

平成 21 年 5 月 26 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007 ～ 2008

課題番号：19592211

研究課題名 (和文) 超音波を応用した歯冠修復物の口腔内寿命予測

研究課題名 (英文) Life time prediction of restorative materials monitored by an ultrasonic method

研究代表者

黒川 弘康 (KUROKAWA HIROYASU)

日本大学・歯学部・助教

研究者番号：10291709

研究成果の概要：歯科医療における再治療の判断を，歯科医師の経験のみでなく客観的に判定し，口腔内の健康維持に貢献するための効果的な方法を確認することを目的として，超音波測定装置を用いて，口腔内を想定した環境での修復物の変化について検討した。その結果，超音波測定装置の使用は，口腔内での修復物の劣化状況を知るために有効な方法であることが判明した。

交付額

(金額単位：円)

|         | 直接経費      | 間接経費    | 合計        |
|---------|-----------|---------|-----------|
| 2007 年度 | 1,400,000 | 420,000 | 1,820,000 |
| 2008 年度 | 1,400,000 | 420,000 | 1,820,000 |
| 年度      |           |         |           |
| 年度      |           |         |           |
| 年度      |           |         |           |
| 総計      | 2,800,000 | 840,000 | 3,640,000 |

研究分野：歯科保存修復学

科研費の分科・細目：歯学・保存治療系歯学

キーワード：口腔内寿命予測，超音波測定，レジンセメント，光重合型レジン，接着界面

## 1. 研究開始当初の背景

レジンセメントを用いて修復物を装着する場合，修復物と窩壁との間に露出するセメントラインの物性が，修復物の予後に影響することが指摘されている。また，これら修復物の再修復の判定は，2次齲蝕を除けば修復物表面の形態的变化によるものがほとんどであり，術者の主観によって判断されている。しかも，この再修復処置は，一生の間に数回繰返し受ける可能性もあり，その都度，窩洞は大型化して抜髄の危険性も高く医療経済面からも損失が多いものと考えられる。したがって，セメントラインの出現に伴って生じる劣化がこれら審美性修復物の口腔内寿命におよぼす影響についての検討が急務である。

## 2. 研究の目的

超音波パルス法を用いてレジンセメント，歯冠修復物および接着界面の超音波特性を非破壊的に測定することによって，その劣化状況を判定し，再修復を行う際の客観的指標を確立することを目的とする。

(1) レジンセメントの初期硬化挙動および弾性率は，審美性修復物の口腔内寿命に影響を及ぼすことから重要な性質と考えられている。そこで，レジンセメントの初期硬化挙動および弾性率を検討した。

(2) レジンセメントを用いて歯冠修復物を装着する際，余剰セメントの除去にあたってプレキュアが行なわれる。そこで，プレキュア

ア時間の変更がレジンセメントの初期硬化挙動に及ぼす影響について検討した。

(3) 口腔内において、修復材の機械的性質はもちろんのこと、その審美性が維持されることが重要であり、温熱刺激の負荷に伴う修復材の表面性状の劣化状況を把握することは、審美修復物の寿命について検討する上で必要である。そこで、温熱刺激の負荷に伴うレジン修復物の表面性状および色調の経時的変化について検討した。

(4) シングルステップ接着システムの接着界面の長期耐久性に関しては、ここに侵入した水分などによって劣化する可能性が指摘されているものの、その詳細については不明な点が多い。そこで、接着界面における劣化状況を検出することを目的として、温熱刺激の負荷が、接着界面を構成する各コンポーネントの弾性率に及ぼす影響について検討した。

### 3. 研究の方法

以下の実験において、超音波測定にはパルサーレーザー (Model5900, Panametrics)、内径5mmの縦波用トランスデューサー (V112, Panametrics) と内径15mmの横波用トランスデューサー (V156, Panametrics) およびオシロスコープ (Wave Runner LT584, Lecroy) から構成されているシステムを用いた。

弾性率は Electronic Densimeter (ED-120T, Mirage) を用いて得られた試片の密度、超音波装置から求めた縦波および横波音速を計算式に代入することによって算出した。

(1) レジンセメントの初期硬化挙動および弾性率の測定

レジンセメントとして、デュアルキュア型のビスタイトII (トクヤマデンタル)、リンクマックス (ジーシー)、パナビア F 2.0 (クラレメディカル)、レジセム (松風) およびクリアフィルエスティックセメント (クラレメディカル) の、合計5製品を用いた。

各製造者指示に従って練和したセメント泥を内径5mm、高さ2mmの白色テフロン型に填塞し、ラッピングフィルムを介してトランスデューサーを接触させ、超音波の伝播時間を経時的に測定し、各試片の厚みとから音速を求めた。

硬化挙動の測定は、照射を行わない、あるいは200 mW/cm<sup>2</sup>および600 mW/cm<sup>2</sup>の条件で照射を行う3条件で、その各条件にプライマーを塗布したものと塗布しないものの計6条件で行った。すなわち、照射を行わない条件では、暗室下で1分ごとに15分まで測定した。照射を行う条件では、照射開始から1分間は5秒ごとに、その後2分間は10秒ごとに合計3分間測定した。

弾性率の測定は同型の白色テフロン型にレジンセメントを填塞し、600 および 200 mW/cm<sup>2</sup>の条件では3分間照射後、縦波と横波の超音波速度を測定した。照射なしの条件ではセメント填塞後、暗室下で15分間安置し、同様の測定を行った。また、水中に浸漬し24時間経過後の音速についても測定した。なお、測定は23±1°C、相対湿度50±5%の恒温恒湿室で暗室下に行い、試片の数は各条件につき3個とした。

(2) プレキュア時間の変更がレジンセメントの初期硬化挙動に及ぼす影響

レジンセメントとして、セルフアドヒーズタイプユニセム (3M ESPE)、マックスセム (sds Kerr)、ジーセム (ジーシー) およびクリアフィル SA ルーティング (クラレメディカル) の、合計4製品を用いた。

各製造者指示に従って練和したセメント泥を、試料台に静置した内径8mm、高さ1mmの白色テフロン型に填塞し、ラッピングフィルムを介してトランスデューサーを接触させ、超音波の伝播時間を経時的に測定し、各試片の厚みとから音速を求めた。

硬化挙動の測定は、照射を行わない、あるいは600 mW/cm<sup>2</sup>の条件で30秒間照射を行う2条件で行った。すなわち、照射を行わない条件では、練和開始から3分まで10秒毎に、その後15分まで30秒毎に測定した。照射を行う条件では、照射中は5秒毎に、照射終了後15分まで10秒毎に測定した。また、1および24時間経過した試片についても測定するとともに、セメント練和からビカー針が侵入不可能となった時間における音速についても測定した。

硬化時間の測定は、ISO 9917に従って行った。すなわち、照射を行わない条件ではセメント練和開始90秒後から400 gfのビカー針を10秒間毎に下ろし、ビカー針が試片内に侵入不可能となった時間を測定した。一方、照射を行う条件では1秒ずつ照射時間を延長し、各時点におけるビカー針の侵入深さとの関連性から、硬化時間を測定した。なお、測定は23±1°C、相対湿度50±5%の恒温恒湿室で暗室下に行い、試片の数は各条件につき3個とした。

(3) サーマルサイクリングの負荷が歯冠修復物の表面性状に及ぼす影響

研磨システムとして、コンポマスター (松風) およびスーパースナップ (松風) の緑および赤を用いた。また、光重合型レジンとしては、ビューティフィルII (松風)、クリアフィルマジスティ (クラレメディカル)、ソラーレ (ジーシー)、エステライトΣクイック (トクヤマデンタル) およびフィルテックシュープリーム DL (3M ESPE) の、合計5

製品を用いた。

試片は、内径 10 mm、高さ 5 mm のテフロン型にレジンペーストを填塞、圧接し、ポリストリップスを介して 60 秒間照射し、重合硬化させて製作した。また、ポリストリップス圧接面を研削することなく保管した試片をコントロール試片とした。次いで、SiC ペーパーの# 600 を用いて、照射面から 0.5 mm 削除し、これを研磨開始基準面とし、これを形態修正試片とした。この研磨開始基準面に対して、マイクロモーターの回転数を無荷重の状態では 10,000 rpm として荷重 0.5 N の条件でコンポマスターにおいては 30 秒間、スーパースナップにおいては緑および赤の順で 15 秒間ずつ、合計 30 秒間、注水することなく研磨を行った。

コントロール試片、形態修正試片および研磨試片に対し、サーマルサイクル試験装置を用いて 5 ~ 55°C の温熱刺激を 1 サイクルとする条件を 1,000 および 10,000 回負荷し、これらの試片の表面粗さ、光沢度および色調の測定を行った。

#### (4) セルフエッチングアドヒーシブ脱灰象牙質の弾性率測定

シングルステップ接着システムとして、アブソリュート (デンツプライ)、クリアフィルトライエスボンド (クラレメディカル) およびジーボンド (ジーシー) の、合計 3 製品を用いた。

実験には象牙質試片、脱灰象牙質試片、アドヒーシブ浸漬試片およびアドヒーシブ試片を製作し、弾性率の測定に供試した。

象牙質試片は、ウシ下顎前歯を 5×5×1 mm のブロックに切り出し、SiC ペーパーで研磨した後、密度を求めた。

脱灰象牙質試片は、象牙質試片と同様に調節した試片を 0.5 mol/l EDTA (昭和薬品化工、pH 7.4) 溶液 10 ml に浸漬し、これを 37°C 恒温槽に 3 日間保管し、これを測定用試片とした。

アドヒーシブ浸漬試片は、脱灰象牙質試片と同様に調節した試片を 1 時間水洗した後、乾燥させ、暗室下にアドヒーシブを 48 時間浸漬した。浸漬後、余剰なアドヒーシブを除去し、その片側を 1 分間ずつ、合計 2 分間の照射を行い、これを測定用試片とした。

また、アドヒーシブ試片についても、同様の試片サイズに調製して、これを測定用試片とした。

製作した試片を 37°C 精製水中に 24 時間保管した後、サーマルサイクル試験装置を用いて 5 ~ 55°C の温熱刺激を 1 サイクルとする温熱刺激を 3,000、10,000 および 30,000 回負荷した後、弾性率を測定した。

なお、測定は 23±1°C、相対湿度 50±5% の恒温恒湿室で暗室下に行い、試片の数は各

条件につき 5 個とした。

#### 4. 研究成果

##### (1) レジンセメントの初期硬化挙動および弾性率測定

今回供試したいずれのレジメンセメントにおいても光線照射開始から、セメント内部を伝播する音速は上昇したが、その傾向は供試したセメントの種類によって異なるものであった。すなわち、光線照射の影響を受けやすく短時間に音速が速くなるものと光線照射の影響をある程度受けるが、その後徐々に硬化が進み伝播速度が緩やかに上昇するものとに分けられた。また、光強度の違いとプライマーの有無によって、初期硬化挙動に明らかな違いが認められた。

一方、弾性率の測定においても、製品間で光強度とプライマーの有無による違いがあり、24 時間後の測定では弾性率が上昇する傾向が示された。

以上より、デュアルキュア型レジメンセメントの初期硬化反応と弾性率の変化には、光線照射とプライマーが影響するとともに、その傾向は製品間によって異なることが判明した。

##### (2) プレキュア時間の変更がレジメンセメントの初期硬化挙動に及ぼす影響

今回供試したいずれのレジメンセメントにおいても、照射を行わない条件ではセメント内部を伝播する音速の変化は練和開始 3 分後までは緩徐であるのに対し、照射を行なった条件では照射開始から短時間で上昇し、照射終了後も継続する傾向を示した。また、その傾向は製品によって異なるものであった。一方、ビカー針を用いて硬化と判定された時間における音速の値は、照射条件および製品間で異なるものであり、また、24 時間後の音速と有意差が認められなくなる時間もさまざまであった。これは、各セメントの組成や重合開始剤の特性が異なることによるものと考えられた。

以上より、セルフアドヒーシブタイプのレジメンセメントの硬化性は、照射に影響を受けるとともに、製品によって異なることが判明した。したがって、臨床的には、使用するセメントの硬化特性を把握することによって、プレキュア時間を設定する必要があることが示唆された。

##### (3) サーマルサイクリングの負荷が歯冠修復物の表面性状に及ぼす影響

今回供試したいずれの光重合型レジメンにおいても、表面粗さは温熱刺激の負荷によって変化は認められず、安定した値を示した。また、光沢度の持続性は、温熱刺激の負荷とともに低下する、あるいは変化が認められ

ないなど、製品によって異なる傾向を示した。これは、フィラー形状や充填率、マトリックスメジンの重合性の違いによるものと考えられた。一方、 $\Delta E^*ab$  値は温熱刺激の負荷によっていずれの製品においても変化が認められた。これは、温熱刺激の負荷による光重合型レジンの表面性状の変化に寄因するものと考えられたが、さらに吸水による内部でのマトリックスメジンとフィラー間の屈折率の変化による可能性も考えられた。

以上より、温熱刺激の負荷が光重合型レジンの表面粗さおよび光沢度の安定性に及ぼす影響は、製品によって異なることが判明した。

#### (4) セルフエッチングアドヒーズ脱灰象牙質の弾性率測定

象牙質試片と脱灰象牙質試片の弾性率を比較すると、24時間後において脱灰象牙質試片で有意に低い値を示した。これは、EDTA溶液が拡散、浸透することによってハイドロキシアパタイトを主とする無機質成分が除去されたためと考えられた。一方、温熱刺激の負荷に伴い、象牙質試片の弾性率は上昇する傾向を示したものの、脱灰象牙質試片は形状を維持できずに測定が不可能であった。

アドヒーズ浸漬試片の24時間後の弾性率は、いずれのシングルステップ接着システムも脱灰象牙質試片と比較して高い値を示した。これは、脱灰されて露出したコラーゲン繊維にレジン成分が浸透、硬化することによって、弾性率の上昇に寄与したものと考えられた。一方、温熱刺激負荷後の弾性率は、製品間で異なるものの、低下する傾向が認められた。これは、アドヒーズが浸透していない部分のコラーゲン繊維が温熱刺激による影響を受けたこと、EDTAによりハイドロキシアパタイトが脱灰されてしまったため、アドヒーズとハイドロキシアパタイトとの化学的結合得られなかったためと考えられた。

以上より、歯面の処理の違いにより試片の弾性率は異なることが判明した。

#### 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 黒川弘康, 角野奈津, 大山幸治, 島村 穰, 宇山 聡, 植草智史, 安藤 進, 宮崎真至, サーマルサイクリングの負荷が光重合型レジン形態修正面の表面性状および色調に及ぼす影響, 接着歯学, 印刷中, 2009, 査読有
- ② Yasuda G, Inage H, Kawamoto R, Shimamura Y, Takubo C, Tamura Y, Koga K, Miyazaki M, Changes in elastic

modulus of adhesive and adhesive-infiltrated dentin during storage in water, J Oral Sci 50, 481-486, 2008, 査読有

- ③ Kawamoto R, Kurokawa H, Takubo C, Shimamura Y, Yoshida T, Miyazaki M, Change in elastic modulus of bovine dentine with exposure to a calcium hydroxide paste, J Dent, 36, 959-964, 2008, 査読有
- ④ Tsubota K, Mori K, Yasuda G, Kawamoto R, Yoshida T, Yamaguchi K, Kurokawa H, Miyazaki M, Setting behavior of luting cements monitored by an ultrasonic method, J Oral Sci, 50, 117-121, 2008, 査読有
- ⑤ Mori K, Inage H, Kawamoto R, Tonegawa M, Kurokawa H, Tsubota K, Takamizawa T, Miyazaki M, Ultrasonic monitoring of the setting of glass-ionomer luting cements, Eur J Oral Sci, 116, 72-76, 2008, 査読有
- ⑥ 黒川弘康, 岩佐美香, 大藤竜樹, 市野 翔, 山田健太郎, 安藤 進, 宮崎真至, 細矢由美子, サーマルサイクリングがコンポジットレジンの研磨面性状に及ぼす影響, 日歯保存誌, 51, 360-367, 2008, 査読有
- ⑦ Oshiro M, Kurokawa H, Ando S, Irokawa A, Miyazaki M, Platt JA, The effect of bleaching on the elastic modulus of bovine enamel, Dent Mater J, 26, 409-413, 2007, 査読有
- ⑧ Yamaguchi K, Miyazaki M, Takamizawa T, Inage H, Kurokawa H, Ultrasonic determination of the effect of casein phosphopeptide-amorphous calcium phosphate on the demineralization of bovine dentin, Caries Res, 41, 204-207, 2007, 査読有
- ⑨ Yasuda G, Inage H, Takamizawa T, Kurokawa H, Rikuta A, Miyazaki M, Determination of elastic modulus of demineralized resin-infiltrated dentin by self-etch adhesives, Eur J Oral Sci, 115, 87-91, 2007, 査読有

[学会発表] (計8件)

- ① 黒川弘康, サーマルサイクリングの負荷が光重合型レジンの研磨面状態に及ぼす影響, 日本歯科審美学会, 2008.10.12, 新潟
- ② Kurokawa H, Ultrasonic monitoring of the setting of adhesive resin cements, 86th General Session & Exhibition of the IADR, 2008.7.04, Toronto, Canada
- ③ 池田昌彦, レジンセメントの硬化性と除去性に及ぼすプレキュアの影響, 日本歯

- 科保存学会, 2008. 6. 05, 新潟
- ④ Tonegawa M, Ultrasonic monitoring of the setting of light-cured glass-ionomers, International Symposium for Adhesive Dentistry, 2008. 2. 16, Kanazawa
  - ⑤ 安田源沢, レジンセメントの弾性率測定への超音波装置の応用, 日本歯科保存学会, 2007. 11. 09, 岡山
  - ⑥ 黒川弘康, コンポジットレジンの研磨面状態の経時的変化, 日本歯科保存学会, 2007. 11. 08, 岡山
  - ⑦ 安田源沢, 超音波装置を用いたレジンセメントの初期硬化挙動測定, 日本歯科保存学会, 2007. 6. 08, 大宮
  - ⑧ 池田昌彦, プレキユア時間がレジンセメントの除去性に及ぼす影響, 日本接着歯学会, 2007. 5. 13, 札幌

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

黒川 弘康 (KUROKAWA HIROYASU)  
日本大学・歯学部・助教  
研究者番号: 10291709

### (2) 研究分担者

( )  
研究者番号:

### (3) 連携研究者

宮崎 真至 (MIYAZAKI MASASHI)  
日本大学・歯学部・教授  
研究者番号: 70239391

高見澤 俊樹 (TAKAMIZAWA TOSHIKI)  
日本大学・歯学部・助教  
研究者番号: 60373007