The Japan Society for Analytical Chemistry

BUNSEKI KAGAKU Vol. 49, No. 5, pp. 325–327 (2000)
© 2000 The Japan Society for Analytical Chemistry

技術論文

半導体シリコンセンサーを用いるpHイメージング顕微鏡によるヒトの歯の表面観察

北迫　勇一*，二階堂　徹*，田上　順次*，池田　健一**，
光成　京子**，野村　聡®**

Surface analysis of human teeth using a pH imaging microscope based on a semiconductor silicon sensor

Yuichi KITASAKO, Tohru NIKAIDO, Junji TAGAMI*, Kenichi IKEDA,
Kyoko MITSUNARI and Satoshi NOMURA**

*Cariology of Operative Dentistry, Department of Restorative Sciences Graduate School, Tokyo Medical and Dental University, 1-5-45, Yushima, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8549.
**Horiba Ltd., 2, Kisshoinmiyanohigashimachi, Minami-Ku, Kyoto 601-8510

(Received 24 January 2000, Acceped 16 February 2000)

The aim of this study was to investigate the surface analysis of human teeth using a pH-imaging microscope based on a semiconductor silicon sensor. Disks were cut from freshly extracted non-carious and carious human teeth. Samples were placed on an agar film to evaluate the surface pH distribution. Non-carious samples were treated with 37% phosphoric acid and then thoroughly rinsed. A reduction of the pH value was clearly detected after a phosphoric acid treatment. The pH distribution of carious lesions was lower than that of non-carious lesions. From these results, this pH-imaging technology has the potential to aid in carious assessments and carious treatments.

Keywords : pH-imaging; scanning chemical microscope; human teeth; carious treatments.

1 緒　　言

著者らは，半導体シリコンへの光照射により，平面上の微小な複数の測定点でpH測定が可能な，pHイメージングセンサーを利用した光走査型化学顕微鏡を実用化してきた．本顕微鏡は，pHイメージングセンサーで得られた複数点でのpH値を化学画像として表示できる装置で，この顕微鏡によってゲルや液体を含む多孔質中のプロトン移動の観察など，従来のガラス電極とは異なる概念のpH測定を実現してきた[1)~5)]．

本研究では，この顕微鏡がゲル中に形成されたpH分布を可視化できることを利用し，薄いゲルフィルム上に置かれた硬組織のpH分布の観察を試みた．サンプルとしては，ヒト新鮮抜去歯を用い，サンプルとゲルとの接触によって形成されるpH分布が，pHイメージングセンサー面まで透過してきたものを，pH分布画像としてとらえた．その結果，虫歯の検出や治療に必要な知見を得られる可能性が見いだされたので報告する．

2 材料並びに方法

測定に用いた平面型のpHイメージングセンサー，及びこのセンサーで得られた信号値をpH分布画像として可視化できる光走査型化学顕微鏡（SCHEM-100，堀場製作所製）については，既報で述べた[1)~5)]．実験はpHイメージングセンサー上にゲルなどの液体を含んだ固体層を薄く形成し，その上に測定対象を接触させ，接触面で生じるpH分布がセンサーまで透過した結果をpHイメージングセン

* 東京医科歯科大学大学院医歯学総合研究科摂食機能保存学講座：113-8549　東京都文京区湯島1-5-45
** (株)堀場製作所：601-8510　京都府京都市南区吉祥院宮の東町2

NII-Electronic Library Service

The Japan Society for Analytical Chemistry

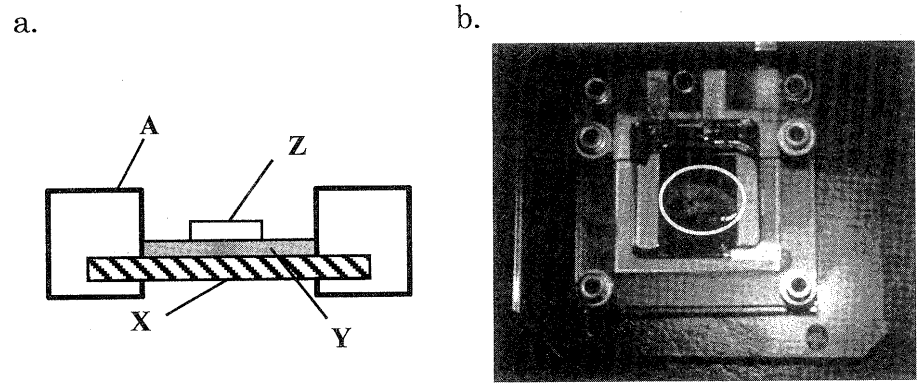

Fig. 1 a) Experimental set up (cross section)
A: plastic holder, X: pH imaging sensor, Y: agar film, Z: sample
b) Experimental set up (picture)
White circle shows the sample (sliced teeth) placed on the agar film.

サーにて検出する．本センサーで得られるpH分解能は，0.1 pH，位置分解能は100 μmである．

実験系をFig. 1に示す．寒天ゲルフィルムは，0.1 Mの塩化カリウムと1.5%の寒天を含み，水酸化ナトリウムでpHを7.0に調節した溶液を沸騰させた後，厚さ1 mmになるようにセンサー上に適量を流して冷却させて形成した．このゲルフィルムの上にサンプルを載せ，ゲルフィルム上に形成されたpH分布をpHイメージングセンサーで測定し，光走査型化学顕微鏡にて可視化した．

本実験では，ヒト新鮮抜去歯を試料として用い，健全歯と虫歯の2群について観察した．すなわち，健全歯においては，こうごう（咬合）面に平行に厚さ1 mmの円柱状試片を切り出し，耐水研磨紙600番を用いて，注水下にて歯面を研削したものを測定面とした．まず，健全歯質のpHを測定した後，虫歯治療の際に用いる歯科用接着材料の一種である37%リン酸（K-エッチャント，クラレ製）を用い，リン酸処理後のpHの変化を測定した．なお，リン酸は30秒間処理し，その後水洗並びに乾燥を行った．一方，虫歯のpHの測定は，虫歯の進行がぞうげ（象牙）質中を歯軸に対し斜め方向に走行する象牙細管に沿って進行することから，歯軸と平行で近遠心的に歯冠中央を通るよう歯が（牙）を二分割し，割断面を上記同様に研削したものを測定面とした．

なお，ゲルフィルムは測定ごとに新たに形成し，サンプルを設置した．また，塩化カリウム，水酸化ナトリウム及び寒天粉末は特級試薬を用い，溶液はイオン交換水を用いて調整した．

3 結果と考察

健全歯におけるリン酸処理前後のpH画像をFig. 2に示す．健全歯においては，ゲルのpH値が約7.3であり，

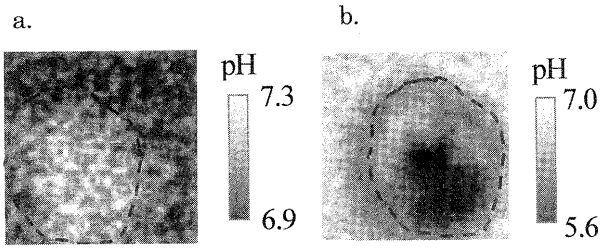

Fig. 2 pH distributions formed on the agar film by placing the sliced human tooth
a) Intact human teeth, b) Etched by 37% phosphoric acid. Image size: 15 mm × 15 mm (dotted circles show sample position)

わずかにアルカリ性を示した（Fig. 2a）．これは，歯を構成する硬組織がアルカリ性であるヒドロキシアパタイト（HP）を主成分とするため，このようなpHの変化が見られたものと考えられる．また，リン酸処理後のpH画像では，サンプル中央部に島状に残るエナメル質でpH値の急激な低下が，周囲の象牙質では軽度のpH値低下が認められた（Fig. 2b）．この原因として，リン酸処理後水洗・乾燥にもかかわらず，リン酸が処理面に残留していたか，あるいは脱灰により新たなリン酸カルシウムによる塩が生成したことによるものと考えられる．エナメル質と象牙質とのpHの違いは，エナメル質がHPを主成分とするのに対し，象牙質ではHPとコラーゲンを主とする有機成分から構成されている違いによるものと思われる．

虫歯の試料におけるpH画像をFig. 3に示す．虫歯を用いた場合，虫歯に相当する部分において，健全部分と比較して明らかなpH値の低下を認めた．一般に虫歯は，虫歯原因細菌の産生する酸による歯牙表面の脱灰によって起こるものであり，今回得られたpH画像はこれと一致する

NII-Electronic Library Service

The Japan Society for Analytical Chemistry

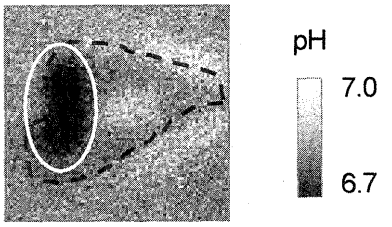

Fig. 3　pH distributions formed on the agar film by placing the sliced human tooth

Image size: 15 mm × 15 mm (dotted circles and white circles show the sample position and carious lesions, respectively)

ものである．

本研究では，ヒトの歯という硬組織をサンプルとして用いたが，pH イメージングセンサー上に形成されたゲルフィルム上に設置することによって，歯の表面のプロトン量や水酸化物イオン量の差を可視化することが可能であることが確認できた．これまでの歯科の研究では，だ液の pH 値の測定が行われているものの，虫歯治療の立場から歯の表面そのものの pH を評価しようという試みはない．近年，虫歯治療の際には，主として歯と接着する接着性修復材料が用いられており，この急速なる進歩により，健全な歯質を可能な限り保存する虫歯治療が普及している．接着性材料は，酸性を有する材料が多く，歯を処理する際の pH 変化は予測されるものである．今回，pH イメージング技術を用いることにより，これまで不可能であった硬組織の pH 値を測定することが可能となった．今後，pH イメージング技術は，虫歯の早期発見や，その治療のための有効な研究手段として活用できる可能性が示唆された．

本研究でのサンプルは，断面を研磨する，あるいはスライスするなどで，平滑な測定面を形成させた．今後，この手法を実際の歯サンプル測定に適用していく場合，本装置での pH イメージングは，pH イメージングセンサー上に弾力性のあるゲルフィルムを形成して，その上にサンプルを載せる方法を採用しているため，多少の凹凸のある実サンプルでも，その表面分析への適用が可能であると考えられる．また，現状の装置では，装置構成上抜歯されたサンプルを対象としているが，今後，装置の小型化，ハンディ化を行うことで，*in-situ* での測定への適用も可能と考えられる．

文　献

1) M. Nakao, T. Yoshinobu, H. Iwasaki: *Sens. Actuators,* **B20**, 119 (1994).
2) M. Nakao, T. Yoshinobu, H. Iwasaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33**, L394 (1994).
3) S. Nomura, M. Nakao, T. Nakanishi, S. Takamatsu, K. Tomita: *Anal. Chem.*, **69**, 977 (1997).
4) 野村　聡，中尾　基，高松修司，中西　剛，冨田勝彦，岩崎　裕，吉信達夫：分析化学 (*Bunseki Kagaku*), **47**, 369 (1998).
5) 野村　聡，高松修司，中尾　基，楊　延国，井上千弘，千田　佶：分析化学 (*Bunseki Kagaku*), **48**, 763 (1999).

要　旨

半導体シリコンを利用した pH イメージング装置を用いて，ヒトの歯表面の pH 分布の観察を行った．測定用の pH イメージングセンサーの上に寒天ゲルフィルムを形成し，その上にサンプルであるヒトの歯を設置したところ，歯の構造に一致した pH 分布や，虫歯の部位に一致した pH 分布がゲルフィル内に形成され，pH イメージングセンサーにてその分布が可視化された．このような，ヒトの歯表面の pH 分布観察結果から，本装置が虫歯の検出や治療に関する研究手段として活用できる可能性が示唆された．

NII-Electronic Library Service