

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 2 日現在

機関番号：32703

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24792046

研究課題名(和文) 生体安全性を考慮した口腔内シリカ薄膜コーティング法の開発と展開

研究課題名(英文) Development and deployment of silica thin film coating method in the mouth with biosafety

研究代表者

田中 隆博(Tanaka, Takahiro)

神奈川歯科大学・歯学部・研究員

研究者番号：90550830

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円、(間接経費) 960,000円

研究成果の概要(和文)：齲蝕予防に主眼を置いた予防処置法として、シリカ薄膜で歯面をコーティングできれば、歯質の性状を変えることなく耐摩耗性や齲蝕予防効果を示す。本研究の目的は、シリカ前駆体としてペルヒドロポリシラザン(PHPS)を用い、歯質表面に口腔内でシリカ薄膜を形成し、さらに生体への為害作用が少ないシリカ転化方法を開発することである。歯面上に形成されたシリカ薄膜の耐摩耗性および耐酸性を分析し、その結果、優れた機械的強度および化学的耐久性が得られた。

研究成果の概要(英文)：If the tooth surface is covered with a colorless transparent silica thin film, it can be expected to prevent caries. The purpose of this study was to use the pre-ceramic polymer perhydropoly-silazane (PHPS) as a silica precursor to form a silica thin film on the tooth surface, and build silica coating method of biological safety. The PHPS to silica thin film coating was analyzed to wear resistance and acid resistance. As a result, the silica thin film was obtained chemical durability and mechanical strength.

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：保存治療系歯学

キーワード：シリカガラスコーティング 齲蝕予防 セラミックス レーザー 耐酸性 耐摩耗性

1. 研究開始当初の背景

シリカなどのセラミックによる薄膜コーティング技術は、現在、工業界において広く応用されている。シリカの有する耐熱性、耐摩耗性、化学的耐久性などの特徴を、プラスチックレンズやディスプレイのハードコート、金属の酸化防止膜に薄膜でコーティングすることにより、“材料の持つ機能や設計を変えことなく高機能化を図る表面処理法”として応用が可能となる。この特徴を、歯科治療に応用した場合、例えば歯面にシリカコーティングを施すことにより、口腔内微生物が産生する酸による歯面の脱灰を抑制、またはプラーク付着を抑制する表面を創製することにより齲蝕予防へとつながる。

しかしながら、現在確立されているシリカコーティング法は、ゾル-ゲル法や CVD・PVD などあるが、シリカへの転化には数百度の焼成や、大掛かりな真空装置が必要など、臨床応用には困難な点が多い。したがって、口腔内にて歯の表面にシリカ薄膜を製膜するには、歯髄刺激を考慮し、より低温かつ短時間でのシリカ薄膜の成膜方法の検討が必要となる。また、シリカコーティング剤に含まれる溶媒が現在の歯科臨床で使用されている溶媒を応用することが可能か検討し、より生体への応用が安全な試作シリカコーティング溶液を創製する方法を開発した。

優れた“機械的強度”および“化学的耐久性”を有するとされるガラス薄膜を歯面上に創生することにより、

過酷な口腔内環境で起こりうる、歯ブラシ摩耗などによる歯の“摩耗症”、細菌が産生する酸による“齲蝕”、酸性食品や胃食道逆流症などによる“酸蝕症”などの予防

口腔内微生物の歯面への付着のコントロールを可能にする

新たな予防を目的としたコーティング法を開発することである。

2. 研究の目的

齲蝕は歯科における 2 大疾患の一つであり、これまでに齲蝕に対する治療法、齲蝕により除去された歯質を補うための素材の研究は数多くなされているが、齲蝕予防に主眼を置いた予防処置法、それに関わる素材の研究は少ない。シリカに代表される無機材料の特徴は物理的に堅固であり、化学的にも安定である。このような優れた特徴を有するシリカ薄膜で歯面をコーティングできれば、歯質の性状を変えことなく耐摩耗性や齲蝕予防効果を示す。本研究の目的は、シリカ前駆体としてペルヒドロポリシラザン (PHPS: perhydropolysilazane) を用い、歯質表面に口腔内でシリカ薄膜を形成し、さらに生体への有害作用が少ないシリカ転化方法を開発することであり、これにより広く口腔の健康維持、増進に寄与し、国民福祉の向上の一助とするためである。

3. 研究の方法

(1) 歯ブラシ摩耗試験によるシリカ薄膜の耐摩耗性の評価

試料作成・コーティング

ウシ歯冠部エナメル質を切り出し、鏡面研磨を施した。35%リン酸水溶液にて 5 秒間エッチング、水洗・乾燥後、PHPS を塗布・乾燥した。次いで、試料表面に過酸化水素水ペーストを塗布し、シリカ転化処理を行った。ポジティブコントロールとしてレジン系表面滑沢硬化材のジーシー-G-コート(ジーシー)を業者指示に従いエナメル質表面に塗布、光照射を 20 秒間行った。また、ネガティブコントロールは非処理エナメル質とした。

歯ブラシ摩耗試験

歯ブラシ摩耗試験機を用いた。また、歯磨剤と蒸留水の割合が重量比 1:3 になるように懸濁液を調製した。試料を歯ブラシ摩耗部と非摩耗部の両面ができるようサンプルホルダーに固定し、歯磨剤懸濁液に浸漬した。次いで、毛先が試料に垂直に接するように歯ブラシを取り付け、荷重 150g、1 分間に 60 回のストロークにて 10,000 サイクルまで摩耗試験に付した。

耐摩耗性の評価

歯ブラシ摩耗後の各試料の摩耗量、すなわち非摩耗面と摩耗面の段差を共焦点レーザー顕微鏡およびデジタルマイクロスコープにて測定した。

摩耗量および摩耗面の表面観察は共焦点レーザー顕微鏡 (OLYMPUS; 現有設備)、デジタルマイクロスコープ (キーエンス; 現有設備) にて行った。シリカ膜摩耗面、シリカ膜非摩耗面、および 2 種のコントロールの摩耗面、およびエナメル質非摩耗面の表面性状の観察と粗さ、摩耗量の測定を行った。摩耗量はシリカ膜、エナメル質それぞれの非摩耗面と摩耗面の段差を変化量として評価し、得られた結果から平均値および標準偏差を求め、一元配置分散分析を用いて危険率 5%にて検定した。

(2) シリカ膜の耐酸性能の評価

試料作製・コーティング

ウシ歯冠部エナメル質に鏡面研磨を施し、前述内容と同様に PHPS をコーティングし、シリカ転化処理を行った。ポジティブコントロールとしてレジン系表面滑沢硬化材のジーシー-G-コート(ジーシー)を業者指示に従いエナメル質表面に塗布、光照射を 20 秒間行った。また、ネガティブコントロールは非処理エナメル質とし、各群試料表面に直径 3 mm の窓を規定し、窓以外の部分をすべてネイルバーニッシュで被覆した。

耐酸性試験と溶出イオンの分析方法

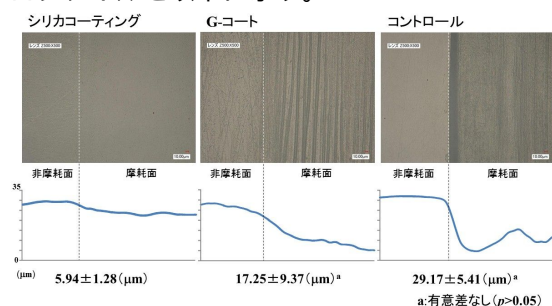
各試料を 0.1mol/l HCl 溶液 10ml が入ったスチロール製サンプル瓶中に吊り下げて 30 分間浸漬し、エナメル質表面から HCl 溶液中に溶出した Ca および P 量をそれぞれアルセナゾ (分析波長 660 nm)、バナドモリブデン

酸アンモニウム（分析波長 420 nm）による吸光度法により測定した。なお、試料は各群 10 個とし、得られた結果から平均値および標準偏差を求め、一元配置分散分析を用いて危険率 5%にて検定を行った。

4. 研究成果

(1) 歯ブラシ摩耗試験によるシリカ薄膜の耐摩耗性の評価

シリカコーティング, G-コート, エナメル質の歯ブラシ摩耗後の顕微鏡像および高さプロファイルを以下に示す。



歯ブラシ摩耗10,000回後の顕微鏡像および高さプロファイル

コントロールではエナメル質の大きな摩耗が、またGコートでは歯ブラシによる深い摩耗痕も観察された。シリカコーティングでは細かな摩耗痕は観察されるものの、比較的平滑な表面が認められた。

各群の代表的な高さプロファイルおよび摩耗量は、シリカ膜の摩耗量は、他の2群に比べ有意に少ない値であり、優れた耐摩耗性を有することが示された。

(2) シリカ膜の耐酸性能の評価

各種処理後、塩酸溶液中に溶出した Ca, P 量は、シリカコーティング面 (0.002 mmol/l, 0.015 mmol/l), G-コート (0.005 mmol/l, 0.023 mmol/l), 非処理エナメル質 (2.345 mmol/l, 0.175 mmol/l) であった。シリカコーティング群およびG-コート群は、非処理エナメル質群と比較し、Ca, P とともに有意に低い溶出量を示した。また、シリカコーティング群はポジティブコントロールである G-コート群と同等の Ca, P の溶出量であった。以下に耐酸性試験後の試料断面の顕微鏡を示す。



コントロールでは窓開け部に約 25 ミクロンの歯質のエロージョンが観察されたのに対し、シリカコーティング, G コートは、コーティング面直下のエナメル質の著明な脱灰は認められなかった。

以上より、シリカコーティングを行ったエナメル質は、優れた耐酸性を有することが示された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 6 件)

T. TANAKA, M. YAMAGUCHI, T. SHINDO, T. TERANAKA, Silica thin film coating improves bond strength of Ce-TZP/alumina nanocomposite., The sixth International Association for Dental Research Pan-European Region Meeting (IADR/PER), Helsinki, Finland, 2012. 9. 15.

田中隆博, 山口益司, 進藤豊彦, 寺中敏夫, エナメル質に成膜したシリカ薄膜の耐久性, 日本歯科保存学会春季学術大会 (第 136 回), 2012 年 6 月 29 日, 沖縄コンベンションセンター (宜野湾市)

田中隆博, 山口益司, 竹田仁一, 高島志保, 進藤豊彦, 寺中敏夫, 歯根象牙質へのシリカコーティング, 日本歯科保存学会秋季学術大会 (第 137 回), 2012 年 11 月 23 日, 広島国際会議場 (広島市)

田中隆博, 山口益司, 竹田仁一, 高島志保, 進藤豊彦, 寺中敏夫, ガラス薄膜による根面齲蝕予防コーティング, 第 47 回神奈川歯科大学学会総会, 2012 年 12 月, 神奈川歯科大学 (横須賀市)

田中隆博, 山口益司, 竹田仁一, 高島志保, 進藤豊彦, 寺中敏夫, シリカ薄膜コーティング法がセリア系ナノジルコニアとレジンセメントの接着強さに及ぼす影響, 2012 年 12 月, 神奈川歯科大学 (横須賀市)

田中隆博, 山口益司, 竹田仁一, 高島志保, 進藤豊彦, 寺中敏夫, ペルヒドロポリシラザンを用いた歯面および歯科材料へのシリカコーティング法の開発と評価, 第 140 回神奈川歯科大学例会, 2013 年 1 月, 神奈川歯科大学

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 隆博 (TANAKA TAKAHIRO)
神奈川歯科大学・歯学部・特別研究員
研究者番号：90550830

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：