

平成22年3月31日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2006～2009

課題番号：18592120

研究課題名（和文）

新規球状シリカを添加した抗ウ蝕性高強度を有するガラスアイオノマーセメントの開発

研究課題名（英文）Effect of Adding Spherical Silica Filler on Mechanical Properties and Anti-cariou Activity of Glass-ionomer Cement

研究代表者

入江 正郎（IRIE MASAO）

岡山大学・大学院医歯薬学総合研究科・助教

研究者番号：90105594

研究成果の概要（和文）：ガラスアイオノマーセメントをコンポジットレジンに少しでも近づけるべく、物性の改善や歯質接着強さの向上を目指して、ナノテクノロジーを導入した粒径50～500 nmの球状シリカフィラーの配合を考えた。その結果、この球状シリカを配合すれば同じ操作性ながらセメント泥の流動性が増すため粉液比は増す。その結果、操作性が向上するため高粉液比が可能となり、その結果、物性や歯質接着強さは向上した。

研究成果の概要（英文）：This study was investigated the effects of spherical silica fillers on the mechanical properties and anti-cariou activity of glass-ionomer cements (GIC). The original GIC and a preparation containing 20wt% spherical silica filler were also examined with regard to their fracture surface and fluoride release. The fillers increased the compressive strength remarkably: up to 17% in the case of silanized spherical fillers (SF). The SF increased the flexural strength by up to 17%. The addition of SF improved the workability and mechanical properties of GIC. When compared with the control (original GIC). The addition of SF significantly improved immediate marginal gap in the tooth cavities and setting shrinkage in Teflon mold up to 63% and 66% respectively. However, fluoride release was significantly reduced. And then, this research showed that addition of 5wt% SF increased the shear bond strength to human enamel and dentin.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	1,400,000	0	1,400,000
2007年度	700,000	210,000	910,000
2008年度	700,000	210,000	910,000
2009年度	600,000	180,000	780,000
年度			
総計	3,400,000	600,000	4,000,000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学・補綴系歯学

キーワード：生体材料，ナノ材料，複合材料・物性，歯学，医療・福祉

1. 研究開始当初の背景

ウ蝕予防の進歩や歯質修復材料の進歩に伴い FDIにより Minimal Intervention という概念が提唱された。われわれは、この概念に沿った修復材としてガラスアイオノマーセメントが、最適であると思っている。その理由として、(1) 処理材を併用しなくてもエナメル質、象牙質および軽度のウ蝕象牙質に対する良好な接着性、(2) 長期のフッ素徐放性、(3) 歯髄に対して安全な点、(4) 歯質に最も類似の熱膨張係数等が考えられる。しかし、コンポジットレジンと比較すると物性や歯質接着強さでは劣る。また、現有のガラスアイオノマーセメントのフッ素徐放量では満足な臨床結果が得られてない。そこで、コンポジットレジンに少しでも近づけるべく、物性の改善や歯質接着強さの向上を目指して、研究代表者の発案でナノテクノロジーを導入した粒径0.2~0.5 μ mの球状シリカフィラーの配合を考えた。

2. 研究の目的

ナノテクノロジーを導入した粒径0.2~0.5 μ mの球状シリカフィラーの配合により物性、歯質接着性および抗ウ蝕性に優れたガラスアイオノマーセメントの開発を計画した。

3. 研究の方法

(1) 機械的強さ

材料：

- ・試作光硬化型ガラスアイオノマーセメント、シリカフィラー（メーカーに依頼）
- ・市販充填用ガラスアイオノマーセメント（コントロールとして使用）
- ・シリカのシラン処理

・シリカ配合のガラスアイオノマーセメントの準備

方法：

- ・曲げ強さ、曲げ弾性率、破壊エネルギーの測定
- ・歯質接着強さの測定
- ・マトリクス部の硬さ測定

(2) 抗ウ蝕性

誘導された石灰化物の分析

誘導された石灰化物の形態を既存の走査型電子顕微鏡（日本電子、JSM-T 100型）および原子間力顕微鏡（日立、X-650型）を用いて観察する。さらに誘導された石灰化物の同定を行うために、100 μ m径のコリメーターを有する既存の微小領域X線回折装置（理学電気、RINT2000）を用いて線源銅 K_{α} 線、管電圧100kV、管電流40mAで回折角40-15°の範囲での分析。

4. 研究成果

(1) シリカフィラー添加量が粉液比におよぼす影響：

ガラスアイオノマーセメントにシラン処理有無の球状フィラーを5、10および20 wt%添加することにより、コントロールのRMGICと比較して稠度が増し、その結果粉液比が増大しても適切なセメントの操作性が得られることが示された。すなわち、コントロールのガラスアイオノマーセメントCは粉液比=3.6までしか練和できない（この粉液比をFLCEMと略記）が、球状フィラー添加によっていずれの条件でも粉液比=4.8までの練和が可能となった。このことは、不定形のアルミノシリケート粒子間に球状シリカフィラーが入ることで発現したスベリ効果と考えている。

(2) 粉液比増大が機械的強さにおよぼす影響：

ガラスアイオノマーセメントに表面処理

した球状シリカフィラーを10 wt%添加することにより、コントロールのグラスアイオノマーセメントと比較して、圧縮強さ、引張り強さおよび曲げ強さが10~20%増加した。フィラー表面処理に用いたシランの酸性水溶液中での安定性や機能性をX線光電子分光法(XPS)および曲げ強さ測定後の破断面のSEM像から解析した結果、シラン処理したフィラーがマトリックス組織と良好に結合していることが判明し、球状フィラー添加による粉液比の増大に影響していることが考えられる。

(3) 窩洞辺縁部の間隙：無処理および表面処理した球状フィラーをグラスアイオノマーセメントCに5, 10 および20wt%添加することにより、硬化直後の歯質およびテフロンモールドの両間隙がFLCEMやコントロールのグラスアイオノマーセメントと比較して有意($r=0.95$, $n=8$, $p<0.001$)に小さくなった。これは粉液比の増大と硬化収縮による影響と考えている。さらに、両間隙ともに直後の値と比較して24時間後の値の方が有意に小さく、吸水膨張による影響と思われる。

(4) 歯質接着強さ：エナメル質および象牙質に対する接着強さは、直後値(6-8 MPa)と比較して24時間値(10-24 MPa)の方が有意に大きな値を示したが、硬化反応の進行による物性の向上と考えられる。なお、球状フィラーの表面処理の有無による影響は有意差がみられなかった。

(5) 吸水率およびフッ素徐放性：吸水率はコントロールのRMGICと比較して有意に低下しており、これは粉液比の増大と球状フィラーによる影響である。一方、フッ素徐放性はコントロールのRMGICと比較して約40%少なかったが、フッ素を含有しないシリカ球状フィラーが添加されたためである。

(6) まとめ

グラスアイオノマーセメントに表面処理したシリカ球状フィラーを添加することによって操作性を損なわずに粉液比の増大が可能となり、その結果として機械的強さ、歯質との適合性および吸水性が改善されることが示唆された。

(7) 合着用セメントとして応用

① 被膜厚さ：P/L= 2.4および2.6の時、フィラー7.5および10.0 wt%添加の系では20 μm 以下の被膜厚さを示し、P/L=2.0および2.2と比較して有意差がなかった。そしてコントロール(Fuji Lute, P/L=2.0, 練和開始1.0分後荷重)と比較しても有意な差がなかった。この結果から、被膜厚さを損なわず、粉液比を向上させることが示された。

② 圧縮強さ：4種の粉液比で球状フィラー添加の影響は統計的にみられなかった。P/L=2.6の場合、P/L=2.0および2.2と比較していずれのフィラー添加量においても有意に向上した。フィラー添加に関わらず、粉液比の増加に伴い圧縮強さは統計的に向上した。

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9件)

① M. Irie, K. Suzuki, David C. Watts: Delayed polishing technique on glass-ionomer restorations. *The Japanese Dental Science Review* 45:1, 14-22, 2009. 査読有。

② M. Irie, Y. Maruo, G. Nishigawa, K. Suzuki, David C. Watts: Class I gap-formation with highly-viscous glass-ionomer restorations minimized by delayed polishing *Operative Dentistry* 33:2, 196-202, 2008. 査読有。

③ M. Irie, R. Tjandrawinata, L. E. T.

Yamashiro, K. Suzuki: Flexural performance of flowable *versus* conventional light-cured composite resins in a long term *in vitro* study, *Dental Materials Journal* 27:2, 292-301, 2008. 査読有.

④ Y. Maruo, G. Nishigawa, M. Oka, M. Irie, S. Minagi, K. Suzuki, Current elastomeric impression material for implant prosthesis: Effect of surface treatments on adhesion to custom tray.. *Dental Materials Journal*, 26:2, 323-328, 2007. 査読有.

⑤ R. Tjandrawinata, M. Irie, K. Suzuki: *In vitro* study of 24-hour flexural and shear bond strength of flowable light-cured composites: A comparison analysis using Weibull statistics, *Dental Materials Journal*, 26:4, 589-597, 2007. 査読有.

⑥ M. Irie, R. Tjandrawinata, K. Suzuki, D. C. Watts: Root-surface gap-formation with RMGIC restorations minimized by reduced P/L ratio of the first increment and delayed polishing *Dental Materials*, 22:5, 486-497, 2006. 査読有.

⑦ M. Irie, K. Hatanaka, K. Suzuki, D. C. Watts: Immediate *versus* water storage performance of Class V flowable composite restoratives. *Dental Materials*, 22:9, 875-883, 2006 査読有.

⑧ M. Irie, K. Hatanaka, K. Suzuki, D. C. Watts: Immediate *versus* water storage performance of Class V flowable composite restoratives. *Dental Materials*, 22:9, 875-883, 2006 査読有.

⑨ K. Hatanaka, M. Irie, R. Tjandrawinata, K. Suzuki K: Effect of Silanized Spherical Silica Filler Addition: Immediate Performance of Class V Gap Formation and Mechanical Properties of Resin-modified Glass-ionomer Restoration. *Dental Materials Journal*, 25: 3, 415-422, 2006 査読有.

[学会発表] (計 8 件)

① G. Nishigawa, Y. Maruo, M Oka, Y Tamada, K. Yoshihara, S. Minagi, M. Irie, K. Suzuki, Sandblasting Alumina Affects Adhesion and Bending Properties of Resin Cement, # 0207, 2010., 39th Annual Meeting of the AADR 34th Annual Meeting of the CADR, March 3-6 (March 4), 2010, Walter E. Washington Convention Center, Washington, DC, USA.

② M. Irie, M. Y Tamada, Y. Maruo, G. Nishigawa, M. Oka, S. Minagi, K. Suzuki, David C Watts: Setting Shrinkage Performance of Resin composites, # 0458, 2010., 39th Annual Meeting of the AADR 34th Annual Meeting of the CADR, March 3-6 (March 4), 2010, Walter E. Washington Convention Center, Washington, DC, USA.

③ G. Nishigawa, Y. Maruo, M. Oka, K. Y. Tamada, S. Minagi, M. Irie, K. Suzuki: Ultrasonic Cleaning Affects Bond strength

of Sandblasted Restorations to Cement, # 2355, 2009., 87th General Session & Exhibition of the IADR, 38th Annual Meeting of the AADR 33rd Annual Meeting of the CADR, April 1-4 (April 3), 2009, Miami Beach Convention Center, Miami, Fla, USA.

④ M. Irie, M. Y Tamada, Y. Maruo, G. Nishigawa, M. Oka, S. Minagi, K. Suzuki, David C Watts: Vertical and Horizontal Setting Shrinkage in Composite Restorations, # 2443, 2009., 87th General Session & Exhibition of the IADR, 38th Annual Meeting of the AADR 33rd Annual Meeting of the CADR, April 1-4 (April 3), 2009, Miami Beach Convention Center, Miami, Fla, USA.

⑤ G. Nishigawa, Y. Maruo, M. Oka, K. Yoshihara, S. Minagi, M. Irie, K. Suzuki: Ultrasonic Cleaning Influences Silica-coated Zirconia Bond Strength, # 2304, 2008., 86th General Session & Exhibition of the IADR, 32nd Annual Meeting of the CADR, July 2-5 (July 4), 2008, Metro Toronto Convention Centre, Toronto, ON, Canada

⑥ M. Irie, M. Oka, Y. Maruo, G. Nishigawa, S. Minagi, K. Suzuki, David C Watts: Bond Strength of Self-adhesive Luting Cements to Zirconia after Thermocycling, # 2313, 2008., 86th General Session & Exhibition of the IADR, 32nd Annual Meeting of the CADR, July 2-5 (July 4), 2008, Metro Toronto Convention Centre, Toronto, ON, Canada

⑦ M. Irie, K. Suzuki, David C Watts: Shear Bond Strength of Luting Cements to Zirconia after Thermocycling, # 1537,

2007., IADR 85th General Session, March 21 - 24 (March 23) , 2007, Ernest N. Morial Convention Centre, New Orleans, Louisiana, USA

⑧ G. Nishigawa, Y. Maruo, K. Oki, K. Hasegawa, S. Minagi, M. Irie, K. Suzuki: Visual Inspection of Impression Pressure Distribution during Seating of Impression Tray, , # 1620, 2007., IADR 85th General Session, March 21 - 24 (March 23) , 2007, Ernest N. Morial Convention Centre, New Orleans, Louisiana, USA

〔図書〕(計1件)

① 入江正郎: 医歯薬出版, 臨床歯科理工学 (第5章 4. 成形歯冠修復と歯科材料 4) セメント系成形歯冠修復材料), 宮崎 隆, 中 嶋 裕, 河合達志, 小田 豊編, 2006. 127-132, 該当なし.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

入江 正郎 (IRIE MASAO)

岡山大学・大学院医歯薬学総合研究科・助教

研究者番号: 90105594

(2) 研究分担者

田仲 持郎 (TANAKA JIRO)

岡山大学・大学院医歯薬学総合研究科・助教

研究者番号: 40171764

鈴木 一臣 (SUZUKI KAZUOMI)

岡山大学・大学院医歯薬学総合研究科・教授

研究者番号: 30050058

(3) 連携研究者

斉藤 隆史 (SAITOU TAKASHI)

北海道医療大学・歯学部・教授

研究者番号: 40265070