

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 12 日現在

機関番号：32710
研究種目：若手研究(B)
研究期間：2011～2012
課題番号：23792195
研究課題名（和文） 歯質接着耐久性を有する機能性モノマーおよび重合開始剤の分析と開発
研究課題名（英文） Analysis and development of functional monomers and polymerization initiators having durable bond to tooth
研究代表者
英 將生 (HANABUSA MASAO)
鶴見大学・歯学部・助教
研究者番号：80329226

研究成果の概要（和文）：

歯科接着材料の歯質接着のメカニズムで未だ不明な、機能性モノマーの分子構造と歯質接着性能との関連性、また、機能性モノマーや光重合開始剤の違いが重合度や歯質接着に及ぼす影響について検討した。機能性モノマーや光重合開始剤の種類により、重合度は異なる結果が得られた。歯質接着性能に関わる重合度に異なる結果が示されたことから、機能性モノマーならびに光重合開始剤の違いは歯質接着に影響を及ぼすことが考えられた。

研究成果の概要（英文）：

This study investigated the relation between molecular structures of functional monomers and their bonding ability to tooth and the influence of variations in the monomers and photo-polymerization initiator on the degree of conversion and the properties of the bond. The variations significantly affected the degree of conversion. The functional monomers and the photo initiator were considered to affect the bond as the degree of conversion surely concerns in the performance of the bonding.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,200,000	660,000	2,860,000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学・保存治療系歯学

キーワード：生体材料，ナノ材料，表面・界面物性，歯学，有機化学

1. 研究開始当初の背景

近年、歯質接着性材料は、コンポジットレジンやラミネートベニア、補綴物装着、矯正治療、動揺歯の固定など日常臨床の大半に用いられおり、MI (Minimal intervention) の

概念や審美に対する意識向上も相まって、歯質接着性材料を応用する機会は増えることが考えられた。この歯質接着性材料において、優れた機能性を有する歯質接着性材料の開発は、歯科材料メーカーが力を注いでいる課

題であり、各メーカーが独自の機能性モノマーを合成し、製品に使用している。歯質接着性材料には、様々な成分が配合されているが、中でも、機能性モノマーと光重合開始剤は歯質への接着特性に大きく影響する重要な因子であると考えられた。機能性モノマーの化学的接着能に関しては、歯質接着システムに含有されている代表的な機能性モノマー、MDP, 4-MET, Phenyl-P が用いられて、アパタイトとの化学的相互作用が分析、評価されていた。さらに、MDP, 4-MET, Phenyl-P を含有する市販セルフエッチングシステムについて、サーマルサイクル試験後の接着強さをもとに接着耐久性を比較検討した結果、化学的結合能の優れた機能性モノマーを含有する接着システムほど優れた接着耐久性を示すことが明らかにされていた。また、研究代表者は、歯質接着性能や接着耐久性に関与する歯質接着材料の物性が、機能性モノマーの違いによって異なることを実験結果から得ていた。しかしながら、機能性モノマーの分子構造と歯質接着性能との関連性については明らかにされておらず、さらに、光重合開始剤の違いが重合度や歯質接着に及ぼす影響も検討されていなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、機能性モノマーならびに光重合開始剤の違いが歯質接着に及ぼす影響をナノスケールで解析し、検討することである。

「歯質接着」は、今日の歯科医療を支える主要技術であり、より簡便な操作性と優れた接着性を目指し、今なお研究開発が続けられている。本研究より得られる結果は、高性能の接着機能性材料開発に不可欠なものとなり、骨や歯などの硬組織疾患の治療に極めて有用である。本研究の成果は歯科医療の発展

に資するのみでなく、新規歯科医療産業創成にもつながり、その臨床的意義および社会的意義は大きいものと考えられた。

3. 研究の方法

以下の項目に焦点をあて、機能性モノマーを理論設計するための基礎的知見を集積した。

主な実験は、機能性モノマー (MDP, 4-MET, SR 等) のみ異なる試作ワンステップ接着材を作製して行った。

(1) 機能性モノマーのアパタイトに対する化学的相互作用を分析

①ハイドロキシアパタイトに機能性モノマーを反応させ、得られた混和物を X 線回折により結晶学的に検討した。

②機能性モノマーのみ異なる試作接着材を使用し、各種機能性モノマーとハイドロキシアパタイトの化学的相互作用による重合率の変化を、フーリエ変換型赤外分光 FT-IR で、残存二重結合量の経時変化にて評価した。吸光度の測定は、光照射前および光照射後の所定の時期に行い、残存二重結合量は光照射前の二重結合量に対する百分率で表示することにより比較検討した。

③機能性モノマーのみ異なる試作接着材を使用し、各種機能性モノマーとハイドロキシアパタイトの化学的相互作用による物性の変化を、微小硬度測定機を使用して評価した。試作接着材を光照射後、硬化した試料で硬さを測定し、測定結果から比較、検討した。

(2) 光重合開始剤の違いが歯質接着システムの重合度に及ぼす影響を比較検討

光重合開始剤のみ異なる試作接着材を使用し、光重合開始剤の違いによる重合率の変化を、

フーリエ変換型赤外分光 FT-IR で、残存二重結合量の経時的変化にて評価した。吸光度の測定は、光照射前および光照射後の所定の時期に行い、残存二重結合量は光照射前の二重結合量に対する百分率で表示することにより比較検討した。

(3) 歯質接着界面をナノスケールで解析し、成分と接着特性との関連性を検討

①機能性モノマーのみ異なる試作接着材で研削された象牙質被着面に歯面処理を行い、コンポジットレジンを経層充填した。試料を水中浸漬後、切断、トリミングして、微小引張試験を行った。測定結果から、機能性モノマーの接着性能を比較、検討した。

②機能性モノマーのみ異なる試作接着材で研削された象牙質被着面に歯面処理を行い、コンポジットレジンを経層充填した。試料を水中浸漬、切断後、樹脂包埋し、超薄切片を作製した。この試料の接着界面を TEM にて観察した。

4. 研究成果

(1) 機能性モノマーのアパタイトに対する化学的相互作用を分析

X 線回折の結果から、新規の機能性モノマーはハイドロキシアパタイトと反応し、加水分解されにくいカルシウム塩を形成することが示された。そのため、化学的相互作用があり、接着耐久性を有するものと考えられた。

FT-IR による重合率測定結果から、機能性モノマーの種類によって接着材の重合率に差があることが示された。また、各種機能性モノマーにハイドロキシアパタイトを添加したときの重合率も、機能性モノマーの種類によって重合率に差があることが示された。ハイドロキシアパタイトを添加したときの

重合率では、特定の機能性モノマーで重合率の上昇が認められ、ハイドロキシアパタイトと化学的相互作用の強いと考えられる機能性モノマーでこの上昇がみられた。

硬さの測定結果から、機能性モノマーの種類によって硬化後の接着材の硬さに差があることが示された。また、各種機能性モノマーにハイドロキシアパタイトを添加したときの硬さも、機能性モノマーの種類によって硬さに差があることが示された。特定の機能性モノマーで硬さの上昇が認められ、ハイドロキシアパタイトと化学的相互作用の強いと考えられる機能性モノマーでこの上昇がみられた。

(2) 光重合開始剤の違いが歯質接着システムの重合度に及ぼす影響を比較検討

各種機能性モノマーに異なる光重合開始剤を添加した試料の重合率を、FT-IR で測定した結果から、光重合開始剤の違いは重合率に影響を及ぼす結果が得られた。この結果から、特定の光重合開始剤での重合率の低下は、機能性モノマーの酸が影響を及ぼすと考えられた。

(3) 歯質接着界面をナノスケールで解析し、成分と接着特性との関連性を検討

微小引張試験の結果から、機能性モノマーの種類によって接着材の接着強さに差があることが示された。

微小引張試験で示された接着強さの差、および、機能性モノマーの違いによる接着界面の形態を明らかにするために試作接着材と象牙質との接着界面の TEM 観察を行った。この各種機能性モノマー含有の試作接着材と象牙質との接着界面の TEM 観察からは、各種機能性モノマー間で接着界面の様相が僅かに異なるものの、顕著な形態の差は観察され

なかった。

以上の結果から、機能性モノマーならびに光重合開始剤の違いは、その機能性モノマーの持つ特性により異なり、歯質接着に影響を及ぼすことが考えられた。

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)

[学会発表] (計1件)

M. Hanabusa, Y. Yoshida, K. Yoshihara, T. Okihara, Y. Momoi, B. Van Meerbeek
Potential Interference of Functional Monomers with Polymerization Efficiency of Adhesives.

The IADR 91st General Session & Exhibition
3.20-23, 2013

Washington State Convention center,
Seattle, Washington, USA.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

英 将生 (HANABUSA MASAO)

鶴見大学・歯学部・助教

研究者番号：80329226

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし