

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 16 日現在

機関番号：32703

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26861611

研究課題名(和文) マイクロCTを用いたフロアブルコンポジットレジンの重合収縮挙動の分析

研究課題名(英文) Three-dimensional X-ray micro-computed tomography analysis of polymerization shrinkage vectors in flowable composite

研究代表者

武村 幸彦 (Takemura, Yukihiro)

神奈川県立大学・歯学研究科(研究院)・助教

研究者番号：80573584

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円

研究成果の概要(和文)：この実験の目的は、気泡をマーカーとして、フロアブルレジンの重合収縮挙動を評価することであった。規格窩洞に3種の表面処理(シランカップリング剤および離型材の組み合わせ)を行い、マイクロCTにて重合後の画像を重ね合わせてその差分を抽出し、マーカーの位置変化をベクトルとして可視化し、レジン内部での移動を三次元的に定量評価した。接着状態が収縮パターンに重要な役割を果たすことが示された。この方法は、収縮ベクトルと収縮量を視覚化する可能性を有している。

研究成果の概要(英文)：The polymerization shrinkage of flowable resin composites was evaluated using air bubbles as traceable markers. Three different surface treatments i.e. an adhesive silane coupling agent, a separating silane coupling agent, and a combination of both, were applied to standard cavities. Before and after polymerization, X-ray micro-computed tomography images were recorded. Their superimposition and comparison allowed position changes of the markers to be visualized as vectors. The movement of the markers in the resin composite was, therefore, quantitatively evaluated from the tomographic images. Adhesion was found to significantly influence shrinkage patterns. The method used here could be employed to visualize shrinkage vectors and shrinkage volume.

研究分野：保存修復

キーワード：フロアブルレジン 重合収縮 3D分析 収縮ベクトル マイクロCT

1. 研究開始当初の背景

非侵襲性もしくは侵襲を最小限にとどめた MI 歯科治療の概念の普及に伴う窩洞の小型化しつある現在、フロアブルレジンの臨床での使用頻度は高くなっている。

接着、適合性の向上やライニングとして界面応力の緩和など本材料の有効性が期待されているが、中でも、レジンの重合収縮は修復物の臨床成績を左右する大きな要因であると認識されており、重合時のフローによる重合収縮応力の補償は重要な関心事である。“The shrinkage vector of light cured composites is oriented toward the irradiated surface of the restoration”という考え方は広く一般に受け入れられているものの、実際の窩洞でのコンポジットレジンの収縮は、接着の発現、自由表面での流動性、局所の重合程度に主たる影響を受け、光の照射位置、方向は適合性向上の適切な基準ではないことも報告されている。

窩壁適合性の評価(微小漏洩試験)は、色素浸漬後の切断試験により行われてきたが、試料の破壊を伴うことや切断部近傍の選択的領域での部分的評価しかできず、多数の試料を使用する必要性があり、窩洞全域の窩壁適合性の評価はなし得ないという種々な欠点を有している。一方、近年の μ CTの発展と画像処理技術の発展に従い、非破壊的に3次元でコンポジットレジン修復の窩壁適合性と、重合収縮方向と大きさを解析する研究が報告されている。

2. 研究の目的

異なる接着条件を設定した規格窩洞に対し、フロアブルレジン内に意図的に混入させた気泡を指標として非破壊で窩洞内のレジン収縮の評価が可能なマイクロフォーカスエックス線 CT を用い、自由解放面での収縮および間隙形成と窩洞内部でのレジンの流れを評価し、接着と重合収縮の関係を詳細に検討すること。

3. 研究の方法

フロアブルレジン(MI flow, GC; 以下 MIF)を充填材として使用した。規格窩洞には MFR タイプのコンポジットレジンブロックである CAD/CAM ブロック(GN-1, GC)を使用した。窩壁処理には接着性のシランカップリング剤(RelyXTMCeramic Primer, 3M ESPE)と撥水、撥油性のシランカップリング剤 1H,1H,2H,2H-henicosafuorododecyltriisocyanat osilane(F(CF₂)₁₀(CH₂)₂Si(NCO)₃;以下 10F2S-3I)を用いた。

測定方法は歯科用 CAD/CAM システム(GM1000, GC Corporations)を用い、GN-1 に内径 4mm、深さ 2.4mm (C-factor= 3.4) の円筒形の規格窩洞を形成し、1 mol/L 水酸化ナトリウム溶液に浸漬させた状態で 5 分間超音波洗浄、アセトンで清拭、乾燥した。窩壁とコンポジットレジンの接着状態の差によるベクトルを検討するため、規格窩洞の窩壁の表面

処理を以下の3種とした。すなわち、窩壁全体とコンポジットレジンが接着する条件として、窩壁全域に RelyXTMCeramic Primer を塗布した群 (Group A)、窩壁とコンポジットレジンが接着しない(拘束力を排除した)条件として、窩壁全域に 10F2S-3I を塗布した群 (Group B)、光源から最も遠いため重合が遅延し、接着に不利な象牙細管開口部が存在する窩底と、早期に重合し接着に有利なエナメル質窩壁を有する側壁をシミュレートした条件での収縮挙動を評価することを目的として、側壁に RelyXTM Ceramic Primer を、窩底に 10F2S-3I を塗布した群 (Group C)とした。安全光下 30 秒間、化学重合レジンを練和する要領で気泡を混入させた MIF を CR シリンジでこれら 3 種の窩洞に充填し、直ちに μ CT (MCT-CB100MF, Hitachi Medical Corporation; 管電圧 80 kV, 管電流 100 μ A, 拡大率 10.0 倍)撮影した。重合前の CT データから 50~110 μ m (平均 74.9 μ m) の大きさの気泡を抽出した。気泡の分散が不均等、あるいは 110 μ m を超える試料は除外した。次いで μ CT 装置内で 5.5 mm, 700 mW/cm² のハ口ゲン照射器(JET Light 3000J, Morita USA)を使用し、試料 1 mm 上方より光照射を 40 秒間行い、重合後の μ CT 撮影を行った。

これら重合前の μ CT 画像と重合後の画像を重ね合わせてその差分を抽出し、自由解放面での収縮および側壁、窩底での間隙形成の評価、および気泡重心の座標化をおこない、そこから位置変化をベクトルとして可視化し、レジン内部での流れを三次元的に定量評価した。

4. 研究成果

(1) 外形変化とベクトル

自由解放面での収縮および側壁、窩底での間隙形成の典型的な抽出画像ならびに重合収縮ベクトルを Fig. 1 に示す。

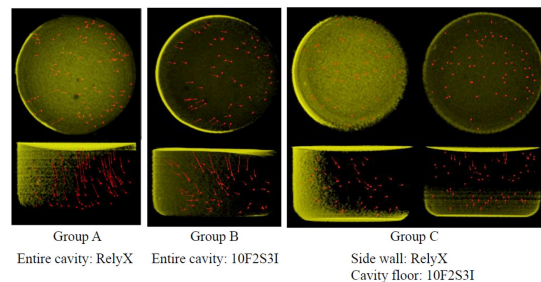


Fig. 1

Group A では、自由解放面中央においてコンポジットレジンの顕著な陥凹を認めた。すべての試料で側壁に接着している側に相対して剥離部が存在し、剥離部は表層でより広域で、窩底に間隙は認められなかった。また、試料によっては表層約 100 μ m 程度の collar 状の間隙が形成されたものもあった。大部分のマーカーは接着を獲得した側壁と窩底の斜め下方向、すなわち、窩底の隅角方向に変

位した。移動量は自由解放面に近いほど大きく、窩底にいくにしたがって小さくなった。

Group B では、自由解放面の外形変化は Group A と比較して少なかった。側壁ではほぼ窩洞全周にわたり間隙形成が認められたが、Group A と同様、一方が大きく収縮していた。窩底にほんのわずかな間隙が認められた。マーカーの移動は表層部で大きかったが、窩底中央に向かってのものは、接着を獲得した下側壁、または隅角部に進んでいるものもあり、収束方向に規則性は低かった。窩底でもさまざまな方向に向かうマーカーの移動が観察できた。

Group C の自由解放面および窩底の収縮は特徴的であった。側壁では半数のサンプルに剥離は認められず、前 2 群と異なり窩底での明瞭な間隙形成が認められた。これら側壁によく接着していたサンプルでは、自由解放面付近では下方向に、窩底付近では上方向、すなわち窩洞の深さ 1/2 方向にベクトルが向い、接着を獲得した側壁の方向に向かうものはほとんどなかった。側壁に一部剥離を示したサンプルでは、マーカーは自由解放面付近では接着を獲得した側壁の方向に向かう斜め下方への移動が認められ、窩底付近では接着を獲得した側壁の方向に向かう斜め上方向への移動が認められた。側壁では、剥離が生じた側から接着を獲得した側壁の方向へと変位していた。後者のマーカーの移動方向は、外形変化の方向と一致していた。

自由解放面はいずれの接着条件でも窩底方向に変位し、中央部で大きかった。これは流動性に優れたフロアブルレジンを使用したことに起因し、また、大気と接している条件で重合されたことによって生じた重合不全層の存在によると考えられた。レジン内部の flow の方向も、その外形変化に一致していた。しかし、接着状態が異なる 3 種 Group 間で、側壁や窩底周囲の流れの方向は、それぞれ異なった結果が得られた。

Group A の自由解放面での中央部分の大きな凹みは、窩洞全面にシランカップリング処理したことにより、側壁と窩底の広い部分で接着が獲得されたことに起因すると考えられた。また収縮ベクトルも接着領域に向かっていることから、接着の発現がレジンの流動性、収縮方向を決定する重要な要因となることが伺われた。これに対し Group B では全窩壁で化学的接着が得られないため収縮が接着界面全体で生じ、自由解放面に応力が集中しなかったのではないかと考えられた。一方、Group C では、側壁における接着が他群に比較して維持されたため、重合収縮が自由解放面および窩底の両方で補償されたと推察された。

(2) 重合時の収縮量および間隙形成量
自由解放面での収縮量および側壁、窩底での間隙の形成量を Table に示す。

Table Percentage volume changes of interfacial gap and shrinkage volume fraction (mean and S.D., n=6, pooled values)

(volume%)	Group A	Group B	Group C
Free surface contraction	3.96±0.06*	2.67±0.25*	2.20±0.53*
Side wall contraction	0.89±0.06*	2.19±0.16*	1.16±0.07*
Cavity floor contraction	0.00±0.01*	0.14±0.04*	1.65±0.27*
Total contraction	4.87±0.08*	4.99±0.12*	5.01±0.46*

Tukey-Kramer test was conducted to compare the three groups. Each letter label (a, b, and c) denotes sets of mean values with no statistically significant differences (p>0.05).

自由解放面における収縮量は、Group A が最も大きく、Group B と Group C に対して有意に大きかった (p<0.05)。また、側壁における間隙の形成量は、Group B が最も大きく、各群間に p<0.05 で有意差が認められた。さらに、窩底における間隙形成量は、Group C が Group A と Group B に対して有意に大きかった。しかしながら、全収縮量における各グループ間の有意差は認められなかった。

Group A では大きな自由解放面での変位が観察されるとともに、接着を獲得した側壁、隅角部および窩底の方向に収縮が向き、移動量は自由解放面に近いほど大きく、窩底にいくにしたがって小さかった。これに対し、Group B では自由解放面の収縮は有意に少なく、側壁で有意に大きな間隙が認められた。一方、Group C では自由解放面の収縮は Group B と、側壁は Group A と同等であったが、窩底で有意に大きな剥離が認められた。窩縁部において、剥離部位と接着部位が対称的に観察されたこと (Group A と Group C) は、同一窩洞内で、同一条件で接着しているにも関わらず、相対する側壁で均等な接着を得ることが難しく、シランカップリング剤との反応や重合開始部位等のわずかな違いにより、どちらか一方の接着が確立するという大きな違いを生じたのではないかと考えられた。この剥離部位は窩縁部で最も大きく窩洞が深くなるにしたがって小さくなっており光源に近いほど重合が早期に生じ窩縁部で収縮が大きかったと考えられる。また、本実験に用いた窩洞のサイズと C-factor (3.4) により影響を受けたことも考えられる。

Group B では側壁での間隙形成、窩底での間隙形成が少なかったこと、レジンと窩壁との接触がどこかに残ることで、位置変化を最小限に留めたのではないかと推測された。10F2S-3I の厚さは 3 層で 10nm オーダーであるため、窩壁の凹凸に陥入したレジンの嵌合が生じ、見かけの側壁の収縮を減少したことが考えられた。また、Group B で窩底の間隙がわずかな理由は、接着しない条件であっても、レジンの窩壁に対するヌレやなじみが大きいことによると考えられる。また、側壁での間隙形成、窩底での間隙形成が認められないことを考え合わせると、窩洞内でのコンポジットレジンの滑落が生じたことも推測された。

Group C は Group A, B と異なり、10F2S-3I を塗布した窩底で明瞭な間隙形成が認められた。この窩底における収縮がレジンコンポジットの収縮応力を緩和したため、逆に側壁での効果的な接着が得られたのではないかと

とも考えられる。これらの接着条件が光重合フロアブルレジンであっても光の照射方向に収縮するというより、化学重合レジンに近い材料の中心に向かって収縮することが示された。

Group A, B および C の総収縮量は統計的に差がなかった。本実験条件下では、重合収縮は自由解放面の外形変化および接着の劣る窩壁からの剥離として必然的に現れ、適用されたレジンコンポジット内の流れは接着し拘束されている方向に向かうことが示された。

(3) 気泡の深さ位置と移動量の関係(上下の関係)

マーカの位置(表層からの深さ)と移動量の関係を Fig. 2 に示す。

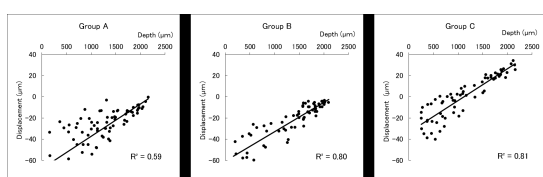


Fig. 2

Group A はすべて窩底方向へのマイナスの移動であり、自由解放面に近づくほど移動量は大きくなった。Group B もすべて窩底方向へのマイナスの移動であり、自由解放面に近づくほど移動量は大きくなったが、Group A と比べてバラつきは小さかった。Group C は自由解放面 付近では下方向のマイナスの移動が、窩底付近では上方向のプラスの移動がみられ、深さ 1/2 付近に収束する傾向があった。

フロアブルレジン接着、適合性の向上や接着界面応力の緩和など、本材料の特性を十分に活用してより確実な接着修復が発現できるよう期待されているが、一方では重合修復が大きいことによる窩壁からの剥離も懸念されている。窩壁との接着性とフロアブルレジンの外形変化と内部での流れとの関連性を初めて明らかにした本研究結果からは、臨床使用に当たっては重合収縮量だけではなく、収縮方向を考慮した積層充填の応用が必要であることが示された。

本研究は接着を有する収縮パターンは接着方向に大きな影響を受けることが示され、 μ CT は収縮ベクトルと収縮量を視覚化する可能性を有している。

また、従来の報告にある“ The shrinkage vector of light cured composites is oriented toward the irradiated surface of the restoration”とは矛盾した。

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 1 件)

Yukihiko TAKEMURA, Koji HANAOKA, Ryota KAWAMATA, Takashi SAKURAI, Toshio TERANAKA. Three-dimensional X-ray micro-computed tomography analysis of polymerization shrinkage vectors in flowable composite. Dental Materials Journal 2014; 33: 476-483

[学会発表](計 4 件)

武村幸彦, 川股亮太, 杉山弘起, 櫻井孝, 花岡孝治: フロアブルレジンの重合収縮と窩壁適合性 - 窩洞形態の違いによる重合収縮挙動 - .2014 年度春季学会(第 141 回)日本歯科保存学会, 山形, 2014. 10. 30.

岡田周策, 飯塚純子, 松島大, 武村幸彦, 杉崎新一郎, 向井義晴: 歯科用ジルコニアの表面処理に関する研究 - シリカ改良型サンドブラスト処理による表面の変化 - .2014 年度春季学会(第 141 回)日本歯科保存学会, 山形, 2014. 10. 30.

武村幸彦, 川股亮太, 倉持江里香, 花岡孝治: フロアブルレジンの重合収縮と窩壁適合性(第 2 報) - 照射条件の違いによる重合収縮挙動 - .2015 年度春季学会(第 142 回)日本歯科保存学会, 福岡, 2015. 06. 26.

岡田周策, 松島大, 武村幸彦, 飯塚純子, 杉崎新一郎, 向井義晴: 歯科用ジルコニアの表面処理に関する研究 - シリカ改良型サンドブラスト処理によるプライマー処理の可能性について - .2015 年度秋季学会(第 143 回)日本歯科保存学会, 東京, 2015. 11. 12.

[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

武村 幸彦 (TAKEMURA YUKIHIKO)
神奈川歯科大学・大学院歯学研究科・助教
研究者番号：80573584

(2)研究分担者

()

研究者番号：

(3)連携研究者

()

研究者番号：