

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 19 日現在

機関番号：32665

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24792156

研究課題名(和文)機能性を付与した支台築造用コンポジットレジンの開発

研究課題名(英文)Development of the functional abutment construction of resin composite

研究代表者

内田 僚一郎(UCHIDA, RYOICHIRO)

日本大学・松戸歯学部・助教

研究者番号：10623960

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：

コンポジットレジンを用いたレジンコアは、鋳造コアに対して歯根破折のリスクが少ないことから支台築造用材料として広く使用されているが、機能性を付与したレジンコアはあまり多くない。そこでフッ素徐放性機能を付与した支台築造用コンポジットレジンを開発するべく、基礎検討としてフッ素徐放性モノマーを添加した支台築造用コンポジットレジンを試作し、物性試験およびフッ素徐放量測定を行い、フッ素徐放性モノマーの最適添加量を決定した。しかしながらフッ素イオンの徐放量は非常に少なく、う蝕原因菌に対する抗菌性試験を行った結果、抗菌性を付与するまでには至らないことを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：

In materials for abutment tooth construction, the resin composite core is used more widely than casting core, because there are few risks of the root fracture. However the functional resin composite cores are not many. Therefore in order to develop resin core with fluoride released, we produced resin composite which added a fluoride release-monomer and performed experiment of mechanical property and measurement of the quantity of fluoride release, then decided quantity of most suitable addition of the fluoride release-monomer. However, there was very little quantity of fluoride release, the antibacterial examination for the caries pathogen clarified that the experimental resin composite could not require the concentration of antibacterial properties.

研究分野：歯科理工学

キーワード：コンポジットレジン レジンコア フッ素徐放性モノマー 抗菌性

1. 研究開始当初の背景

コンポジットレジンとは、歯面処理剤と併用することで強固な接着性を示し、操作性および審美性にも優れることから現在の歯科医療を支える主要な歯科材料に位置付けされている。その重合様式は、光重合型、化学重合型、および光重合型と化学重合型の両方の重合開始剤を含むデュアルキュア型の3種類に分類される。

それぞれの特徴として、光重合型は、照射により重合開始剤(カンファークイノン)が活性ラジカルを発生させ、還元剤として含まれるN,N-ジメチルアミノエチルメタクリレートにより増強されることで、短時間の照射でも高い重合率で硬化をする利点を持つが、欠点として光が到達しない窩洞深部では未重合の硬化不十分な部位が生じる可能性がある。

化学重合型は、練和操作により重合開始剤である過酸化ベンゾイル(BPO)と重合促進剤である第3アミンが反応し、活性ラジカルを発生させ、重合・硬化する重合様式である。化学重合型の利点は、照射が届かない深い窩洞への充填処置に適している点であるが、欠点として徐々に重合・硬化するため、重合反応が完了するまでに時間を要することなどが挙げられる。このため、硬化中は、口腔内の唾液や浸出液等の水分による微量な加水分解や重合阻害、また、咬合力などの刺激による未重合部位の破損の危険性も生じてくる。

デュアルキュア型は、利点として光重合、化学重合のどちらでも重合・硬化するため、窩洞深部で使用される支台築造用コンポジットレジンとして多用される。しかし、デュアルキュア型支台築造用のコンポジットレジンも、照射光が届かない窩洞深部では、化学重合による重合・硬化が行われるため、化学重合型と同様の欠点が指摘され、窩洞深部の重合・硬化には不安が残る。その解決策として、従来のBPO-第三アミン系によるラジカル重合よりも重合率の高い、優れた重合性を持つコンポジットレジンの開発が求められるが、その報告は依然として少ないままである。

2. 研究の目的

Jun LIらは、従来の化学重合型とは異なり、イオン重合により重合・硬化する新規重合開始剤、および接着性モノマーを用いた試作接着性レジンセメントを開発し、歯科用矯正ブラケットを用いた接着試験においても従来型の接着性レジンセメントに比べ、優れた物性を示すことを報告している(Jun LI et al, DMJ 28(4), 401-408, 2009)。

そこで本研究では、接着性レジンセメントの開発に使用した重合開始システムを利用し、重合開始剤に歯質接着性モノマーである4-メタクリルオキシエチルトリメリット酸

(4-MET)重合促進剤にp-トルエンスルフィン酸ナトリウム(p-TSNa)およびトリルジエタノールアミン(p-DEA)を使用し、イオン重合による優れた重合性を発揮する新たな支台築造用コンポジットレジンの開発および、その物性評価を行うことを目的とする。

また、二次う蝕予防としてフッ素徐放性モノマーであるホスファゼンモノマー(PEM-F)を試作型コンポジットレジンに添加し、フッ素徐放性機能を付与したコンポジットレジン開発についても検討する。

3. 研究の方法

(1) 予備実験として光重合型コンポジットレジンペーストのベースモノマー組成比を決定するために光重合開始剤(カンファークイノン)と新規重合促進剤(p-TDEA)の添加量を0.25wt%と定めた後、フッ素徐放性モノマー(PEM-F)を添加した光重合型コンポジットレジンペーストを試作し、PEM-Fの添加量がコンポジットレジンの機械的強さおよび重合後のフッ素徐放量に及ぼす影響を検討した。すなわちマトリックスレジン Bis-GMA:TEGDMA = 1 mol:1 molの配分比に対して、PEM-Fを未添加群(コントロール)、1 mol添加群、および3 mol添加群の3種類の光重合型コンポジットレジンペーストを試作し(シリカフィラー50 wt%)、曲げ強さの測定、および経時的なフッ素徐放量を測定した。

化学重合型コンポジットレジンペーストについては、イオン重合として重合開始剤に4-MET(26.7 wt%)、p-TSNaおよびp-TDEA(0.25 wt%)を用いて、光重合型と同様の方法で物性試験を検討した。

各群につき15個の試料(2 mm×2 mm×25 mm)を測定し、曲げ試験により得られたデータはOne-way ANOVAとTukey's multiple comparison testにより有意水準5%にて統計処理を行った。

(2) フッ素イオンの抗菌機能に着目し、フッ素イオン濃度の異なる溶液中でう蝕原生菌であるStreptococcus mutans JC2(S. mutans)およびStreptococcus sobrinus SL1(S. sobrinus)を培養し、その抗菌性について検討した。

菌体をBrain heart infusion(BHI)培養液にて37、18時間培養後、菌数を調整して使用した。NaFを用いてフッ素イオン濃度(11, 23, 45, 90, 181, 362, 724, 1448 ppm)の異なる8種のBHI液体培地を調整し、この溶液中に菌体を播種し、37にて18時間インキュベーションした後、培地の濁度を分光光度計にて測定し、菌増殖に伴う濁度の変化からMIC(最小発育阻止濃度)を



抗菌性試験用96wellプレート

決定した。また、殺菌性については菌体を含む各種フッ素イオンの濃度の BHI 溶液を Mitis Salivarius (MS) 寒天培地にて播種後 37、48 時間培養し、菌集落を測定することで決定した。

4. 研究成果

(1) 試作した光重合型コンポジットレジンの PEM-F 添加量による曲げ強さを図 1 に示す。

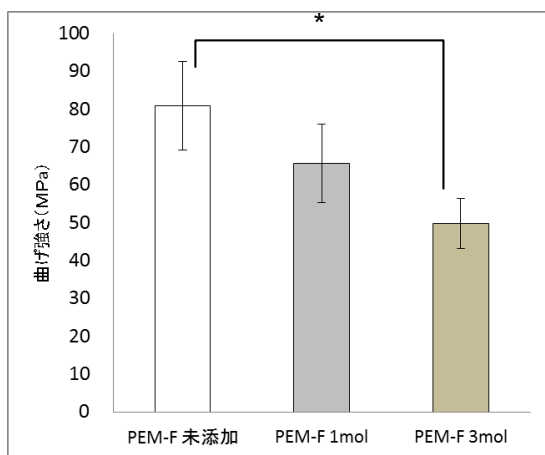


図 1 PEM-F 添加量と曲げ強さ

PEM-F 未添加で約 81 MPa、1 mol 添加で約 66 MPa、3 mol 添加で約 50 MPa となり PEM-F の添加量が増加すると曲げ強さは低下する傾向を示した。また、PEM-F 未添加と 3 mol 添加群の間には有意差が認められた (* : $p < 0.05$)。

つぎに試作光重合型コンポジットレジンの PEM-F 添加量による 1 週間のフッ素徐放量を図 2 に示す。

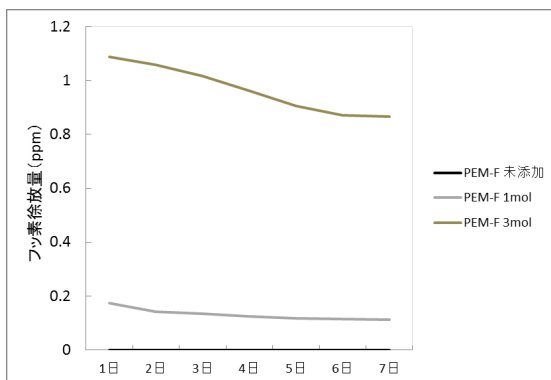


図 2 PEM-F 添加量によるフッ素徐放量

PEM-F 未添加に比べ、PEM-F 1 mol、3 mol 添加群の順にフッ素徐放量は増加する傾向を示した。また、浸漬日数に対するフッ素徐放量については、1 週間浸漬後のフッ素徐放量は PEM-F 1 mol 添加で約 0.1 ppm、3 mol 添加で約 0.9 ppm と持続的に安定した値を示した。

化学重合型についても同様に PEM-F 未添加群 (コントロール) 1 mol 添加群、および 3 mol 添加群の 3 種類の化学重合型コンポジットレ

ジンペーストを試作したが、硬化時間に 1 日以上要し、硬化も不十分なため、曲げ強さの測定、および経時的なフッ素徐放量の測定はできなかった。

(2) 各種フッ素イオンの濃度によるう蝕原性菌の MIC (最小発育阻止濃度) を図 3、MS 寒天培地による殺菌性試験の結果を図 4 に示す。

フッ素イオン濃度 (ppm)	0	11	23	45	90	181	362	724	1448
<i>S. mutans</i>	○	○	○	○	○	○	×	×	×
<i>S. sobrinus</i>	○	○	○	○	○	△	×	×	×

○: 発育阻害なし、△: 部分的に発育阻害、×: 発育阻害

図 3 各種フッ素イオン濃度における *S. mutans*、*S. sobrinus* の最小発育阻止濃度

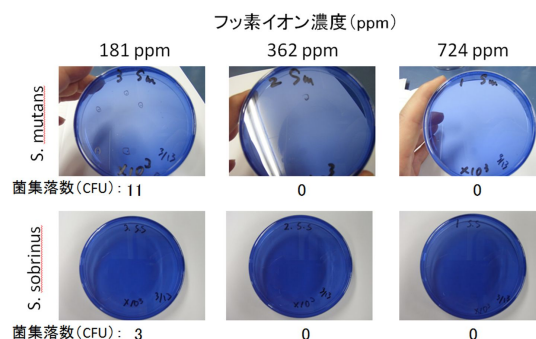


図 4 MS 寒天培地による 48 時間培養後の CFU (菌集落) の測定

異なるフッ素イオン濃度における *S. mutans*、および *S. sobrinus* の MIC は図 3 より、ともに 362 ppm であり、殺菌性を示すにも 362 ppm 以上のフッ素濃度が必要であることが、図 4 より明らかになった。試作したフッ素徐放性コンポジットレジンのフッ素徐放量は 1 日 0.1~0.9 ppm であり、362 ppm のフッ素イオンを溶出するのは現実的に不可能であるため、フッ素の作用のうち 0.05~1 ppm のフッ素濃度で期待される歯質強化作用に着目しながら今後の研究を進めていく。

<まとめ>

フッ素徐放性モノマーを用いた新規レジジン材料の開発について、フッ素徐放性コンポジットレジンを試作し、その硬化体からのフッ素徐放量を調べた。その結果、フッ素イオンの徐放量は非常に少なく、レジジン材料に抗菌性を付与するまでには至らなかった。これまでに得られた結果を、今後はフッ素徐放性モノマーを配合したボンディング材の開発研究に応用し、ボンディング材から徐放されるフッ素イオンをボンディング材/歯質接着界面に集中させ、接着界面のエナメル質および象牙質の二次カリエス防止に役立てていきたい。

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：
出願年月日：
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
内田 僚一郎(UCHIDA RYOICHIRO)
日本大学・松戸歯学部・助教
研究者番号：10623960