

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23592869

研究課題名(和文)健康長寿をサポートする軟質リライン材の新型接着性モノマーの開発

研究課題名(英文)Development of adhesive monomer for resilient liner to support longevity with wellness of elders

研究代表者

木本 統 (Kimoto, Suguru)

日本大学・松戸歯学部・講師

研究者番号：10267106

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：メタクリル基とアリル基を分子内に有する接着性モノマーである3-メタクリロキシ-1-プロペンと11-ヒドロキシ-ウンデセンの合成した。合成後の接着性モノマーをメチルメタクリレートモノマーに配合した複合物をシリコーン系軟質リライン材とアクリルレジン接着剤として使用し、接着力を評価するため引張試験を行った。しかしながら既存の接着剤に比較し接着力が小さい値を示した。

研究成果の概要(英文)：The silicone-based resilient denture liners have common shortcoming, peeling from denture base. Considering Japan is aging society, elder complete denture wearers are likely to use dentures with resilient denture liner for long-term due to their highly absorbed alveolar ridge. Therefore, the peeling of resilient denture liner from the denture base is huge issue. The aim of this study was to develop an adhesive monomer for resilient liner to support denture wearers with living well.

We synthesized two types of adhesive monomer for resilient liner, 3-methacryloxy-1-propen and 11-hydroxy-undecene. After the adhesive monomers were applied, the bonding strength between denture base and resilient denture liner were confirmed by tensile testing. However, the bonding strength between denture base and resilient denture liner obtained from newly developed adhesive was not greater than that from existing adhesives.

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：軟質リライン材 接着性モノマー

1. 研究開始当初の背景

高齢化社会に関わる諸問題が、我が国において論議され始めて久しいが、この問題は無歯顎患者の増加や総義歯患者の難症例化という形で歯科医療に影響を及ぼしつつある。高齢者が質の高い生活を送れる様々な環境を整えることは国家的な課題である。死に至るまで残ると言われる食欲。年若い、失うものが多い高齢者が『食の楽しみ』まで失わぬよう努力することは我々歯科医療関係者に託された社会的使命である。

近年、歯科治療の甲斐なく無歯顎となった患者に対し、積極的にインプラント治療が行われ、良好な結果を残している。しかしながら、局所的問題、全身的問題、精神的問題、経済的問題によって、この治療を享受できない患者が数多く存在する。オッセオインテグレートッドインプラントの母国であるスウェーデンですらインプラント治療を受ける患者の割合は全補綴治療対象者の10%未満であり、インプラント治療が最優先の治療と成り得ていないのが現状である。インプラント治療を受けられず、さらに通常の総義歯治療も効果がない患者はどうすれば良いのであろうか？

我々はその答えを探すべく、軟質リライン材に着目し、その臨床効果に科学的検証を加えるために軟質リライン材を用いた臨床研究や基礎的研究を行ってきた。特に、1999年から2002年、2003年から2006年、そして2007年から2010年において、基盤研究(C)(2)での科学研究費の助成を3度にわたり賜り、2つの無作為割付臨床試験とその予後調査を実施し、10本の論文として報告してきた。その内容は、無歯顎患者にシリコン系軟質リライン材を使用することにより1)咀嚼能力が向上する2)義歯調整回数が減少する3)患者は通法義歯より軟性義歯を好むなどの臨床的効果が認められること。アクリル系軟質リライン材を使用することで1)義歯装着後の褥創出現を抑制する2)装着直後の痛みを抑制し満足度が高い3)臨床経験年数が少なくても患者の満足度が高い義歯を提供できるなどの臨床的効果が認められることなどである。幅広い被験者層を元に得られたこのデータは、一般臨床家の診療所を無歯顎患者が訪れた時、通常の義歯治療では満足のない食事が叶わなくても、また、外科処置を必要とするインプラント治療を用いなくても、『食の楽しみを諦めた患者』を軟質リライン材の使用で救済可能であることを明らかにした。

一方、我々は臨床試験中に軟質リライン材の材料学的欠点を目のあたりにしてきた。写真に示すように床用



レジンからシリコン系軟質リライン材が剥離し、患者さんが満足して使用しているにも関わらず、義歯の使用ができなくなるのである。この原因は、接着剤が加水分解するためと考えられる。そこで、我々はシリコン系軟質リライン材と床用アクリルレジンとの接着を改善する接着性モノマーを開発し、食事に苦勞する無歯顎患者が長期にわたり軟質リライン材の恩恵を享受できることを目指すこととした。これが本研究の着想に至った背景である。

2. 研究の目的

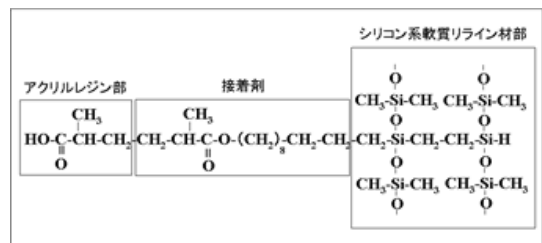
シリコン系軟質リライン材と床用アクリルレジンとの接着を改善する接着性モノマーを開発し、食事に苦勞する無歯顎患者が長期にわたり軟質リライン材の恩恵を享受できることを目的として研究を実施した。

3. 研究の方法

1) 接着性モノマーの合成

合成の概念

図に示すように、床用レジン部のメチルメタクリレートが共重合可能なメタクリル基(CH<sub>2</sub>=C[CH<sub>3</sub>]-COO-)とシリコン系軟質リライン材の水素シロキサン(H-Si-OH)の水素が付加重合するアリル基(CH<sub>2</sub>=CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-)を1分子内に有する接着性モノマーを合成する。



合成操作

：三口丸底フラスコ内に酢酸エチルを加え、3-ハイドロキシ-1-プロテンおよびトリエチルアミンを溶解する。

：右図のように三口丸底フラスコを氷冷し、滴下ロートを用いてメタクリロイルクロリドを少

量ずつ滴下し、3-ヒドロキシ-1-プロテンの水酸基にメタクリロイルクロリドを縮合させ3-メタクリロイロキシ-1-プロペン合成する。

：右図のように減圧下でフラスコ内に残留する酢酸エチルを留去する。

：残留物をカラム分離(充填材:シリカゲル、展開溶媒:ヘキサン)し、3-メタクリロイロキシ-1-プロペンの単離・精製を行う。

：～ の手順で、5-ヒドロキシ-1-ウンデセン、11-ヒドロキシ-1-ウンデセンの水酸基にメタクリルクロリドを縮合し、5-メタクリロイロキシ-1-ウンデセン、11-メタクリロイロキシ-1-ウンデセンを合成する。



## 2) 合成物の確認

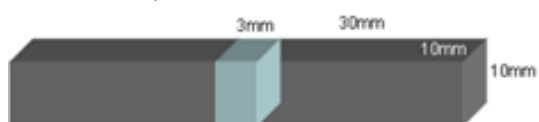
合成の確認は本学所有のNMR測定装置(写真)によって行う。すなわち、合成物の<sup>1</sup>Hおよび<sup>13</sup>C NMRを測定し、NMRピークの強度比およびその化学シフトから、分子構造を確認し、目的とした接着性モノマーができていのかを判断する。



## 3) 接着強さの測定

試験体の形態と引っ張り試験の条件

右図に示すように断面積10cm<sup>2</sup>幅3cmの軟質リライン材を断面積10cm<sup>2</sup>幅30cmの床用アクリルレジンで挟み込んだ試験体を作成し、インストロン型万能試験機を用いクロスヘッドスピード5mm/minの条件下で引っ張り試験を行う。



### 試験体作成に使用する材料

軟質リライン材は加熱重合型シリコン系のMolloplast Bと即時重合型シリコン系のSoflilinerを使用軟質リライン材とし、床用レジンに松風アーバンとする。コントロール群は市販品専用の接着剤使用群とし、実験群は開発した接着性モノマー使用群とする。

### 引っ張り試験前の試験体の保管条件

口腔内環境の想定条件:37℃温水中に1日、1週、1か月、3か月、6か月間保管後の引っ張り試験を行う(参考文献1)

口腔内の温度変化の想定条件:5℃から55℃へ水温を上昇させながら1000、10000、20000回のサーマルサイクル負荷後の引っ張り試験を行う。各測定時期において10個の試験体を使用する。

### 4) 破断面の観察

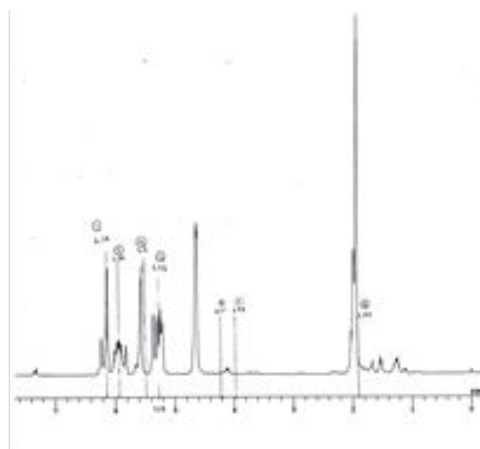
肉眼にて破断面を観察し、凝集破壊、界面破壊、混合破壊に分類する。

### 5) データの分析

接着剤の種類(専用接着剤、試作接着剤)、軟質リライン材の種類(モロプラストB、ソフリライナー)を分析因子、水中保管日数やサーマルサイクル回数を共分散として共分散分析を行い開発した接着性モノマーの効果判定する。

## 4. 研究成果

メタクリル基とアリル基を分子内に有する接着性モノマーである3-メタクリロキシ-1-プロペンと11-ヒドロキシ-ウンデセンの合成し、NMRピークの強度比およびその化学シフトから分子構造を確認し合成の成功を確認した。



合成後の接着性モノマーをメチルメタクリレートモノマーに配合した複合物をシリコン系軟質リライン材とアクリルレジンの接着剤として使用し、接着力を評価するため引張試験を行ったが既存の接着剤の接着力を超えることが出来なかった。肉眼にて破断面を観察したところ界面破壊が多く認められた。

#### 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0件)

〔学会発表〕(計0件)

〔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

木本 統 (Kimoto Suguru)

研究者番号：10267106

日本大学・松戸歯学部・講師

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし

( )

研究者番号：