

明 細 書

発明の名称： 歯の汚れを除去するための口腔用組成物

技術分野

[0001] 本発明は歯の汚れを除去するための口腔用組成物に関する。本発明は、特に、所定濃度の過酸化物及び縮合リン酸を含むことで歯の汚れを強力に除去できる口腔用組成物に関する。

背景技術

[0002] 従来から、歯の汚れを除去するための口腔用組成物が提案されている。

[0003] 例えば、国際公開WO 2 0 0 7 - 1 4 5 2 8 7号パンフレット（特許文献1）には、ウルトラリン酸塩を含む口腔用のステイン除去剤が開示されている。このステイン除去剤の酸性度は、pH 5以上6.5以下とされている（同文献の段落[0024]，[0033]）

[0004] 特開2009-126819号公報（特許文献2）には、過酸化水素又は過酸化尿素をラジカル促進剤として含むホワイトニング剤が開示されている。

[0005] 特開2009-024009号公報（特許文献3）には、過酸化物及びポリリン酸塩を含む歯の表面から汚れを除去するチューイングガム組成物が開示されている。

[0006] 特表2006-504776号公報（特許文献4）には、過酸化物及びポリリン酸塩を含む歯の表面から汚れを除去するための組成物が開示されている。

[0007] 特開2009-51734号公報（特許文献5）には、ポリリン酸塩、アシルタウリン塩及び平均分子量600のポリエチレングリコールを含みpHが7～9である液状口腔用組成物が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：国際公開WO 2 0 0 7 - 1 4 5 2 8 7号パンフレット

特許文献2：特開2009-126819号公報

特許文献3：特開2009-024009号公報

特許文献4：特表2006-504776号公報

特許文献5：特開2009-51734号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0009] 従来の口腔用組成物も歯の汚れを除去する効果を有していた。しかし、更に効果的に歯の汚れを除去できる口腔用組成物が望まれた。
- [0010] そこで、本発明は、歯の汚れを効果的に除去できる口腔用組成物を提供することを目的とする。
- [0011] また、特許文献1に記載のステイン除去剤は、酸性下でのみステイン除去効果を発揮するものであるため、歯と歯茎へのダメージが生じうる。さらに、過酸化物は、歯と歯茎へのダメージが大きい。そこで、本発明は、歯と歯茎へのダメージが少なく施術しやすい口腔用組成物を提供することを目的とする。
- [0012] さらに、過酸化物は、アパタイトを含むリン酸カルシウム系物質を溶解する。このため、過酸化物を用いて歯の汚れを除去すると、歯のエナメル質まで溶解させるという問題がある。そこで、本発明は歯のエナメル質の溶解を防ぐことができる口腔用組成物を提供することを上記とは別の目的とする。

課題を解決するための手段

- [0013] 本発明は、基本的には、所定濃度の過酸化物及び縮合リン酸（特にウルトラリン酸塩）又はその塩を含むことで歯の汚れを強力に除去できるという知見に基づくものである。また、本発明は、所定濃度の過酸化物及び縮合リン酸塩を含むことで中性条件の下でも効果的に歯の汚れを除去できるという知見に基づく。
- [0014] 本発明の第1の側面は、歯の汚れを除去するための口腔内組成物に関する。この口腔内組成物は、3.5重量%以上30重量%以下の過酸化物と、5重量%以上20重量%以下の縮合リン酸（好ましくはウルトラリン酸）とを

含む。ウルトラリン酸は、好ましくは平均リン酸重合度が10以上30以下である。

[0015] 実施例により実証された通り、この口腔内組成物は、過酸化物単独又はウルトラリン酸単独に比べて飛躍的に高い洗浄効果を発揮する。また、ウルトラリン酸を用いることで、縮合リン酸を用いた場合に比べて極めて高い洗浄効果を発揮する。さらに、この口腔内組成物は、中性領域において高い洗浄効果を発揮するため、生体親和性が高く、極めて扱いやすいものである。

[0016] 過酸化物の例は、過酸化水素水、過酸化尿素又は過酸化カルシウムである。

[0017] この口腔内組成物は、酸性度が6.5以上8以下（又は酸性度が6.9以上7.5以下）の中性領域においても効果を発揮する。

[0018] この口腔内組成物は、赤外線発熱物質を含み、使用時に赤外線が照射されるものが好ましい。赤外線発熱物質の例は、墨である。墨に赤外線もしくはそれを含む可視光線や赤外線レーザを照射することで口腔内組成物の温度を高めることができる。墨の例は、竹すみ、なすの炭、及び活性炭である。なすの炭を用いた場合、生体親和性が高いのみならず、過酸化物やウルトラリン酸と相乗効果を発揮して高い漂白効果を得ることができるため、好ましい。

[0019] この口腔内組成物は37℃以上50℃以下で使用されることが好ましい。この温度であれば、過酸化物の活性が高まるため、洗浄効果を高めることができる。ただし、口唇や歯髄、歯茎に熱によるダメージを与えない温度として37℃以上45℃以下がさらに好ましい。

[0020] 実施例により実証された通り、この口腔内組成物は、ポリエチレングリコールをさらに含むものが好ましい。ポリエチレングリコールの平均分子量の例は、4000以上10000以下である。ポリエチレングリコールの濃度は、0.25重量%以上2重量%以下が好ましい。なお、上記した構成は適宜組み合わせることができるものである。

発明の効果

[0021] 本発明によれば、所定濃度の過酸化物及び縮合リン酸（ウルトラリン酸塩）を含むことで歯の汚れを強力に除去できる口腔用組成物を提供できる。

[0022] また、本発明によれば、縮合リン酸（特にウルトラリン酸塩）を含むことで、過酸化物による歯と歯茎へのダメージを防止できる口腔用組成物を提供できる。

[0023] 特に本発明の口腔用組成物は、中性領域においても高い洗浄効果を発揮する。このため本発明の口腔用組成物は生体へのダメージが少ない。よって、本発明の口腔用組成物を用いた歯の洗浄を容易に施術できる。

[0024] さらに、本発明の口腔用組成物は、過酸化物が磷酸カルシウム系物質を溶解する作用をウルトラリン酸塩により防ぐ作用がある。このため、本発明の口腔用組成物は、歯のエナメル質が溶解することを効果的に防止できる。

図面の簡単な説明

[0025] [図1A]図1 Aは、3.5% H_2O_2 アルカリ条件（pH 10）下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真である。

[図1B]図1 Bは、3.5% H_2O_2 アルカリ条件（pH 10）下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真である。

[図2A]図2 Aは、3.5% H_2O_2 及び10%ウルトラリン酸（pH 7）下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真である。

[図2B]図2 Bは、3.5% H_2O_2 及び10%ウルトラリン酸（pH 7）下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真である。

[図3]図3は、5% H_2O_2 （pH 10）下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真を示す。

[図4]図4は、5% H_2O_2 及び10%ウルトラリン酸（pH 7）下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真を示す。

[図5]図5は、同一の抜去歯にアルカリ条件化の10% H_2O_2 含有ポリマーと、中性の10% H_2O_2 及び10%ウルトラリン酸含有ポリマーを塗布した際の歯の漂白効果を示す写真である。

[図6A]図6 Aは、20% H_2O_2 （pH 10）下に於いて42℃で各時間放置し

た歯の写真を示す。

[図6B]図6Bは、20% H_2O_2 (pH10)下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真を示す。

[図7A]図7Aは、20% H_2O_2 及び10%ウルトラリン酸(pH7)下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真を示す。

[図7B]図7Bは、20% H_2O_2 及び10%ウルトラリン酸(pH7)下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真を示す。

発明を実施するための形態

[0026] 本発明の口腔内組成物は、歯の汚れを除去するための口腔内組成物である。すなわち、口腔内組成物は、主に口腔内で使用され歯の汚れを除去するための組成物である。もっとも本発明の口腔内組成物は、総義歯や義歯の洗浄にも用いることができる。このような口腔内組成物の例は、ステイン除去剤である。この口腔内組成物は、歯磨き粉や洗口液に含まれてもよい。また、この口腔内組成物は、液状又はゲル状であってもよい。そして、歯科医師によるホワイトニングの際に用いられてもよい。

[0027] この口腔内組成物は、3.5重量%以上30重量%以下の過酸化物と、5重量%以上20重量%以下の縮合リン酸（好ましくはウルトラリン酸）又はその塩とを含む。

[0028] 過酸化物の例は、過酸化水素水、過酸化尿素又は過酸化カルシウムである。過酸化物の濃度は、3.5重量%以上20重量%以下が好ましく、3.5重量%以上15重量%以下が好ましく、3.5重量%以上10重量%以下がさらに好ましく、5重量%以上10重量%以下でもよい。これは、実施例に示されるとおり、これらの範囲で本発明の口腔内組成物の洗浄効果が高まるからである。

[0029] 本発明の口腔内組成物は、縮合リン酸を含む。縮合リン酸の例は、いわゆるポリリン酸である。ポリリン酸のうち好ましいものは、ウルトラリン酸である。ウルトラリン酸の例は特許文献1に開示されているとおりである。ウルトラリン酸の好ましい例は、リン酸の平均重合度が10以上30以下のウ

ルトラリン酸である。また、ウルトラリン酸の平均重合度は、15以上30以下でもよく、15以上25以下でもよい。特に、ウルトラリン酸の平均重合度が15以上の場合に、過酸化化物との相乗効果により高い漂白効果を得ることができる。縮合リン酸の濃度は、3.5重量%以上20重量%以下が好ましく、3.5重量%以上15重量%以下が好ましく、7.5重量%以上12.5重量%以下がさらに好ましく、3.5重量%以上10重量%以下がさらに好ましく、5重量%以上10重量%以下でもよい。

[0030] ポリリン酸は塩の形でこの組成物に添加されてもよい。ポリリン酸の塩の例は、ポリリン酸ナトリウム塩、ポリリン酸カリウム塩を含むポリリン酸とアルカリ金属との塩である。

[0031] この口腔内組成物は、酸性度が6.5以上8以下（又は酸性度が6.9以上7.5以下）の中性領域においても効果を発揮する。

[0032] この口腔内組成物は、赤外線発熱物質を含み、使用時に赤外線が照射されるものが好ましい。赤外線発熱物質の例は、墨である。墨以外の赤外線発熱物質の例は、酸化チタン、アルミニウム、金、又は銀である。歯科医院には治療用の赤外線レーザやホワイトニング用のライトが存在する。そして、赤外線レーザは紫外線レーザよりも生体への悪影響が少ない。赤外線レーザや赤外線やそれを含む可視光線が口腔内組成物に含まれる墨に照射すると、墨が熱を持ち、その結果口腔内組成物自体が温くなる。すると、口腔内組成物のホワイトニング効果が高まる。このため本発明の口腔内組成物は、歯科医院にて効果的に用いることができる。

[0033] 赤外線発熱物質は、赤外線を照射されると熱を発する物質を意味する。赤外線の波長の例は、750nm以上2000nm以下であり、800nm以上1500nm以下でもよく、800nm以上1300nm以下でもよく、850nm以上1050nm以下でもよい。本発明は、漂白が目的とされる歯牙に塗布されるとともに赤外線を塗布部分に照射することで歯牙の漂白効果を発揮する口腔内組成物をも提供する。照射される赤外線の強度の例は1W以上50W以下であり、3W以上20W以下でもよく、5W以上10W以

下でもよい。なお、本発明の口腔内組成物は、赤外線発熱物質を含まない場合であっても、赤外線を照射することで歯牙のホワイトニング効果を高めることができる。すなわち、本発明は、過酸化物を所定の濃度で含む、漂白が目的とされる歯牙に塗布されるとともに赤外線を塗布部分に照射することで歯牙の漂白効果を発揮する口腔内組成物をも提供する。

[0034] この口腔内組成物は37℃以上50℃以下で使用されることが好ましい。さらに歯や歯茎の熱によるダメージをさけるために37℃以上45℃以下がさらに好ましい。この温度であれば、過酸化物の活性が高まるため、洗浄効果を高めることができる。

[0035] 実施例により実証された通り、この口腔内組成物は、ポリエチレングリコールをさらに含むものが好ましい。後述する表6及び表10に示される通り、ポリエチレングリコールの平均分子量（数平均分子量）の例は、4000以上10000以下である。平均分子量が4000以上の場合に、ステイン残存率を減少させることができる。ポリエチレングリコールの平均分子量は、6000以上であることが好ましい。また、表6に示される通り、過酸化物、ポリリン酸及びPEGが存在する場合に、きわめて高い相乗効果が得られ、ステイン残存率を飛躍的に減少させることができることがわかる。

[0036] 後述する表7に示される通り、ポリエチレングリコール（PEG）の含有量が多くても必ずしも洗浄効果を高めることができない。すなわち、ポリエチレングリコールの濃度は、0.25重量%以上2重量%以下が好ましい。ポリエチレングリコールの濃度は、0.5重量%以上1.5重量%以下でもよいし、0.75重量%以上1.25重量%以下でもよい。

[0037] 後述する表9に示される通り、過酸化物、ポリリン酸及びPEGが存在する場合、ウルトラリン酸の濃度が7.5重量%以上12.5重量%以下の場合にきわめて高い洗浄効果を得ることができた。

[0038] この口腔内組成物は、3.5重量%以上30重量%以下の過酸化物と、5重量%以上20重量%以下のポリリン酸（好ましくはウルトラリン酸）を含むほかは、口腔内組成物について通常用いられる組成を適宜含んでもよい。

具体的に説明すると、口腔内組成物は、グリセリン、香料、着色剤、風味剤、結着剤を含んでもよい。ペースト状の口腔内組成物は、原料を混練することで製造できる。また、水、生理食塩水を含む溶媒に溶解させて、液状の口腔内組成物としてもよい。

実施例 1

[0039] 着色歯牙モデルとしての乾燥茶渋アパタイトの作製

ハイドロキシアパタイト (BioGel-HTP, BioRad 社) 1~2 g を 50 mL チューブにとり、タンパク質溶液 (1% イクオス SCP5000, 新田ゼラチン) 20 mL を加え、10~15 分放置後、遠心分離 (3000 x g, 2 分) を行い、上清を除去した。次に遠心分離後沈殿したアパタイトに茶渋液 (水 110 mL にインスタントコーヒー 5 g, 紅茶ティーバック 2 個, 緑茶ティーバック 2 個を入れ、電子レンジで 2 分加熱した。その後、室温で振りながら 3 時間から一晩放熱させた。その後、200 メッシュの濾紙でろ過した。このようにして得られた液が茶渋液である) 20 mL を加え、10~15 分放置後、遠心分離 (2500 rpm, 2 分) を行い、上清を除去した。最後に遠心分離後沈殿したアパタイトに人口唾液 (20 mM HEPES-KOH pH 7.0, 1.5 mM CaCl_2 , 0.9 mM KH_2PO_4) 20 mL を加え、10~15 分放置後遠心分離 (2500 rpm, 2 分) を行い、上清を除去して沈殿したアパタイトを乾燥させた。

[0040] 漂白効果評価試験

乾燥茶渋アパタイトを 20 mg 秤量し、各種濃度の H_2O_2 と必要に応じて各種縮合リン酸塩, NaOH, その他の物質混合した溶液を 0.3 mL 入れて一定時間一定温度で放置した。遠心分離 (3000 x g, 15 秒) によりアパタイトを沈殿させ、上清を除去後、水 1 mL 入れてよく混和しアパタイトを洗浄した。さらに遠心分離 (3000 x g, 15 秒) し、上清を除去する操作を 4 回繰り返した。その後アパタイトを 200 μL の水に懸濁し、その懸濁液を 96 穴マイクロタイタープレー

トの1ウェルに移した。96穴マイクロタイタープレートをその底部よりスキナー（エプソンGT8300）でスキャンし、得られた像を諧調反転し、イメージJ（imageJ）（フリーソフトウェア）にて光度を測定しステイン残存率を算出した。

[0041] ウルトラリン酸による漂白効果の向上

表1に各種縮合リン酸による過酸化水素の漂白効果の向上に関する結果をまとめた。

[0042] [表1]

表1: 各種縮合リン酸による漂白効果の促進作用の比較

H ₂ O ₂ 濃度 (%)	縮合リン酸の 種類	縮合リン 酸濃度 (%)	水酸化ナトリ ウム濃 度 (N)	pH	処理温 度 (℃)	処理時 間 (分)	ステイン 残存率 (%)
0		0	0	7	45		100.00
3.5	ウルトラリン 酸 Na	10	0	7.0	45	10	23.5
3.5	ポリリン酸 Na	10	0	7.0	45	10	50.4

[0043] 表1にポリリン酸ナトリウム（平均リン酸重合度80：リジェンティス株式会社製）とウルトラリン酸ナトリウム（ミテジマ化学（株）製）の過酸化水素の漂白効果向上能力を比較した結果を示した。ウルトラリン酸ナトリウムはポリリン酸ナトリウムに比べて2倍以上の向上能力があった。

実施例 2

[0044] ウルトラリン酸濃度と漂白促進効果の関係

各種濃度のウルトラリン酸ナトリウムを用いて、3.5%の過酸化水素におけるアパタイトの漂白効果に関して比較した。このときpHは7.5、温度を42℃の一定条件にし、10分、30分、1時間、及び3時間で漂白効果を比較した。その結果を表2に示す。

[0045]

[表2]

表2: 各種ウルトラリン酸濃度による過酸化水素の漂白効果の向上

H ₂ O ₂ 濃度 (%)	ウルトラ リン酸の 縮合リン 酸濃度 (%)	水酸化ナト リウム濃度 (N)	pH	処理温 度 (℃)	処理時 間	ステイ ン残 存率 (%)
3.5	0	0	7.5	42	10	98.15
3.5	0	0	7.5	42	30	96.80
3.5	0	0	7.5	42	60	94.89
3.5	0	0	7.5	42	180	88.78
3.5	1	0	7.5	42	10	69.60
3.5	1	0	7.5	42	30	43.56
3.5	1	0	7.5	42	60	24.43
3.5	1	0	7.5	42	180	13.86
3.5	5	0	7.5	42	10	65.82
3.5	5	0	7.5	42	30	22.75
3.5	5	0	7.5	42	60	13.98
3.5	5	0	7.5	42	180	9.06
3.5	10	0	7.5	42	10	68.12
3.5	10	0	7.5	42	30	23.47
3.5	10	0	7.5	42	60	14.28
3.5	10	0	7.5	42	180	9.43
3.5	15	0	7.5	42	10	69.42
3.5	15	0	7.5	42	30	23.61
3.5	15	0	7.5	42	60	14.73
3.5	15	0	7.5	42	180	9.93
3.5	20	0	7.5	42	10	70.30
3.5	20	0	7.5	42	30	23.05
3.5	20	0	7.5	42	60	14.02
3.5	20	0	7.5	42	180	10.10

[0046] 表2で示した結果より、ウルトラリン酸濃度5%～10%で高い漂白促進効果が得られることがわかった。

実施例 3

[0047] 各種過酸化水素濃度における漂白効果の変化

各種過酸化水素濃度（3.5～10%）における漂白効果に関して以下の条件で評価した。（i）ウルトラリン酸：5，10，20%，（ii）処理時

間：１０分，２０分，３０分，（ｉｉｉ）処理温度：４５℃，（ｉｖ）ｐＨ
 ７．０。また，比較群として，アルカリ条件下（ｐＨ９．５～１１．６）に
 おける過酸化水素単独での漂白効果及び，ウルトラリン酸単独での漂白作用
 に関しても評価しその結果を表３に示した。

[0048] [表3]

表3: 過酸化水素濃度、ウルトラリン酸濃度、処理時間を変化させた場合の漂白効果

H ₂ O ₂ 濃度	縮合リン酸 の種類	縮合リン酸 濃度(%)	NaOH濃 度 (N)	pH	温度 (℃)	処理時 間 (分)	ステイン残存 率 (%)
0	—	0	0		45	30	100%
3.5	—	0	1	11.6	45	30	49.23%
5	—	0	1	10.5	45	30	43.17%
10	—	0	1	10.1	45	30	34.47%
20	—	0	1	9.5	45	30	40.08%
3.5	ウルトラ	5	—	7.0	45	30	12.44%
3.5	ウルトラ	10	—	7.0	45	30	11.42%
3.5	ウルトラ	20	—	7.0	45	30	12.76%
3.5	ウルトラ	5	—	7.0	45	20	17.33%
3.5	ウルトラ	10	—	7.0	45	20	17.21%
3.5	ウルトラ	20	—	7.0	45	20	17.15%
3.5	ウルトラ	5	—	7.0	45	10	25.36%
3.5	ウルトラ	10	—	7.0	45	10	25.10%
3.5	ウルトラ	20	—	7.0	45	10	25.98%
5	ウルトラ	5	—	7.0	45	30	12.05%
5	ウルトラ	10	—	7.0	45	30	10.46%
5	ウルトラ	20	—	7.0	45	30	11.48%
5	ウルトラ	5	—	7.0	45	20	14.28%
5	ウルトラ	10	—	7.0	45	20	13.44%
5	ウルトラ	20	—	7.0	45	20	15.43%
5	ウルトラ	5	—	7.0	45	10	19.63%
5	ウルトラ	10	—	7.0	45	10	19.29%
5	ウルトラ	20	—	7.0	45	10	19.65%
10	ウルトラ	5	—	7.0	45	10	18.49%
10	ウルトラ	10	—	7.0	45	10	15.83%
10	ウルトラ	20	—	7.0	45	10	14.09%
0	ウルトラ	5	—	6.6	45	30	52.65%
0	ウルトラ	10	—	6.3	45	30	56.25%
0	ウルトラ	20	—	6.1	45	30	56.86%
0	ウルトラ	5	—	6.6	45	20	57.69%
0	ウルトラ	10	—	6.3	45	20	60.31%
0	ウルトラ	20	—	6.1	45	20	57.05%
0	ウルトラ	5	—	6.6	45	10	67.59%
0	ウルトラ	10	—	6.3	45	10	68.42%
0	ウルトラ	20	—	6.1	45	10	62.05%

[0049] 表３の比較群からウルトラリン酸単独ではいずれの条件でも５０％以上の

ステイン残存率を示し、漂白効果が低かった。また、過酸化水素単独でアルカリ条件において、20%過酸化水素で30分処理しても40.08%のステイン残存があった。これに対して、3.5%の過酸化水素で5~20%のウルトラリン酸、及び5%過酸化水素で5~20%のウルトラリン酸の混合された条件では、pH7.0でも12%以下のステイン残存率を示し、どの比較群よりも漂白効果が高かった。特にアルカリ条件における高濃度過酸化水素処理の比較群に比べて低濃度過酸化水素でpH7.0以上の条件で優れた漂白効果が得られることは、過酸化水素の刺激による歯と歯茎のダメージを最小限に抑えることができると考えられる。また、う蝕の原因となるpH6.5以下の条件より高いpH領域で最大限の漂白効果が得られたことによりう蝕の誘発も起きづらいと考えられる。

実施例 4

[0050] ウルトラリン酸による過酸化尿素の漂白効果の増強作用

漂白作用をもつラジカルを発生させる過酸化物をして、過酸化水素ではなく、過酸化尿素を使用した場合の漂白効果に関して、ウルトラリン酸との組み合わせの効果を評価し、表4にその結果を示した。

[0051]

[表4]

表4: 過酸化尿素とウルトラリン酸ナトリウムの組み合わせによる漂白効果の向上

過酸化 尿素濃 度(%)	縮合リン 酸の種 類	縮合リン酸 濃度(%)	NaOH 濃度(N)	pH	温度 (℃)	処理時 間 (分)	ステイン残存率 (%)
0	—	0	0	7.0	45	30	100%
15	—	0	0	7.0	45	30	89.86%
30	—	0	0	7.1	45	30	64.85%
15	—	0	1	11.4	45	30	27.69%
30	—	0	1	10.9	45	30	19.01%
15	ウルトラ	5	0	7.0	45	30	19.45%
15	ウルトラ	10	0	7.0	45	30	18.04%
15	ウルトラ	20	0	7.4	45	30	18.71%
30	ウルトラ	5	0	7.0	45	30	14.37%
30	ウルトラ	10	0	7.4	45	30	14.12%
30	ウルトラ	20	0	6.8	45	30	12.59%
15	—	0	0	7.0	45	60	87.73%
30	—	0	0	7.1	45	60	60.96%
15	—	0	1	11.4	45	60	30.39%
30	—	0	1	10.9	45	60	20.22%
15	ウルトラ	5	0	7.0	45	60	14.69%
15	ウルトラ	10	0	7.0	45	60	13.82%
15	ウルトラ	20	0	7.4	45	60	15.25%
30	ウルトラ	5	0	7.0	45	60	10.01%
30	ウルトラ	10	0	7.4	45	60	10.27%
30	ウルトラ	20	0	6.8	45	60	10.25%

[0052] 過酸化尿素単独で処理した場合（比較群）の漂白効果は、アルカリ性条件下でも最高で19.01%（過酸化尿素30%, 処理時間60分）であった。これに対してウルトラリン酸ナトリウムとの組み合わせでは、過酸化尿素15%, 処理時間30分でも18~19%, 過酸化尿素30%, 処理時間60分では最高で10.01%（ウルトラリン酸5%存在下）のステイン残存率であった。この結果から、過酸化尿素においてもウルトラリン酸との共存により高い漂白効果が得られることがわかった。

実施例 5

[0053] 温度による漂白効果の違い

温度による漂白効果の違いを評価する目的で、37℃、42℃、及び45℃

のそれぞれの温度での漂白効果を比較した。その結果を表5に示す。

[0054] [表5]

表5: 各種温度におけるウルトラリン酸の漂白効果増強作用

H ₂ O ₂ 濃度	縮合リン酸の種類	縮合リン酸濃度 (%)	NaOH濃度 (N)	pH	処理温度 (℃)	処理時間 (分)	ステイン残存率 (%)
3.5	ウルトラ	5	0	7.5	37	10	69.61
3.5	ウルトラ	5	0	7.5	42	10	65.82
3.5	ウルトラ	5	0	7.5	45	10	25.36
3.5	ウルトラ	10	0	7.5	37	10	69.91
3.5	ウルトラ	10	0	7.5	42	10	68.12
3.5	ウルトラ	10	0	7	45	10	25.10
5	ウルトラ	5	0	7.5	37	10	53.41
5	ウルトラ	5	0	7	45	10	19.63
5	ウルトラ	10	0	7.5	37	10	57.34
5	ウルトラ	10	0	7	45	10	19.20

[0055] 表5から過酸化水素濃度3.5%においては5%及び10%のいずれのウルトラリン酸濃度においても、温度の高い方が漂白効果増強作用が高く、45℃で激的に効果が上がることがわかった。また、5%過酸化水素においても、37℃処理にくらべて45℃処理のものが高い効果を得られた。以上の結果から、本発明の口腔用組成物は、特に42℃以上の温度で処理することが望ましいといえる。

実施例 6

[0056] ポリエチレングリコール添加による漂白効果への影響1. ポリエチレングリコールの分子量の違いによる漂白効果の比較

過酸化水素とウルトラリン酸の混合系に各種分子量（分子量200, 1000, 4000, 6000および20000）のポリエチレングリコールを終濃度1%となるように添加した場合の漂白効果に関して以下の条件で評価した。（i）ウルトラリン酸：10%, （ii）過酸化水素：0または5%, （iii）処理時間：10分, （iv）処理温度：45℃, （v）pH 7.0。また、比較群として、ウルトラリン酸単独での漂白効果及び、ウルトラリン酸と過酸化水素のみを組み合わせた場合の漂白作用についても評価

し、その結果を合わせて表6に示した。

[0057] [表6]

表6: 過酸化水素とウルトラリン酸の混合系に分子量の異なるポリエチレングリコール(PEG)を組み合わせた場合の漂白促進効果の比較

H ₂ O ₂ 濃度 (%)	ウルトラリン酸濃度 (%)	PEG濃度 (%)	PEG分子量	pH	処理温度 (℃)	処理時間	ステイン残存率 (%)
0	10	0	-	7	45	10	93.50
0	10	1	200	7	45	10	92.51
0	10	1	1000	7	45	10	85.96
0	10	1	4000	7	45	10	68.93
0	10	1	6000	7	45	10	68.16
5	10	0	-	7	45	10	24.49
5	10	1	200	7	45	10	23.94
5	10	1	1000	7	45	10	21.45
5	10	1	4000	7	45	10	19.04
5	10	1	6000	7	45	10	18.59

[0058] 表6の比較群からウルトラリン酸単独およびウルトラリン酸に各種ポリエチレングリコールを添加した場合においてはいずれも50%以上のステイン残存率を示し、いずれも漂白効果が低かった。一方、ウルトラリン酸と各種ポリエチレングリコールならびに過酸化水素を混合した条件では、いずれもステイン残存率が25%未満となり、過酸化水素なしの場合と比較して約4倍高い漂白効果を示した。また過酸化水素の有無にかかわらず、ウルトラリン酸とポリエチレングリコールを組み合わせた場合に、ポリエチレングリコールの分子量が大きくなるに従ってステイン残存率が低くなる傾向にあった。この結果から、中性条件、処理温度が45℃の場合においては、10%ウルトラリン酸、分子量6000の1%ポリエチレングリコールならびに5%過酸化水素を組み合わせた場合に最も高い漂白効果が得られた。

実施例 7

[0059] ポリエチレングリコール添加による漂白効果への影響2. ポリエチレングリコールの分子量および添加量の違いによる漂白効果の比較

過酸化水素とウルトラリン酸の混合系に各濃度（0～15%）のポリエチレ

ングリコール（分子量6000）を添加した場合の漂白効果に関して以下の条件で評価した結果を表7に示した。（i）ウルトラリン酸：10%，（ii）過酸化水素：5%，（iii）処理時間：10分，（iv）処理温度：42℃，（v）pH 7.0。また、同条件で各種分子量のポリエチレングリコールを各種濃度（0～1%）となるように添加した場合の漂白効果を比較した結果を表8に示した。

[0060] [表7]

表7: 過酸化水素とウルトラリン酸の混合系に添加する分子量6000のポリエチレングリコール(PEG)の配合量を変化させた場合の漂白効果

H ₂ O ₂ 濃度 (%)	ウルトラリン酸濃度 (%)	PEG濃度 (%)	PEG分子量	pH	処理温度 (℃)	処理時間	ステイン残存率 (%)
5	10	0	-	7	42	10	32.69
5	10	1	6000	7	42	10	27.96
5	10	3	6000	7	42	10	28.86
5	10	5	6000	7	42	10	28.63
5	10	10	6000	7	42	10	32.29
5	10	15	6000	7	42	10	28.59

[0061] [表8]

表8: 過酸化水素とウルトラリン酸の混合系に添加するポリエチレングリコール(PEG)の分子量と配合量をそれぞれ変化させた場合の漂白促進効果の比較

H ₂ O ₂ 濃度 (%)	ウルトラリン酸濃度 (%)	PEG濃度 (%)	PEG分子量	pH	処理温度 (℃)	処理時間	ステイン残存率 (%)
5	10	0	-	7	42	10	30.21
5	10	0.25	4000	7	42	10	29.59
5	10	0.5	4000	7	42	10	30.02
5	10	1	4000	7	42	10	29.43
5	10	0.25	6000	7	42	10	31.13
5	10	0.5	6000	7	42	10	25.85
5	10	1	6000	7	42	10	25.47
5	10	0.25	20000	7	42	10	26.98
5	10	0.5	20000	7	42	10	25.71
5	10	1	20000	7	42	10	25.27

[0062] 表7より、中性条件、処理温度42℃において10%ウルトラリン酸と5

%過酸化水素のみの混合条件ではスライソ残存率は30%以上となり、そこにポリエチレングリコール(分子量6000)を1%から15%の範囲で添加した場合にはスライソ残存率がやや低くなる傾向がみられたが、1%以上のポリエチレングリコール添加による漂白効果の濃度依存性はみられなかった。

また表8より、1%未満の低濃度で各種ポリエチレングリコールを添加した場合の漂白効果を比較したところ、分子量6000および2000のポリエチレングリコールでは濃度の増加に従ってスライソ残存率が低下し、漂白効果への濃度依存性が示されたが、分子量4000についてはいずれの濃度でもポリエチレングリコールを添加しなかった場合とほぼ同程度のスライソ残存率(約30%)となり、漂白効果の濃度依存性はみられなかった。

[0063] 表7および表8より、漂白効果を増強するのに十分なポリエチレングリコールの添加量は0.25%~最大1%であり、1%以上配合しても漂白効果にはほとんど影響しないことが示された。以上の結果から、中性条件、処理温度42℃においては分子量6000以上のポリエチレングリコールを0.25~1%の濃度で配合した場合において顕著な漂白促進効果を示すことがわかった。

実施例 8

[0064] ウルトラリン酸、過酸化水素、ポリエチレングリコールの混合条件における最適条件の検討

過酸化水素とウルトラリン酸の混合系に分子量6000のポリエチレングリコールを終濃度が1%となるように添加した場合の漂白効果について、以下の条件で評価した結果を表9に示した。(ⅰ) ウルトラリン酸：0~20%、(ⅱ) 過酸化水素：5%、(ⅲ) 処理時間：10分、(ⅳ) 処理温度：42℃、(ⅴ) pH

7.0。また同様の条件において、ウルトラリン酸濃度を10%に固定し、各種分子量のポリエチレングリコールを終濃度1%で添加した場合の漂白効

果について評価した結果を表 10 に示した。

[表9] [0065]

表 9: 過酸化水素、ウルトラリン酸、分子量 6000 のポリエチレングリコール (PEG) 混合系においてウルトラリン酸の配合量を変化させた場合の漂白促進効果の比較

H ₂ O ₂ 濃度 (%)	ウルトラリン酸濃度 (%)	PEG 濃度 (%)	PEG 分子量	pH	処理温度 (°C)	処理時間	スライ残存率 (%)
5	0	1	6000	7	42	10	97.61
5	5	1	6000	7	42	10	23.76
5	10	1	6000	7	42	10	22.47
5	20	1	6000	7	42	10	23.19

[表10] [0066]

表 10: 過酸化水素、ウルトラリン酸、ポリエチレングリコール (PEG) 混合系においてポリエチレングリコールの分子量を変化させた場合の漂白促進効果の比較

H ₂ O ₂ 濃度 (%)	ウルトラリン酸濃度 (%)	PEG 濃度 (%)	PEG 分子量	pH	処理温度 (°C)	処理時間	スライ残存率 (%)
5	10	0	-	7	42	10	24.32
5	10	1	200	7	42	10	23.77
5	10	1	1000	7	42	10	22.69
5	10	1	4000	7	42	10	22.86
5	10	1	6000	7	42	10	21.78
5	10	1	20000	7	42	10	24.24

[0067] 表 9 より、分子量 6000 のポリエチレングリコールを 1% 添加し、ウルトラリン酸の濃度を 0 から 20% まで変化させた場合の漂白効果を比較すると、ウルトラリン酸濃度 5% 以上の条件ではいずれもスライ残存率が 25% 以下となったが、ウルトラリン酸濃度 10% の場合にスライ残存率が最も低くなった。

以上の結果を踏まえ、確認のためウルトラリン酸の濃度を 10% に固定し、各種分子量のポリエチレングリコールを濃度 1% で添加した場合の漂白効果を比較したところ、表 10 のとおり分子量の増加に従って漂白促進効果が増

大し、その効果が分子量6000で最大となった。以上の結果から、中性条件、処理温度42℃においては10%ウルトラリン酸、5%過酸化水素の混合系に分子量6000のポリエチレングリコールを1%濃度で添加することで顕著な漂白促進効果が得られることがわかった。

実施例 9

[0068] 抜去歯を用いた漂白実験(1) : 3.5% H_2O_2

抜去歯を30% 過酸化水素溶液に12時間以上浸し脱色した後、(i) タンパク溶液(1時間以上)、(ii) 茶渋(12時間以上)、(iii) 人口唾液(1時間以上)の順に浸漬しステインを付着させた。タンパク質溶液としては新田ゼラチンSPC-5000(コラーゲンペプチド)を1w/v%で溶解したものをを用いた。また、茶渋液としてはインスタントコーヒー5g、リプトンティーバッグ2袋、おーいお茶(登録商標)ティーバッグ2袋に蒸留水110mLを加え、家庭用電子レンジで約2分加熱し、自然放熱後ろ過したものをを用いた。人口唾液は20mM HEPES-KOH pH7.0, 1.5mM $CaCl_2$, 0.9mM KH_2PO_4 の組成のものをを用いた。上記の方法でステインを付着させた抜去歯を各種濃度の過酸化水素条件下で一方はpH10(対照実験)、もう一方は10% 網目状ポリリン酸を加えpH7に調製したものを塗付し(実施例1)、42℃で最長30分放置し着色除去効果を調べた。

[0069] 図1A及び図1Bは、3.5% H_2O_2 アルカリ条件(pH10)下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真である(対照実験)。図2A及び図2Bは、3.5% H_2O_2 及び10%ウルトラリン酸(pH7)下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真である(実施例1)。図1A及び図1Bと、図2A及び図2Bを比較すると、中性条件下での10%ウルトラリン酸と過酸化水素水の併用の方がアルカリ条件下の過酸化水素水に比べて漂白効果が高いことがわかる。

実施例 10

[0070] 抜去歯を用いた漂白実験（２）：５％ H_2O_2

５％ H_2O_2 条件下で一方はpH 10のものを抜去歯に塗布し、もう一方は５％ H_2O_2 に１０％ウルトラリン酸を加えpH 7に調製したものを抜去歯に塗付し、４２℃で最長３０分放置した。

[0071] 図３は、５％ H_2O_2 （pH 10）下に於いて４２℃で各時間放置した歯の写真を示す。図４は、５％ H_2O_2 及び１０％ウルトラリン酸（pH 7）下に於いて４２℃で各時間放置した歯の写真を示す。

[0072] 図３及び図４から、５％過酸化水素での漂白においてもウルトラリン酸と５％過酸化水素の組み合わせの方が５％過酸化水素単独よりも漂白効果が高かった。

実施例 11

[0073] 抜去歯を用いた漂白実験（３）：１０％ H_2O_2

同一歯を用いてその半分を１０％ H_2O_2 条件下で一方はpH 10、もう半分を１０％ウルトラリン酸を加えpH 7に調製したジェルを塗付し、４２℃で最長３０分放置した。尚歯を処理する溶液をジェルするために、それぞれの処理液に最終濃度０．７％になるようにカルボキシビニルポリマーを加えた。

[0074] 図５は、同一の抜去歯にアルカリ条件化の１０％ H_2O_2 含有ポリマーと、中性の１０％ H_2O_2 及び１０％ウルトラリン酸含有ポリマーを塗布した際の歯の漂白効果を示す写真である。図５に示されるように、同一歯において実証されたとおり、中性の１０％ H_2O_2 及び１０％ウルトラリン酸含有ポリマー（左半分）が１０％ H_2O_2 含有ポリマー（右半分）よりも高い漂白効果が確認された。

実施例 12

[0075] 抜去歯を用いた漂白実験（４）：２０％ H_2O_2

２０％ H_2O_2 条件下で一方はpH 10のものを抜去歯に塗布し、もう一方は２０％ H_2O_2 に１０％ウルトラリン酸を加えpH 7に調製したものを抜去歯に塗付し、４２℃で最長３０分放置した。

[0076] 図6 A及び図6 Bは、20% H_2O_2 (pH10)下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真を示す。図7 A及び図7 Bは、20% H_2O_2 及び10%ウルトラリン酸(pH7)下に於いて42℃で各時間放置した歯の写真を示す。

[0077] 図6 A及び図6 Bと、図7 A及び図7 Bから、20%過酸化水素での漂白においては、ウルトラリン酸と20%過酸化水素の組み合わせの方が20%過酸化水素単独よりも漂白効果が低くなることがわかる。すなわち、本発明の口腔用組成物において過酸化物の濃度は20%以下であることが有効であるといえる。なお、20%過酸化水素単独では、歯や歯茎へのダメージが大きいと考えられる。一方、ウルトラリン酸と20%過酸化水素の組み合わせは、20%過酸化水素単独に比べて刺激は少なかった。

実施例 13

[0078] 漂白効果における赤外線の効果

上記の実施例における口腔内組成物を歯牙に塗布した後、半導体レーザを塗布部分に30秒から5分照射した。半導体レーザとして、ウォーターレーズジャパン社製半導体レーザe zレーズ(登録商標)を用いた。このレーザの出力波長は940nmであり、出力強度は7Wであった。その結果、半導体レーザを1分程度照射しただけで、歯牙の漂白効果が飛躍的に高まることがわかった。これは、半導体レーザのエネルギーが、過酸化物の漂白効果を飛躍的に高めたためと考えられる。また、口腔内組成物に1重量%~10重量%の墨を添加したものについても同様にして、歯牙に塗布し、半導体レーザを照射した。すると、高い漂白効果が確認された。

産業上の利用可能性

[0079] 本発明は口腔用組成物に関する産業において利用されうる。

請求の範囲

- [請求項1] 3. 5重量%以上30重量%以下の過酸化物と、5重量%以上20重量%以下の縮合リン酸又はその塩とを含む、歯の汚れを除去するための口腔内組成物。
- [請求項2] 前記縮合リン酸がウルトラリン酸である、請求項1に記載の口腔内組成物。
- [請求項3] 前記ウルトラリン酸の平均リン酸重合度が10以上30以下である、請求項2に記載の口腔内組成物。
- [請求項4] 前記過酸化物が過酸化水素水、過酸化尿素又は過酸化カルシウムである請求項1に記載の口腔内組成物。
- [請求項5] 酸性度が6.5以上8以下である請求項1に記載の口腔内組成物。
- [請求項6] 酸性度が6.9以上7.5以下である請求項1に記載の口腔内組成物。
- [請求項7] 赤外線発熱物質を更に含み、使用時に赤外線が照射される、請求項1に記載の口腔内組成物。
- [請求項8] 前記赤外線発熱物質が、墨である、請求項7に記載の口腔内組成物。
- [請求項9] 37℃以上50℃以下で使用される請求項1に記載の口腔内組成物。
- [請求項10] 請求項1に記載の口腔内組成物であって、前記縮合リン酸又はその塩の濃度が7.5重量%以上12.5重量%以下である口腔内組成物。
- [請求項11] 請求項1に記載の口腔内組成物であって、ポリエチレングリコールをさらに含む口腔内組成物。
- [請求項12] 前記ポリエチレングリコールの平均分子量が4000以上10000以下である請求項11に記載の口腔内組成物。
- [請求項13] 請求項11に記載の口腔内組成物であって、前記ポリエチレングリコールの濃度が0.25重量%以上2重量%以下である口腔内組成物。

o