

平成 30 年 6 月 20 日現在

機関番号：17701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26462952

研究課題名(和文)咀嚼感覚と耐久性に優れた新規ウレタン系軟性裏装材の開発研究

研究課題名(英文) A study on development of novel soft lining materials based on urethane oligomers excellent in chewing sensation and durability

研究代表者

門川 明彦 (KADOKAWA, Akihiko)

鹿児島大学・医歯学域歯学系・助教

研究者番号：00169533

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)：我が国は65歳以上の高齢者人口が3,000万人を突破する超高齢社会に突入した。有床義歯を必要とする患者も増加傾向にある。しかし多くの患者が、歯科医院で製作された義歯に満足せず、咀嚼時の疼痛や違和感に悩まされている。そのため緩衝効果を期待して各種の軟性裏装材が応用されている。しかし殆どの市販軟性裏装材は、耐久性に乏しく劣化が進んでいく。そこで研究代表者らは、幅広い粘弾性の性質を有するウレタンオリゴマー材料に着目し、機能的に優れた新規軟性裏装材の開発に着手した。試作軟性裏装材の耐久性に関する評価を行い、市販軟性裏装材と比較して優れた物性を有することが明らかとなり、臨床応用の可能性が示唆された。

研究成果の概要(英文)：Japan has entered a super-aging society where elderly people aged 65 and over exceeded 30 million people. The number of patients who need removable dentures also tends to increase. However, many patients are not satisfied with the removable dentures manufactured at the dental clinic and suffering from pain and discomfort during chewing. Therefore, various soft lining materials are applied with expectation of cushioning effect. However, almost commercially available soft lining materials are poor in durability and deterioration would proceed. So researchers started to develop new functional soft lining materials based on urethane oligomers having wide viscoelastic properties. Evaluation on the durability of experimental soft lining materials based on urethane oligomers revealed that they had superior physical properties compared with commercially available soft lining materials, suggesting the possibility of clinical application.

研究分野：生体材料学

キーワード：軟性裏装材 弾性率 硬さ 接着強さ

1. 研究開始当初の背景

近年、超高齢社会に突入した我が国では総人口は減少傾向にあるが、今後 20 年近く高齢者の人口は増加すると言われており、補綴装置の需要も漸増するものと推測されている。さらに、およそ 60 歳以上で装着している補綴装置のブリッジの比率は低下し、急速に部分床義歯や全部床義歯を使用する割合が増加していく。義歯使用患者の中には、顎堤の顕著な吸収、粘膜の菲薄化および義歯の不適合などが原因で咀嚼時の疼痛や違和感を訴える症例が数多く見受けられる。こういった症例に対しては、床下粘膜の保護や緩衝効果を期待して、各種の軟性裏装材が応用されている。現在、使用されている軟性裏装材としては、アクリル系とシリコン系が主流である。アクリル系軟性裏装材は、義歯床用レジンと材質が同系統であるため、操作性や義歯床との接着性には優れているが、可塑剤として含有されているアルコール等が口腔内で溶出し、短期間で表面が硬化して材質は急速に劣化していくため、用途は暫間的なものに限られている。一方、シリコン系軟性裏装材は、床用レジンとは化学的な接着が得られないため、接着剤の使用が必須となるが、義歯床との界面で剥離が生じやすく、長期間の口腔内使用を想定した耐久性は不十分である。また疎水性の物性を有するため、顎堤粘膜との適合や吸着性は、アクリル系軟性裏装材より劣るのが実状である。そこで、研究代表者らは既に医科用材料としては利用されているウレタン系の材料に着目し、従来の軟性裏装材と比較して、物性的にも機能的にも優れた新規の軟性裏装材の開発が急務と考え、当該研究を開始した。

2. 研究の目的

研究代表者らは、これまでに NEDO (国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構) 等による研究資金援助を得て、各種ウレタン系オリゴマー材料の基礎的な物性、生体親和性等に関して研究を行ってきた。その結果、ウレタン系の材料を新規の軟性裏装材として使用できる可能性を見出した。ウレタン系オリゴマーは、ポリオールとジイソシアネートから合成され、ウレタン結合を有する比較的分子量の小さい重合体の総称であるが、官能基と末端基の数や種類により軟質から硬質まで幅広いレオロジー的物性を付与することができる。アクリル基を分子末端に導入したウレタンアクリレートオリゴマーは、柔軟性やアクリル系基材への接着性を有しながら、ウレタン結合に由来する水素結合の凝集力によって強靱性にも優れている。これらのウレタン系材料は、光増感剤としてカンファキノン、還元剤としてジメチルアミノエチルメタクリレートと共に 0.5wt% 程度添加すれば、従来の歯科的方法と同様の光照射で十分に硬化し、操作性に優れる光重合型にすることが可能である。また重合体中の残

留モノマー量測定、JIS 基準に則ったウレタンオリゴマーの細胞毒性試験及び動物 (シリアンハムスター) 実験による生体安全性試験等を実施し、口腔内使用での安全性も確認済みである。本研究は、ウレタン系オリゴマー材料のこういった特徴を最大限に生かして、歯科用義歯床用軟性裏装材への応用を目指したものである。本研究を通じて、従来のアクリル系およびシリコン系軟性裏装材と比較して各種ウレタン系試作軟性裏装材の優位性が明らかになってくるものと期待される。

3. 研究の方法

これまでの研究で各種多官能性ウレタンアクリレートオリゴマー材料の基礎的な物性評価を行い、歯科用軟性裏装材として使用可能と判断される有望なウレタン系オリゴマー原材料を幾つか絞り込んできた。製造元と製品名は以下の通りである。(新中村化学工業 : UV-160TM, UA-340PA, UA-6100, 共栄科学工業 : UF-8100, 3002A, AT-600, 根上工業 : UN-9200A, SH-9832, 日本合成化学 : UV3000B, UV3500BA, UV3700B) 等である。そこで本研究では、口腔内での長期間使用を想定して、各種ウレタン系試作軟性裏装材の耐久性の評価を行った。各試作材料を様々な条件下で長期間保存し、各種理工学的物性の変化を経時的に測定し、総合的な耐久性を評価した。また各試作材料を義歯床用アクリルレジンに接着させ、両者間の接着強さを測定し接着耐久性の評価を行った。

ウレタン系試作軟性裏装材の圧縮弾性率の経時的変化測定 : 各種ウレタン系試作軟性裏装材の円柱状試験片を準備する。各試験片を 4, 37, 60 水中に 1 日, 1 ヶ月, 3 ヶ月, 6 ヶ月, 1 年間浸漬して、圧縮弾性率の経時的変化を測定した。引張圧縮試験機を用いて圧縮ひずみを加え、その時の応力とひずみから圧縮弾性率を求めた。

ウレタン系試作軟性裏装材のショア A 硬さの経時的変化測定 : 上記と同じ試験片、試験条件下で、各試験片のショア A 硬さの経時的変化を測定した。ショア A 硬さは現有のデュロメーターを用いて求めた。

ウレタン系試作軟性裏装材とアクリルレジンとの接着耐久性評価 : 円柱状の 2 本のアクリル棒間に、ディスク状のウレタン系試作軟性裏装材を挟み込むサンドイッチ構造として重合後 37 水中に浸漬した。接着 1 日, 1 ヶ月, 3 ヶ月, 6 ヶ月, 1 年後の両者間の接着強さを求めた。接着強さの測定は、前述の引張圧縮試験機を用い、引張り最大応力を測定し、接着耐久性の評価を行った。以上の実験に関して、現在市販されている各種軟性裏装材に関しても、同様の条件下で各種耐久試験を行い比較検討した。

4. 研究成果

これまでに市販の軟性裏装材に関して理

工学的物性を検討した論文は数多く見受けられるが、義歯装着者が好ましいと感じる裏装材の硬さや弾性率に関して言及した報告はほとんど見られない。研究代表者らは、弾性率の異なる軟性材料を裏装した研究用義歯を作製し、総義歯装着者に実際に使用してもらい咀嚼機能試験によるアンケート調査を実施した。その結果、より軟らかい裏装材（0.6~1MPa 程度）を応用した方が、疼痛が軽減され、義歯の装着感も良好で、咀嚼しやすいという知見を導き出した。【門川明彦，蟹江隆人，竹之内泰己，嶺崎良人，田中卓男：軟性裏装材の物性が総義歯装着者の口腔感覚に及ぼす影響。鹿歯会報，99:9-12，2011】。この結果を考慮すると義歯床用軟性裏装材は、使用当初の柔軟性が長期間維持されることが臨床的に有用であると判断される。平成28年4月の歯科診療報酬改定で、口腔疾患の重症化予防及び口腔機能低下への対応の一環として、使用中の下顎総義歯に軟質材料を用いての有床義歯内面適合治療が保険収載されたが、比較的長期に弾性的柔軟性が維持されると考えられているシリコン系軟性裏装材のみが使用可能となっている。本研究の結果からは、1年間の長期間に亘る37 水中浸漬下で市販シリコン系軟性裏装材は、弾性率およびシヨアA硬さが経時的に増加して、材料は徐々に硬化していった。1年後では当初の倍以上に硬化する材料もあり、材料の劣化が急速に進んでいると判断された。一方、多くのウレタン系試作軟性裏装材は、弾性率およびシヨアA硬さがほとんど変わらないか、やや減少する傾向を示し、当初の柔軟性が長期間維持されるという従来の軟性裏装材にはない、画期的なレオロジー的物性を有することが明らかとなった。

口腔内の温度変化は、およそ4 ~60 と言われているが、軟性裏装材に対して低温と高温どちらの温度環境が材料の劣化等の耐久性に影響を及ぼすかは不明な点が多い。そこで本研究では、各種軟性裏装材を低温の4 および高温の60 水中に1年間の長期間浸漬して、圧縮弾性率及びシヨアA硬さの経時変化を測定した。アクリル系軟性裏装材は、どちらの温度環境でも可塑剤の溶出に伴って材料が硬化変形して、途中から計測不能となった。シリコン系軟性裏装材は、両温度環境下で弾性率及びシヨアA硬さは増加したが、特に4 に比較して60 の温度環境では、重合反応の進行等で急速に材料の硬化が進み、1年後では37 水中浸漬下の値以上に材料は硬化して劣化が急速に進んでいると判断された。一方、多くのウレタン系試作軟性裏装材は、両温度環境下で1年後でも弾性率及びシヨアA硬さは僅かに減少する傾向を示し、37 水中浸漬時と同様に材料は極めて安定していると推測できた。

軟性裏装材の床用レジンに対する接着性は、口腔内での長期間の耐久性に影響する重要な因子となるため、1年間の長期に亘って

37 水中に浸漬した両者間の接着強さの経時変化を測定した。実験に供した各種ウレタンアクリレートオリゴマー材料の中で、UF-8100（共栄科学工業）、SH-9832（根上工業）、UV3500BA（日本合成化学）等の試験片は、1年後でも2MPa 程度の接着強さを維持していて臨床的にも十分な耐久性を有していると判断された。

こういった研究成果を総合的に判断すると、幾つかのウレタンアクリレートオリゴマー材料が、新規の歯科用軟性裏装材として臨床応用できる可能性が強く示唆された。しかし、重合前の粘性等の操作性を含め、単独のウレタンオリゴマー材料で、各種の物性で理想的な材料は見当たらず、今後有望なウレタンオリゴマー材料同士の混合等を行い、有用な材料を生み出していきたい。

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 5 件)

1. Murakami M, Nishi Y, Fujishima K, Nishio M, Minemoto Y, Kanie T, Taguchi N, Nishimura M: Impact of type and duration of application of commercially available oral moisturizers on their antifungal effects. J Prosthodont, 査読有, 27(1): 52-56, 2018.

2. 村原貞昭, 上之段麻美, 迫口賢二, 嶺崎良人, 田中卓男, 南 弘之: CAD/CAM ハイブリッドレジン冠の繰返し衝撃荷重に対する破折抵抗性. 接着歯学, 査読有, 35(1): 1-5, 2017.

3. Murakami M, Fujishima K, Nishi Y, Minemoto Y, Kanie T, Nishimura M: Impact of types of moisturizer and humidity on the residual weight and viscosity of liquid and gel oral moisturizers. J Prosthodont, 査読有, 25(7): 570-575, 2016.

4. Minesaki Y, Murahara S, Kajihara Y, Takenouchi Y, Tanaka T, Suzuki S, Minami H: Effect of metal conditioner on bonding of porcelain to cobalt-chromium alloy. J Adv Prosthodont, 査読有, 8(1): 1-8, 2016.

5. 松村光祐, 梶原雄太郎, 塩向大作, 村原貞昭, 村口浩一, 嶺崎良人, 田中卓男, 南 弘之: 金属接着プライマーが加熱酸化処理を行った金銀パラジウム合金と MMA-TBBO レジンの接着に及ぼす影響. 接着歯学, 査読有, 34(2): 82-87, 2016.

〔学会発表〕(計 18 件)

1. 門川明彦, 嶺崎良人, 村口浩一, 村原貞昭, 梶原雄太郎, 松村光祐, 上之段麻美, 有川裕之, 河野博史, 菊地聖史, 南 弘之, ウレタンオリゴマーを基材とした試作軟性裏装材の床用レジンに対する接着強さ, 日本補綴歯科学会第127回学術大会, 2018年6月16, 17日(岡山).

2. 門川明彦, 嶺崎良人, 峰元里子, 村原貞昭,

村口浩一,松村光祐,梶原雄太郎,有川裕之,河野博史,菊地聖史,南 弘之,ウレタンオリゴマーを基材とした試作軟性裏装材の耐久性に関する評価,日本補綴歯科学会第 126 回学術大会,2017年 6月30日,7月1日(神奈川県).

3.村口浩一,村原貞昭,梶原雄太郎,門川明彦,嶺崎良人,南 弘之,ニケイ酸リチウムガラスセラミックスへの表面処理が接着強さにおよぼす影響,平成 29 年度日本補綴歯科学会九州支部学術大会,2017年 8月27日(鹿児島).

4.門川明彦,蟹江隆人,嶺崎良人,峰元里子,柳田廣明,村口浩一,村原貞昭,南 弘之,ウレタンオリゴマーを基材とした試作軟性裏装材の機械的性質,日本補綴歯科学会第 125 回学術大会 2016年 7月9,10日(石川).

5.村口浩一,村原貞昭,柳田廣明,門川明彦,嶺崎良人,南 弘之,金属接着性プライマーの金属面塗布に関する研究 塗布後のアセトン洗浄時間が接着強さに及ぼす影響,平成 28 年度日本補綴歯科学会九州支部,中国・四国支部合同学術大会,2016年 9月3,4日(熊本).

6.Minesaki Y, Murahara S, Minemoto S, Uenodan A, Matsumura K, Kajihara Y, Yanagida H, Muraguchi K, Kadokawa A, Minami H, Resin-bonded fixed partial denture using a CAD/CAM zirconia tooth as a pontic, The 23rd general meeting of the Japanese Association for Dental Science, 2016年 10月22,23日(福岡).

7.門川明彦,蟹江隆人,嶺崎良人,有川裕之,柳田廣明,村口浩一,村原貞昭,峰元里子,菊地聖史,南 弘之,インプラントの粘性体に対する弁別能力評価,日本補綴歯科学会第 124 回学術大会 2015年 5月30,31日(埼玉).

8.村口浩一,村原貞昭,梶原雄太郎,迫口賢二,塩向大作,柳田廣明,峰元里子,門川明彦,嶺崎良人,南 弘之,鈴木司郎,新規レジンセメントのジルコニアに対する接着に関する研究,日本補綴歯科学会第 124 回学術大会,2015年 5月30,31日(埼玉).

9.村原貞昭,梶原雄太郎,峰元里子,柳田廣明,村口浩一,門川明彦,鈴木司郎,嶺崎良人,南 弘之,各種仮封材の封鎖性に関する研究,日本補綴歯科学会第 124 回学術大会,2015年 5月30,31日(埼玉).

10.蟹江隆人,有川裕之,永田 睦,富田浩一,門川明彦,菊地聖史,2官能性アクリル系モノマーを応用したインプラント用セメントに関する基礎的研究,日本歯科保存学会 2015 年度春季学術大会(第 142 回),2015年 6月25,26日(福岡).

11.門川明彦,蟹江隆人,嶺崎良人,柳田廣明,村口浩一,村原貞昭,有川裕之,菊地聖史,南 弘之,咀嚼官能試験を利用したインプラントの評価法,日本補綴歯科学会第 123 回学術大会,2014年 5月24,25日(宮城).

12.柳田廣明,村口浩一,塩向大作,迫口賢

二,村原貞昭,峰元里子,門川明彦,嶺崎良人,南 弘之,非貴金属合金と常温重合レジンの接着における表面処理の影響,日本補綴歯科学会第 123 回学術大会,2014年 5月24,25日(宮城).

13.南 弘之,村原貞昭,柳田廣明,村口浩一,迫口賢二,塩向大作,峰元里子,門川明彦,嶺崎良人,鈴木司郎,試作モノマーを用いた MMA/TBBO レジンと各種合金との接着に関する研究,日本補綴歯科学会第 123 回学術大会,2014年 5月24,25日(宮城).

14.村口浩一,村原貞昭,迫口賢二,塩向大作,柳田廣明,峰元里子,門川明彦,嶺崎良人,南 弘之,鈴木司郎,Self-adhesive cement のジルコニアに対する接着に関する研究,日本補綴歯科学会第 123 回学術大会,2014年 5月24,25日(宮城).

15.村原貞昭,柳田廣明,迫口賢二,塩向大作,峰元里子,村口浩一,門川明彦,嶺崎良人,南 弘之,各種仮封材の封鎖性に関する研究,平成 26 年度日本補綴歯科学会九州支部学術大会,2014年 8月24日(福岡).

16.蟹江隆人,有川裕之,門川明彦,菊地聖史,2官能性アクリル系モノマー混合溶液から作製した重合体の応力緩和,第 64 回日本歯科理工学会学術講演会,2014年 10月4,5日(広島).

17.有川裕之,蟹江隆人,門川明彦,菊地聖史,修復用コンポジットレジンの温度による色調変化 第2報 ベースレジンの屈折率の温度依存性,第 64 回日本歯科理工学会学術講演会,2014年 10月4,5日(広島).

18.柳田廣明,村口浩一,嶺崎良人,村原貞昭,峰元里子,塩向大作,迫口賢二,門川明彦,南 弘之,チタンとレジンセメントの接着,第 33 回日本接着歯学会学術大会,2014年 12月13,14日(兵庫).

〔図書〕(計 1件)

冠橋義歯補綴学テキスト 第2版,倉田雅啓,石神 元ほか編集,Sec.4 プリッジによる補綴処置:2 レジン前装冠,南 弘之,門川明彦,永末書店,101-110,2017.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

門川 明彦 (KADOKAWA AKIHIKO)
鹿児島大学・医歯学域歯学系・助教
研究者番号:00169533

(2) 研究分担者

蟹江 隆人 (KANIE TAKAHITO)
鹿児島大学・医歯学域歯学系・助教
研究者番号:70152791

村原 貞昭 (MURAHARA SADA AKI)
鹿児島大学・医歯学域歯学系・助教
研究者番号:80404490