

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 10 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21592430

研究課題名（和文） 耐久性に優れたう蝕予防効果を発揮する修復材の検討

研究課題名（英文） A study on the restorative materials for durable and prevention of dental caries

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（和文）：超音波パルス法を用いて、口腔内を想定した環境でのガラスイオノマーセメントの硬化反応および弾性率の変化について検討を加えた。その結果、ガラスイオノマーセメントの硬化挙動および弾性率は、可視光線照射器による光線照射強度およびガラスイオノマーセメントの練和方法に影響を受けることが判明した。

研究成果の概要（英文）：Ultrasonic measurement was to monitor the polymerization reaction and changes in elastic modulus of glass-ionomer luting cements. From the results of this study, the polymerization behavior and elastic modulus of glass-ionomer luting cements was shown to be affected by the power density of the curing unit and the mixing methods.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

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：機能性材料，硬化挙動，経時的变化，客観的判定，超音波測定，OCT

## 1. 研究開始当初の背景

Minimal Intervention という治療概念の普及とともに、齲蝕病巣へのアプローチにも変化が認められてきた。すなわち、齲蝕によって実質欠損を生じた歯については、フッ化物を徐放する修復材などを用いて欠損部を補填することは避けられないものの、その状態をいかにして維持、管理するかに焦点が置かれている。一方、口腔環境に曝された修復物は、経時的に劣化することは避けられず、再修復がされることになる。しかし、修復物の劣化状況に関しては、表面性状の変化などを主観的に判断しているのが現状であり、客観

的にこれを判断する方法は確立していない。したがって、必要とされない再修復処置をくり返さないためにも、修復材と歯質との相互作用あるいは口腔内での状態変化を客観的に把握する必要がある。

## 2. 研究の目的

超音波パルス法および光干渉断層画像診断法 (Optical Coherence Tomography, 以後、OCT) を用いて修復材、歯質および歯質と修復材との接合界面における状態変化を非破壊的に観察することによって、修復物と歯質との状態変化を判定し、再修復を行う際の客

観的指標 (Evidence) を確立することを目的とし、以下の実験を行った。

(1) 修復物の口腔内における状況を客観的に判断するための基礎的資料を得ることを目的として、初期硬化反応や弾性率の変化が修復物の予後に影響を及ぼす重要な因子となることから、光重合型充填用レジン強化型ガラスアイオノマーセメントの光線照射初期条件における硬化挙動および弾性率について経時的に検討した。

(2) 粉・液から構成されているセメントは、機械練和を行うことで硬化反応を向上させる試みがなされているものの、これがセメント硬化物の機械的性質に及ぼす影響については未解明な点が多い。そこで、練和法がセメント硬化物の経時的な弾性率変化に及ぼす影響について検討した。

(3) 二次齲蝕による必要とされない再修復を繰り返さないためにも、修復処置がなされた歯の状態を客観的に判断することが重要となる。そこで、口腔内での検出が困難である修復物と歯質との接合界面付近の劣化状況を客観的に把握することを目的として、OCT を用いることによって、光重合型レジン修復において生じる可能性のある接着欠陥の観察が可能であるか検討した。

(4) 齲蝕リスクの低減化あるいは脱灰と再石灰化という動的平衡をコントロールすることの重要性から、歯質の積極的な再石灰化あるいは脱灰抑制を目的として、多種のイオンを徐放する PRG フィラーを含有したコーティング材が開発された。そこで、PRG フィラー含有コーティング材を歯質に塗布した際に生じる状態変化を、OCT を用いて非破壊的に観察し、検討を加えた。

### 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。

また、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。

歯質と修復物との接合界面および歯質断層像の変化観察は、OCT 装置 (モリタ東京製作所) を用いた。本装置は、光源の低コヒーレンス性を応用したものであり、Super Luminescent Diode 光源からの光を光分割器

により 2 束に分割し、1 束を参照鏡に、他方を対象物に入射し、それぞれから反射してきた光を干渉させ、測定対象物の表層から深層にわたる反射光分布を測定することで断層像を得るものである。

#### (1) レジン強化型ガラスアイオノマーセメントの初期硬化挙動および弾性率測定

供試したセメントは、ペースト - ペーストタイプとして Fuji Fil LC (ジーシー) および Fuji Fil LC Flow (ジーシー) の 2 製品、粉液タイプとして Fuji II LC (ジーシー) および Fuji II LC EM (ジーシー) の 2 製品、合計 4 製品を用いた。

初期硬化挙動の測定は、試片を透過する超音波の縦波音速を指標として行った。すなわち、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 5 mm、高さ 2 mm の透明型に填塞し、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、測定された試片の厚さから縦波音速を算出した。

実験に供試したセメントの硬化反応は、いずれもデュアルキュアであることから、硬化挙動の測定における照射条件を 600 mW/cm<sup>2</sup>、200 mW/cm<sup>2</sup> および照射なしの 3 条件とした。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、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、練和したセメント泥を同型の透明型に填塞して照射を行い、これらの試片を 37 °C 水中に 1 時間、24 時間、1 週間および 1 カ月浸漬した後に、その縦波および横波音速を測定することで算出した。

#### (2) 練和法の異なるガラスアイオノマーセメントの弾性率測定

供試したセメントは、手用練和型として Fuji IX GP (ジーシー) および G-Cem (ジーシー) の 2 製品、機械練和として Fuji IX GP Fast Capsule (ジーシー) および G-cem Fast Capsule (ジーシー) の 2 製品、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 5 mm、高さ 2 mm の透明型に填塞し、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、15 分後に超音波の伝播時間を測定し、測定された試片の厚さから縦波および横波音速を算出した。

セメントの弾性率の経時的変化を観察するため、超音波測定はセメント練和開始から 1, 6, 12 および 24 時間後および 7, 14, 21 および 28 日後に行った。また、測定は水中浸漬および大気保管した試片についてそれぞれ行った。また測定を終了した試片の一部について、通法に従って金蒸着を施し、

FE-SEM (ERA-8800FE, エリオニクス) で観察を行い、各セメントにおける単位面積あたりの気泡の割合を算出した。

### (3) OCT を用いた接着欠陥の観察

供試した接着システムは、2 ステップシステムとして Clearfil Mega Bond (クラレメディカル) およびシングルステップシステムとして Clearfil tri-S Bond (クラレメディカル) の 2 製品を用いた。また、レジンペーストとして Clearfil AP-X (クラレメディカル) を用いた。

接着欠陥の検出は、ウシ下顎前歯歯冠部唇側面中央付近に直径 2mm、深さ 1mm の規格窩洞を形成し、異なった条件でレジンペーストを充填した際の接合界面付近の変化について観察した。すなわち、観察対象としては、①製造者指示条件に従って歯面処理を行った後、レジンペーストを充填、重合した窩洞 (コントロール) ②歯面処理を行わずにレジンペーストを充填、重合した窩洞 ③アドヒーズ塗布後、光照射を行わずにレジンペーストを充填、重合した窩洞の 3 条件とした。

OCT を用いてこれらの断層像を観察するとともに、形状測定レーザ顕微鏡 (VK-8700, キーエンス) を用いて縦断面を撮影し比較、検討した。なお、OCT による観察時期はレジンペースト充填後、24 時間とした。

### (4) 機能性高分子材料が歯質の脱灰・再石灰化に及ぼす影響の観察

ウシ下顎前歯歯冠部唇側面中央付近のエナメル質を 4×4×1 mm のブロックとして切り出し、これを測定用試片とした。この試片の表面に対して、製造者指示条件に従って PRG フィラー含有コーティング材を塗布したもの、あるいは塗布を行わないものの 2 条件を設定した後、37°C 人工唾液 (pH 7.0) あるいは精製水中に 30 日間浸漬保管した。保管中の試片について、OCT を用いて歯質に生じる状態変化を経時的に観察した。また、所定の保管期間が終了した試片については、コーティング材を採針にて除去し、レーザ顕微鏡を用いて表面性状の観察を行った。

## 4. 研究成果

### (1) レジン強化型ガラスアイオノマーセメントの初期硬化挙動および弾性率測定

セメント内部において、その硬化が進行すると内部を伝搬する音速も速くなるが、その傾向は供試したレジン強化型ガラスアイオノマーセメントによって異なるものであった。すなわち、光線照射によって音速が急激に速くなるもの、および比較的緩徐に進行するものの 2 つのグループに分類された。また、光線照射によって急激に硬化が進行する製

品では、とくに光強度の違いによる硬化挙動にも違いが認められた。弾性率の測定では製品間で異なる値を示したが、全ての製品において 1 週間後までに緩徐に上昇し、4 週間後では低下する傾向が認められた。

以上の結果から、レジン強化型ガラスアイオノマーセメントの水中浸漬に伴う初期硬化反応の進行および弾性率変化は、光線照射条件が大きく影響するとともに、その傾向はセメントの組成によって異なることが示された。したがって、耐久性に優れた修復材の開発においては、光線照射によって、より効果的に重合硬化反応が進行するよう、組成成分を適正化する必要があることが判明した。

### (2) 練和法の異なるガラスアイオノマーセメントの弾性率測定

充填用ガラスアイオノマーセメントの弾性率は、いずれの製品においても経時的に上昇したが、その傾向は練和法によって異なり、15 分経過後と比較して 60 分経過後では機械練和型で有意に高い値を示した。このように、機械練和型で硬化初期における弾性率の上昇傾向が大きかった原因としては、手用練和型と比較して粉液が十分に攪拌されることで、セメントの硬化反応が効率よく進行したため考えられ、修復直後より比較的安定した弾性率を示したものと考えられた。さらに、弾性率の変動係数は、経過時間に関わらず、機械練和型で小さい値を示したことから、手用練和型で練和時における粉液比の変化の影響を受けやすく、変動係数が大きかった可能性が考えられた。

以上の結果から、充填用ガラスアイオノマーセメントの弾性率は練和方法により影響を受け、症例によっては機械練和型のセメントを使用することが、修復物の予後を安定させるために有効であることが判明した。

### (3) OCT を用いた接着欠陥の観察

OCT 装置を用いてレジンペーストを充填、重合した窩洞の断層像を観察したところ、コントロールでは、いずれの歯面処理材においても歯質と光重合型レジンとの境界部が移行的な像として観察された。一方、歯面処理を行わずにレジンペーストを充填、重合した条件では、歯質と光重合型レジンとの境界部にシグナルが強く現れる傾向を示した。このように、歯面処理条件の違いが断層像に影響を及ぼした原因としては、光重合型レジンの重合収縮により、歯質と光重合型レジンとの境界部に何らかの影響を及ぼすものの、歯面処理条件の違いによってその程度が異なり、OCT から照射された近赤外線は接合界面付近での散乱の程度が異なったためと考えられた。

以上の結果より、OCT を用いて歯質と光重合型レジンとの接合界面を観察することは

可能であり、接着欠陥も、その程度によっては検出が可能であることが判明した。今後、口腔内においてOCTを用いて修復物と歯質の断層像を観察することで、再修復あるいは補修修復を行うかの判断基準を得るための客観的指標となる可能性が示された。

(4) 機能性高分子材料が歯質の脱灰・再石灰化に及ぼす影響の観察

人工唾液保管群におけるコーティング材塗布直後のOCTイメージ像からは、塗布面表層とその下方に強度分布を示す画像が得られ、その信号強度を解析したグラフからは、最大ピークのほかに信号の増強部が検出された。一方、実験期間の延長に伴い、コーティング面表層でのシグナルは減少し、その部位での信号解析からは、ピーク幅の拡大が認められた。非コーティング面の歯質は、塗布直後に比べ表層でのシグナルは増加し、そのグラフ解析より信号強度は増幅していることが判明した。また、レーザー顕微鏡による観察からは、観察期間の延長に伴って歯質表面が粗糙になる傾向が認められた。OCTを用いた歯質断層像の解析においては、歯質が脱灰することによって生じた基質の変化が光線透過性に影響を及ぼすことによって、OCTイメージ像の変化として表れた。さらに、Aスキャンモードにおける信号強度で検出されるピークの幅あるいは位置を検討することによって、より詳細な解析が可能であることが示された。

以上の結果から、PRG フィラー含有コーティング材は歯質に生じる脱灰を抑制し、再石灰化を促進する可能性を有することが示された。したがって、齶蝕予防には、PRG フィラーから徐放されるF、SiあるいはSrなどの各種イオンが有効であり、齶蝕予防効果を発揮する修復物の開発に必要であることが判明した。

## 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 12 件)

- ① Sunada A, Ishii R, Shiratsuchi K, Shimizu Y, Tsubota K, Kurokawa H, Miyazaki M, Ultrasonic measurement of the effects of adhesive application and power density on the polymerization behavior of core build-up resins, Acta Odontol Scand, in press, 2011, 査読あり
- ② Shimamura Y, Murayama R, Kurokawa H, Miyazaki M, Mihata Y, Kamaguchi S, Influence of tooth-surface hydration conditions on optical coherence-tomography imaging, J Dent, 39, 572-577, 2011, 査読あり

- ③ 黒川弘康, 利根川雅佳, 飯野正義, 古宅眞由美, 白土康司, 山路 歩, 坪田圭司, 安藤 進, 宮崎真至, 岩崎伸雄, 試作接着システム (LLB-2) の基本的接着性能, 接着歯学, 29, 77-83, 2011, 査読あり
- ④ Takubo C, Yasuda G, Murayama R, Ogura Y, Tonegawa M, Kurokawa H, Miyazaki M, Influence of power density and primer application on polymerization of dual-cured resin cements monitored by ultrasonic measurement, Eur J Oral Sci, 118, 417-422, 2010, 査読あり
- ⑤ 渡邊孝行, 高見沢俊樹, 辻本暁正, 森 健太郎, 池田昌彦, 前田 徹, 黒川弘康, 宮崎真至, Adoper Easy Bond の短期臨床成績, 日歯保存誌, 53, 508-516, 2010, 査読あり
- ⑥ 黒川弘康, 天野紫乃, 瀧本正行, 村山良介, 浅野和正, 宮崎真至, 松崎辰男, 市石芳博, 光重合型レジンの衝突摩耗性に関する基礎的研究, 日歯保存誌, 53, 115-122, 2010, 査読あり
- ⑦ Ikeda M, kurokawa H, Sunada N, Tamura Y, Takimoto M, Murayama R, Ando S, Miyazaki M, Influence of previous acid etching on dentin bond strength of self-etch adhesives, J Oral Sci, 51, 527-534, 2009, 査読あり
- ⑧ Oto T, Yasuda G, Tsubota K, Kurokawa H, Miyazaki M, Platt JA, Influence of power density on polymerization behavior and bond strengths of dual-cured resin direct core foundation systems, Oper Dent, 34, 192-199, 2009, 査読あり
- ⑨ Tonegawa M, Yasuda G, Takubo C, Tamura Y, Yoshida T, Kurokawa H, Miyazaki M, Influence of power density on the setting behaviour of light-cured glass-ionomer cements monitored by ultrasound measurements, J Dent, 37, 535-540, 2009, 査読あり

[学会発表] (計 42 件)

- ① 村山良介, PRG バリアコートのエナメル質表層化脱灰病変の再石灰化効果, 日本歯科保存学会, 2011. 10. 21, 大阪国際交流センター, 大阪
- ② 黒川弘康, OCT を用いた歯質断層像の解析について—状態変化と OCT イメージの関連性, 日本歯科保存学会, 2011. 10. 21, 大阪国際交流センター, 大阪
- ③ 石山智恵美, 超音波透過法を用いたセルフアドヒーシブセメントの初期硬化挙動測定, 日本歯科保存学会, 2011. 10. 21, 大阪国際交流センター, 大阪
- ④ 坪田圭司, コンポジットレジンのブラシ

摩耗に関する研究—負荷荷重が表面粗さに及ぼす影響, 日本歯科審美学会学術大会, 2011.10.8, 奈良県新公会堂, 奈良

- ⑤ Oto T, Influence of power density on bond strength and flexural strength of resin core foundation systems, The 4th International Congress Adhesive Dentistry, 2011.4.16, Seoul, Korea
- ⑥ Takamizawa T, Volumetric shrinkage and mechanical properties of injectable resin composite, 89th General Session & Exhibition of the IADR, 2011.3.18, San Diego, USA
- ⑦ 黒川弘康, ワンステップ接着システムの長期臨床成績, 日本接着歯学会学術大会, 2011.2.5, 岡山大学創立五十周年記念館, 岡山
- ⑧ 村山良介, PRG フィラー含有コート材の歯質石灰化効果に関する研究, 日本歯科保存学会, 2010.10.28, 長良川国際会議場, 岐阜
- ⑨ Kurokawa H, One-year clinical observation of Giomer Restorative system, 88th General Session & Exhibition of the IADR, 2010.7.16, Barcelona, Spain
- ⑩ 島村 穰, 光干渉断層 (Optical Coherence Tomography) 装置を用いた接着欠陥の検出, 日本歯科保存学会, 2010.6.4, 崇城大学市民ホール (市民会館), 熊本市国際交流会館, 熊本
- ⑪ 田久保周子, セメントの練和法が硬化物の弾性率の経時的変化に及ぼす影響, 日本歯科保存学会, 2009.10.29, 仙台国際センター, 宮城
- ⑫ 天野紫乃, 各種歯冠修復物の衝突摩耗性に関する基礎的研究, 日本歯科審美学会学術大会, 2009.9.19, 品川区総合区民会館 (きゅりあん), 東京
- ⑬ 利根川雅佳, 光重合型充填用レジン強化ガラスアイオノマーの硬化挙動と弾性率, 日本歯科保存学会, 2009.6.11, 札幌コンベンションセンター, 北海道
- ⑭ 黒川弘康, Giomer 系修復材とワンステップ接着システムにおける短期臨床成績, 日本歯科保存学会, 2009.6.11, 札幌コンベンションセンター, 北海道
- ⑮ 安田源沢, 超音波透過法を用いたコア用レジンの弾性率測定, 日本歯科理工学会学術講演会, タワーホール船堀, 2009.4.12, 東京

## 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  
安藤 進 (ANDO SUSUMU)  
日本大学・歯学部・准教授  
研究者番号 : 40120365