



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公開本

(11) 公開編號：TW 201918244 A

(43) 公開日：中華民國 108 (2019) 年 05 月 16 日

(21) 申請案號：107134723

(22) 申請日：中華民國 107 (2018) 年 10 月 01 日

(51) Int. Cl. :

*A61K8/72 (2006.01)**A61K8/41 (2006.01)**A61K8/24 (2006.01)**A61K8/29 (2006.01)**A61K8/25 (2006.01)**A61K8/26 (2006.01)**A61K8/27 (2006.01)**A61K8/28 (2006.01)**A61K8/19 (2006.01)**A61Q11/00 (2006.01)*

(30) 優先權：2017/09/29 美國

62/565,275

(71) 申請人：美商安潔公司 (美國) SAFEWHITE, INC. (US)

美國

(72) 發明人：加雷 文卡塔 拉嘉文卓 薩提斯 庫瑪 GARRE VENKATA RAGHAVENDRA, SATISH KUMAR (IN)；荷特比斯 米雪兒 安 HURTUBISE, MICHELLE ANNE (US)；馬丁內斯 卡羅斯 愛德華多 MARTINEZ, CARLOS EDUARDO (US)；古普塔 帝波堤 GUPTA, DEEPTI (US)

(74) 代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：64 項 圖式數：13 共 63 頁

(54) 名稱

聚電解質的牙科塗料

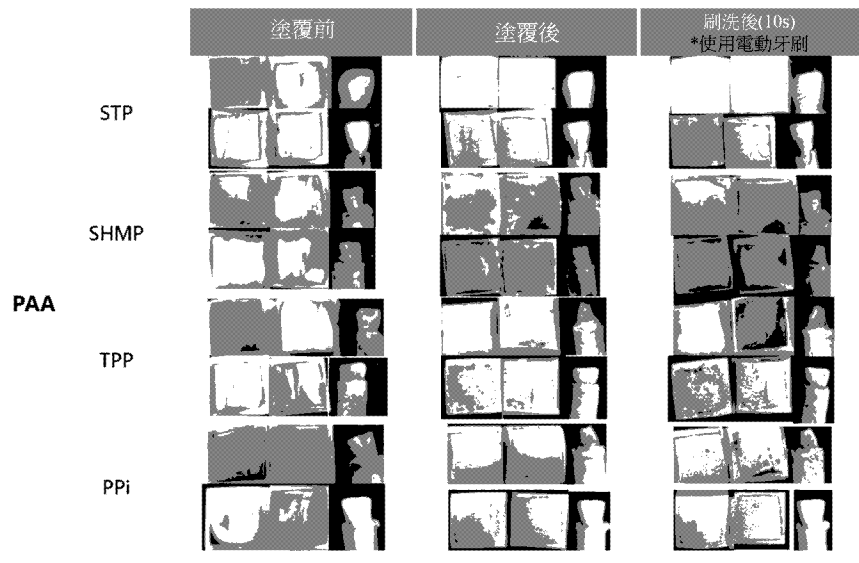
POLYELECTROLYTE DENTAL COATINGS

(57) 摘要

本文係關於向基底(例如，牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮、指甲、毛髮、嘴唇及睫毛)提供理想成效(例如，外觀、味道、口氣清新及/或藥品)中所涉及之材料及方法。舉例而言，本文提供用於使牙齒、牙齒部分或無機牙科材料與聚電解質黏著劑接觸以向該基底提供外觀變化(例如，更潔白之外觀、更自然之外觀及/或有光澤之外觀)的材料及方法，該黏著劑含有多胺(例如，天然來源之多胺及/或合成多胺)、聚磷酸鹽及一或多種增白劑之結合物。

This document relates to materials and methods involved in providing a substrate (e.g., tooth, tooth component, inorganic dental material, skin, hair, nails, hair, lips, and eyelashes) with a desired benefit (e.g., appearance, flavor, breath freshening, and/or medicament). For example, materials and methods for contacting a tooth, tooth component, or inorganic dental material with a polyelectrolyte adhesive containing a conjugate of a polyamine (e.g., a naturally-derived polyamine and/or a synthetic polyamine), a polyphosphate, and one or more whitening agents to provide the substrate with a change in appearance (e.g., a whiter appearance, a more natural appearance, and/or a glossy appearance) are provided.

指定代表圖：



【圖1C】

## 【發明說明書】

### 【中文發明名稱】

聚電解質的牙科塗料

### 【英文發明名稱】

POLYELECTROLYTE DENTAL COATINGS

### 【技術領域】

【0001】 本文係關於向基底(例如，牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮、指甲、毛髮、嘴唇及睫毛)提供理想成效(例如，外觀、味道、口氣清新及/或藥品)中所包含之材料及方法。舉例而言，本文係關於用於使牙齒、牙齒部分或無機牙科材料與聚電解質黏著劑接觸以向基底提供外觀變化(例如，更潔白之外觀、更自然之外觀及/或有光澤之外觀)的方法及材料，該黏著劑含有多胺(例如，天然來源之多胺及/或合成多胺)、聚磷酸鹽及一或多種增白劑之結合物。

### 【先前技術】

【0002】 大體而言，因潔白牙齒使人感覺更年輕及自信，故而人們在化妝上將其視為理想的。缺乏個人口腔衛生及護理等可導致牙齒變色。通常負責呈現污漬外觀之牙齒結構係釉質層。因牙齒暴露於各種天然及人工食物及著色劑下，故而各種因素造成天然牙齒變色。舉例而言，牙齒表面上形成斑塊及牙垢基質可誘發污漬，因而導致釉質變色。

【0003】 已研發許多消費者牙齒美白製劑以迎合美容偏好，且以使因表面誘發材料及污漬而變色之牙釉質保持光澤。儘管所有牙粉及漱口水含有一些清潔、漂白及拋光劑，一些釉質沈積物變得難在正常使用條件下藉由此等試劑完全移除。吸菸者經常產生變色釉質，此係因為菸草中之

焦油及顆粒物集中於牙齒上。在一些情況中，食物及飲品(例如，茶)及/或抗生素(例如，四環素)可使牙釉質污損或變色。

**【0004】** 亦已研發消費者產品以美白膚色。該等產品常用於使異常高色素之區域(例如，斑點、痣及胎記)與周圍皮膚相配。此外，臨時膚色改變亦係理想變化，且用不同方式實現。向皮膚及其他有機基底提供更持久之外觀變化係普遍理想之成效。

#### **【發明內容】**

**【0005】** 本文提供用於使牙齒、牙齒部分或無機牙科材料(例如，人類牙齒，人類牙齒部分或人類口腔中之無機牙科材料)與聚電解質黏著劑接觸以向牙齒、牙齒部分或無機牙科材料提供理想成效(例如，更潔白之外觀、更自然之外觀、有光澤之外觀、味道、口氣清新及/或藥品)的方法及材料，該黏著劑含有至少一種多胺(例如，天然來源之多胺及/或合成多胺)、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑(例如，一或多種增白劑)之結合物。本文提供之材料及方法可允許個人輕易塗覆(例如，自我塗覆)含有聚電解質黏著劑之組合物(例如，液體組合物)。舉例而言，本文提供之聚電解質黏著劑可使有益試劑黏著或黏附於牙齒作為塗料，從而向塗覆之牙齒提供理想成效。在一些情況中，塗料可抗磨蝕(例如，機械磨蝕及/或生物機械力)。在一些情況中，具有理想成效之牙齒可使用本文提供之方法及材料獲得，且不使用嚴苛漂白或去漬技術。

**【0006】** 如本文描述，含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及有益試劑(例如，諸如 $\text{TiO}_2$ 之增白劑)之結合物的聚電解質黏著劑可使用刷子塗覆於牙齒，從而實現均勻且易於塗覆之塗料，同時不具有持久刷印或其他執行印記。舉例而言，含有天然來源之多胺、聚磷酸鹽及增白劑(例如， $\text{TiO}_2$ )之

聚電解質黏著劑可用於向牙齒提供更潔白之外觀。舉例而言，含有至少一種天然來源之多胺、聚磷酸鹽及調味劑(例如，薄荷油)之結合物的聚電解質黏著劑可用於向聚電解質黏著劑塗料提供宜人味道且向牙齒提供更清新之口氣。

**【0007】** 在一個態樣中，本文提供聚電解質黏著劑。在一些實施例中，聚電解質黏著劑可包括多胺、聚磷酸鹽及增白劑之結合物，且能夠在濕性條件(例如，唾液)下與基底相互作用或結合，其中增白劑向基底提供潔白外觀。基底可為牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮或指甲。當基底係牙齒時，牙齒可為人類牙齒。多胺可包括選自以下之合成多胺：聚丙烯胺(PAA)、聚二丙烯胺(DAA)、聚兩性電解質、聚離胺酸、聚乙烯胺、聚乙亞胺(PEI)、肝素、聚甲基丙烯酸鹽(例如，EUDRAGIT® E 100、EUDRAGIT® EPO、EUDRAGIT® RL30D、EUDRAGIT® RS30D、EUDRAGIT® L30D-55)及聚組胺酸。多胺可包括選自以下之天然來源之多胺：脫乙醯甲殼質、基於大豆之多胺、精胺、亞精胺、腐胺、提取自小麥胚芽之多胺及提取自大米之多胺。聚磷酸鹽可為六偏磷酸鈉、三偏磷酸鈉、三聚磷酸鈉、焦磷酸鈉、三聚磷酸鉀、焦磷酸鉀或三磷酸腺苷。聚電解質黏著劑可具有以下多胺:聚磷酸鹽之w/w比：約20:1至約1:20(例如，約10:1、約5:1、約3:1、約1:1、約1:3、約1:5、約1:6.7或約1:10)。增白劑可包括以下之至少一者：二氧化鈦、氫氧磷灰石、二氧化矽、氧化鋅、氧化鋁、氧化鋯、矽酸鈉、矽酸鋁及生物活性玻璃。當增白劑包括TiO<sub>2</sub>時，TiO<sub>2</sub>可為聚電解質黏著劑之約0.005%至約10%。聚電解質黏著劑亦可包括硬度提昇劑(例如，幾丁聚醣、氧化鋅、氧化鋯、氧化鋁及矽酸鹽)。當硬度提昇劑包括ZnO時，ZnO可為聚電解質黏著劑之約

0.05%至約50%。聚電解質黏著劑亦可包括乳白劑(例如，磷灰石、氫氧磷灰石、雲母、鈦酸化雲母、氧化鋅、氧化鋯、氧化鋁、三氧化硼、生物活性玻璃、氧化鈉、矽酸鈉、矽酸鋁及矽酸鋯)。在一些情況中，當乳白劑係生物活性玻璃、矽酸鈉或矽酸鋁，且在濕性條件下塗覆聚電解質黏著劑時，聚電解質黏著劑可形成透明塗料。在一些情況中，當乳白劑係生物活性玻璃、矽酸鈉或矽酸鋁，且在乾性條件下塗覆聚電解質黏著劑時，聚電解質黏著劑可形成白色塗料。聚電解質黏著劑亦可包括抗污漬劑(例如，矽烷塗覆之氧化物、Carbopol®聚合物、硬脂酸鎂、矽烷、矽酸鹽、疏水性脂質及兩親性脂質)。聚電解質黏著劑亦可包括調味劑(例如，綠薄荷油、西洋薄荷油、冬青油、香草、橘皮油及肉桂油)。聚電解質黏著劑亦可包括冷卻劑(例如，薄荷醇或羧醯胺冷卻劑)。

**【0008】** 在另一態樣中，本文提供用於改變基底之外觀的方法。此方法可包括或基本由以下組成：將多胺、聚磷酸鹽及有益試劑塗覆於基底，以在基底之表面形成聚電解質黏著劑，其中有益試劑改變基底之外觀。基底可為牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮及指甲。當基底係牙齒時，牙齒可為人類牙齒。有益試劑可為增白劑，且該方法可包括改變牙齒之外觀，故而該基底看上去更潔白。增白劑可包括以下之至少一者：二氧化鈦、氫氧磷灰石、二氧化矽、氧化鋅、氧化鋁、氧化鋯、矽酸鈉、矽酸鋁及生物活性玻璃。當增白劑包括TiO<sub>2</sub>時，TiO<sub>2</sub>可為聚電解質黏著劑之約0.005%至約10%。有益試劑可為乳白劑，且該方法可包括改變基底之外觀，故而基底看上去更潔白、更自然且/或更具有光澤。乳白劑可為磷灰石、氫氧磷灰石、雲母、鈦酸化雲母、氧化鋅、氧化鋯、氧化鋁、三氧化硼、生物活性玻璃、氧化鈉、矽酸鈉、矽酸鋁或矽酸鋯。多胺

可包括選自由以下組成之群的合成多胺：PAA、DAA、聚兩性電解質、聚離胺酸、聚乙烯胺、PEI、肝素、聚甲基丙烯酸鹽(例如，EUDRAGIT® E 100、EUDRAGIT® EPO、EUDRAGIT® RL30D、EUDRAGIT® RS30D、EUDRAGIT® L30D-55)及聚組胺酸。多胺可包括選自由以下組成之群的天然來源之多胺：脫乙醯甲殼質、基於大豆之多胺、精胺、亞精胺、腐胺、提取自小麥胚芽之多胺及提取自大米之多胺。聚磷酸鹽可為六偏磷酸鈉、三偏磷酸鈉、三聚磷酸鈉、焦磷酸鈉、三聚磷酸鉀、焦磷酸鉀或三磷酸腺苷。聚電解質黏著劑可包括以下多胺：聚磷酸鹽之w/w比：約20:1至約1:20(例如，約10:1、約5:1、約3:1、約1:1、約1:3、約1:5、約1:6.7或約1:10)。塗覆步驟可在濕性條件下(例如，存在唾液)進行。

**【0009】** 在另一態樣中，本文提供一種塗覆條，其包括多胺、聚磷酸鹽及有益試劑。在將該塗覆條塗覆於基底時，多胺、聚磷酸鹽及增白劑可在基底表面形成聚電解質黏著劑，其中聚電解質黏著劑之有益試劑改變基底之外觀，且其中聚電解質黏著劑可在濕性條件下(例如，存在唾液)黏附於基底。基底可為牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮或指甲。當基底係牙齒時，牙齒可為人類牙齒。塗覆多胺可包括選自由以下組成之群的合成多胺：PAA、DAA、聚兩性電解質、聚離胺酸、聚乙烯胺、PEI、肝素、聚甲基丙烯酸鹽(例如，EUDRAGIT® E 100、EUDRAGIT® EPO、EUDRAGIT® RL30D、EUDRAGIT® RS30D、EUDRAGIT® L30D-55)及聚組胺酸。多胺可包括選自由以下組成之群的天然來源之多胺：脫乙醯甲殼質、基於大豆之多胺、精胺、亞精胺、腐胺、提取自小麥胚芽之多胺及提取自大米之多胺。聚磷酸鹽可為六偏磷酸鈉、三偏磷酸鈉、三聚磷酸鈉、焦磷酸鈉、三聚磷酸鉀、焦磷酸鉀或三磷

酸腺苷。塗覆條可為可溶性條帶。塗覆條可包括可拆背襯。

**【0010】** 在另一態樣中，本文提供一種粉末，其包括多胺、聚磷酸鹽及有益試劑。在將粉末塗覆於基底時，多胺、聚磷酸鹽及有益試劑可在基底表面形成聚電解質黏著劑，其中聚電解質黏著劑之有益試劑改變基底之外觀，且其中聚電解質黏著劑可在濕性條件下(例如，存在唾液)黏附於基底。基底可為牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮及指甲。當基底係牙齒時，牙齒可為人類牙齒。多胺可包括選自由以下組成之群的合成多胺：PAA、DAA、聚兩性電解質、聚離胺酸、聚乙烯胺、PEI、肝素、聚甲基丙烯酸鹽(例如，EUDRAGIT® E 100、EUDRAGIT® EPO、EUDRAGIT® RL30D、EUDRAGIT® RS30D、EUDRAGIT® L30D-55)及聚組胺酸。多胺可包括選自由以下組成之群的天然來源之多胺：脫乙醯甲殼質、基於大豆之多胺、精胺、亞精胺、腐胺、提取自小麥胚芽之多胺及提取自大米之多胺。聚磷酸鹽可為六偏磷酸鈉、三偏磷酸鈉、三聚磷酸鈉、焦磷酸鈉、三聚磷酸鉀、焦磷酸鉀或三磷酸腺苷。粉末可復原成溶液(例如，藉由將緩衝劑添加至粉末中)，隨後塗覆於基底。

**【0011】** 在另一態樣中，本文提供一種方法，其用於自基底移除聚電解質黏著劑，其中聚電解質黏著劑包含多胺、聚磷酸鹽及有益試劑。該方法可包括或基本由以下組成：使聚電解質黏著劑與移除劑接觸。移除劑可為TRIS、磷酸、1M HCl、聚磷酸鹽、EDTA或NaCl。移除劑可為天然移除劑。基底可包括污漬，且移除聚電解質黏著劑亦可包括自基底移除污漬。

**【0012】** 在另一態樣中，本文提供一種方法，其用於增強基底上的聚電解質黏著劑塗料。該方法可包括或基本由以下組成：將後處理物塗覆於基底上的聚電解質黏著劑塗料。後處理物可為聚醚(例如，聚乙二醇、

聚丙二醇及聚丁二醇)。聚醚可具有約50道爾頓至約10000道爾頓之分子量。後處理物可為甜味劑(例如，蔗糖素及木糖醇)。後處理物可為調味劑(例如，薄荷、百里酚、薄荷醇及西洋薄荷油)。後處理物可為流變劑(例如，合成鋰皂石、膠白、甘油及聚二醇)。後處理物可改善聚電解質黏著劑塗料之外觀。後處理物可提高聚電解質黏著劑塗料之耐久性。後處理物可使聚電解質黏著劑塗料免於分解。

**【0013】** 除非另外定義，否則本文所用之全部技術及科學術語具有與本發明所屬之領域中普通技術者之一所普遍理解相同之含義。儘管與本文所述相似或等效之方法及材料可用於實施本發明，但合適方法及材料描述於下文。本文提及之所有公開案、專利申請案、專利及其他參考文獻均以引用方式全文併入。在衝突情況下，將以包括定義之本說明書為準。此外，材料、方法及實例僅具有闡釋性，且不意欲具有限制性。

**【0014】** 本發明之一或多個實施例之細節闡釋於附圖及下文實施方式中。本發明之其他特點、目的及優點將自實施方式及圖示及自申請專利範圍顯而易見。

#### **【圖式簡單說明】**

**【0015】** 圖1A - 1G顯示聚電解質黏著劑中之多胺與聚磷酸鹽組合。圖1A顯示多胺之實例：聚丙烯胺(PAA)、一級胺與二級胺之共聚物(PAA-D)、二級胺與具有較少氯含量之二氧化硫的共聚物(PASA)及二級胺與二氧化硫之共聚物(PAS)。圖1B顯示聚磷酸鹽之實例：聚磷酸鹽三偏磷酸鈉(STP)、六偏磷酸鈉(SHMP)、三聚磷酸鹽(TPP)及焦磷酸鹽(PPI)。圖1D - 1G含有塗覆聚電解質黏著劑之前的牙齒圖像、塗覆聚電解質黏著劑塗料之後的牙齒圖像及使用電動牙刷刷洗聚電解質黏著劑塗料10秒之後

的牙齒圖像。圖1C含有帶有聚電解質黏著劑塗料之牙齒的圖像，該黏著劑含有多胺PAA及聚磷酸鹽STP、SHMP、TPP及PPi。圖1D含有帶有聚電解質黏著劑塗料之牙齒的圖像、塗覆前、塗覆後及刷洗後的牙齒圖像，該黏著劑含有多胺PAA聚合物聚丙烯酸、聚天冬胺酸、植酸鈉及焦磷酸鈣。圖1E含有帶有聚電解質黏著劑塗料之牙齒的圖像，該黏著劑含有多胺PAA-D及聚磷酸鹽STP、SHMP、TPP及PPi。圖1F含有帶有聚電解質黏著劑塗料之牙齒的圖像，該黏著劑含有多胺PAS及聚磷酸鹽STP、SHMP、TPP及PPi。圖1G含有帶有聚電解質黏著劑塗料之牙齒的圖像，該黏著劑含有多胺PASA及聚磷酸鹽STP、SHMP、TPP及PPi。

**【0016】** 圖2A - 2B係塗覆聚電解質黏著劑且用電動牙刷刷洗之後的牙齒圖像。圖2A含有帶有聚電解質黏著劑塗料之牙齒的圖像，該黏著劑以不同pH含有PAA:STP比。圖2B含有帶有聚電解質黏著劑塗料之牙齒的圖像，該黏著劑以不同pH含有PAA-D:STP比。

**【0017】** 圖3含有塗覆前、塗覆含有三磷酸腺苷(ATP)之聚電解質黏著劑之後、接觸唾液之後及刷洗之後的牙齒圖像。

**【0018】** 圖4A - 4D顯示用於聚電解質黏著劑之天然來源之多胺及陰離子。圖4A顯示天然來源之多胺的實例：甲殼質(脫乙酰)、精胺、亞精胺及腐胺。圖4B顯示多價陰離子之實例：聚丙烯酸、聚天冬胺酸(聚天冬胺酸鈉)、植酸鈉及焦磷酸鈣。圖4C顯示塗覆前具有多胺之聚電解質黏著劑製劑，多胺包括衍生自自然來源之胺。圖4D含有塗覆具有多胺(包括衍生自自然來源之胺)的聚電解質黏著劑之前、塗覆後、接觸唾液後、接觸牙漬後及刷洗後的牙齒圖像。

**【0019】** 圖5A - 5B顯示具有增白劑之聚電解質黏著劑。圖5A顯示

塗覆前具有增白劑之聚電解質黏著劑製劑。圖5B含有塗覆具有增白劑之聚電解質黏著劑製劑之前的牙齒圖像及刷洗前後塗有具有增白劑之聚電解質黏著劑製劑的牙齒照片。

【0020】 圖6A - 6B顯示具有ZnO之聚電解質黏著劑。圖6A含有具有ZnO之聚電解質黏著劑製劑及反應時間。圖6B含有塗覆含有ZnO之聚電解質黏著劑塗料之前、塗覆之後、接觸唾液及劃痕之後、接觸污漬之後及刷洗之後的牙齒圖像。

【0021】 圖7含有使用塗覆刷塗覆聚電解質黏著劑之前及之後的牙齒圖像。

【0022】 圖8含有使用塗覆條塗覆聚電解質黏著劑之前及之後的牙齒圖像。

【0023】 圖9A - 9B顯示凍乾聚電解質黏著劑。圖9A顯示凍乾聚電解質黏著劑調配物及製劑。圖9B含有塗覆凍乾聚電解質黏著劑之前、塗覆之後、接觸唾液之後、接觸污漬之後及刷洗之後的牙齒圖像。

【0024】 圖10含有塗覆聚電解質黏著劑塗料之前及之後、及刷洗及後處理之後的牙齒圖像。

【0025】 圖11A及11B顯示聚電解質黏著劑塗料移除條件。圖11A含有塗覆有聚電解質黏著劑之牙齒在接觸2-(N-嗎啉基)乙烷磺酸(MES)膏、臨床浮岩、三(羥甲基)胺基甲烷(TRIS)膏、氯化鈉(NaCl)膏、碳酸鈉( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ )膏、稀釋(dil.)  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 膏及牙科刮治之前及之後的圖像。圖11B含有塗覆有聚電解質黏著劑之牙齒在接觸0.1M HCl、1M HCl、3%磷酸、30%磷酸、粗浮岩及細浮岩之前及之後的圖像。

【0026】 圖12顯示塗覆聚電解質黏著劑塗料之前及之後的牙齒圖

像，該塗料含有生物活性玻璃乳白劑、矽酸鋁乳白劑或混合氧化物乳白劑，及在濕性及乾性條件中刷洗之後的牙齒圖像。

**【0027】** 圖13含有塗覆PAA:TPP比為1:1之聚電解質黏著劑塗料之前及之後、刷洗之後及後處理之後的牙齒圖像。

#### **【實施方式】**

相關申請案之交互參照

**【0028】** 本申請案要求2017年9月29日申請之美國專利申請案系列第62/565,275號之權益。將先前申請案之揭示內容視為本申請案之揭示內容的一部分(且以引用方式併入本文)。

**【0029】** 本文提供使用聚電解質黏著劑以黏附於基底(例如，牙齒、皮膚、毛髮、指甲、毛髮、嘴唇及睫毛)之材料及方法，該黏著劑含有至少一種多胺(例如，天然來源之多胺及/或合成多胺)、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑(例如， $\text{TiO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 、磷灰石及/或薄荷油)之結合物。基底可為體內或體外的。舉例而言，本文描述之聚電解質黏著劑(例如，含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物)可用於黏附至牙齒、牙齒部分或無機牙科材料(例如，人類牙齒、人類牙齒部分或人類口腔中之無機牙科材料)。在一些實例中，本文提供用於使含有一或多種有益試劑(例如，一或多種增白劑)之聚電解質黏著劑黏附或黏著於牙齒作為塗料以提供理想功效(例如，更潔白之外觀、更自然之外觀、更具有光澤之外觀、味道、口氣清新及/或藥品)之材料及方法。

**【0030】** 在一些情況中，塗料(例如，包括諸如生物活性玻璃、矽酸鈉或矽酸鋁之乳白劑的塗料)可為透明塗料。舉例而言，塗料在濕性條件下可為透明的。舉例而言，塗料在乾性條件下可為透明的。

**【0031】** 在一些情況中，塗料(例如，包括諸如生物活性玻璃、矽酸鈉或矽酸鋁之乳白劑的塗料)可為不透明(例如，白色)塗料。舉例而言，塗料在濕性條件下可為不透明的。舉例而言，塗料在乾性條件下可為不透明的。

**【0032】** 在一些情況中，塗料(例如，包括諸如生物活性玻璃、矽酸鈉或矽酸鋁之乳白劑的塗料)可自透明變化為不透明(例如，白色)或反之亦然。在一些情況中，透明塗料在濕性條件下可為不透明的(例如，白色)。舉例而言，塗料(例如，包括諸如生物活性玻璃、矽酸鈉或矽酸鋁之乳白劑的塗料)可在乾性條件下(例如，在塗覆於乾牙齒時)呈透明，且可在濕性條件下(例如，在接觸唾液時)呈白色。在一些情況中，不透明(例如，白色)塗料在濕性條件下可為透明的。舉例而言，塗料(例如，包括諸如生物活性玻璃、矽酸鈉或矽酸鋁之乳白劑的塗料)可在乾性條件下(例如，在塗覆於乾牙齒時)呈白色，且可在濕性條件下(例如，在接觸唾液時)呈透明。

**【0033】** 在一些情況中，本文提供用於使牙齒與聚電解質黏著劑接觸以向牙齒提供給予更潔白外觀之塗料的材料及方法，該黏著劑含有至少一種天然來源之多胺、聚磷酸鹽及一或多種增白劑之結合物。舉例而言，本文提供用於使牙齒與聚電解質黏著劑接觸之材料及方法，該黏著劑含有至少一種天然來源之多胺、聚磷酸鹽及提供更自然外觀之乳白劑(例如，磷灰石)之結合物。舉例而言，本文提供用於使牙齒與聚電解質黏著劑接觸之材料及方法，該黏著劑含有至少一種天然來源之多胺、聚磷酸鹽及提供更清新口氣之調味劑(例如，薄荷油)的結合物。由本文提供之聚電解質黏著劑所提供的聚電解質黏著劑塗料及牙科成效可在刷洗後得以保留。

【0034】含有至少一種多胺(例如，天然來源之多胺及/或合成多胺)、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑(例如， $\text{TiO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 、磷灰石及/或薄荷油)之結合物的聚電解質黏著劑能夠使用與牙齒、牙齒部分或無機牙科材料之表面的較弱或較強離子或共價相互作用而與牙齒、牙齒部分(例如，釉質、氫氧磷灰石、後天牙科表膜、齒莖質、牙冠、頸部、齒莖質釉質接合處或齒根尖)或無機牙科材料(例如，牙冠、牙蓋、牙箍或填充物)相互作用或結合，因此將一或多種有益試劑黏著或黏附於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料。聚電解質黏著劑可黏附於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料之表面上的有機或無機材料。牙齒、牙齒部分或無機牙科材料可來自哺乳動物(例如，人類、犬、貓、牛或馬)。

【0035】聚電解質黏著劑可藉由使多價陽離子、多價陰離子及一或多種有益試劑(例如， $\text{TiO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 、磷灰石及/或薄荷油)接觸而形成。舉例而言，聚電解質黏著劑可藉由使多胺(例如，天然來源之多胺及/或合成多胺)、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑(例如， $\text{TiO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 、磷灰石及/或薄荷油)接觸而形成。當形成本文所述之聚電解質黏著劑時，可單獨、一起或以任何組合形式提供多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑。在單獨提供多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之情況中，其可同時或順序提供。順序提供之多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑可以任何順序提供。在一些情況中，本文提供之聚電解質黏著劑可藉由以下形成：使含有聚磷酸鹽(例如，STP)之第一組合物與含有多胺(例如，天然來源之多胺，諸如幾丁聚醣)及增白劑(例如， $\text{TiO}_2$ )之第二組合物接觸。在一些情況中，本文提供之聚電解質黏著劑可藉由以下形成：使含有聚磷酸鹽(例如，STP)及一或多種有益試劑之第一組合物與含有多胺(例如，天然來源之多胺，諸如幾

丁聚醣)之第二組合物接觸。在形成本文所述之聚電解質黏著劑時，多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑可以任何形式(例如，溶液(例如，水溶液)、粉末(例如，凍乾粉末、由原子化形成之粉末及蒸發形成之粉末)、膏(例如，可溶性膏)、凝膠(例如，疏水性凝膠及由溶膠凝膠方法形成之凝膠)或懸浮液(例如，由機械混合形成之懸浮液))提供。在本文所述之聚電解質黏著劑作為粉末提供之情況中，粉末可在塗覆前再懸浮及/或復原成溶液。舉例而言，當本文所述之聚電解質黏著劑作為粉末提供時，粉末可藉由將緩衝劑添加至粉末中而再懸浮及/或復原成溶液。

**【0036】** 任何合適多胺可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。多胺可為一種聚合物，其含有一級胺、二級胺、與其他重複單元(例如，諸如二氧化硫)混合之胺的重複單元或其組合。多胺可為合成多胺。可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑之合成多胺的實例包括(但不限於) PAA、一級與二級胺之共聚物(例如，PAA-D)、二級胺與二氧化硫之共聚物(例如，PAS)、鹽酸PAA、DAA、聚兩性電解質、聚離胺酸、聚乙烯胺、PEI、肝素及聚甲基丙烯酸鹽(例如，EUDRAGIT® E 100、EUDRAGIT® EPO、EUDRAGIT® RL30D、EUDRAGIT® RS30D、EUDRAGIT® L30D-55)、聚組胺酸。多胺可為天然來源之多胺。如本文所用，「天然來源之多胺」係包括衍生自自然來源(例如，諸如甲殼動物之動物或諸如豆類、小麥及大米之植物)之胺的任何多胺。可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑中所用多胺的衍生自自然來源之胺的實例包括(但不限於)幾丁聚醣(例如，脫乙醯甲殼質)、基於大豆之多胺、精胺、亞精胺、腐胺、提取自小麥胚芽(小麥(*Triticum aestivum*))之多胺及提取自大米之多胺。本文所述之多胺聚合物可為鹽酸鹽形式或游離鹼形式。可用於形成本文所述之

聚電解質黏著劑之多胺的其他實例包括(但不限於)商購自Nittobo Medical Co., LTD (參見例如, PAS系列、PAA系列及聚兩性電解質系列)、Millipore Sigma、VWR及polysciences之彼等物。本文所述之多胺可為均聚物、共聚物或其組合。舉例而言,用於形成本文所述之聚電解質黏著劑之多胺可包括呈組合形式之一或多種合成多胺及一或多種天然來源之多胺。在一些情況中,如本文所述使用之多胺可具有以下分子量:小於約200,000道爾頓(例如,小於約100,000道爾頓;小於約50,000道爾頓;小於約30,000道爾頓;小於約15,000道爾頓;小於約10,000道爾頓;小於約1,000道爾頓;或小於約100道爾頓)。在一些情況中,如本文所述使用之多胺可具有約5,000道爾頓至約20,000道爾頓之分子量。在一些情況中,如本文所述使用之多胺可具有約4至約10之pH(例如,約6.5至約9、約7至約9.5或約8至約9)。多胺之pH可經調整具有約6至約10之pH。舉例而言,PAA之pH可經調整具有約9之pH。舉例而言,脫乙醯甲殼質之pH可經調整具有約4之pH。舉例而言,可使用酸(例如,鹽酸、醋酸及/或磷酸)調整pH。

**【0037】** 本文所述含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可包括約0.01重量百分比至約10重量百分比之多胺(例如,PAA及/或幾丁聚醣)。在一些情況中,可使用稀釋聚電解質黏著劑例如作為漱口水,且其可包括約0.01wt%至約1wt%(例如,約0.01wt%至約0.1wt%、約0.2wt%至約0.9wt%、約0.3wt%至約0.8wt%、約0.4wt%至約0.7wt%或約0.5wt%至約0.6wt%)多胺。在一些情況中,可使用濃縮之聚電解質黏著劑例如作為牙膏或凝膠,且其可包括約1wt%至約10wt%(例如,約2wt%至約9wt%、約3wt%至約8wt%、約4wt%至約

7wt%，約或約5wt%至約6wt%)多胺。舉例而言，聚電解質黏著劑可包括約0.75wt% PAA。舉例而言，聚電解質黏著劑可包括約0.01wt%至約5wt%幾丁聚醣。

**【0038】** 任何合適聚磷酸鹽均可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。任何合適聚磷酸鹽均可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。聚磷酸鹽可為環狀聚磷酸鹽、線性聚磷酸鹽、聚磷酸鹽之鉀鹽或聚磷酸鹽之磷酸鈉鹽。聚磷酸鹽可為具有任何含磷酸鹽之化合物或其鹽之聚合物。可如本文所述使用之聚磷酸鹽之實例包括(但不限於)六偏磷酸鹽(例如，SHMP)、三偏磷酸鹽(例如，STP)、三聚磷酸鹽(例如，TPP)、焦磷酸鹽(例如，PPi)、三聚磷酸鉀、焦磷酸鉀及三磷酸腺苷。視情況而言，其他多元酸亦可替代本文所述之聚電解質黏著劑中之聚磷酸鹽或與其一同使用。可用於本文所述之聚電解質黏著劑之多元酸的實例包括(但不限於)引入之諸如與CaCl<sub>2</sub>交聯之海藻酸鹽(例如，海藻酸)、卡拉膠、海藻酸鈉、聚丙烯酸、聚天冬胺酸、植酸鈉、焦磷酸鈣、油酸與甘油之聚合物(諸如可商購自ABITEC之彼等物，參見例如，Caprol<sup>®</sup>系列及Capmul<sup>®</sup>系列)、丙烯酸與烯丙基蔗糖或烯丙基季戊四醇之聚合物(諸如可商購自Lubrizol之彼等物，參見例如Carbopol<sup>®</sup>聚合物)、聚乳酸-共-乙醇酸(PLGA)、聚苯乙烯硫酸酯、聚硫酸乙烯酯、聚麩胺酸及/或聚天冬胺酸。用於形成本文所述之聚電解質黏著劑之聚磷酸鹽可為均聚物、共聚物或其組合。在一些情況中，如本文所述使用之聚磷酸鹽可具有大於小於約50,000道爾頓(例如，小於約20,000道爾頓；小於約5,000道爾頓；小於約3,000道爾頓；小於約2,000道爾頓；或小於約1,000道爾頓)之分子量。在一些情況中，聚磷酸鹽可幫助釉質再礦物化。在一些情況中，聚磷酸鹽或多元酸可幫助聚

電解質黏著劑之增稠及/或乳化。

**【0039】** 本文所述含有至少一種多胺(天然來源之多胺及/或合成多胺)、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可包括約0.05wt%至約25wt%之聚磷酸鹽(例如, STP、SHMP、TPP或PP)。在一些情況中,可使用稀聚電解質黏著劑例如作為漱口水,且其可包括約0.05wt%至約1wt%(例如,約0.1wt%至約0.9wt%、約0.15wt%至約0.8wt%、約0.2wt%至約0.7wt%或約0.25wt%至約0.6wt%)聚磷酸鹽。在一些情況中,可使用濃聚電解質黏著劑例如作為牙膏或凝膠,且其可包括約1wt%至約25wt%(例如,約2wt%至約20wt%、約3wt%至約15wt%、約4wt%至約10wt%或約5wt%至約8wt%)聚磷酸鹽。在一些情況中,聚磷酸鹽之wt%可與多胺之wt%相當。在一些情況中,聚磷酸鹽之wt%可高於多胺之wt%(例如,高2倍(2×)、高3×、高5×、高7×、高10×或高20×)。

**【0040】** 在一些情況中,本文所述含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可包括約5:1至約1:20(例如,約2:1至約1:18、約1:1至約1:15、約1:1至約1:12、約1:1至約1:10、約1:2至約1:9、約1:3至約1:8或約1:5至約1:8)之多胺(例如, PAA及/或幾丁聚醣):聚磷酸鹽(例如, STP、SHMP、TPP及/或PP)之w/w比。舉例而言,本文所述之聚電解質黏著劑可包括約10:1之多胺:聚磷酸鹽w/w比。舉例而言,本文所述之聚電解質黏著劑可包括約5:1之多胺:聚磷酸鹽w/w比。舉例而言,本文所述之聚電解質黏著劑可包括約3:1之多胺:聚磷酸鹽w/w比。舉例而言,本文所述之聚電解質黏著劑可包括約1:1之多胺:聚磷酸鹽w/w比。舉例而言,本文所述之聚電解質黏著劑可包括約1:3之多胺:聚磷酸鹽w/w比。舉例而言,本文所述之聚電解質黏著劑可包括約1:5之

多胺:聚磷酸鹽w/w比。舉例而言，本文所述之聚電解質黏著劑可包括約1:6.7之多胺:聚磷酸鹽w/w比。舉例而言，本文所述之聚電解質黏著劑可包括約1:10之多胺:聚磷酸鹽w/w比。

**【0041】** 任何合適方法均可用於製造如本文所述之聚電解質黏著劑，該黏著劑含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物，且能夠與牙齒、牙齒部分或無機牙科材料相互作用及/或結合。在一些情況中，多胺及/或聚磷酸鹽可獲自商業來源或可由聚合理想單體或不同單體之組合而合成。在一些情況中，標準聚合物合成技術(例如，加成聚合、溶膠凝膠合成、相分離、模板輔助合成、階梯式生長聚合或使用化學或光化學完全合成之共聚合)可用於製造多胺及/或聚磷酸鹽。

**【0042】** 任何合適有益試劑可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。如本文所用，有益試劑可為向牙齒、牙齒部分或無機牙科材料提供理想成效(例如，更潔白之外觀、更自然、堅硬、抗污漬、外觀、味道、口氣清新及/或藥品)之任何試劑。可包括於本文所述之聚電解質黏著劑中的有益試劑之實例包括(但不限於)增白劑、乳白劑、硬度提昇劑、調味劑、抗菌劑及冷卻劑。

**【0043】** 在有益試劑係增白劑之情況中，任何合適增白劑均可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。可用於本文所述之聚電解質黏著劑中的增白劑之實例包括(但不限於)由以下構成之粒子： $\text{TiO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 、氫氧磷灰石(HA)、二氧化矽( $\text{SiO}_2$ )、生物活性玻璃、氧化鋁、氧化鋯、矽酸鈉、矽酸鋯、矽酸鋁及/或磷酸鈣。參見例如，Schilling等人，Photochem. Photobiol. Sci., 9:495-509 (2010)；及美國專利第6,004,567號。微粒增白劑之尺寸範圍可為約5奈米(nm)至約1000 nm (1  $\mu\text{m}$ )尺寸(例如，約10 nm

至約900 nm、約25 nm至約750 nm、約50 nm至約500 nm、約75 nm至約450 nm、約100 nm至約400 nm、約125 nm至約350 nm或約150 nm至約300 nm)。在一些情況中，本文所述含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種增白劑之結合物的聚電解質黏著劑可包括兩種或更多種增白劑(例如，兩種增白劑、三種增白劑、四種增白劑或五種增白劑)。舉例而言，聚電解質黏著劑可包括TiO<sub>2</sub>及HA；TiO<sub>2</sub>及ZnO；TiO<sub>2</sub>及SiO<sub>2</sub>；HA及SiO<sub>2</sub>；或TiO<sub>2</sub>、HA、SiO<sub>2</sub>及ZnO。增白劑可與諸如多胺及/或聚磷酸鹽之聚電解質黏著劑的任何組分共價或非共價連接。本文所述含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種增白劑之結合物的聚電解質黏著劑可包括約百分之0.005至約百分之20增白劑。舉例而言，本文所述之聚電解質黏著劑可包括約百分之0.005至約百分之10 (例如，約0.005%至約9%、約0.005%至約8%、約0.005%至約7%、約0.005%至約6%、約0.005%至約5%、約0.005%至約4%、約0.005%至約3%、約0.005%至約2%、約0.005%至約1%、約0.005%至約0.5%、約0.005%至約0.1%、約0.05%至約10%、約0.5%至約10%、約1%至約10%、約2%至約10%、約5%至約10%、約8%至約10%、約0.05%至約8%、約0.5%至約5%、約1%至約3%、約3%至約5%、約5%至約8%、約0.07%至約1.9%、約0.09%至約1.8%或約1%至約1.5%)TiO<sub>2</sub>。舉例而言，本文所述之聚電解質黏著劑可包括約百分之0.5至約百分之50 (例如，0.5%至約40%、約0.5%至約30%、約0.5%至約20%、約0.5%至約10%、約0.5%至約8%、約0.5%至約5%、約0.5%至約3%、約0.5%至約1%、約2%至約50%、約5%至約50%、約7%至約50%、約10%至約50%、約20%至約50%、約30%至約50%、約40%至約50%、約1%至約40%、約5%至約30%、約10%至約20%、約20%至約30%、約30%至約

40%、約0.7%至約9%、約0.9%至約8%或約1%至約7%) ZnO。舉例而言，本文所述之聚電解質黏著劑可包括約百分之1至約百分之30 (例如，約2%至約19%、約3%至約18%、約4%至約17%、約8%至30%或約5%至約15%) HA。

**【0044】** 在有益試劑係乳白劑之情況中，任何合適乳白劑均可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。如本文所用，「乳白劑」可為改變光線與本文所述之聚電解質黏著劑塗料之間的相互作用之任何試劑。在一些情況中，乳白劑可阻斷或扭曲(例如，折射)通過塗料之光線。在一些實例中，乳白劑可扭曲塗料折射之光線。乳白劑可為光散射劑(例如，礦物質)。可用於本文所述之聚電解質黏著劑中的乳白劑之實例包括(但不限於)磷灰石、氫氧磷灰石、雲母、鈦酸化雲母、氧化鋅、氧化鋯、氧化鋁、三氧化硼、生物活性玻璃、氧化鈉及矽酸鹽(例如，矽酸鈉、矽酸鋁或矽酸鋯)。在一些情況中，包括乳白劑之本文所述的聚電解質黏著劑可用於向牙齒提供給予更自然之外觀的塗料。更自然之外觀可藉由具有不均勻(例如，在白色及灰白色之不同陰影或色調中允許暈染及/或間隔)白色、光澤、光彩、色澤及/或半透明性之牙齒表面而評估。自然外觀(例如，半透明性)可使用例如如別處描述之分光光度計量測(參見例如，Karine Tenorio Landim Barizon之「Relative translucency of ceramic systems for porcelain veneers」)。乳白劑可具有任何合適之粒徑。在一些情況中，乳白劑可具有約40 nm至約500 nm尺寸之粒徑(例如，約45 nm至約450 nm、約50 nm至約400 nm、約55 nm至約375 nm、約60 nm至約350 nm、約65 nm至約325 nm、約70 nm至約315 nm或約75 nm至約300 nm)。

【0045】 在有益試劑提昇硬度之情況中，任何合適硬度提昇劑可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。如本文所用，「硬度提昇劑」可為提昇本文提供之聚電解質黏著劑之硬度以使聚電解質黏著劑塗料更抗機械磨蝕(例如，牙刷、牙籤及較硬食物之刮磨)的任何試劑。可用於本文所述之聚電解質黏著劑之硬度提昇劑的實例包括(但不限於) ZnO、幾丁聚醣、卡拉膠、氧化物(例如，氧化鋯及氧化鋁)、氟磷灰石及矽酸鹽。本文所述含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可包括約百分之0.05至約百分之50之硬度提昇劑。舉例而言，本文所述之聚電解質黏著劑可包括約百分之0.5至約百分之10 (例如，約0.05%至約40%、約0.05%至約30%、約0.05%至約20%、約0.05%至約10%、約0.05%至約8%、約0.05%至約5%、約0.05%至約3%、約0.05%至約1%、約0.5%至約50%、約1%至約50%、約5%至約50%、約7%至約50%、約10%至約50%、約20%至約50%、約30%至約50%、約40%至約50%、約0.5%至約40%、約1%至約30%、約5%至約20%、約7%至約15%、約1%至約10%、約10%至約20%、約20%至約30%、約0.7%至約9%、約0.9%至約8%或約1%至約7%) ZnO。在一些情況中，本文所述之聚電解質黏著劑可包括約2% ZnO。

【0046】 在有益試劑提昇污漬抗性之情況中，任何合適抗污漬劑均可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。如本文所用，「抗污漬劑」可為向牙齒表面提供陰離子電荷及/或疏水性之任何試劑。可用於本文所述之聚電解質黏著劑中的抗污漬劑之實例包括(但不限於)矽烷塗覆之氧化物、丙烯酸與烯丙基蔗糖或烯丙基稀季戊四醇之聚合物(諸如可商購自Lubrizol之彼等物，參見例如，Carbopol<sup>®</sup>聚合物)、硬脂酸鎂、矽烷、矽酸鹽、疏

水性脂質及兩親性脂質。

**【0047】** 在有益試劑係調味劑之情況中，任何合適調味劑均可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。調味劑可為天然調味劑或人工調味劑。可用於本文所述之聚電解質黏著劑中的調味劑之實例包括(但不限於)薄荷(例如，綠薄荷、西洋薄荷及冬青油)、甜味劑(例如，山梨醇、蔗糖素、糖精鈉及木糖醇)、果味(例如，橘皮油)、香料(例如，肉桂油)及香草。

**【0048】** 調味劑可向本文所述之聚電解質黏著劑提供快速及/或持久之味道。舉例而言，包括調味劑之聚電解質黏著劑可在塗覆後提供持續不超過約10分鐘之即時味道散發(例如，持續不超過6分鐘、持續不超過5分鐘、持續不超過4分鐘、持續不超過3分鐘、持續不超過2分鐘或持續不超過1分鐘)。舉例而言，包括調味劑之電解質黏著劑可提供持續至少0.5小時之味道(例如，持續至少1小時、持續至少1.5小時或持續至少2小時)。在一些情況中，包括西洋薄荷油之電解質黏著劑可提供持續約5分鐘之即時散發，且可提供持續約2小時之味道。調味劑可向本文所述之電解質黏著劑提供約0.1%至約5%之味道級。舉例而言，調味劑可向本文所述之電解質黏著劑提供約0.1%之味道級。

**【0049】** 在有益試劑係抗菌劑之情況中，任何合適抗菌劑均可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。可用於本文所述之聚電解質黏著劑中的抗菌劑之實例包括(但不限於)防腐劑(例如，葡萄糖酸洛赫西定、氯化鯨蠟吡啶、三氯沙、碘伏)及抗生素(例如，青黴素、頭孢菌素、ZnO、三氯沙、氯化鋅)。

**【0050】** 在有益試劑係冷卻劑之情況中，任何合適冷卻劑均可用於形成本文所述之聚電解質黏著劑。冷卻劑可為天然冷卻劑或合成冷卻劑。

可用於本文所述之聚電解質黏著劑中的冷卻劑之實例包括(但不限於)薄荷醇、羧醯胺冷卻劑、薄荷醇異構物、對薄荷烷醇及樟腦。

**【0051】** 本文所述含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑亦可含有一或多種其他分子。舉例而言，聚電解質黏著劑亦可與以下組合：治療劑(例如，氟化物及/或抗敏感化合物)、再礦物化粒子(例如，HA、氟化物、鈣、鎂、磷酸鹽、鐵及/或錫離子及其任何鹽形式)、收斂性鹽、氣味中和劑、抗齒齦炎劑、抗斑塊劑、抗牙垢劑或其任何組合。

**【0052】** 本文亦提供用於塗覆本文所述之聚電解質黏著劑的方法，該黏著劑含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物。在一些情況中，可在單一步驟中形成聚電解質黏著劑且隨後直接塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料。

**【0053】** 本文所述含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可在允許有益試劑直接或間接黏附於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料以向牙齒、牙齒部分或無機牙科材料提供理想成效(例如，更潔白之外觀、更自然之外觀、味道、口氣清新及/或藥品)之條件下進行塗覆。舉例而言，本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可在乾性或濕性條件下塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料。在一些情況中，聚電解質黏著劑可在口腔中所發現之典型條件下(例如，存在唾液)進行塗覆。舉例而言，聚電解質黏著劑可在唾液存在下塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料以改變牙齒、牙齒部分或無機牙科材料之外觀。

**【0054】** 任何合適調配物均可用於將本文提供之含有至少一種多

胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑投遞至牙齒、牙齒部分或無機牙科材料。舉例而言，本文提供之聚電解質黏著劑可併入至膏體(例如，牙膏)、漱口液、漱口水、諸如飲品或食物產品之可攝入物質及諸如膠質之口部及/或局部使用物(例如，口香糖)、凝膠(塗覆凝膠)、粉末或霜中。舉例而言，本文提供之聚電解質黏著劑可使用刷子(例如，具有諸如聚丙烯或耐綸之合成纖維的刷子)投遞且刷於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料上。舉例而言，本文提供之聚電解質黏著劑可投遞於塗覆條(例如，蠟或塑膠條，諸如聚乙烯條)上且直接塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料。含有本文提供之聚電解質黏著劑之塗覆條可為可溶性條。含有本文提供之聚電解質黏著劑的塗覆條可包括可拆背襯。舉例而言，本文提供之聚電解質黏著劑可投遞於與哺乳動物之(例如，人類之)牙齒結構相合之牙科盤或口腔膜片中。在一些情況中，包括本文提供之聚電解質黏著劑的調配物可包括一或多種醫藥賦形劑。舉例而言，含有本文所述之聚電解質黏著劑的牙膏可包括一或多種增稠劑(例如，油酸與甘油之聚合物，諸如可商購自 ABITEC 之彼等物(參見例如，Caprol<sup>®</sup>系列及 Capmul<sup>®</sup>系列)、乳化劑、纖維素衍生物、聚乙烯吡咯啉酮、礦物膠或聚乙二醇(PEG)、緩衝劑、界面活性劑、氟化物、調味劑(例如，西洋薄荷、綠薄荷、冬青或泡泡糖)、甜味劑(例如，蔗糖素或木糖醇)、糖醇(例如，山梨醇、丙三醇或木糖醇)、敏感度降低劑(例如，硝酸鉀)、保濕劑(例如，甘油)及/或抗菌劑(例如，ZnO、三氯沙及/或氯化鋅)，該等物質不妨礙向牙齒、牙齒部分或無機牙科材料提供有益特點(例如，美白)。

**【0055】** 本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑之有效量可為向牙齒、牙齒部分或無機牙

科材料提供有益特點而不產生明顯毒性之任何合適量。應理解，該量對於某些調配物(例如，漱口水)而言可能較高。在一些情況中，本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種增白劑之結合物的聚電解質黏著劑可塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料以給予牙齒、牙齒部分或無機牙科材料更潔白之外觀。在一些情況中，本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種乳白劑之結合物的聚電解質黏著劑可塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料以給予牙齒、牙齒部分或無機牙科材料更自然之外觀。

**【0056】** 在一些情況中，本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料以減少及/或防止污漬。舉例而言，本文提供之聚電解質黏著劑可用作針對外來及固有污漬之防護盾，防止新污漬形成於牙齒上。舉例而言，本文提供之聚電解質黏著劑可降低先前發現於牙齒上之任何污漬的密度。

**【0057】** 在一些情況中，本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料以保護及/或修復釉質。

**【0058】** 在一些情況中，本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料以保護基底。舉例而言，本文提供之聚電解質黏著劑可向基底提供保護該基底之透明塗料或具有光澤之塗料。舉例而言，含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種諸如矽酸鈉、矽酸鋁、生物活性玻璃及/或調味劑(例如，薄荷、百里酚、薄荷醇及西洋薄荷油)之有益試劑之結合

物的聚電解質黏著劑可向基底提供保護該基底之透明塗料或具有光澤之塗料。

**【0059】** 在一些情況中，本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料持續一段時間，隨後洗滌、沖洗或移除，從而向牙齒、牙齒部分或無機牙科材料提供理想成效(例如，更潔白之外觀、更自然之外觀、味道、口氣清新及/或藥品)。舉例而言，組態包括如本文所述含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑之牙膏或其他調配物可塗覆於(例如，直接塗覆或形成於)牙齒、牙齒部分或無機牙科材料上，且在不沖洗之情況下與彼牙齒、牙齒部分或無機牙科材料保持接觸持續約30秒至約60分鐘(例如，約30秒至約45分鐘、約30秒至約30分鐘、約30秒至約25分鐘、約1分鐘至約20分鐘、約2分鐘至約15分鐘、約3分鐘至約10分鐘或約4分鐘至約6分鐘)。在一些諸如使用漱口水、漱口水或塗覆凝膠之情況中，可允許聚電解質黏著劑接觸牙齒、牙齒部分或無機牙科材料持續一段時間以使組合物浸透牙齒、牙齒部分或無機牙科材料。

**【0060】** 在一些情況中，可製備牙齒、牙齒部分或無機牙科材料(例如，人類之牙齒)，隨後塗覆本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑。舉例而言，可洗滌、刷洗或拋光(例如，用浮岩拋光)牙齒、牙齒部分或無機牙科材料，隨後塗覆本文提供之聚電解質黏著劑。在一些情況中，可用能夠暴露磷酸鈣結合點之一或多種試劑處理牙齒、牙齒部分或無機牙科材料之表面。舉例而言，待用本文提供之聚電解質黏著劑處理之牙齒、牙齒部分或無機牙科材料可與

EDTA或磷酸接觸以暴露牙齒、牙齒部分或無機牙科材料上存在之磷酸鈣結合點。在磷酸處理之情況中，僅牙釉質可接觸酸以防止或降低軟組織損傷之風險。

**【0061】** 在一些情況中，本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑可在塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料(例如，人類牙齒)之後得以提昇。舉例而言，本文提供之聚電解質黏著劑在塗覆於牙齒、牙齒部分或無機牙科材料之後可藉由使聚電解質黏著劑(例如，基底上之聚電解質黏著劑塗料)與後處理物接觸而得以提昇。在一些情況中，後處理物可為天然來源之後處理物。「天然來源之後處理物」係衍生自自然來源(例如，諸如薄荷之植物；及諸如合成鋰皂石之黏土的泥土)之任何後處理物。後處理物之實例可包括(但不限於) TRIS (例如，18.1M TRIS 及 0.181M TRIS)、 $H_3PO_4$  (例如，3%  $H_3PO_4$  及 0.3%  $H_3PO_4$ )、丙烯酸聚合物(例如，5% 丙烯酸聚合物)、STP (例如，25% STP)、焦磷酸鈣(例如，5% 焦磷酸鈣)、植酸鹽(例如，25% 植酸鹽)、天冬胺酸聚合物(例如，5% 天冬胺酸聚合物)、乙二醇、聚醚(例如，聚乙二醇、聚丙二醇及聚丁二醇)、甜味劑(例如，蔗糖素及木糖醇)、流變劑(例如，合成鋰皂石、膠白、甘油及聚乙二醇)及調味劑(例如，薄荷)。在一些情況中，後處理物可改善聚電解質黏著劑塗料之外觀(例如，藉由提供更潔白之外觀、更自然之外觀及/或具有光澤之外觀)。在一些情況中，後處理物可提昇聚電解質黏著劑塗料之持久性。在一些情況中，後處理物可保護聚電解質黏著劑免於分解。

**【0062】** 在一些情況中，可進行分析以確定本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑或本文

提供之組合物的組分具有針對牙齒、牙齒部分或無機牙科材料之結合親和力。舉例而言，可用HA基質培養待測試之材料，且可在HA結合後比較呈溶液形式之材料的量與初始濃度，從而藉由差值確定結合材料之量。參見例如，Raj等人, *J. Biol. Chem.*, 267:5968-5976 (1992)。在一些情況中，HA結合材料可在溶解HA基質與EDTA後直接量測(Lamkin等人, *J. Dent. Res.*, 75:803-808 (1996))。在一些情況中，可使用以人類唾液預培養從而如別處所述使HA塗有蛋白質之HA基質進行分析(Lamkin等人, *J. Dent. Res.*, 75:803-808 (1996))。在該等情況中，可藉由洗滌移除未結合之唾液蛋白，此係因為其存在可能妨礙聚電解質濃度測定。

**【0063】** 任何合適方法均可用於分析本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之組合物的聚電解質黏著劑針對牙齒、牙齒部分、無機牙科材料或HA基質之親和力。在一些情況中，可分析本文提供之聚電解質黏著劑體外結合至人類牙齒或人類牙齒部分之能力。牙齒或牙齒部分可進行不同程度之清潔，諸如刷洗或用浮岩拋光。隨後可用人類唾液處理牙齒或牙齒部分以形成所要牙科表膜，且在唾液存在及不存在下與本文提供之聚電解質黏著劑一同培養。與牙齒或牙齒部分之結合可藉由量測潔白度而測定。

**【0064】** 任何合適方法均可用於分析本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之組合物的聚電解質黏著劑向牙齒、牙齒部分或無機牙科材料提供理想成效之能力。舉例而言，肉眼檢查技術可用於確定本文提供之聚電解質黏著劑是否可以改變牙齒、牙齒部分或無機牙科材料之外觀。該等肉眼檢查技術可包括使用比色板以如別處所述進行比較(Paravina等人, *J. Esthet. Restor. Dent.*, 19:276-283 (2007))。在一些

情況中，本文提供之聚電解質黏著劑改變牙齒、牙齒部分或無機牙科材料之外觀的能力(例如，使牙齒、牙齒部分或無機牙科材料看上去更潔白)可使用反射率分光光度計量測。在該等情況中，牙齒、牙齒部分或無機牙科材料可使用白色光源照射，且根據以不同波長由反射率分光光度計吸收之光線的量進行分析(比色法)。隨後可在自該光源過濾UV光之情況下重複此等量測。包括及不包括UV光所獲得之反射率值中的差值係牙齒表面之UV螢光光譜(參見例如，Park等人，*Dental Materials*, 23:731-735 (2007))。

**【0065】** 可自牙齒、牙齒部分或無機牙科材料移除本文提供之含有至少一種多胺、聚磷酸鹽及一或多種有益試劑之結合物的聚電解質黏著劑。舉例而言，聚電解質黏著劑可藉由使黏附之聚電解質黏著劑與移除劑接觸而自基底移除。移除劑可為天然或合成的。在一些情況中，移除劑可具有高離子強度。可用於自牙齒、牙齒部分或無機牙科材料移除聚電解質黏著劑塗料之試劑的實例包括(但不限於) **TRIS**、磷酸、聚磷酸鹽及 **NaCl**。在一些情況中，移除劑可包括於組合物中(例如，移除組合物)。舉例而言，移除組合物可包括一或多種移除劑(例如，**TRIS**、磷酸及/或 **NaCl**)及一或多種額外組分。可包括於移除組合物中之額外組分的實例包括(但不限於)緩衝劑(例如，**MES**緩衝劑)、酸(例如，鹽酸)、聚磷酸鹽及螯合劑(例如，**EDTA**)。舉例而言，移除組合物可包括**TRIS**、**MES**、磷酸、**1M HCl**、聚磷酸鹽、**NaCl**及**EDTA**。在一些情況中，基底可在塗覆本文所述之聚電解質黏著劑之前具有污漬(例如，外來污漬)，且移除聚電解質黏著劑可自基底有效移除污漬。在一些情況中，基底可在塗覆本文所述之聚電解質黏著劑之前具有污漬(例如，外來污漬)，且移除聚電解質黏

著劑可有效改善基底之外觀。

【0066】本發明將進一步描述於以下實例中，其不限制描述於申請專利範圍中之本發明的範疇。

## 實例

### 實例1：製備聚電解質黏著劑

#### 多胺及聚磷酸鹽組合

【0067】製備含有各種多胺及各種聚磷酸鹽之聚電解質黏著劑且將其塗覆於牙齒。

【0068】將兩顆牙齒置於10 mL磷酸鹽緩衝溶液(PBS)或水中持續5至10分鐘。添加1 mL 1% TiO<sub>2</sub> (aq.)且混合5至10分鐘。添加10 mL具有所要pH之5%多胺及10 ml 5wt%聚磷酸鹽溶液，且混合30分鐘。自溶液中取出牙齒，且用水沖洗，隨後使用Oral-B<sup>®</sup>電動旋轉牙刷於水中刷洗10秒以測試塗料之抗性。

【0069】塗覆前、塗覆後及刷洗後含有多胺PAA及各種聚磷酸鹽之聚電解質黏著劑塗料顯示於圖1C中。塗覆前、塗覆後及刷洗後含有多胺PAA及各種聚合物之聚電解質黏著劑塗料顯示於圖1D中。塗覆前、塗覆後及刷洗後含有多胺PAA-D及各種聚磷酸鹽之聚電解質黏著劑塗料顯示於圖1E中。塗覆前、塗覆後及刷洗後含有多胺PAS及各種聚磷酸鹽之聚電解質黏著劑塗料顯示於圖1F中。塗覆前、塗覆後及刷洗後含有多胺PASA及各種聚磷酸鹽之聚電解質黏著劑塗料顯示於圖1G中。

#### 多胺:聚磷酸鹽比及pH

【0070】製備含有各種多胺:聚磷酸鹽比之聚電解質黏著劑，且以不同pH將其塗覆於牙齒。

【0071】塗覆前、塗覆後及刷洗後以不同pH含有PAA:STP比之聚電解質黏著劑塗料顯示於圖2A中。塗覆前、塗覆後及刷洗後以不同pH含有多胺PAA-D:STP之聚電解質黏著劑塗料顯示於圖2B中。

### 三磷酸腺苷(ATP)

【0072】製備含有ATP之聚電解質黏著劑且將其塗覆於牙齒。例示性調配物顯示於下表中。

材料(單位係mL)	
H <sub>2</sub> O	4.05 mL
PAA (Ph <sup>-9</sup> )	0.75 mL
1% TiO <sub>2</sub>	0.2 mL
10% ATP	5 mL

【0073】將兩顆牙齒置於10 mL磷酸鹽緩衝溶液(PBS)或水中持續5至10分鐘。添加1 mL 1% TiO<sub>2</sub> (aq.)且混合5至10分鐘。添加10 mL具有所要pH之5%多胺及10 ml 5wt%聚磷酸鹽溶液，且混合30分鐘。自溶液中取出牙齒，培養於人工唾液中持續1小時，且用牙刷刷洗30秒。

【0074】塗覆前、塗覆後接觸唾液後及刷洗後含有ATP之聚電解質黏著劑塗料顯示於圖3中。

### 自然胺來源

【0075】製備含有包括衍生自自然來源之胺的多胺之聚電解質黏著劑且將其塗覆於牙齒。

【0076】含有包括衍生自自然來源之胺的多胺之聚電解質黏著劑塗料及其調配物顯示於圖4C中。塗覆前、塗覆後接觸唾液後、接觸污漬後及刷洗後含有包括衍生自自然來源之胺的多胺之聚電解質黏著劑塗料顯示於圖4D中。

### 實例2：具有增白劑之聚電解質黏著劑

【0077】針對塗覆於牙齒時具有各種外觀及特性(例如，透明、半透

明、有光澤、閃亮、不透明等)測試含有各種增白劑之聚電解質黏著劑。

**【0078】** 使用合適刷子將含有增白劑之聚電解質黏著劑塗料塗覆於牙齒。檢測之增白劑包括氧化鋁(50 nm)、二氧化矽( $\text{SiO}_2$ , 20-30 nm)、氧化鋅( $\text{ZnO}$ )、氧化鈣( $\text{CaO}$ )、非晶二氧化矽( $\text{SiO}_2$ )、碳酸鋯、羥基磷灰石(HA, 20 nm針狀)、官能化 $\text{TiO}_2$ 、Kronos Anatase-食品級(標準)、塗覆有矽烷KH550之 $\text{SiO}_2$  (20-30 nm)、塗覆有矽烷KH550之 $\text{ZnO}$  (20-30 nm)、來自SIGMA之HA奈米粉末。

**【0079】** 具有增白劑之聚電解質黏著劑製劑顯示於圖5A中。刷洗之前及之後塗覆於牙齒之具有增白劑之聚電解質黏著劑製劑顯示於圖5B中。此等結果顯示，不同增白劑可與 $\text{TiO}_2$ 組合使用以生成自然外觀。

### 實例3：具有硬度提昇劑之聚電解質黏著劑

**【0080】** 針對塗覆於牙齒時對機械磨蝕(例如，牙刷、牙籤、諸如薯條及杏仁之堅硬食物)及污漬具有抗性測試含有 $\text{ZnO}$ 之聚電解質黏著劑。

**【0081】** 將含有 $\text{ZnO}$ 之聚電解質黏著劑塗覆於牙齒。例示性聚電解質黏著劑包括約1:1 PAA:STP比、最佳化pH、0.02%  $\text{TiO}_2$ 及0.2%  $\text{ZnO}$ 。給予聚電解質黏著劑5至30分鐘反應時間。將牙齒培養於人工唾液中持續2小時，且在 $37^\circ\text{C}$ 下於6%咖啡溶液中染色持續10分鐘。

**【0082】** 具有反應時間之聚電解質黏著劑製劑顯示於圖6A中。塗覆前、塗覆後、接觸唾液及刮劃後、接觸污漬後及刷洗後含有 $\text{ZnO}$ 之聚電解質黏著劑顯示於圖6B中。

### 實例4：具有調味劑之聚電解質黏著劑

**【0083】** 將含有調味劑(例如，西洋薄荷油)之聚電解質黏著劑塗覆於牙齒。例示性聚電解質黏著劑包括約1:6.67 PAA:STP比、9之pH、

0.02% TiO<sub>2</sub>及0.1至5wt%西洋薄荷油。使用塗覆器塗覆聚電解質黏著劑。

### 實例5：塗覆聚電解質黏著劑

【0084】 均勻及易於塗覆之塗料需要一種塗覆器，其與聚電解質黏著劑塗料相容，且允許塗覆方便性、均勻塗覆、無持久刷印或其他操作痕跡及持久塗料。

#### 塗覆刷

【0085】 各種塗覆刷用於將聚電解質黏著劑塗覆於牙齒表面上以形成塗料。如實例1中所述，藉由正確使用pH、聚磷酸鹽類型、胺類型、胺:磷酸鹽比、反應物濃度及反應時間而嚴格控制調配物反應。

【0086】 使用有角度化妝眼線刷及眼影刷及合成聚乙烯刷塗覆於牙齒之聚電解質黏著劑塗料顯示於圖7中。此等結果顯示，小型、密集化妝刷可以均勻方式將聚電解質黏著劑塗覆於牙齒。

#### 塗覆條

【0087】 塗覆條用於將聚電解質黏著劑塗覆於牙齒表面上以形成塗料。

【0088】 如下表中所示製備聚電解質黏著劑。

反應時間	dH <sub>2</sub> O	1% TiO <sub>2</sub>	10% PAA-PS	10% STP
10-30分鐘	4.05 mL	0.2 mL	0.75 mL	5 mL

【0089】 製劑調整為pH 9，具有1:6.67之PAA:STP比，且具有0.75%之PAA C<sub>f</sub>。測試製劑之三種條件(機械混合、不混合(對照組)及不混合且用1X PBS替代水)。

【0090】 使聚電解質黏著劑擴散於可溶性食品級條帶上且使其乾燥。隨後將條帶塗覆於牙齒表面且使其溶解，將黏著劑轉移至牙齒。

【0091】 塗覆前、塗覆後及刷洗後使用條帶塗覆於牙齒之聚電解質

黏著劑塗料顯示於圖8中。

### 塗覆粉末

**【0092】** 藉由各種乾燥製程(例如，凍乾)製造粉末聚電解質黏著劑，且其用於塗覆至牙齒表面以形成塗料。

**【0093】** 粉末聚電解質黏著劑製劑顯示於圖9A中。塗覆前、塗覆後、接觸唾液後、接觸污漬後及刷洗後塗覆於牙齒之粉末聚電解質黏著劑塗料顯示於圖9B中。

### 實例6：聚電解質黏著劑後處理

**【0094】** 將具有1:6.67之PAA:STP比的聚電解質黏著劑塗料塗覆於牙齒，刷洗牙齒且檢測各種後處理條件。後處理試劑包括植酸鈉、聚丙烯酸、聚天冬胺酸鈉、TRIS鹼、磷酸、三偏磷酸鈉及焦磷酸鈣。後處理之結果顯示於圖10中。

### 實例7：移除聚電解質黏著劑

**【0095】** 檢測用於自牙齒移除聚電解質黏著劑塗料之方法。方法包括使用浮岩(例如，臨床浮岩、粗浮岩及細浮岩)之物理磨蝕及牙科刮治及包括以下之試劑：2-(N-嗎啉基)乙烷磺酸 (MES)膏 - 11.79 M (pH ~3-4)、三(羥甲基)胺基甲烷(TRIS)膏 - 18.01 M (pH ~12-13)、NaCl膏 - 35.95 M (pH ~7-8)、碳酸鈉( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ )膏 - 28.5 M (pH ~11-12)、稀釋 $\text{Na}_2\text{CO}_3$  - 0.95 M (pH ~11-12)、3%磷酸(pH ~2-3)、30%磷酸(pH ~0-1)、0.1M HCl (pH ~2-3)及1M HCl (pH ~0-1)。

**【0096】** 牙塊塗覆有聚電解質黏著劑，其含有1:1 PAA:STP比、最佳化pH、0.02%至0.5%  $\text{TiO}_2$ 之組合及其他乳白劑。塗覆後，在室溫下將牙塊培養於水中持續1小時。自水中移除牙塊且用旋轉牙刷在水中刷洗10

秒。將牙塊浸入各種試劑中持續30秒，接著用手工磨光工具在水中刷洗30秒或在水中刮治30秒。

**【0097】** 使塗覆有聚電解質黏著劑之牙齒接觸移除條件之結果顯示於圖11A及圖11B中。

#### **實例8：透明具有光澤之塗料**

**【0098】** 使用合適刷子將含有乳白劑之聚電解質黏著劑塗料塗覆於牙齒。檢測之乳白劑包括生物活性玻璃、矽酸鋁及混合氧化物。潮濕時，生物活性玻璃及矽酸鋁呈透明、具有光澤之塗料，且乾燥時，呈白色。此等結果顯示，當塗覆時且在濕性條件下，如圖12中所示，在基底上形成透明、具有光澤之塗料。

#### **實例9：後處理**

**【0099】** 將具有1:1之PAA:TPP比的聚電解質黏著劑塗料塗覆於牙齒，在乾燥1分鐘後應用各種後處理條件，且進行檢測。後處理試劑包括聚醚、合成鋰皂石及薄荷味。此後處理之結果顯示於圖13中。

#### **其他實施例**

**【0100】** 應理解，儘管本發明已結合其具體實施方式進行描述，但前述實施方式意欲闡釋而非限制本發明之範疇，該範疇由所附申請專利範圍之範疇所界定。其他態樣、優點及修改處於以下申請專利範圍之範疇內。



201918244

**【發明摘要】****【中文發明名稱】**

聚電解質的牙科塗料

**【英文發明名稱】**

POLYELECTROLYTE DENTAL COATINGS

**【中文】**

本文係關於向基底(例如，牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮、指甲、毛髮、嘴唇及睫毛)提供理想成效(例如，外觀、味道、口氣清新及/或藥品)中所涉及之材料及方法。舉例而言，本文提供用於使牙齒、牙齒部分或無機牙科材料與聚電解質黏著劑接觸以向該基底提供外觀變化(例如，更潔白之外觀、更自然之外觀及/或有光澤之外觀)的材料及方法，該黏著劑含有多胺(例如，天然來源之多胺及/或合成多胺)、聚磷酸鹽及一或多種增白劑之結合物。

**【英文】**

This document relates to materials and methods involved in providing a substrate (e.g., tooth, tooth component, inorganic dental material, skin, hair, nails, hair, lips, and eyelashes) with a desired benefit (e.g., appearance, flavor, breath freshening, and/or medicament). For example, materials and methods for contacting a tooth, tooth component, or inorganic dental material with a polyelectrolyte adhesive containing a conjugate of a polyamine (e.g., a naturally-derived polyamine and/or a synthetic polyamine), a polyphosphate, and one or more whitening agents to provide the substrate with a change in appearance (e.g., a whiter appearance, a more natural appearance, and/or a glossy appearance) are provided.

【指定代表圖】

圖1C

【代表圖之符號簡單說明】

無

## 【發明申請專利範圍】

### 【第1項】

一種聚電解質黏著劑，其包含多胺、聚磷酸鹽及增白劑之結合物，且能夠在濕性條件下與基底相互作用或黏合，且其中當該聚電解質黏著劑黏附於該基底時，該聚電解質黏著劑之該增白劑向該基底提供潔白外觀。

### 【第2項】

如請求項1之聚電解質黏著劑，其中該基底係選自由以下組成之群：牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮及指甲。

### 【第3項】

如請求項1或請求項2之聚電解質黏著劑，其中該基底包含牙齒，且其中該牙齒係人類牙齒。

### 【第4項】

如請求項1至3中任一項之聚電解質黏著劑，其中該多胺包含合成多胺，且其中該合成多胺係選自由以下組成之群：聚丙烯胺(PAA)、聚二丙烯胺(DAA)、聚兩性電解質、聚離胺酸、聚乙烯胺、聚乙亞胺(PEI)、肝素、聚甲基丙烯酸鹽及聚組胺酸。

### 【第5項】

如請求項1至3中任一項之聚電解質黏著劑，其中該多胺包含天然來源之多胺，且其中該天然來源之多胺係選自由以下組成之群：脫乙醯甲殼質、基於大豆之多胺、精胺、亞精胺、腐胺、提取自小麥胚芽之多胺及提取自大米之多胺。

### 【第6項】

如請求項1至5中任一項之聚電解質黏著劑，其中該聚磷酸鹽係選自

由以下組成之群：六偏磷酸鈉、三偏磷酸鈉、三聚磷酸鈉、焦磷酸鈉、三聚磷酸鉀、焦磷酸鉀及三磷酸腺苷。

**【第7項】**

如請求項1至6中任一項之聚電解質黏著劑，其中該聚電解質黏著劑包含約20:1至約1:20之該多胺:該聚磷酸鹽的w/w比。

**【第8項】**

如請求項7之聚電解質黏著劑，其中該多胺:該聚磷酸鹽之該w/w比係約10:1、約5:1、約3:1、約1:1、約1:3、約1:5、約1:6.7或約1:10。

**【第9項】**

如請求項1至8中任一項之聚電解質黏著劑，其中該增白劑包含以下之至少一者：二氧化鈦、氫氧磷灰石、二氧化矽、氧化鋅、氧化鋁、氧化鋇、矽酸鈉及生物活性玻璃。

**【第10項】**

如請求項9之聚電解質黏著劑，其中該增白劑包含 $\text{TiO}_2$ ，且其中該 $\text{TiO}_2$ 佔該聚電解質黏著劑之約0.005%至約10%。

**【第11項】**

如請求項1至10中任一項之聚電解質黏著劑，其進一步包含選自由以下組成之群的硬度提昇劑：幾丁聚醣、氧化鋅、氧化鋇、氧化鋁及矽酸鹽。

**【第12項】**

如請求項11之聚電解質黏著劑，其中該硬度提昇劑包含 $\text{ZnO}$ ，且其中該 $\text{ZnO}$ 佔該聚電解質黏著劑之約0.05%至約50%。

**【第13項】**

如請求項1至12中任一項之聚電解質黏著劑，其進一步包含選自由以下組成之群的乳白劑：磷灰石、氫氧磷灰石、雲母、鈦酸化雲母、氧化鋅、氧化鋯、氧化鋁、三氧化硼、生物活性玻璃、氧化鈉、矽酸鈉、矽酸鋁及矽酸鋯。

**【第14項】**

如請求項13之聚電解質黏著劑，其中該乳白劑係生物活性玻璃矽酸鈉或矽酸鋁，且其中該聚電解質黏著劑在濕性條件中形成透明塗料。

**【第15項】**

如請求項13之聚電解質黏著劑，其中該乳白劑係生物活性玻璃矽酸鈉或矽酸鋁，且其中該聚電解質黏著劑在乾性條件中形成白色塗料。

**【第16項】**

如請求項1至15中任一項之聚電解質黏著劑，其進一步包含抗污漬劑，其中該抗污漬劑係選自由以下組成之群：矽烷塗覆之氧化物、Carbopol<sup>®</sup>聚合物、硬脂酸鎂、矽烷、矽酸鹽、疏水性脂質及兩親性脂質。

**【第17項】**

如請求項1至16中任一項之聚電解質黏著劑，其進一步包含調味劑，其中該調味劑係選自由以下組成之群：綠薄荷油、西洋薄荷油、冬青油、香草、橘皮油及肉桂油。

**【第18項】**

如請求項1至17中任一項之聚電解質黏著劑，其進一步包含冷卻劑，其中該冷卻劑係薄荷醇或羧醯胺冷卻劑。

**【第19項】**

如請求項1至15或17至18中任一項之聚電解質黏著劑，其中該濕性條件包含唾液。

**【第20項】**

一種用於改變基底之外觀的方法，該方法包含將多胺、聚磷酸鹽及有益試劑塗覆於該基底，從而在該基底之表面上形成聚電解質黏著劑，其中該聚電解質黏著劑之該有益試劑改變該基底之該外觀。

**【第21項】**

如請求項20之方法，其中該基底係選自由以下組成之群：牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮及指甲。

**【第22項】**

如請求項21之方法，其中該基底包含牙齒，且其中該牙齒係人類牙齒。

**【第23項】**

如請求項20至22中任一項之方法，其中該有益試劑係增白劑，且其中該方法包含改變該基底之該外觀以使該基底看上去更潔白。

**【第24項】**

如請求項23之方法，其中該增白劑包含以下之至少一者：二氧化鈦、氫氧磷灰石、二氧化矽、氧化鋅、氧化鋁、氧化鋇、矽酸鈉、矽酸鋁及矽酸鋇及生物活性玻璃。

**【第25項】**

如請求項24之方法，其中該增白劑包含 $\text{TiO}_2$ ，且其中該 $\text{TiO}_2$ 佔該聚電解質黏著劑之約0.005%至約10%。

**【第26項】**

如請求項20至25中任一項之方法，其中該有益試劑係乳白劑，且其中該方法包含改變該基底之該外觀以使該基底看上去更自然。

**【第27項】**

如請求項26之方法，其中該乳白劑係選自由以下組成之群：磷灰石、氫氧磷灰石、雲母、鈦酸化雲母、氧化鋅、氧化鋇、氧化鋁、三氧化硼、生物活性玻璃、氧化鈉、矽酸鈉、矽酸鋁及矽酸鋇。

**【第28項】**

如請求項20至27中任一項之方法，其中該多胺包含合成多胺，且其中該合成多胺係選自由以下組成之群：聚丙烯胺(PAA)、聚二丙烯胺(DAA)、聚兩性電解質、聚離胺酸、聚乙烯胺、聚乙亞胺(PEI)、肝素、聚甲基丙烯酸鹽及聚組胺酸。

**【第29項】**

如請求項20至27中任一項之方法，其中該多胺包含天然來源之多胺，且其中該天然來源之多胺係選自由以下組成之群：脫乙醯甲殼質、基於大豆之多胺、精胺、亞精胺、腐胺、提取自小麥胚芽之多胺及提取自大米之多胺。

**【第30項】**

如請求項20至29中任一項之方法，其中該聚磷酸鹽係選自由以下組成之群：六偏磷酸鈉、三偏磷酸鈉、三聚磷酸鈉、焦磷酸鈉、三聚磷酸鉀、焦磷酸鉀及三磷酸腺苷。

**【第31項】**

如請求項20至30中任一項之方法，其中該聚電解質黏著劑包含約20:1至約1:20之該多胺:該聚磷酸鹽的w/w比。

**【第32項】**

如請求項31之方法，其中該多胺:該聚磷酸鹽之該 w/w 比係約10:1、約5:1、約3:1、約1:1、約1:3、約1:5、約1:6.7或約1:10。

**【第33項】**

如請求項20至32中任一項之方法，其中該塗覆步驟係在濕性條件下進行。

**【第34項】**

如請求項33之方法，其中該濕性條件包含唾液之存在。

**【第35項】**

一種塗覆條，其包含多胺、聚磷酸鹽及有益試劑，其中在將該塗覆條塗覆於該基底時，該多胺、該聚磷酸鹽及該增白劑在基底表面上形成聚電解質黏著劑，其中該聚電解質黏著劑之該有益試劑改變該基底之外觀，且其中該聚電解質黏著劑可在濕性條件下黏附於該基底。

**【第36項】**

如請求項35之塗覆條，其中該基底係選自由以下組成之群：牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮及指甲。

**【第37項】**

如請求項35至36中任一項之塗覆條，其中該基底包含牙齒，且其中該牙齒係人類牙齒。

**【第38項】**

如請求項35至37中任一項之塗覆條，其中該多胺包含合成多胺，且其中該合成多胺係選自由以下組成之群：聚丙烯胺(PAA)、聚二丙烯胺(DAA)、聚兩性電解質、聚離胺酸、聚乙烯胺、聚乙亞胺(PEI)、肝素、

聚甲基丙烯酸鹽及聚組胺酸。

**【第39項】**

如請求項35至37中任一項之塗覆條，其中該多胺包含天然來源之多胺，且其中該天然來源之多胺係選自由以下組成之群：脫乙醯甲殼質、基於大豆之多胺、精胺、亞精胺、腐胺、提取自小麥胚芽之多胺及提取自大米之多胺。

**【第40項】**

如請求項35至39中任一項之塗覆條，其中該聚磷酸鹽係選自由以下組成之群：六偏磷酸鈉、三偏磷酸鈉、三聚磷酸鈉、焦磷酸鈉、三聚磷酸鉀、焦磷酸鉀及三磷酸腺苷。

**【第41項】**

如請求項35至40中任一項之塗覆條，其中該濕性條件包含唾液之存在。

**【第42項】**

如請求項35至41中任一項之塗覆條，其中該塗覆條係可溶性條帶。

**【第43項】**

如請求項35至42中任一項之塗覆條，其中該塗覆條包含可拆背襯。

**【第44項】**

一種粉末，其包含多胺、聚磷酸鹽及有益試劑，其中在將該粉末塗覆於該基底時，該多胺、該聚磷酸鹽及該有益試劑在基底表面上形成聚電解質黏著劑，其中該聚電解質黏著劑之該有益試劑改變該基底之外觀，且其中該聚電解質黏著劑可在濕性條件下黏附於該基底。

**【第45項】**

如請求項44之粉末，其中該基底係選自由以下組成之群：牙齒、牙齒部分、無機牙科材料、皮膚、毛髮及指甲。

**【第46項】**

如請求項44至45中任一項之粉末，其中該基底包含牙齒，且其中該牙齒係人類牙齒。

**【第47項】**

如請求項44至46中任一項之粉末，其中該多胺包含合成多胺，且其中該合成多胺係選自由以下組成之群：聚丙烯胺(PAA)、聚二丙烯胺(DAA)、聚兩性電解質、聚離胺酸、聚乙烯胺、聚乙亞胺(PEI)、肝素、聚甲基丙烯酸鹽及聚組胺酸。

**【第48項】**

如請求項44至46中任一項之粉末，其中該多胺包含天然來源之多胺，且其中該天然來源之多胺係選自由以下組成之群：脫乙醯甲殼質、基於大豆之多胺、精胺、亞精胺、腐胺、提取自小麥胚芽之多胺及提取自大米之多胺。

**【第49項】**

如請求項44至48中任一項之粉末，其中該聚磷酸鹽係選自由以下組成之群：六偏磷酸鈉、三偏磷酸鈉、三聚磷酸鈉、焦磷酸鈉、三聚磷酸鉀、焦磷酸鉀及三磷酸腺苷。

**【第50項】**

如請求項44至49中任一項之粉末，其中該濕性條件包含唾液之存在。

**【第51項】**

如請求項44至50中任一項之粉末，其中將該粉末復原成溶液，隨後塗覆於該基底。

**【第52項】**

一種用於自基底移除聚電解質黏著劑之方法，其中該聚電解質黏著劑包含多胺、聚磷酸鹽及有益試劑，該方法包含使該聚電解質黏著劑與移除劑接觸。

**【第53項】**

如請求項52之方法，其中該移除劑係選自由以下組成之群：TRIS、磷酸、1M HCl、聚磷酸鹽、EDTA及NaCl。

**【第54項】**

如請求項52至53中任一項之方法，其中該移除劑係天然移除劑。

**【第55項】**

如請求項52至54中任一項之方法，其中該基底包含污漬，且其中移除該聚電解質黏著劑進一步包含自該基底移除污漬。

**【第56項】**

一種用於增強基底上的聚電解質黏著劑塗料之方法，該方法包含將後處理物塗覆於該聚電解質黏著劑。

**【第57項】**

如請求項56之方法，其中該後處理物為聚醚，且其中該聚醚係選自由以下組成之群：聚乙二醇、聚丙二醇及聚丁二醇。

**【第58項】**

如請求項57之方法，其中該聚醚具有約50道爾頓至10000道爾頓之分子量。

**【第59項】**

如請求項56之方法，其中該後處理物係甜味劑，且其中該甜味劑係選自由以下組成之群：蔗糖素及木糖醇。

**【第60項】**

如請求項56之方法，其中該後處理物係調味劑，且其中該調味劑係選自由以下組成之群：薄荷、百里酚、薄荷醇及西洋薄荷油。

**【第61項】**

如請求項56之方法，其中該後處理物係流變劑，且其中該流變劑係選自由以下組成之群：合成鋰皂石、膠白、甘油及聚二醇。

**【第62項】**

如請求項56至61中任一項之方法，其中該後處理物改善該聚電解質黏著劑塗料之外觀。

**【第63項】**

如請求項56至61中任一項之方法，其中該後處理物提高該聚電解質黏著劑塗料之耐久性。

**【第64項】**

如請求項56至61中任一項之方法，其中該後處理物使該聚電解質黏著劑塗料免於分解。

































