

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月 30日現在

機関番号：17701

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2012

課題番号：21592462

研究課題名（和文） 機能性に優れたウレタン系軟性裏装材の開発と臨床応用に関する研究

研究課題名（英文） A study on development and clinical application of functional soft lining materials based on urethane oligomers.

研究代表者

門川 明彦 (KADOKAWA AKIHIKO)

鹿児島大学・大学院医歯学総合研究科・助教

研究者番号：00169533

研究成果の概要（和文）：

超高齢社会の到来に伴い有床義歯を使用する患者の中には、咀嚼時の疼痛の緩和や顎堤の保護等の目的で各種の軟性裏装材を必要とする場合も多い。しかし、いずれの材料も長期間の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性を示すウレタンオリゴマーを原材料とする耐久性や機能性に優れた軟性裏装材の開発に着手した。各種試作ウレタン系軟性裏装材の歯科理工学的物性試験を行い、市販の軟性裏装材と比較してもより優れた物性を示す材料も幾つか見受けられ、臨床応用の可能性が示唆された。また材料の開発に先立って、義歯使用者の口腔内感覚に関するアンケート調査を実施した。

研究成果の概要（英文）：

Many denture wearers need denture base soft lining materials for reducing chewing ache or protecting mucosal tissues in aging society. However almost commercial 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 viscosity. Dental physical and mechanical properties of them were measured. Some experimental soft lining materials based on urethane oligomers showed superior mechanical properties compared to commercial materials. The possibility of clinical application of these new materials might be suggested. The questionnaires were filled out previously for denture wearers about oral sensation.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
2011年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：【医歯薬学】

科研費の分科・細目：【歯学・補綴系歯学】

キーワード：【軟性裏装材，ウレタンオリゴマー，臨床試験】

1. 研究開始当初の背景

近年、超高齢社会の到来に伴い有床義歯を必要とする患者数は増加する傾向にあるなかで、顎堤の顕著な吸収、粘膜の菲薄化などが原因で、咀嚼時の疼痛や違和感を訴える症例も少なくない。このような症例に対しては、咬合圧を可及的に広い面積で負担し床下粘膜を保護する目的で各種の軟性裏装材がしばしば応用されている。現在、使用されている軟性裏装材としては、アクリル系、シリコン系、フルオロ系、オレフィン系など様々なタイプのポリマーが市販されており、これまでに研究代表者らは、各種の軟性裏装材の理工学的性質について検討してきた【有川裕之、蟹江隆人、門川明彦ほか：各種義歯床用軟性裏装材の理工学的性質、歯材器、1992】、【藤井孝一、蟹江隆人、門川明彦ほか：振動リード法による義歯床用軟性裏装材の動的粘弾性、歯材器、1992】、【蟹江隆人、有川裕之、門川明彦ほか：義歯洗浄剤による軟性裏装材の劣化、補綴誌、1992】。これらの研究によると、何れの材料も時間経過に伴って弾性率の低下が著しく、材料の劣化も速く、長期間の口腔内使用を想定した耐久性は不十分であるという結論に至った。そこで研究代表者らは既に医科用材料として利用されているウレタン系の材料に着目し、従来の裏装材と比較して物性的にも機能的にも優れた軟性裏装材の開発につなげたいという着想に至った。

2. 研究の目的

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、ラジカル重合可能な末端基を持つウレタンアクリレートオリゴマーは、末端基の調節により幅広い粘性を示す。また BPO やカンファキノンなど歯科的方法により重合を行うと、その重合体は官能基の数と末端基の種類により軟質から硬質まで幅広い特性を付与することができる。研究代表者らは、これまでに NEDO 等による研究資金援助を得て、ウレタン系材料の生体親和性等、基礎的研究を行ってきた【Takahito Kanie, Akihiko Kadokawa, Seiji Ban et al: Mechanical properties of an experimental soft lining material based on urethane oligomer, Dent Mater J, 2005】。その結果、これらの材料を口腔内で軟性裏装材として使用できる可能性を見出した。そこで本研究においてウレタン系材料の歯科理工学的物性を評価し、従来の裏装材と比較して物性的にも機能的にも優れた新しいタイプの軟性裏装材の開発と臨床応用の可能性を探ることが本研究の目的である。

3. 研究の方法

各種軟性裏装材の理工学的性質については多くの研究報告がなされているが、患者サイドからのアプローチで軟性裏装材の機能性を評価研究した報告は殆ど見当たらないのが現状である。そこで本研究では、材料の研究開発に先立って、患者自身の口腔内感覚に注目してサイコロロジータ的な発想から軟性裏装材の機能的な評価を行い、軟性裏装材の口腔内の機能性に関して臨床的なデータを取得するために臨床試験を実施した。現在市販されている各種軟性裏装材について実際に総義歯を使用する患者に被験者として協力を依頼し、同意を得た患者に対して咀嚼官能試験を行った。義歯のみの場合と硬さおよび弾性率の異なる各種軟性裏装材を裏装した場合とで各種の口腔内感覚（疼痛の有無、違和感の程度、適合感、会話のしやすさ、咬みやすさ等）に関して被験者にアンケート調査を行った。得られたデータより軟性裏装材のレオロジー的物性の相違が口腔内感覚に及ぼす影響に関して検討を行った。本臨床試験は、鹿児島大学病院臨床倫理委員会の承認を得て行った。

軟性裏装材として実際に口腔内で使用可能な適度の粘弾性（成形性）と流動性を持つ材料を幾つか選択するために、市販されている各種軟質ウレタン系オリゴマー原料の粘度測定を行った。粘度測定は E 型回転粘度計を使用した。また自転・公転式ミキサーを使用して、エチルメタクリレート (EMA) やブチルメタクリレート (BMA) を添加して意図的な粘度の調整が可能かどうかを検討した。

臨床的な操作性を考慮すると、軟性裏装材としては光重合型が望ましい。ウレタン系オリゴマー原料に光増感剤（カンファキノン）と還元剤（メタクリル酸ジメチルアミノエチル）を添加し光照射重合させた試作試料の圧縮弾性率、表面硬さ等の理工学的物性試験を行った。

各ウレタンアクリレート材料に照射後、重合体の残留モノマー量を測定した。未重合モノマーが多量に残留すると、重合体の機械的強度が低下するだけでなく、歯科用材料として口腔内で使用することを想定した場合、口腔内に溶出する可能性もあり生体に対する安全性の観点からも望ましくない。

硬化後の軟性裏装材表面に塗布する表面処理材にも注目した。表面処理材の有効性を検証するために実際に表面処理材を応用している市販の各種軟性裏装材に関して、軟性裏装材と表面処理材間の接着強さを測定した。また表面処理材の応用が軟性裏装材自体の機械的強度に及ぼす影響についても検討した。

4. 研究成果

総義歯使用患者へのアンケート調査による咀嚼官能試験の結果は、裏装材の硬度や弾性率が口腔粘膜の弾性率の範囲内で比較的小さい方(0.6~1MPa)が被験者の口腔内の違和感は小さく義歯の装着感も良好であるという可能性が示唆された。とくに装着感に関しては、義歯のみの場合の方が軟性裏装材を応用した場合よりも良好であると回答した被験者は皆無であり、軟性裏装材の優位性が改めて強く示唆される結果となった。得られた知見は本研究の主要目的である新規軟性裏装材の研究開発を進めていく上で極めて有効なものとなった。

市販の各種ウレタン系オリゴマー原料の粘度は、3.2~1,280Pa・s程度の範囲で幅広く分布していた。また粘度の高い原料に対してEMAやBMAを20wt%程度添加することで混合試料は大幅な粘度低下を示すものもあり、ウレタン系混合材料の粘度調整が可能であることが明らかになった。流動性と成形性のバランスを考慮すると、25℃において200~800Pa・s程度が適切粘度であり、製品化の場合の参考値となると考えられた。

光照射重合後の各種ウレタン系試作軟性裏装材の物性試験の結果、現在市販されている軟性裏装材と近似、もしくはそれ以上の圧縮弾性率(7.2~20.6MPa)を示す試作軟性裏装材も幾つか見受けられ、新しいタイプの軟性裏装材として臨床応用できる可能性が示唆された。

各試料の光重合後での残留モノマー量測定の結果、多くの試料は残留モノマーが15%以下となり、安全性も問題なく口腔内で軟性裏装材として充分応用できることが示唆された。

表面処理材に関する研究では、多くの材料において軟性裏装材と表面処理材間の接着強さは、軟性裏装材とアクリル義歯床間の接着強さおよび裏装材自体の強度より大きくなった。また表面処理材の塗布で軟性裏装材の機械的強度も向上することが明らかになった。このことより新しいタイプのウレタン系軟性裏装材においても適切な表面処理材を有効に応用すれば軟性裏装材の表面滑沢化や耐久性向上等に大きく寄与することが示唆された。

全体的に総括すると、今回の試作ウレタンアクリレート系軟性裏装材の工学的物性等の評価は市販品と比較しても遜色なく十分に臨床応用可能と判断された。市販のアクリル系軟性裏装材に多く添加されているアルコール等の可塑剤の溶出による材料の劣化も少なく本製品の優位性も明らかである。今後、口腔内での長期間使用を想定した熱サイクル負荷試験等で耐久性の評価等を行い、製品開発メーカーとも協議を行い、本製品の

市場化を図っていきたいと考えている。

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 4件)

1. Takahito Kanie, Akihiko Kadokawa, Mutsumi Nagata, Hiroyuki Arikawa, A comparison of stress relaxation in temporary and permanent luting cements, Journal of Prosthodontic Research, Vol.57, No.1, 46-50 (2013).
2. 蟹江隆人, 富田浩一, 上川善昭, 永山知宏, 徳田雅行, 鳥居光男, 門川明彦: 歯科用軟質裏装材の臨床的使用期限を設定するための基礎的研究, 日本歯科医学会誌, Vol.31, 79-83 (2012).
3. 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, 鹿児島県歯科医師会報, Vol.99, No.678, 9-11 (2011).
4. Takahito Kanie, Akihiko Kadokawa, Hiroyuki Arikawa, Koichi Fujii, Seiji Ban: Flexual properties of ethyl or methyl methacrylate-UDMA blend polymers, Dental Materials Journal, Vol.29, No.5, 575-581 (2010).

[学会発表] (計 18件)

1. 門川明彦, 嶺崎良人, 大橋博文, 柳田廣明, 村原貞昭, 田中卓男, 表面処理材の接着が軟性裏装材の機械的性質に及ぼす影響, 第31回日本接着歯学会学術大会, 2012年12月8,9日(東京).
2. 蟹江隆人, 有川裕之, 鶴木次郎, 門川明彦, 仮着用及び合着用セメントの応力緩和特性, 第59回日本歯科理工学会学術講演会, 2012年4月14,15日(徳島).
3. 門川明彦, 嶺崎良人, 大橋博文, 柳田廣明, 村原貞昭, 田中卓男, 軟性裏装材とその表面処理材間の接着強さに関する研究, 日本接着歯学会学術大会, 2012年1月(北海道).
4. 久木田賢司, 村原貞昭, 大橋博文, 柳田廣明, 門川明彦, 嶺崎良人, 田中卓男, 唾液処理した歯科材料に対する口腔内細菌付着能に関する研究, 日本補綴歯科学会九州支部学術大会, 2011年11月(長崎).
5. 嶺崎良人, 南弘之, 村原貞昭, 村口浩一, 門川明彦, 野村賢介, 鈴木司郎, 鬼塚雅, 田中卓男, ダイレクトボンディングブリッジに用いる各種ポンティックの維持力に関する実験的研究, 日本補綴歯科学会, 2011年5月20-22日(広島).
6. 門川明彦, 蟹江隆人, 嶺崎良人, 藤井孝一, 有川裕之, 田中卓男, 試作光重合型パタ

ーン用レジンのレオロジー的性質に関する研究，日本補綴歯科学会，2011年5月20-22日(広島)。

7. 有田正博，鱒見進一，井上勝一郎，帆鷺郷一，帆鷺秀一郎，金籐哲明，門川明彦，藤井孝一，義歯安定剤の水中における粘着強度，日本補綴歯科学会九州支部学術大会，2010年11月(熊本)。

8. 嶺崎良人，南 弘之，村原貞昭，村口浩一，門川明彦，野村賢介，鈴木司郎，鬼塚 雅，田中卓男，人工歯を用いたダイレクトボンディングブリッジへの繊維強化型コンポジットの応用，日本補綴歯科学会，2010年6月12,13日(東京)。

9. 門川明彦，蟹江隆人，竹之内泰己，嶺崎良人，伴 清治，鬼塚 雅，田中卓男，軟性裏装材の使用が総義歯装着者の口腔感覚に及ぼす影響，日本補綴歯科学会，2010年6月12,13日(東京)。

10. 有田正博，井上勝一郎，帆鷺秀一郎，帆鷺郷一，植木達朗，竹田 弘，金籐哲明，門川明彦，藤井孝一，鱒見進一，5種類の市販粘着型義歯床安定用材料の粘着強度の評価，日本補綴歯科学会九州支部学術大会，2009年10月(福岡)。

11. 門川明彦，蟹江隆人，竹之内泰己，嶺崎良人，伴 清治，鬼塚 雅，田中卓男，アンケートによる軟性裏装材の機能性に関する評価，日本歯科理工学会，2009年10月1,2日(鹿児島)。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

門川明彦 (KADOKAWA AKIHIKO)
鹿児島大学・医歯学総合研究科・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・医歯学総合研究科・助教
研究者番号：70152791