



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Electric Charge Dependence of Controlled Dye-Release Behavior in Glass Ionomer Cement Containing Nano-Porous Silica Particles [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	坂東, 洋祐
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(歯学)
Dissertation Number	甲第13044号
Issue Date	2018-03-22
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/70701
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Yosuke_Bando_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士（歯学） 氏 名 坂 東 洋 祐

主査 特任教授 飯 田 順 一 郎
審 査 担 当 者 副査 教授 吉 田 靖 弘
副査 教授 佐 野 英 彦

学 位 論 文 題 名

Electric Charge Dependence of Controlled Dye-Release Behavior in Glass Ionomer Cement
Containing Nano-Porous Silica Particles
(ナノ多孔質シリカ含有グラスアイオノマーセメントにおける電荷依存性の色素放出挙動)

審査は、主査および吉田副査は飯田教授室において同席のもとで、また佐野副査は佐野教授室において個別に行った。申請者から研究の概要説明の後、提出論文の内容および関連分野について口頭試問形式で審査した。申請者からは研究内容について次のように説明された。

歯科用セメントの一種であるグラスアイオノマーセメント（GIC）はフッ素徐放能を有し、う蝕の発生を予防するが、それを完全に予防することは難しい。近年ではフッ素以外の薬物の徐放を高めることを目的とした新規の多機能性歯科用セメントの開発が求められている。そこで本研究では、ナノ多孔質構造を有するナノポーラスシリカ（NPS）に着目した。これまでに NPS への水溶性カチオン性色素の担持・徐放が確認されているが、中性・アニオン性の色素ではそれを確認できていない。そこで今回 NPS 含有の GIC（GIC-NPS）を作製して、異なる電荷を有する物質における徐放能の差を比較し NPS の徐放能の特徴を評価した。

水溶性の物質としてカチオン性、中性、アニオン性の 3 種類の色素を用意し、NPS の対照にはナノキャビティのないシリカ粒子 (SiO_2) を用いた。NPS は Tagaya の方法に従って合成し、走査型・透過型電子顕微鏡（SEM・TEM）、および粉末 X 線回析（XRD）を用いて形態を観察した。また合成された NPS を GIC の粉末に添加して試験片を作製し、試験片を各色素溶液に 24 時間浸漬させた後、蒸留水に浸漬させた。そして 24 時間ごとに蒸留水を新しくするという手順を 13 日間繰り返し、各時点の上澄み液を視覚的に観察すると同時に紫外可視分光光度計における色素濃度を測定した。さらに色素を放出させた後、再度色素溶液に浸漬させ、色素のリチャージを行い、同様の手順で色素の徐放能を評価した。また、NPS の代わりに SiO_2 を含む GIC (GIC- SiO_2)、および NPS を含まない GIC についても色素の徐放能を評価した。

その結果、NPS 粒子は SEM にて直径約 $0.3 \mu\text{m}$ の球形の粒子であり、TEM にて

粒子の中に直径約 2.5 nm の多数の空洞が存在していることが確認できた。また XRD 測定で六方構造を反映する (100), (110), (200), および (220) にピークを示し、原子が規則的に配列していることが示唆された。

上澄み液への色素の放出は、カチオン性色素を浸漬した GIC-NPS からのみ、浸漬後 7 日目まで目視で認められたが、その他の試験片では 1, 2 日目まで認められたものの、その後は確認できなかった。吸光スペクトル測定では、カチオン性色素に浸漬した GIC-NPS でのみ、10 日間以上吸光度のピークを確認できたが、その他の試験片では浸漬後 4, 5 日でピークは確認できなくなった。これはカチオン性色素のみが、負電荷を有するシリカの表面に電氣的相互作用により捕捉され、徐々に色素放出挙動を引き起こすと考えられる。また GIC-SiO₂ では GIC-NPS ほど長い期間吸光度のピークが確認できなかったことから、NPS のナノキャビティが特異的にカチオン性イオンを捕捉し、徐々に放出したと考えられる。また、GIC-NPS を再度カチオン性色素溶液に浸漬させ、同様の手順で徐放能を評価したところ約 2 週間徐放が続いた。

以上の結果から、NPS 粒子は、中性やアニオン性よりカチオン性の物質において、優れた徐放能を有することが示され、また色素の再取り込みと放出も繰り返しできることが確認できた。

引き続き以下の項目を中心に質疑応答がなされた。

- (1) 本研究を始めるに至った経緯
- (2) ナノポーラスシリカを用いた理由
- (3) リチャージにはどれくらいの量・期間が必要か
- (4) グラスアイオノマーセメントの長期的な物性変化について
- (5) グラスアイオノマーセメント自体の抗菌性について
- (6) この研究の臨床応用に対するハードルについて

矯正歯科治療においては、歯の移動に用いる装置を歯面に接着することが多く、接着剤の周囲に歯垢が付着して歯の発生や歯周疾患を誘発することがある。本研究は、そのような口腔衛生状態を薬物的に改善するために、NPS の特殊な性質に着目し、接着剤の薬剤を徐放する機能をこれまで以上に効果的に上昇させようとする研究である。研究の結果 NPS における物質の徐放性は、カチオン性の電荷を有する物質に優れていることが明らかとなり、今後の実用性に向けて重要な情報を提供する研究成果を得ている。本研究成果は、歯科医学全体の今後の発展に貢献する重要な基礎的情報を提供したものと高く評価できる。加えて、質疑応答から、申請者は本研究の内容を中心とした専門分野について十分な理解と関連分野の幅広い知識を有していることを認めた。以上から、審査担当者全員は、学位申請者が博士(歯学)の学位を授与するに値するものと認めた。