Journal of Analytical Chemistry*. 2008; 63: 1094-1106.
- 20) Kung KH, Hayes K. Fourier transform infrared spectroscopic study of the adsorption of cetyltrimethylammonium bromide and cetylpyridinium chloride on silica. *Langmuir*. 1993; 9(1): 263-267.
- 21) Aquino D, Oliveira A, Amorim M, Gomes A, Verissimo L, Ferrari M. Thermal behavior of cetylpyridinium hydrochloride and its association with sugar alcohols and flavoring agents: a preformulation study. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*. 2023; 148: 9477-9488.
- 22) Weckhuysen BM. Chapter 12: Ultraviolet-visible spectroscopy. In-situ Spectroscopy of catalysts. CA, USA, American Scientific Publishers, 2004, 255-270.
- 23) Davies A, Thompson KA, Giri K, Kafatos G, Walker J, Bennett A. Testing the efficacy of homemade masks: Would they protect in an influenza pandemic? *Disaster Medicine and Public Health Preparedness*. 2013; 7(4):

413-418.

- 24) 一般財団法人カケンテストセンター. マスクの圧力損失試験 (JIS T 9001・EN 14683) . <https://www.kaken.or.jp/test/search/detail/50> (最終アクセス 2024 年 11 月 7 日)
- 25) 一般財団法人カケンテストセンター. バクテリア飛まつ捕集効率 (BFE) ・ウイルス飛まつ捕集効率 (VFE) 試験 (JIS T 9001・ASTM F 2101) . <https://www.kaken.or.jp/test/search/detail/34#ID1> (最終アクセス 2024 年 11 月 7 日)
- 26) Ito Y, Ito T, Yamashiro K, Mineshiba F, Hirai K, Omori K, Yamamoto T, Takashiba S. Antimicrobial and antibiofilm effects of abietic acid on cariogenic *Streptococcus mutans*. *Odontology*. 2020; 108(1): 57-65.
- 27) Wang P, Robert L, Pelletier J, Dang W, Taddei F, Wright A, Jun S. Robust growth of *Escherichia coli*. *Current Biology*, 2010; 20(12): 1099-1103.
- 28) Samaranayake Y, Ye J, Yau Y, Cheung B, Samaranayake P. In vitro method to study antifungal perfusion in *Candida* biofilms. *Journal of Clinical Microbiology*. 2005; 43(2): 818-825.
- 29) Schwalbe R, Steele-Moore L, Goodwin AC. Chapter 3: Disk diffusion test and gradient methodologies. *Antimicrobial susceptibility testing protocols*, 1st Edition. FL, USA, CRC Press, 2007, 53-72.
- 30) Ji D, Fan L, Li X, Ramakrishna S. Addressing the worldwide shortages of face masks. *BMC Materials*. 2020; 2(1): 9.
- 31) Greenhalgh T, MacIntyre CR, Baker MG, Bhattacharjee S, Chughtai AA, Fisman D, Kunasekaran M, Kvalsvig A, Lupton D, Oliver M, Tawfiq E, Ungrin M, Vipond J. Masks and respirators for prevention of respiratory infections: a state of the science review. *Clinical Microbiology Reviews*. 2024; 37(2): e0012423.

図表の説明

- 図 1: CPC または GO の不織布への処理方法
- 図 2: CPC および GO 処理した不織布の表面構造
(A) 光学顕微鏡像, 倍率 $\times 100$, スケールバーは $100\ \mu\text{m}$ 。(B) 光学顕微鏡像, 倍率 $\times 400$, スケールバーは $10\ \mu\text{m}$ 。(C) SEM 像, 倍率 $\times 1500$, スケールバーは, $30\ \mu\text{m}$ を示す。
- 図 3: ラマン分光法による CPC および GO 処理した不織布の解析
- 図 4: XPS による CPC および GO 処理した不織布の元素分析
- 図 5: CPC 溶出試験
(A) 0.005% CPC の吸光度。(B) 7 時間後までの CPC 溶出変化
- 図 6: CPC および GO 処理した不織布の機能評価
(A) BFE, (B) VFE
- 図 7: 洗浄の有無による CPC および GO 処理した不織布の抗菌活性
(A) *S. mutans*, (B) *E. coli*, (C) *C. albicans*
- 図 S1: IR による CPC および GO 処理した不織布の表面構造解析
- 図 S2: 洗浄の有無による CPC および GO 処理した不織布の抗菌活性
(A) プレートデザイン, (B) 各微生物を播種した寒天培地上に観察された代表的な阻止円の画像を示す。
- 表 1: CHN 元素分析による CPC および GO 処理した不織布の元素分析

図 1

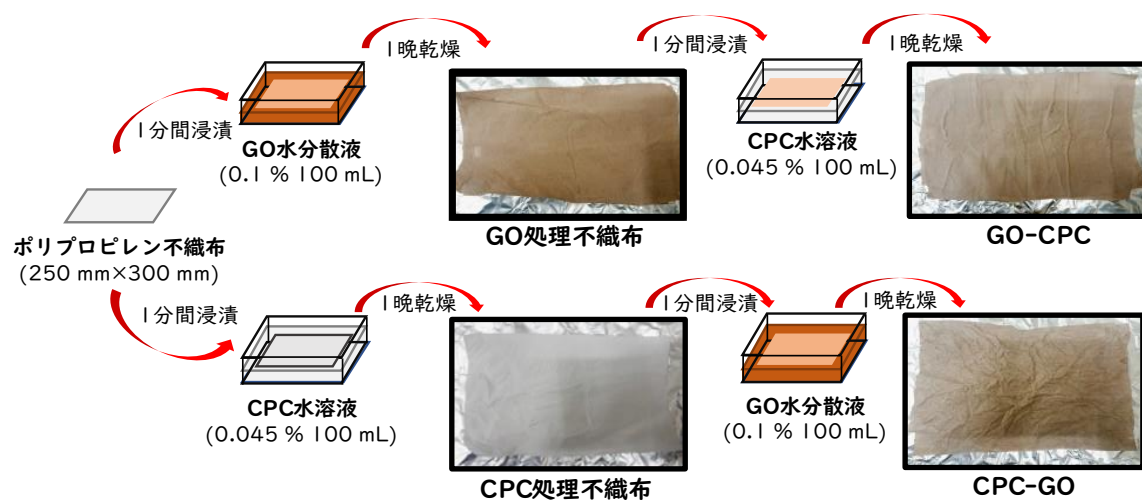


图 2

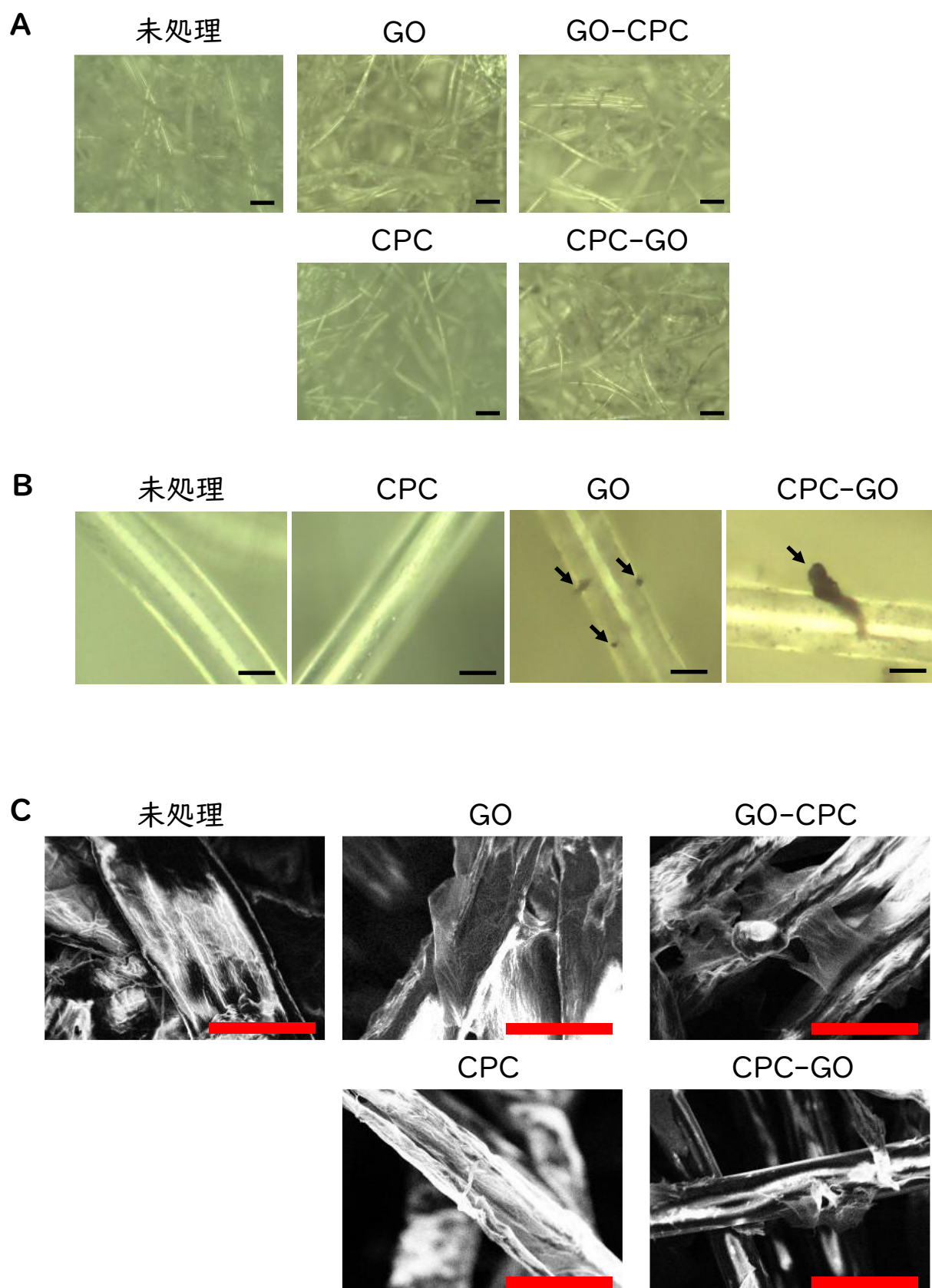


图 3

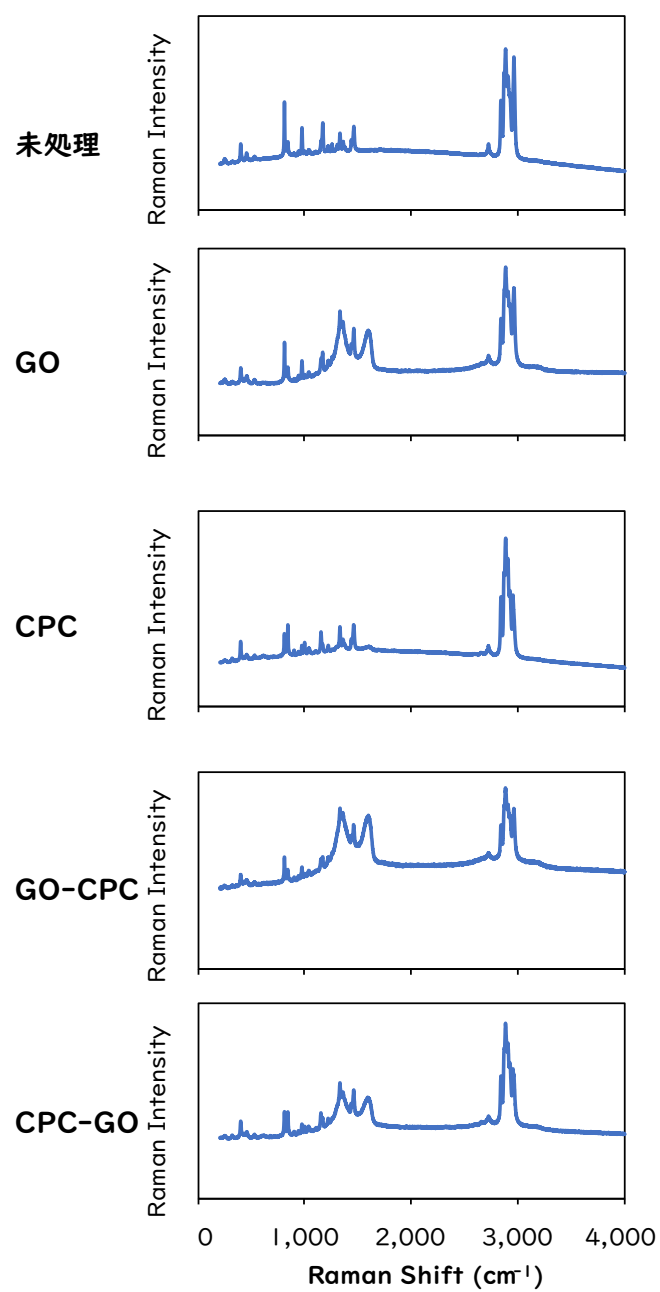


图 4

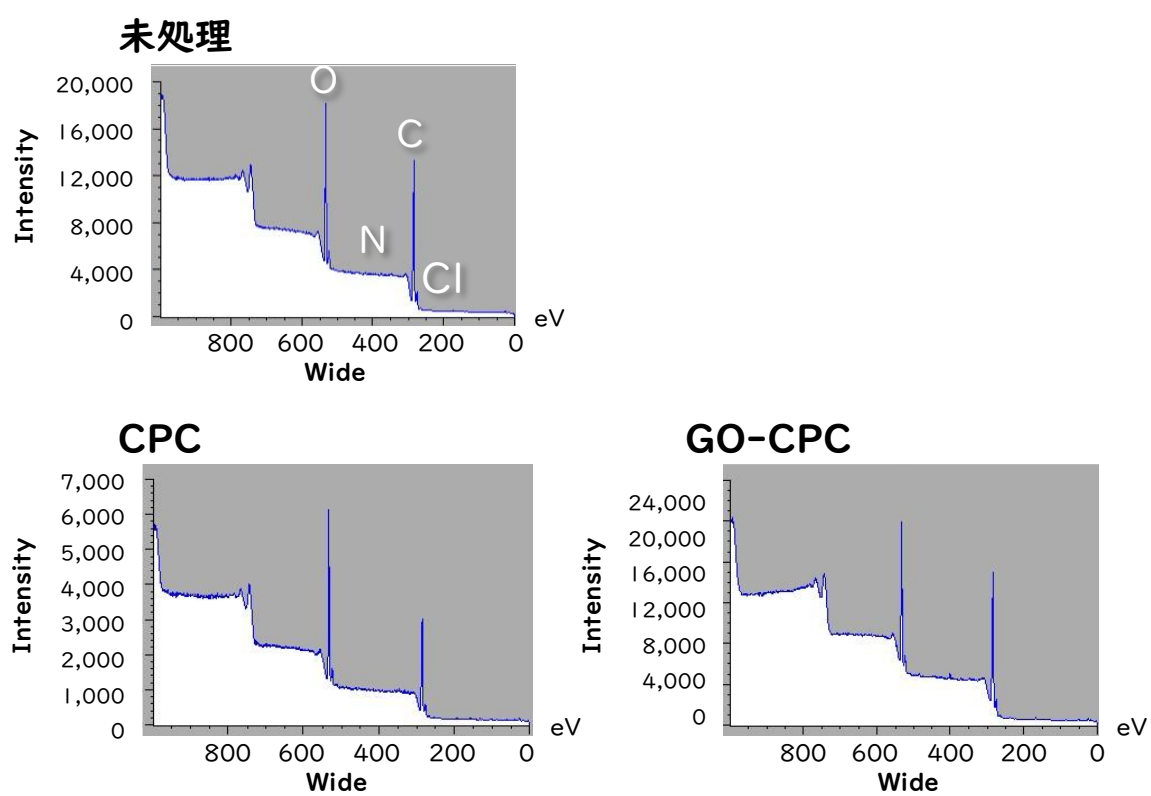


图 5

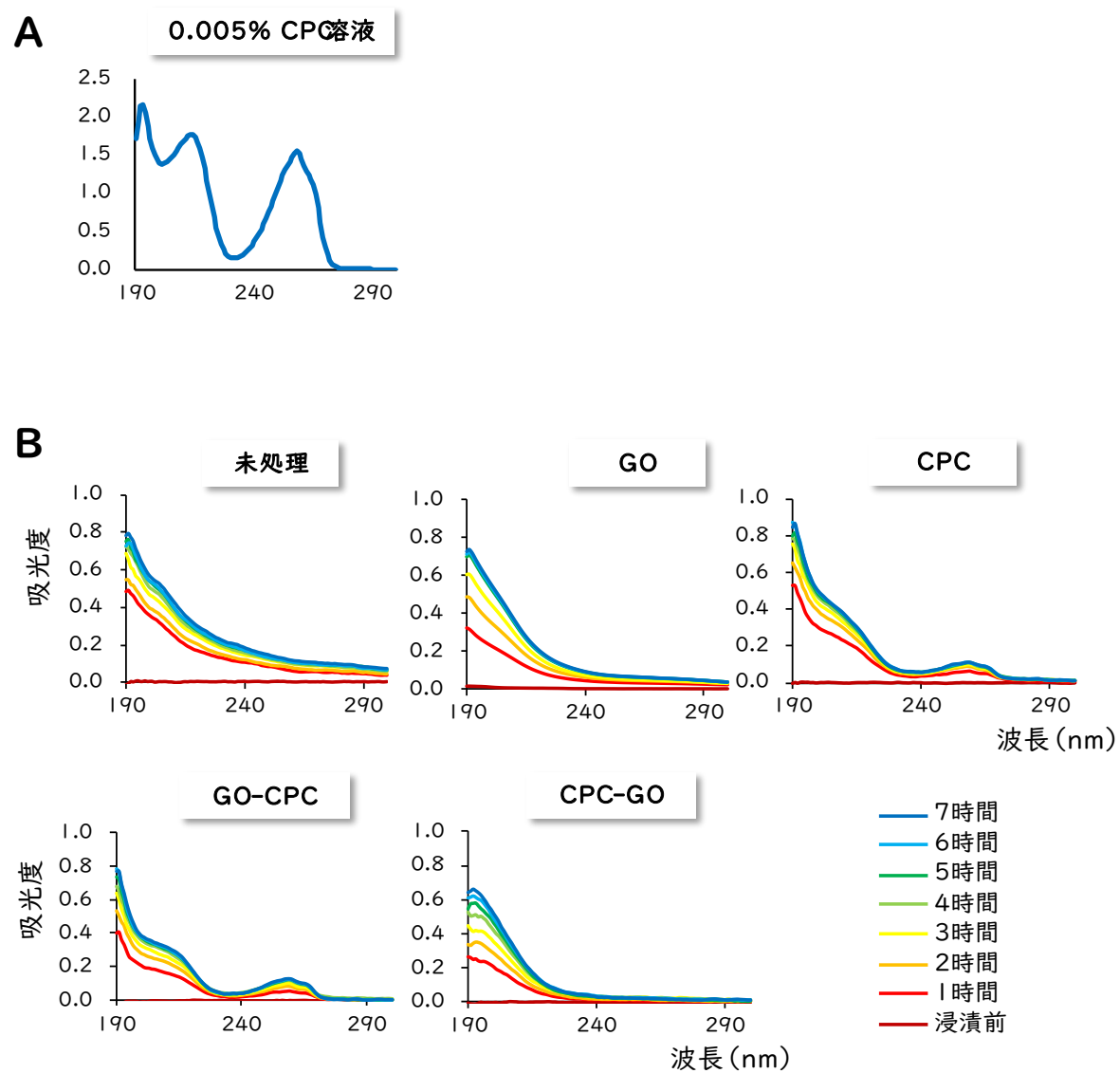


図 6

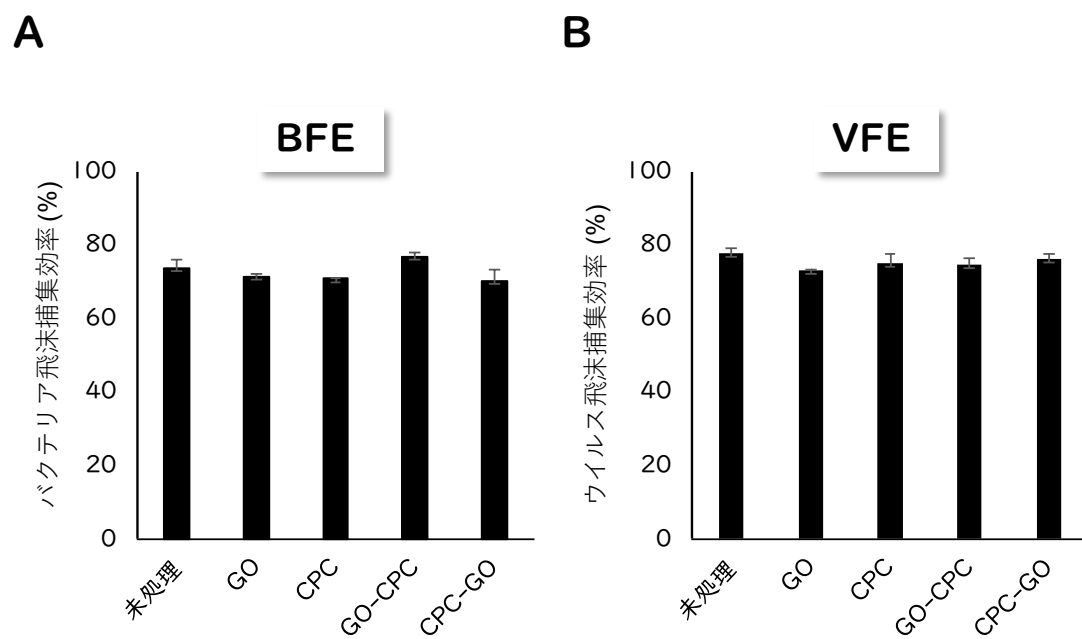


図 7

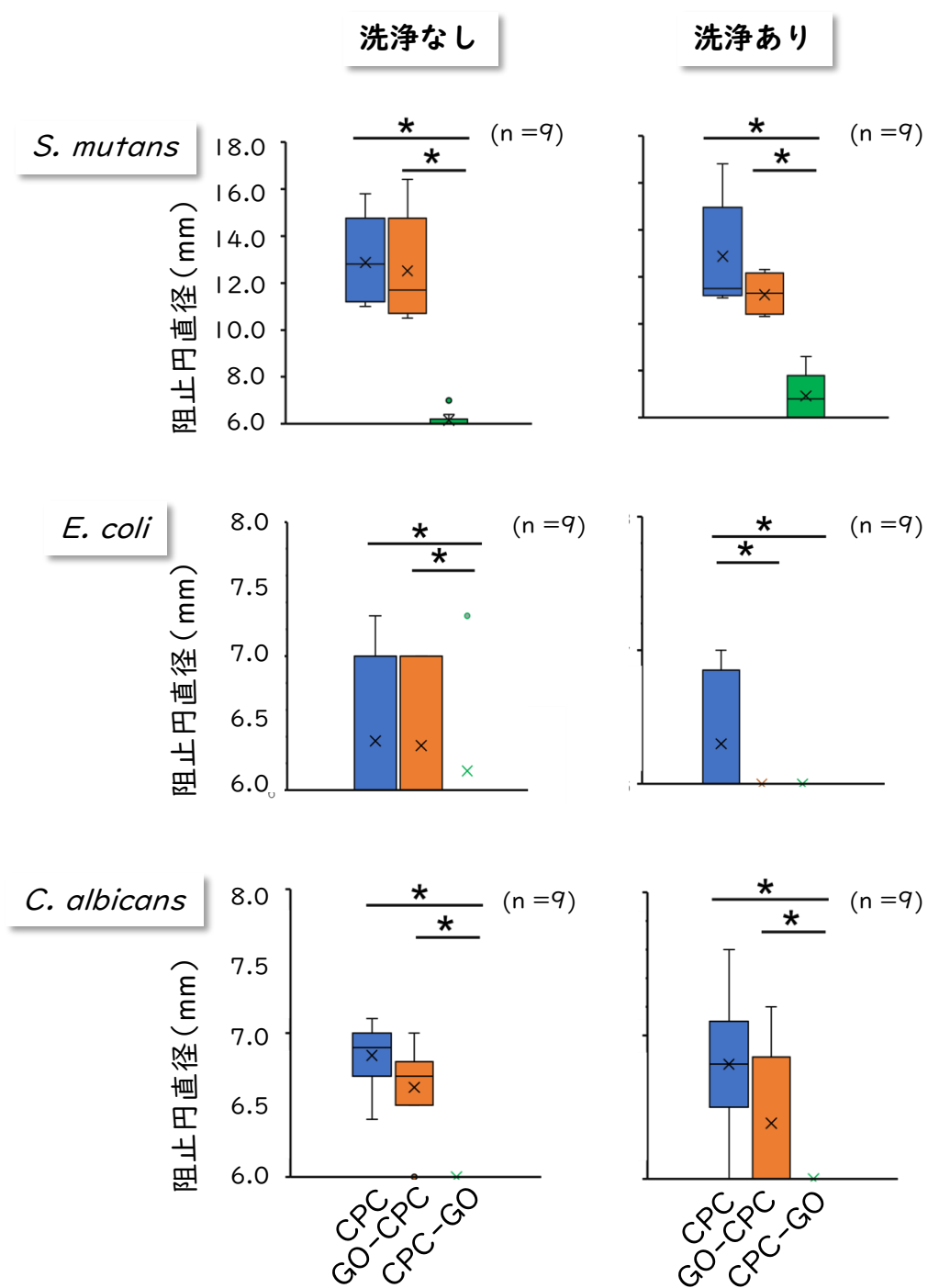


图 S1

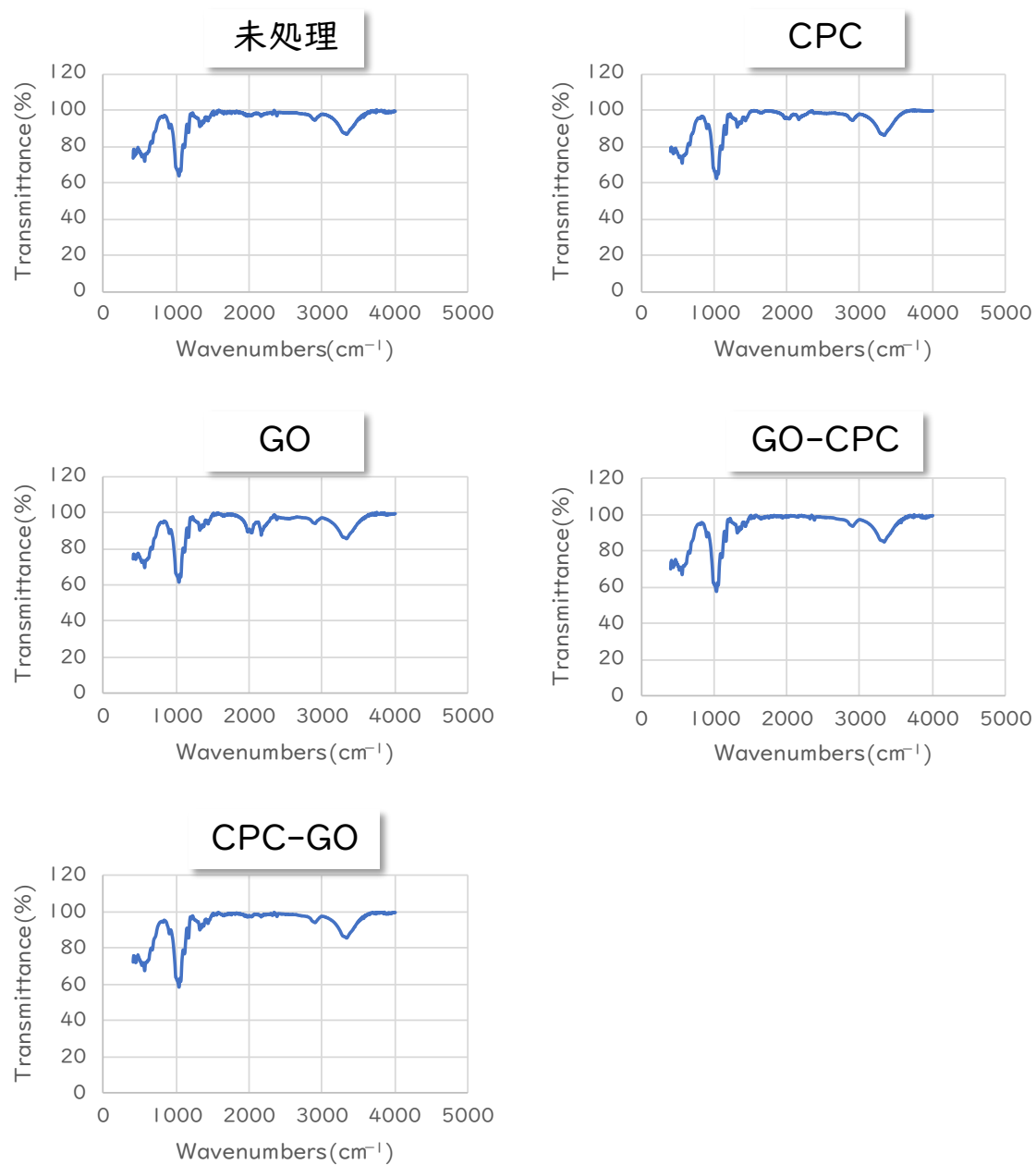
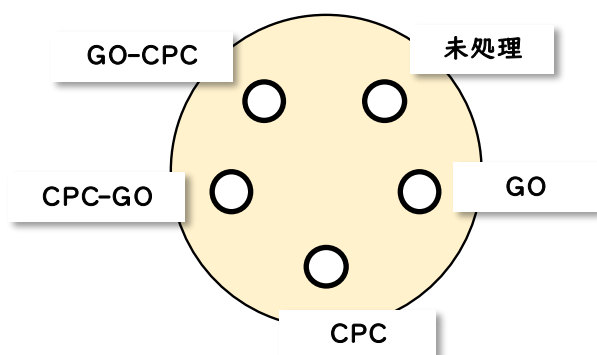


図 S2

A



B

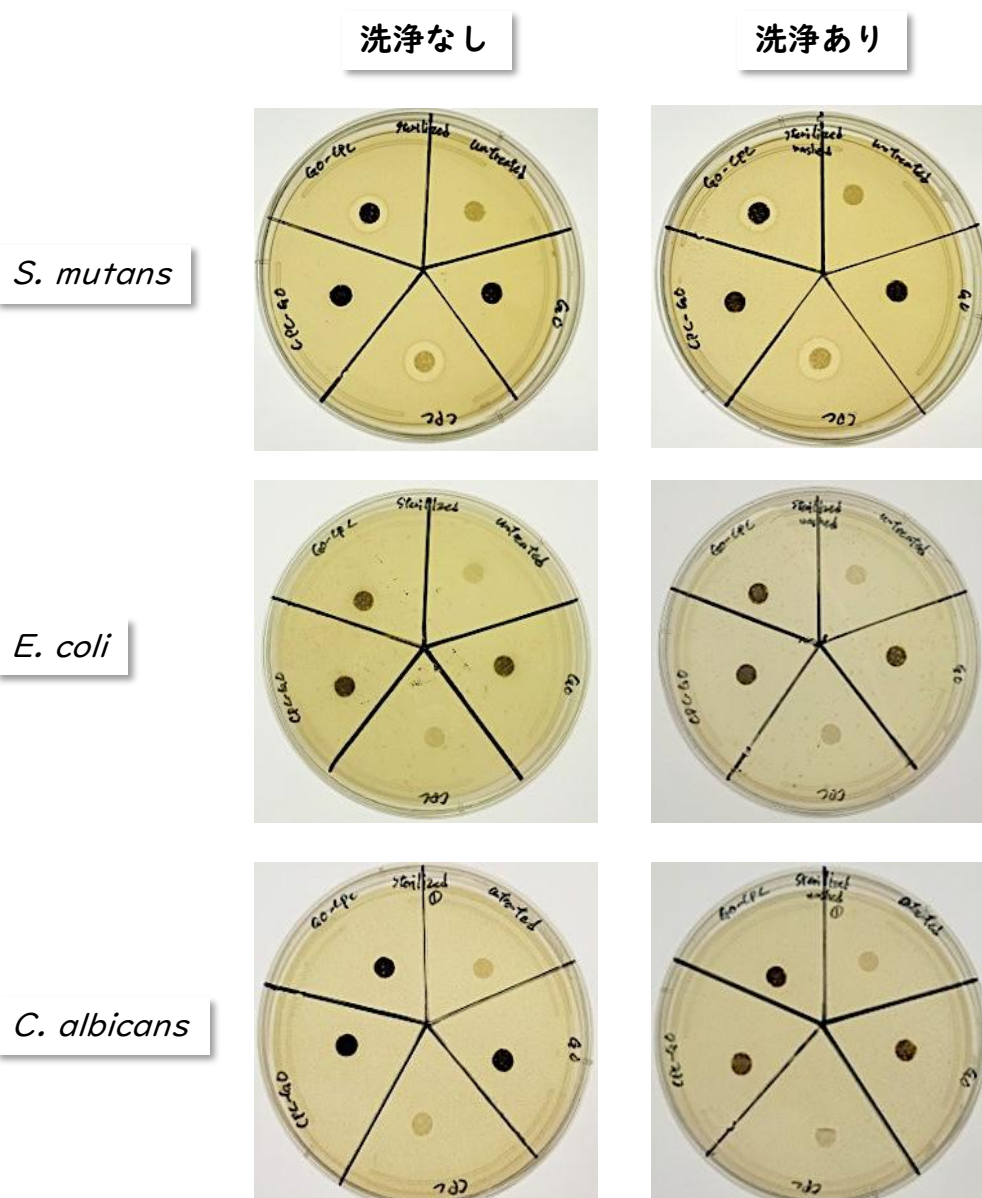


表 1

处理方法	C(%)	H(%)	N(%)
未处理	52.32	8.30	0
未处理	52.15	8.22	0
GO-1	50.88	8.03	0
GO-2	50.83	8.08	0
CPC-1	50.85	7.92	0
CPC-2	51.07	7.97	0
GO-CPC-1	49.06	7.52	0
GO-CPC-2	49.18	7.54	0
CPC-GO-1	50.91	7.99	0
CPC-GO-2	50.93	7.85	0