

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 16 日現在

機関番号：30110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25463195

研究課題名(和文) バイオアクティブガラスを用いた矯正用材料の表面改質に関する研究

研究課題名(英文) Study on the surface modification of the orthodontic material using bioactive glass

研究代表者

飯嶋 雅弘 (IIJIMA, MASAHIRO)

北海道医療大学・歯学部・准教授

研究者番号：20305915

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、高周波マグネトロンスパッタリング法によりブラケット用アルミナの表面をバイオアクティブガラス改質した試料(BG試料)を試作した。BG試料を人工唾液に浸漬したところ、試料表面には針状およびタブレット状の石灰化物が形成された。これらは、レーザーラマンとエックス線回折よりリン酸カルシウム系の石灰化物と同定された。脱灰エナメル質の再石灰化挙動を調べるナノインデンテーション試験では、BG試料とともに浸漬したエナメル質が、単独で浸漬したエナメル質よりも高い再石灰化挙動を示した。アルミナに対するバイオアクティブガラスを利用した表面改質層は、エナメル質の再石灰化誘導能を発揮することが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：Bioactive glass (BG) was deposited on the orthodontic alumina by radio-frequency magnetron sputtering to study the enamel remineralization. BG-coated specimens were immersed in artificial saliva for 6 months. The specimens were studied with scanning electron microscope (SEM), Raman spectroscopic analysis and micro-X-ray diffraction. Human enamels were etched with phosphoric acid and then immersed with BG-coated specimen in artificial saliva. Nanoindentation testing of the specimens was conducted during the immersion. SEM photomicrographs showed the formation of needle-like and tabular structures after immersion. Raman and micro-XRD spectra confirmed that they consisted of calcium phosphate. The mechanical properties of the etched enamel specimens immersed with BG-coated specimen recovered significantly compared to those with the non-coated specimens. BG-coated alumina can accelerate the remineralization of etched enamel.

研究分野：歯科矯正学

キーワード：バイオアクティブガラス 再石灰化

1. 研究開始当初の背景

金属アレルギーの罹患やエナメル質脱灰等の問題点に対する対策は、極めて重要な課題であり、高い生体親和性とエナメル質再石灰化誘導能を有する矯正用材料の開発が望まれる。1970年、Henchは体内で骨組織と自然に化学的に結合する能力を有する画期的なバイオアクティブガラス(Bioglass®)を発明した。バイオアクティブガラスは、 Na_2O 、 CaO 、および SiO_2 を基本酸化物成分として少量の P_2O_5 を含み(図1)、高い生体親和性と骨形成能を発揮する。ブラケット周囲エナメル質の脱灰抑制には、フッ化物適用によるエナメル質の結晶構造の強化のみならず、再石灰化を促進させるための特定のイオンの供給が必要である。バイオアクティブガラスは、溶液中でNaイオン、CaイオンおよびPイオン等を溶出するため、これらのイオンにより石灰化が誘導され、エナメル質の再石灰化を期待することができる。

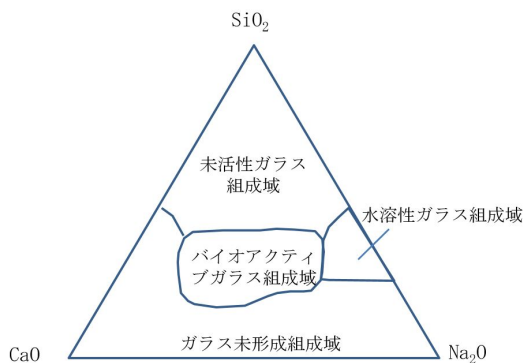


図1 バイオアクティブガラス組成域図

2. 研究の目的

本研究では、 Na_2O 、 CaO 、 SiO_2 および P_2O_5 を成分とするバイオアクティブガラスを用いて、ブラケット用アルミナの表面改質を行い、高生体親和性、抗菌性および石灰化誘導能を有する材料表面の創製を試みた。

3. 研究の方法

(1) 試料の作成

バイオアクティブガラス(BG)の原材料(SiO_2 : 45%、 Na_2O : 24.5%、 CaO : 24.5%、 P_2O_5 : 6%)を溶解後に粉碎(粒径約 $100\ \mu\text{m}$)した粉末からターゲットを作製し、高周波マグネトロンスパッタリング(RF500F、大阪真空機器

製作所)を用いて、アルミナの板状研磨試料(直径7 mm、14 mm)の表面改質を行い(図2)、BG改質試料を作成した。

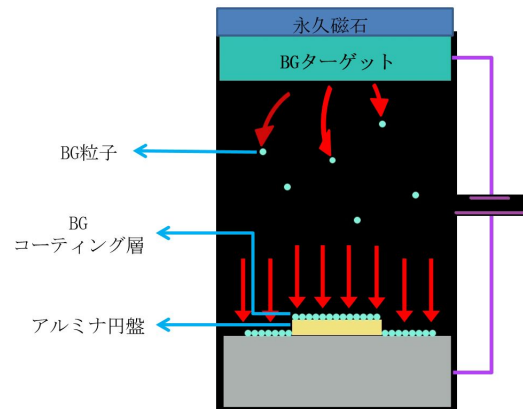


図2 高周波マグネトロンスパッタリング法

(2) 結晶形成能の評価

BG改質試料を人工唾液中に6か月間全浸漬し、試料表面に形成された石灰化物について、走査型電子顕微鏡による形態観察(SSX-550、島津)、微小領域エックス線回折法(Rint2500、リガク)およびレーザーラマン分光法(NR-1800、日本分光)を用いて分析した。

(3) BG改質試料を用いた脱灰エナメル質の再石灰化

リン酸溶液で脱灰したエナメル質とともにBG改質試料を人工唾液中に全浸漬した(図3)。浸漬前後のエナメル質に対する経時的なナノインデンテーション試験により脱灰エナメル質の再石灰化挙動を評価した。

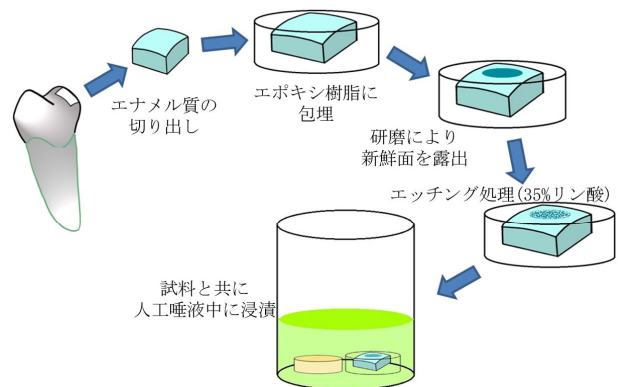


図3 浸漬試験

4. 研究成果

(1) BG改質試料の結晶形成能と結晶分析

BG試料を人工唾液に浸漬したところ、1週間後の試料表面には針状の石灰化物が多数観察され、6か月後の試料表面にはタブレット状の石灰化物が認められた(図4、図5)。

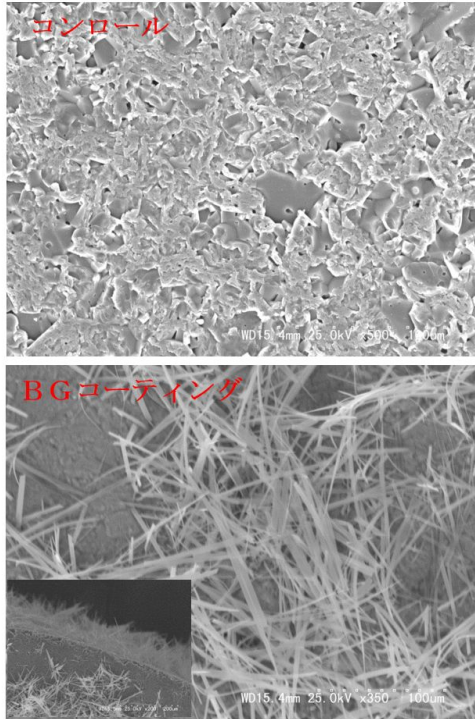


図4 人工唾液中に1週間浸漬した試料の走査型電子顕微鏡像

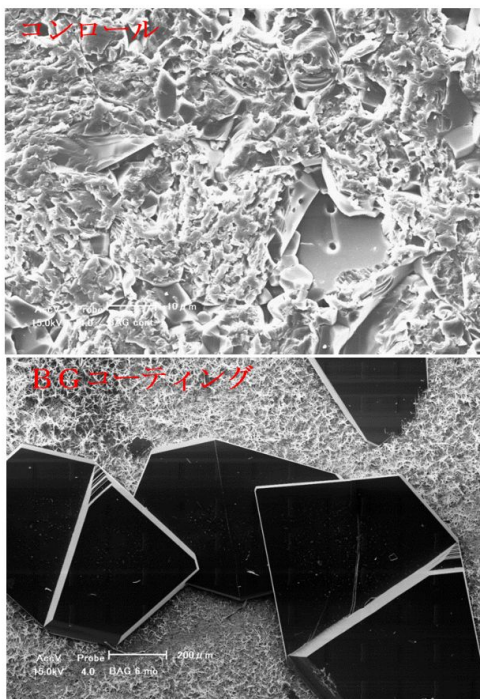


図5 人工唾液中に6か月間浸漬した試料の走査型電子顕微鏡像

これらの石灰化物に対するレーザーラマンスペクトルにはリン酸水素カルシウム二水和物と β -リン酸三カルシウムのピークが認められ、エックス線回折スペクトルにはリン酸カルシウムのピークが認められた(図6、図7)。これより、改質試料表面には、バイオアクティブガラス層より溶出する各種イオンと人工唾液の成分からリン酸カルシウム系の石灰化物が形成されたものと考えられた。

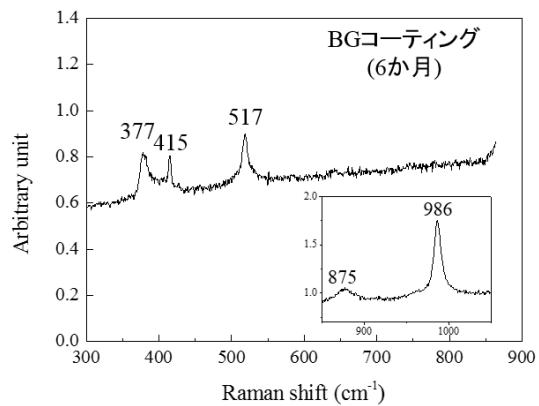


図6 レーザーラマンスペクトル

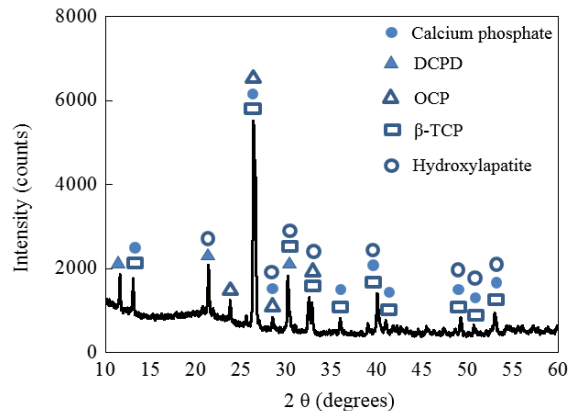


図7 XRDスペクトル

(2) BG改質試料を用いた脱灰エナメル質の再石灰化

脱灰エナメル質の人工唾液中における再石灰化を調べるナノインデンテーション試験では、エッチングによりエナメル質の機械的特性(硬さと弾性係数)は低下を示したが、BG試料とともに浸漬することにより、単独で浸漬したエナメル質試料よりも有意に機械的特性の回復を示した(図8)。

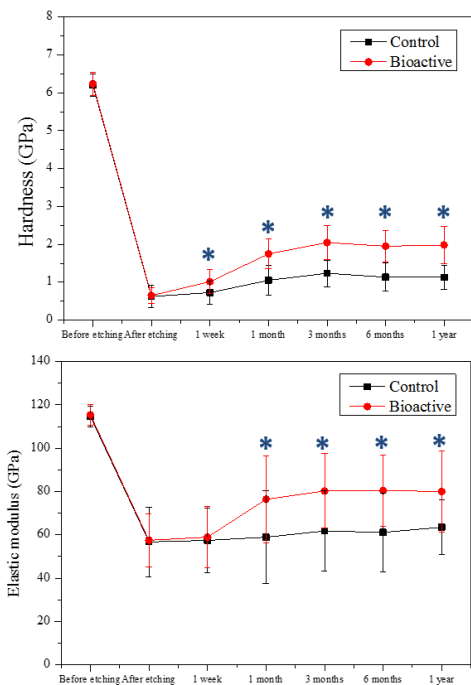


図8 エナメル試料の硬さと弾性係数

以上より、アルミナに対するバイオアクティブガラスを利用した表面改質層は、エナメル質の脱灰抑制作用と再石灰化誘導能を発揮することが明らかとなった。

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3件)

Kohda N, Iijima M, Kyotaro K, Toshima H, Muguruma T, Endo K, Mizoguchi I. Inhibition of enamel demineralization and bond strength properties of bioactive glass containing 4-META/MMA-TBB-based resin adhesive. *Eur J Oral Sci*, 査読有 123:202-207, 2015. DOI:10.1111/eos.12187

Iijima M, Hashimoto M, Nakagaki K, Muguruma T, Mizoguchi I. Bioactive glass coating of orthodontic material for the recovery of the mechanical properties of etched enamel. *J Biomater Tiss Eng*, 査読有 4:274-280, 2014. <http://dx.doi.org/10.1166/jbt.2014.1171>

Iijima M, Hashimoto M, Kohda N, Muguruma T, Endo K, Mizoguchi I.

Crystal growth on bioactive glass sputter-coated alumina in artificial saliva. *Dent Mater J*, 査読有 32:775-780, 2013. DOI:10.4012/dei.2013-120

〔学会発表〕(計4件)

Villamagna I, Iijima M, Mitchell J. Synthesis of novel bioactive glass compositions incorporating therapeutic zinc ions. 45th Annual Meeting of the AADR, Los Angeles (USA), Mar, 19th, 2016.

甲田尚央, 飯嶋雅弘, 河口馨太郎, 六車武史, 溝口 到. バイオアクティブガラス含有 4-META/MMA-TBB レジン系接着材料のエナメル質脱灰抑制と接着特性. 第73回日本矯正歯科学会大会. 2014年10月22日、幕張メッセ(千葉県、千葉市).

飯嶋雅弘, 橋本正則, 中垣 晋, 河口馨太郎, 甲田尚央, 六車武史, 遠藤一彦, 溝口 到. バイオアクティブガラスにより表面改質した矯正用材料の脱灰エナメル質再石灰化能. 第73回日本矯正歯科学会大会. 2014年10月22日、幕張メッセ(千葉県、千葉市).

飯嶋雅弘, 橋本正則, 中垣 晋, 甲田尚央, 六車武史, 遠藤一彦, 溝口 到. バイオアクティブガラスにより表面改質したブラケット用材料の結晶形成能. 第72回日本矯正歯科学会大会. 2013年10月9日、キッセイ文化ホール(長野県、松本市).

6. 研究組織

(1)研究代表者

飯嶋 雅弘 (IIJIMA MASAHIRO)
北海道医療大学・歯学部・准教授
研究者番号: 20305915

(2)研究分担者

橋本 正則 (HASHIMOTO MASANORI)
大阪大学・歯学研究科・准教授
研究者番号: 00337164

六車 武史 (MUGURUMA TAKESHI)
北海道医療大学・歯学部・講師
研究者番号: 20343436