

平成 29 年 5 月 19 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26462909

研究課題名(和文) カテコール系接着ポリマー含有シリコンの義歯床粘膜面応用に関する研究

研究課題名(英文) Development of hydrophilic cohesive silicone for the denture

研究代表者

佐藤 奈央子 (Sato, Naoko)

東北大学・大学病院・助教

研究者番号：80510015

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：義歯安定剤を使用することなく口腔粘膜に接着する粘着シリコンの開発を進めている。本研究では、開発中のシリコンサンプルの付着性、付着力について検討した。シリコンサンプルは、操作性は向上したものの、コントロールに比べて低い付着性、付着力を示した。人工唾液存在下では、どのサンプルとも付着性を示さなかった。そこで、カテコール系接着ポリマーを粘着シリコンに応用することで、水の存在下においても接着性を有するシリコン開発を試みている。化学反応時、時間経過後に有毒物質が放出されない材料にすべく改良中である。

研究成果の概要(英文)：In the present study, to develop a glueless retentive material for the denture, two prototype of cohesive silicone were made and their adhesive properties and attachment forces were investigated. Although two prototypes improved manipulation of silicone, their adhesive properties and attachment forces were lower than those for control. Besides, all samples didn't show adhesive property in the presence of artificial saliva. To improve adhesive property of the prototypes with water, the cohesive silicone applied with hydrophilic materials and developing.

研究分野：補綴学分野

キーワード：粘着シリコン

## 1. 研究開始当初の背景

加齢，唾液腺障害，全身疾患の症状，薬剤の副作用，顎・顔面腫瘍の手術，放射線療法などにより唾液分泌量の減少などが起こり，義歯の維持・安定を得るのが困難な患者は多い．このような患者は義歯安定剤使用を余儀なくされることもあるが，強力な義歯安定剤は除去困難であり，口腔粘膜や義歯の残留物が口腔粘膜の炎症を引き起こすことが多々ある．よって，接着性を有する義歯開発が求められている．

一方，頭頸部腫瘍・外傷・先天的欠損による顎骨・顔面欠損は，咀嚼・発音・嚥下などの機能障害ならびに審美障害を生じ，患者のQOLに多大な影響を及ぼす．顔面エピテーゼはシリコンエラストマーなどで製作され，接着剤・インプラント・眼鏡等で維持される．諸外国では，インプラント維持によるエピテーゼ治療が増加しているが，放射線治療の既往，経済的問題などから適応できない場合も多い．従って，維持力として接着剤が多く用いられているが(1)接着剤に対するアレルギー，(2)正確な位置へのエピテーゼ装着困難，(3)皮膚やエピテーゼに付着した接着剤除去困難，などの欠点がある．

以前我々は，シリコンが低アレルギー性であることに着目し，エピテーゼ用に接着性を有する粘着シリコン開発に着手した．これまでに，シリコン製作時にカタリスト/ベースシリコン混和比(CBR)を変化させたサンプルについて，接着性の評価として rolling ball tag test を行い，CBR1/60 付近で硬化後の接着性が増加することを発見した．また，この粘着シリコンは，撤去時にシリコンが被着面に残留することがなく，粘着シリコン内部での凝集破壊が起こっていないこと，アレルギー試験で問題ないことを確認している．

しかしながら，CBR1/60 粘着シリコンは，

(1)サンプルに多量の気泡が混入する，(2)極少量のカタリストの計量に熟練を要する，などの問題があった．義歯床粘膜面応用を目標とし，これらを改善すべく，カタリストと架橋剤の比率を変化させることによって粘着性を出し，2種類の同量のシリコンを反応させる事によって製作できるシリコンを開発し，その試作品サンプルの粘着度について検討，また，人工唾液存在下での検討を行った．

## 2. 研究の目的

開発中の粘着シリコンサンプルの粘着度の高，中2種類を，Type1，Type2とし，エピテーゼ用に開発していた A-2186F(Factor ) カタリスト/ベースシリコン混和比(CBR)1/60 をコントロール(C)として粘着度について検討，また，人工唾液存在下での検討を行い，粘着性を有する親水性義歯材料開発を目標とする．

## 3. 研究の方法

### (1) 実験方法

本実験には試作品サンプルの粘着度の異なる Type1，Type2 と A-2186F(Factor ) (CBR)1/60 をコントロール(C)とした3種類の粘着シリコンが準備された．

#### テクスチャー測定

クリープメーター (RE2-3305B) を用いそれぞれ3サンプルについて、かたさ応力、凝集性、付着性、ガム性応力について、全体圧縮試験を行った。クリープメーター用自動解析ソフトウェア (テクスチャー解析 Windows ver1) にて解析が行われた。感度電圧 1V, 円柱形プランジャー直径 40mm の円柱形

人工唾液下での測定：試作品サンプルの上面にサリベート (サリベート, (株) 帝人ファーマ) を噴霧し、テクスチャー

測定を行う。

#### 4. 研究成果

##### (1) テクスチャー測定

かたさ：Control, Type1, Type2のかたさはそれぞれ $1.33 \pm 0.02$  N,  $0.98 \pm 0.08$  N,  $0.91 \pm 0.03$  Nであった(図1)。ControlのかたさはType1, Type2に比べて優位に高かった( $p < 0.01$ )。

凝集性：Control, Type1, Type2の凝集性はそれぞれ $9.85 \pm 0.004 \times 10^{-1}$ ,  $9.90 \pm 0.06 \times 10^{-1}$ ,  $9.97 \pm 0.02 \times 10^{-1}$ であった(図2)。

付着性：Control, Type1, Type2の付着性はそれぞれ $1387.7 \pm 40.1$  J/m<sup>3</sup>,  $298.5 \pm 4.9$  J/m<sup>3</sup>,  $230.7 \pm 2.8$  J/m<sup>3</sup>であった(図3)。Controlの付着性はType1, Type2に比べて有意に高かった( $p < 0.01$ )。(Type1)は(Type2)に比べて有意に高かった( $p < 0.05$ )。

付着力：Control, Type1, Type2の付着力はそれぞれ $0.47 \pm 0.009$  N,  $0.26 \pm 0.0006$  N,  $0.25 \pm 0.001$  Nであった(図4)。(Control)の付着性は(Type1), (Type2)に比べて有意に高かった( $p < 0.01$ )。(Type1)は(Type2)に比べて有意に高かった( $p < 0.05$ )。

(Control), (Type1), (Type2)の付着力はそれぞれ $9323.8 \pm 184.8$  Pa,  $5245.5 \pm 11.5$  Pa,  $4960.3 \pm 23.0$  Paであった(図3)。(Control)の付着性は(Type1), (Type2)に比べて有意に高かった( $p < 0.01$ )。(Type1)は(Type2)に比べて有意に高かった( $p < 0.05$ )。

(Control), (Type1), (Type2)の付着距離はそれぞれ $3.89 \pm 0.05$  mm,  $1.34 \pm 0.02$  mm,  $1.06 \pm 0.02$  mmであった(図4)。

(Control)の付着性は(Type1), (Type2)に比べて有意に高かった( $p < 0.01$ )。(Type1)は(Type2)に比べて有意に高かった( $p < 0.05$ )。

人工唾液存在下では、すべてのサンプルにおいて、ほとんど付着力は測定できなかった。

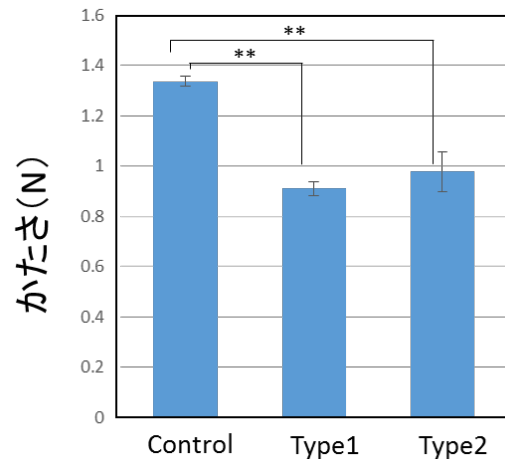


図1 かたさ(荷重)(N)

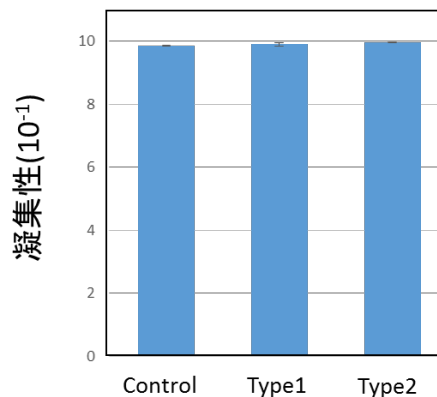


図2 凝集性( $10^{-1}$ )

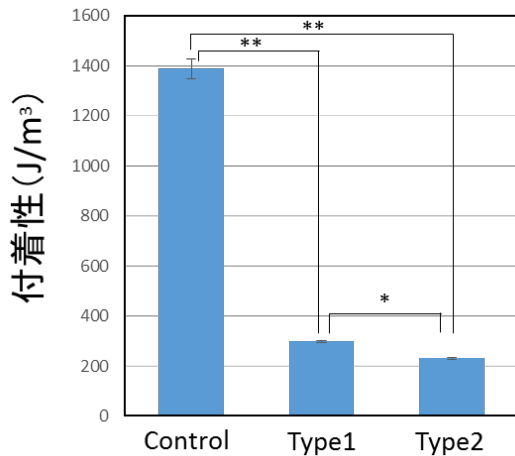


図3 付着性 (J/m<sup>3</sup>)

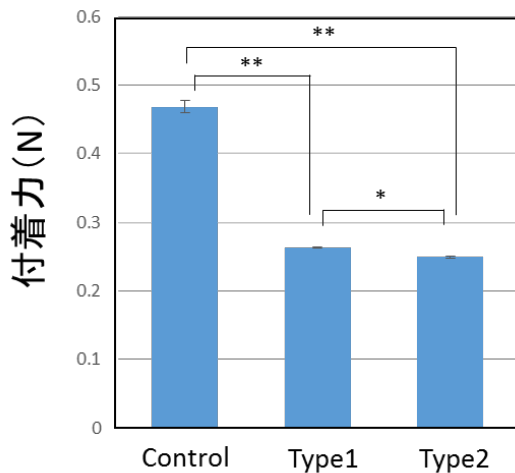


図4 付着力 (N)

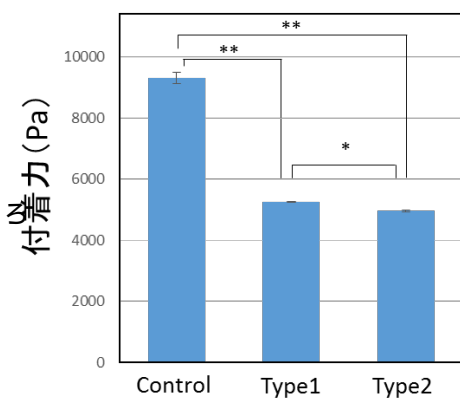


図5 付着力 (Pa)

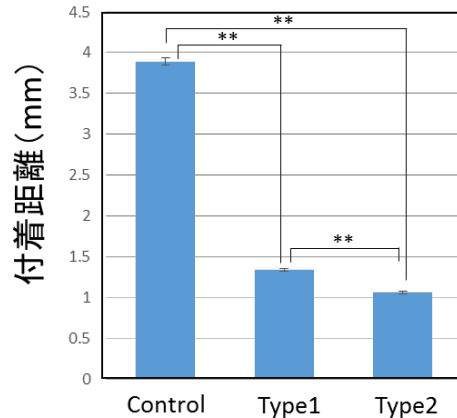


図6 付着距離 (mm)

粘着性を有する CBR1/60 粘着シリコーンは、(1)サンプルに多量の気泡が混入する、(2)極少量のカタリストの計量に熟練を要する、などの問題があった。これらを改善すべく、カタリストと架橋剤の比率を変化させることによって粘着性を出し、2種類の同量のシリコーンを反応させる事によって製作できるシリコーンを開発している。

本研究では、試作品 Type1, Type2 は、コントロール：A-2186F(Factor ) CBR1/60 に比べて、かたさが低く、付着性、付着力、付着距離は小さかった。また、人工唾液存在下においては、3群ともほとんど付着力は測定できなかった。

そこで、現在親水性を有するシリコーンを開発中である。これまで、o-ニトロベンジルを使い、カテコール基を空気酸化されない物質に変換し、これを含む水溶性ポリマーを粘着シリコーンに応用することで、水の存在下においても接着性を有する粘着シリコーン製作を試みている。化学反応時、時間経過後に有毒物質が放出されない材料にすべく改良中である。

#### 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 5 件)

石河理紗、小山重人、佐藤奈央子、細川亮一、松井裕之、松舘芳樹、加藤健吾、香取幸夫、小関健由、佐々木啓一、東北大学病院における摂食嚥下治療センターの取り組みと摂食・嚥下障害の実態調査、みちのく歯学会雑誌, 2016, 47 (1.2) :44-46 査読あり

宍戸敦子、佐藤奈央子、小山重人、白石成、埴総司、佐々木啓一，東北大学病院における頭頸部腫瘍リハビリテーション期患者への歯科衛生士による専門的口腔ケアの実態調査，顎顔面補綴.2015 第 38 巻、第 2 号、19-22 査読あり

加藤裕光、小山重人、埴総司、佐藤奈央子、佐々木啓一，可動域を含む顔面欠損に対応する 2 ピースエピテーゼの製作と臨床応用，顎顔面補綴.2015 第 37 巻、第 1 号、38-45 査読あり

Sato N，Kuwana T，Yamamoto M，Suenaga H，Anada T，Koyama S，Suzuki O，Sasaki K；Bone response to immediate loading through titanium implants with different surface roughness in rats. Odontology 2014;Jul;102(2):249-58 査読あり

佐藤奈央子、白石成、小山重人、石河理紗、神藤佑亮、竹内裕尚、富士岳士、埴総司、佐々木啓一，東北大学病院顎口腔再建治療部で対応した頭頸部領域腫瘍、先天性疾患、ならびに外傷を有する患者の実態調査，顎顔面補綴.2014 第 37 巻、第 2 号、10-13 査読あり

〔学会発表〕(計 6 件)

佐藤奈央子、顎顔面補綴治療がインプラントに求めるもの，第 125 回日本補綴学会学術大会，2016/7/9-10，金沢、石川県立音楽堂

佐藤奈央子、小山重人、石河理紗、松館芳樹、山内健介、高橋哲、佐々木啓一，東北大学病院における広範囲顎骨支持型補綴装着患者の実態調査，日本顎顔面補綴学会 第 33 回総会・学術大会.2016/6/3-4、新潟、新潟医療人育成センター

石河理紗、佐藤奈央子、白石成、神藤佑亮、

小山重人、佐々木啓一，頭頸部腫瘍患者における切除術前・術後・補綴後の QOL 調査，日本顎顔面補綴学会 第 32 回総会・学術大会.2015/6/18-20、東京、東京医科歯科大学 M & D タワー

小山重人、佐藤奈央子、松井裕之、石河理紗、松館芳樹、山内健介、高橋 哲、佐々木啓一，東北大学病院における広範囲顎骨支持型装置と広範囲顎骨支持型補綴の臨床的検討，第 68 回東北地区歯科医学会.2015/10/31-11/1、盛岡、岩手県歯科医師会館

佐藤奈央子、白石成、小山重人、石河理紗、竹内裕尚、富士岳士、埴総司、佐々木啓一，東北大学病院顎口腔再建治療部における頭頸部領域腫瘍、先天性疾患、外傷を有する患者の実態調査，第 31 回日本顎顔面補綴学会学術大会，2014/6/21-22，仙台、仙台市民会館

宍戸敦子、佐藤奈央子、白石成、小山重人、佐々木啓一，東北大学病院における頭頸部がんリハビリテーション期患者への歯科衛生士による口腔管理の実態調査，第 31 回日本顎顔面補綴学会学術大会，2014/6/21-22，仙台、仙台市民会館

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

佐藤奈央子 (Sato, Naoko)  
東北大学・大学病院・助教  
研究者番号：80510015

### (2) 研究分担者

佐々木啓一 (Sasaki, Keiichi)  
東北大学・大学院歯学研究科・教授  
研究者番号：30178644

小山 重人 (Koyama, Shigeto)  
東北大学・大学病院・准教授  
研究者番号：10225089

埴 総司 (Hanawa, Soshi)  
東北大学・大学病院・助教  
研究者番号：90431585

(3) 連携研究者

高原 淳 (Takahara, Atsushi)  
九州大学・先導物質化学研究所・教授  
研究者番号：20163305