

機関番号：12602

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2010

課題番号：21791933

研究課題名（和文） フッ素系軟質裏装材の開発

研究課題名（英文） Development of Fluorinated Soft Lining Materials

研究代表者

春日 祐太（KASUGA YUTA）

東京医科歯科大学・歯学部附属病院・医員

研究者番号：60510378

## 研究成果の概要（和文）：

長期に安定した粘弾性をもつ新しい軟質裏装材を開発するために、1分子中のフッ素原子数が多いフッ素系モノマーである、ドデカフルオロヘプチルメタクリレートを用いた SR12F とトリデカフルオロオクチルメタクリレートを用いた SR13F の 2 種類のフッ素系軟質裏装材を試作し、アクリル系とシリコン系の軟質裏装材と比較し、粘弾性、吸水・溶解性、耐着色性に関する基礎的な物性評価を行った。SR13F はアクリル系に比べて、大きな粘性流動を示し、有意に小さい吸水量と溶解量を示したことから、SR13F は、長期に安定した粘弾性的性質をもつ可能性が示唆された。

## 研究成果の概要（英文）：

The purpose of the present study was to compare the properties required for the clinical application of soft lining materials containing a fluorinated monomer *versus* that of conventional materials in an effort to develop a new soft lining material with long-term stable viscoelastic properties. Two experimental materials containing dodecafluoroheptyl methacrylate (SR12F) or tridecafluorooctyl methacrylate (SR13F) showed greater viscous flow, low water sorption, low solubility, and good staining resistance compared to the commercial products. The results indicate that the soft lining materials containing fluorinated monomers might have a potentially long-term stable viscoelastic behavior.

## 交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2010 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：全部床義歯補綴学・歯科理工学

科研費の分科・細目：歯科医用工学・再生歯学

キーワード：軟質裏装材，フッ素系モノマー，粘弾性

## 1. 研究開始当初の背景

高齢社会の訪れとともに、高度に顎堤が吸収した、全部床義歯のいわゆる難症例が増加しつつある。図 1 に示すように、これら吸収が著しい症例では、顎堤粘膜の菲薄化を伴っ

ていることが多く、床下粘膜にショックアブゾーバーの働きがなくなり、咬合圧は床下粘膜により緩和されることなく、直接歯槽骨に伝えられるため、顎堤の負担が増大する。そして、硬い義歯床と歯槽骨との間に挟まれた

薄い粘膜は咬合時の圧に耐えられず、疼痛を発生することになる。そこで、義歯床内面を粘膜と類似した軟質材料で裏装し、失われた顎堤粘膜の粘弾性を補い、咬合時の衝撃を緩和し、かつ顎堤全域へ咬合圧を分散する必要が生じる。軟質裏装材を下顎総義歯に使用することにより、患者の咀嚼効率や咀嚼力が上昇し、さらに咀嚼リズムも向上させられる。

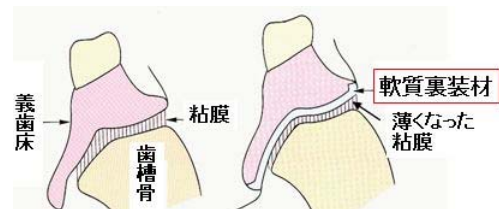


図1 軟質裏装材の必要性

現在では、主にアクリル系とシリコン系の2種類の軟質裏装材が使用されている。シリコン系軟質裏装材は、長期的に弾性が持続するが、床用レジンとは化学的に接着せず、使用に際しては接着剤の使用が不可欠であり、十分な接着力を有していない。一方、アクリル系軟質裏装材は、シリコン系軟質裏装材の弾性とは異なり、粘膜に類似した粘弾性を示し、高い応力緩和能を有し、義歯床との接着がよいものの、添加されている可塑材の溶出によって徐々に粘弾性を失う。さらに、吸水性や表面のあれによる汚染も指摘されている。このように、軟質裏装材は汚染されやすく、口腔衛生上汚染されにくく、また耐久性の高い材料が求められる。

これまでフッ素樹脂は、撥水・撥油性、耐汚染性、化学的安定性などの特性から、歯科領域への応用が試みられてきており、早川らは、吸水性が極めて小さく、アクリル樹脂との接着性に優れ、材質的に安定したフッ素系軟質裏装材(クレパート, 呉羽化学工業)を開発した。さらに、早川らはクレパートのすぐれた物性を失うことなく、操作性および軟性を改良した、餅状フッ素系軟質裏装材(クレパート・ドウ, 呉羽化学工業)を開発した。しかし、モンリオール議定書成立後、生産が全廃となった四塩化炭素を、製造過程上使用する理由から、現在は入手することができない。

したがって、1945年に Mathews が軟質裏装材としての臨床を報告して半世紀以上経過しようとしているにもかかわらず、長期にわたって使用できる軟質裏装材は現在のところ存在しない。

## 2. 研究の目的

フッ素樹脂の特性に着目し、四塩化炭素の使用がなく製造でき、長期にわたって使用できる軟質裏装材の開発するために、1分子中

のフッ素原子数が多いフッ素系モノマーである、ドデカフルオロヘプチルメタクリレートとトリデカフルオロオクチルメタクリレートをを用いたフッ素系軟質裏装材を、アクリル系とシリコン系の軟質裏装材と比較し、基礎的な物性評価を行った。

## 3. 研究の方法

### 材料と試験片の準備

使用する軟質裏装材は、試作フッ素系軟質裏装材として、ドデカフルオロヘプチルメタクリレートをを用いたSR12Fと、トリデカフルオロオクチルメタクリレートをを用いたSR13F、アクリル系軟質裏装材としてベルテックスソフト(VS)、シリコン系軟質裏装材としてモロプラストB(MB)とする。表1に実験材料の詳細を示す。試験片は、粘弾性の評価において直径10mm、高さ10mmの円柱状、吸水量・溶解量、耐着色性の評価において直径20mm、厚さ1mmの円盤状とした。

表1 本研究に用いた軟質裏装材

コード	メーカー	成分(mass%)	重合条件
SR12F	試作	ドデカフルオロヘプチルメタクリレート(12F) (12%) フッ化ビニリデン ヘキサフルオロプロピレン共重合体 (55%) メトキシジエチレングリコールメタクリレート (12%) ポリメチルメタクリレート (1%) 疎水性シリカ (20%)	20℃から100℃まで60分間で昇温し、100℃、30分間
SR13F	試作	トリデカフルオロオクチルメタクリレート(13F) (12%) フッ化ビニリデン ヘキサフルオロプロピレン共重合体 (55%) メトキシジエチレングリコールメタクリレート (12%) ポリメチルメタクリレート (1%) 疎水性シリカ (20%)	20℃から100℃まで60分間で昇温し、100℃、30分間
VS	Vertex Dental	ポリエチルメタクリレート エチルメタクリレート	70℃, 30分間+100℃, 30分間
MB	Detax	ポリジメチルシロキサン	100℃, 2時間

### 粘弾性

粘弾性の測定にはクリープメーターを使用し、1.96Nで60秒間荷重した。測定は37度水中に24時間浸漬した後と、1週間浸漬した後に行った。図2に24時間浸漬後のVSの粘弾性測定結果の一例を示す。h1を瞬間弾性変位、h2-h1を遅延弾性変位、h3-h2を粘性流動として、評価した。

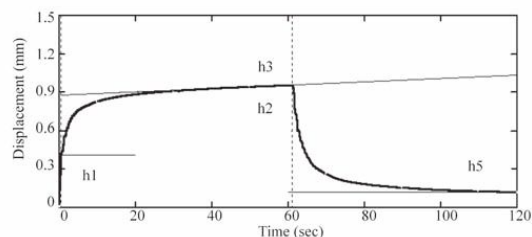


図2 粘弾性測定の一例(VS)

### 吸水量・溶解量

吸水量と溶解量の測定は、ISO

10139-2:2009 に準拠して行った。作製した試験片を乾燥させ恒量となった重量を  $W_0$  とし、その後、1 週間の水中浸漬を行い、直後の重量を  $W_1$  とし、再度乾燥させ恒量となった重量を  $W_2$  とし、下記式より吸水量( $W_s$ )と溶解量( $S_o$ )を求めた。V は試験片の体積。

$$W_s = (W_1 - W_2) / V$$

$$S_o = (W_0 - W_2) / V$$

#### 耐着色性

浸漬溶液として 2% コーヒー水溶液と 0.1%  $\beta$  カロチン/オリーブオイル溶液を用い、各試験片を 37 で 1 週間浸漬した。浸漬前後の色度  $L^*a^*b^*$  を、分光色差計を用いて測定し、下記式より色差

E を求めた

$$\Delta E = [(\Delta L^*)^2 + (\Delta a^*)^2 + (\Delta b^*)^2]^{1/2}$$

#### 統計処理

粘弾性においては、二元配置分散分析を行いチューキーの多重比較検定を、吸水量・溶解量、耐着色性においては、一元配置分散分析を行いチューキーの多重比較検定を行った。

### 4. 研究成果

#### 粘弾性

瞬間弾性変位、遅延弾性変位、粘性流動の結果を図 3、図 4、図 5 にそれぞれ示す。

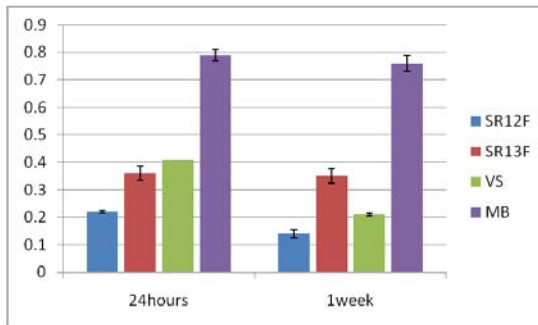


図 3 瞬間弾性変位(mm)

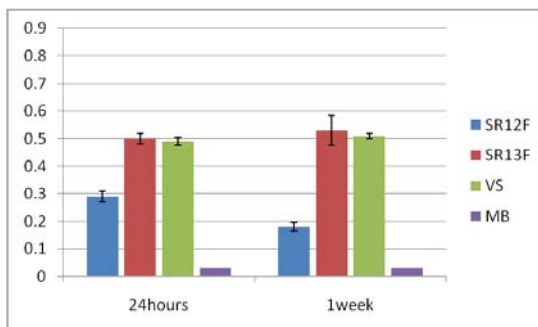


図 4 遅延弾性変位(mm)

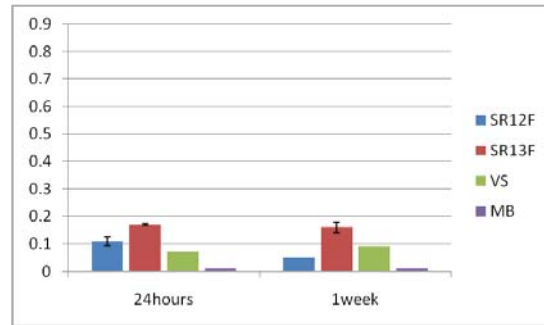


図 5 粘性流動(mm)

#### 吸水量・溶解量

吸水量・溶解量の結果を図 6 に示す。

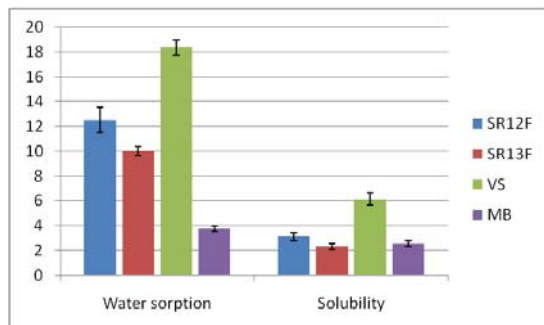


図 6 吸水量・溶解量(μg/mm³)

#### 耐着色性

コーヒー浸漬と  $\beta$  カロチン浸漬における色差の結果を図 7 に示す。

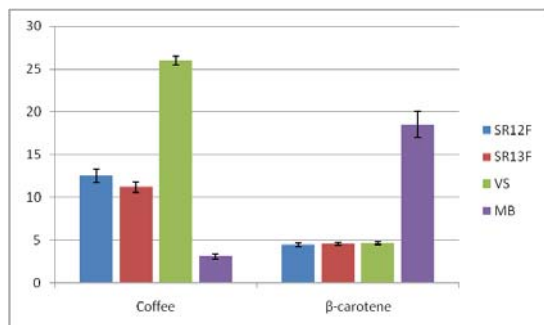


図 7 耐着色性(E)

#### 結論

SR12FとSR13FはVSとMBに比べ大きな粘性流動を示した。MBは変位の大半を瞬間弾性変位が占めた。SR13FとMBの粘弾性的性質は、1週間の水中保管において、有意な変化はみられなかった。SR12FとSR13Fの吸水量と溶解量はVSに比べ有意に小さい値を示した。MBの吸水量と溶解量は試験材料の中で最も

小さい値を示した。コーヒー浸漬においては，SR12FとSR13Fの耐着色性はVSとMBの間であり，βカロチン浸漬においては，SR12F，SR13F，VSがMBより有意に大きい耐着色性を示した。

したがって，SR13FはVSに比べて，大きな粘性流動を示し，有意に小さい吸水量と溶解量を示したことから，SR13Fは，フッ素樹脂の特性である撥水性による吸水量の低下とVSとは異なり可塑剤や残留モノマーの溶出の抑制によって，長期に安定した粘弾性的性質をもつ可能性が示唆された。

## 5．主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

Kasuga Y, Takahashi H, Akiba N, et al.  
(計6名)：Basic evaluation on physical properties of experimental fluorinated soft lining materials. Dent Mater J 2011; 30(1): 45-51. (査読有)

〔学会発表〕(計4件)

Kasuga Y, Takahashi H, Inoue M, et al.  
Evaluation on physical properties of experimental fluorinated soft lining materials. 89th General Session & Exhibition of the IADR, San Diego, California, March 18, 2011.

春日祐太，高橋英和，井上実ほか，試作フッ素系軟質裏装材の基礎的物性評価．第75回口腔病学会学術大会，東京，2010年12月4日．

Kasuga Y, Takahashi H, Akiba N, et al.  
Development of Soft Denture Lining Materials Containing Dodecafluoroheptyl-methacrylate or Tridecafluorooctyl-methacrylate. 88th General Session & Exhibition of the IADR, Barcelona, Spain, July 15, 2010.

春日祐太，高橋英和，秋葉徳寿ほか，新しいフッ素系軟質裏装材の開発．第119回日本補綴歯科学会学術大会東京，2010年6月13日．

## 6．研究組織

(1)研究代表者

春日 祐太 (KASUGA YUTA)

東京医科歯科大学・歯学部附属病院・医員  
研究者番号：60510378