

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 9 日現在

機関番号：37114

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21592486

研究課題名（和文） 異種高分子材料で構成する新しい補綴装置の開発

研究課題名（英文） Development of new prosthetic devices consist of heterogeneous polymer materials

研究代表者

清水 博史 (SHIMIZU HIROSHI)

福岡歯科大学・歯学部・准教授

研究者番号：80162709

研究成果の概要（和文）：重合の完了したアクリリックレジンと未重合のコンポジットレジンとは本来接着しない。しかしながら臨床的に両者の接着が求められることは少なくない。そこでこれを改善するために本研究を計画した。各種の表面処理法の効果を比較検討した結果、4-META/MMA-TBB レジンスラリーを介在させる方法が最も効果的で、接着強さが大きく向上した。次に熱可塑性樹脂に対する常温重合レジンの接着性について検討した。ポリエチレンテレフタレート共重合体およびポリカーボネイトの場合は、床用アクリリックレジンと同等の接着強さを示し、特に表面処理を施さなくても良好な成績であったが、これにアルミナサンドブラスト後 4-META/MMA-TBB レジンスラリーを介在させるとさらに接着性が向上した。これに対し、ポリアミド系熱可塑性樹脂の接着性は極端に低く、ほとんど接着しないことがわかった。そこで表面処理法を検討した。有効な表面処理法は既存の方法の中からは見出せず、唯一 4-META/MMA-TBB レジンスラリーは効果があったがその程度は低かった。この点は今後の検討課題である。

研究成果の概要（英文）：Completely polymerized acrylic resin is originally difficult to bond to unpolymerized composite resin. However, significant improvement in the bond strength was achieved through the application of 4-META / MMA-TBB resin. Polyethylene terephthalate copolymer and polycarbonate showed high bond strengths with no surface treatments. Using 4-META / MMA-TBB resin combined with alumina air-abrasion, the bond strengths enhanced. On the contrary, polyamide had originally extremely low bond strength. The application of 4-META / MMA-TBB resin was not so effective.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1, 600, 000	480, 000	2, 080, 000
2010 年度	1, 100, 000	330, 000	1, 430, 000
2011 年度	800, 000	240, 000	1, 040, 000
年度			
年度			
総計	3, 500, 000	1050, 000	4, 550, 000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：補綴理工系歯学

キーワード：高分子材料

1. 研究開始当初の背景

近年、歯質とレジンはもとより金属とレジン、セラミックとレジンに強固に接着するようになった。そして歯科臨床はその恩恵を十分に受け、相当の変貌を遂げて今日に至っている。しかしながら、硬化したコンポジットレジンあるいは重合が完了したアクリリックレジンなどの高分子材料に対し、光重合型コンポジットレジンに一般に接着しにくい、かほとんど接着しないことがわかっている。

また、近年臨床においてその使用頻度が急激に増加している熱可塑性樹脂は、常温重合レジンを用いた修理やリラインが必要な機会があるにも関わらず、両者の接着挙動に関してはほとんど基礎的資料がない。一部の熱可塑性樹脂の中には常温重合レジンで修理できないとはっきり謳った製品もある。臨床的ニーズがあるにもかかわらず熱可塑性樹脂の接着に関しては不明な点が多い。

このように異種高分子材料同士の接着は、歯科領域で用いられる材料の接着の中で、今日最も接着性や接着耐久性の獲得の不十分な分野といえることができる。しかしながら、実際の歯科臨床では異種の高分子材料同士を組み合わせ使用せざるを得ない現状であるので、この点を解決したいと考えた。

2. 研究の目的

上述の背景を踏まえ本研究の目的は、これまでほとんど接着しなかった異種の歯科用高分子材料同士を強固に接着させ一体化させることにより、これらの材料を自在に組み合わせた各種補綴装置を開発し、ひいては新しい補綴技法を展開することである。

具体的には重合の完了したアクリリックレジンと未重合のコンポジットレジンとの接着に対し効果的な表面処理法を見出すこと、および各種熱可塑性樹脂に対する常温重合レジンへの接着性を評価し、接着性の低い材料に対しては、接着耐久性を向上させる表面処理法を見出すことである。

3. 研究の方法

重合の完了したアクリリックレジンと未重合のコンポジットレジンとの接着に関しては、アクリリックレジンにアクリルリングに包埋後、#400の耐水ペーパーを注水下にて用いて研磨し、平らな被着面を得た。この面をベースとして、以下の7種類の表面処理を行った。すなわち①無処理、②4-META/MMA-TBBモノマー処理後乾燥、③トリボケミカルシリカコーティング処理、④光重

合型ボンディング処理、⑤ジクロロメタン-シランカップリング併用処理、⑥4-META/MMA-TBBモノマー処理後湿潤処理、⑦4-META/MMA-TBBレジンスラリー処理である。その後、37℃温水中に24時間浸漬保管後、5℃と55℃の水中熱サイクルを10,000回負荷し、熱サイクル前後の剪断接着強さをオートグラフを用いて測定した。クロスヘッドスピードは0.5mm/minとし、試料数は10個とした。測定後の破断面の状態を実体顕微鏡で30倍に拡大して観察した。

各種熱可塑性樹脂に対する常温重合レジンへの接着性に関しては、ポリアミド系2種類、ポリエチレンテレフタレート共重合体およびポリカーボネイト系樹脂を選択した。各メーカー指示の方法で重合した。10.0×10.0×3.0mmの大きさに整形し、アクリルリングに包埋後、#400の耐水ペーパーを注水下にて用いて研磨し、平らな被着面を得た。この面をベースとして、以下の8種類の表面処理を行った。すなわち①無処理、②50μmアルミナサンドブラスト処理、③ジクロロメタン5秒処理、④酢酸エチル120秒処理、⑤4-META/MMA-TBBレジンスラリー処理、⑥50μmアルミナサンドブラスト+4-META/MMA-TBBレジンスラリー処理、⑦トリボケミカルシリカコーティング処理、⑧トリボケミカルシリカコーティング+4-META/MMA-TBBレジンスラリー処理である。その後、37℃温水中に24時間浸漬保管後、5℃と55℃の水中熱サイクルを10,000回負荷し、熱サイクル前後の剪断接着強さをオートグラフを用いて測定した。クロスヘッドスピードは0.5mm/minとし、試料数は10個とした。測定後の破断面の状態を実体顕微鏡で30倍に拡大して観察した。

4. 研究成果

重合の完了したアクリリックレジンと未重合のコンポジットレジンとの接着に際し、⑦4-META/MMA-TBBレジンスラリー処理の成績が最も良好で、接着耐久性の低下はみられなかった。すなわち4-META/MMA-TBBレジンスラリーをブラッシュアップ法にて介在させると接着強さと接着耐久性が最も向上した。この知見を得て以来、臨床で本法を応用しているがトラブルは経験しておらず、予後がよい感触を得ている。

熱可塑性樹脂に対する常温重合レジンへの接着性に関しては、ポリエチレンテレフタレート共重合体およびポリカーボネイトは①無処理の成績が良好で、特に処理を施さなく

でも良好な接着性と耐久性を示した。4-META/MMA-TBB レジンスラリーを介在させると接着性が向上し、50 μ m アルミナサンドブラスト後 4-META/MMA-TBB レジンスラリーを介在させるとさらに向上した。これに対し、ポリアミド系熱可塑性樹脂の接着性は極端に低く、ほとんど接着しないことがわかった。4-META/MMA-TBB レジンスラリーは効果があったがその程度は低かった。したがって、本研究の期間内に、臨床的に信頼に足るポリアミド系熱可塑性樹脂の表面処理法を見出すまでに至らなかった。この点のみが今後の課題として残された。

以上を総括すると、アクリリックレジンに4-META/MMA-TBB レジンスラリーを塗布してから未重合のコンポジットレジンを圧接し、その後重合すると接着性が向上する。また、ポリエチレンテレフタレート共重合体およびポリカーボネイト系樹脂には一般に表面処理は不要であるが、4-META/MMA-TBB レジンスラリーを塗布するとさらに常温重合レジンとの接着性が向上し、確実性が増す。一方、ポリアミド系熱可塑性樹脂は常温重合レジンとほとんど接着しない。4-META/MMA-TBB レジンスラリーを塗布すると接着性が向上するが、その効果は小さい。

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 4 件)

1. Shimizu H, Kawaguchi T, Takahashi Y, Use of a light-activated composite resin to adjust intaglio surface of removable prosthesis
Asian Pac J Dent, 11: 51-53, 2011.
2. Shimizu H, Kawaguchi T, Mutobe H, Kiyokuni Y, Takahashi K, Takahashi Y, Bonding of a gingival shade composite to a denture base resin using a chemically activated 4-META resin, Eur J Prosthodont Restor Dent, 7-10, 2011.
3. Takahashi Y, Yoshida K, Shimizu H, Effect of location of glass fiber-reinforced composite reinforcement on the flexural properties of a maxillary complete denture in vitro. Acta Odontologica Scandinavica, 69: 215-221, 2011.
4. 濱中一平、清水博史、高橋 裕、ポリエチレンテレフタレート系樹脂に対する常温重合レジンの接着強さ。接着歯学、29

: 125-127, 2011.

[学会発表] (計 7 件)

1. 中島寛明、森川善一、濱中一平、清水博史、高橋 裕、ハイブリッドセラミックスの接着性に及ぼすレジンセメントの種類と表面処理の影響。第 28 回日本接着歯学会学術大会、2010.1.23, 24 松江市。
2. Tokue A, Shimpo H, Hamanaka I, Shimizu H, Takahashi Y, Ohkubo C, Flexural properties of relined thermoplastic denture base resins. 89th IADR, March 16-19, 2011, Sun Diego, USA.
3. 濱中一平、清水博史、中 四良、新郷由紀子、高橋智子、高橋 裕、ノンクラスプデンチャー用床用材料と常温重合レジンの接着強さ。平成 22 年度(社)日本補綴歯科学会九州支部学術大会、2010.11.27, 28 熊本市。
4. 濱中一平、清水博史、高橋 裕、ノンクラスプデンチャー用床用材料と常温重合レジンの接着強さ。第 29 回日本接着歯学会学術大会、2011.2.5, 6 岡山市
5. 濱中一平、岩本実紗、長谷英明、清水博史、高橋 裕、ポリエチレンテレフタレート樹脂と常温重合レジンの接着強さ。平成 23 年度 (社)日本補綴歯科学会九州支部学術大会、2011.11.6 長崎市。
6. 岩本実紗、濱中一平、清水博史、高橋智子、新郷由紀子。中 四良、小柳進祐、高橋 裕、ポリエチレンテレフタレート系樹脂と即時重合レジンの接着強さ。第 38 回福岡歯科大学学会総会、2011.12.11 福岡市
7. 濱中一平、岩本実紗、宮口 厳、勝俣辰也、池浦政裕、清水博史、高橋 裕、ノンクラスプデンチャー用材料の諸性質。第 121 回(社)日本補綴歯科学会学術大会、2012.5.26, 27 横浜市

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：

種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

清水博史 (SHIMIZU HIROSHI)
福岡歯科大学・歯学部・准教授
研究者番号：80162709

(2) 研究分担者

津江文武 (TSUE FUMITAKE)
福岡歯科大学・歯学部・助教
研究者番号：80454932

(3) 連携研究者

()

研究者番号：