

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：17701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K11121

研究課題名(和文) 修復用硬質レジンのサーモクロミズムが審美性に及ぼす影響評価とその制御

研究課題名(英文) Thermochromism of restorative composite resins

研究代表者

有川 裕之 (ARIKAWA, Hiroyuki)

鹿児島大学・医歯学域歯学系・助教

研究者番号：90128405

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)：充填用コンポジットレジンや歯冠用硬質レジンには、口腔内で起こり得る4～60℃での温度変化はもとより室温と口腔内温度間においても目視で識別可能な色調変化が生じ、サーモクロミズム現象が生じることが判明した。こうしたサーモクロミズムが惹起される要因として、硬質レジンのベースレジンとして用いられるBis-GMA、UDMAといったジメタクリレート系モノマーの屈折率の温度依存性が最も大きな因子のひとつであることが判明した。すなわち温度変化に伴ってベースレジンの屈折率が変化し、これが光透過特性、反射特性といった材料の表層、内部での光学挙動に密接に関係することからサーモクロミズムに影響を及ぼすことが判明した。

研究成果の概要(英文)：For most restorative composite resins, there were significant color differences (E^*) in the region of intraoral temperatures from 4 to 60℃. Thermal dependence of refractive index of dimethacrylate resins used in composite resin in the region of intraoral temperature would cause the thermochromism of restorative composite resins.

研究分野：歯科生体材料学

キーワード：修復用コンポジットレジン 歯冠用硬質レジン 口腔内温度 サーモクロミズム 屈折率 温度変化

1. 研究開始当初の背景

各種修復用硬質(コンポジット)レジンはこの材料が登場して以来様々な改良が重ねられ、物理的ならびに機械的性質が著しく向上し、さらに可視光線重合方式の導入による簡便で安全な操作性と相まって充填用あるいは歯冠用材料として広く使用されている。

修復用硬質レジンが有する特長のひとつに優れた審美性能がある。硬質レジンとは基本的にジメタクリレート系ベースレジンと多量の無機質フィラー粒子をコンポジット化したものであり、両者はそれぞれ高い透明性を示す。しかし両者の光学的性質は同じではないため、硬質レジン透過する光は内部で拡散され、全体としては半透明性を示す。一方、歯質は、光学的性質の異なる無機成分と有機成分の混合体であることから同じく半透明性を示す。このため硬質レジンと歯質の光学挙動は類似しており、顔料による着色効果もあって歯質に対して比較的高い審美的整合性を得ることができる。しかし、光学挙動の類似性はあるものの両者は全く異なった成分と構造を有しており、透明性や光拡散性、色調など審美的な違和感は避けられない。こうしたことから、近年の審美意識の高まりと相俟って硬質レジンと歯質の審美性能の向上について国内外の研究機関や製造会社において改善の努力が続けられており、申請者らもこれまで科学研究費を得て、歯質と材料についての光学的性質の観点から両者の審美的整合性について様々な検討を加えてきた。

一方、材料の審美性能評価に関する現在までの多くの報告では、評価に関わる試験時の試験片温度や雰囲気温度が明示されることは稀であり、温度が審美性に及ぼす影響についてほとんど関心が払われていないのが現状で会った。しかしながら、一般的にどのような物質も環境温度の変化によって色調が変化する、いわゆるサーモクロミズム現象が生じることが知られている¹⁾。口腔内の温度は一時的ながら4～60℃付近まで変動するとされるが、色校正用標準色セラミック (orange) は室温(20℃)～体温(37℃)間でも識別可能な色調変化 ($\Delta E^*_{ab}=2.6$) が生じると報告されている¹⁾。修復用硬質レジンとは、基本的にジメタクリレート系ベースレジンとフィラー用ケイ酸塩ガラス微粒子をコンポジット化し、これに色調調整用の顔料を加えており、温度変化により物性が変化しや

すいペースレジンと構造変化を生じやすい顔料を主成分とすることから、これらが光学挙動に影響を及ぼしてサーモクロミズムが生じる可能性は高い。温度変化による金属氧化物系顔料の構造変化による色調変化²⁾が報告されているが、歯科用硬質レジンに使用されるジメタクリレート系ペースレジンや各種ケイ酸塩ガラス、顔料の光学的性質や構造の温度依存性に関しては不明である。申請者らは硬質レジンと歯質の光学的性質がその色調に大きな影響を及ぼすことを指摘してきた。また、数種類の市販硬質レジンでサーモクロミズムとみられる顕著な色調変化が生じることを確認しており、これが材料の審美性に影響する可能性を指摘してきた。

こうしたことから修復用硬質レジンと歯質のサーモクロミズムが審美性に影響を及ぼす可能性は極めて高く、審美性にたいするサーモクロミズムが及ぼす影響評価ならびに現象の解明と対策は、審美修復精度の向上をはかる上で非常に重要であると考え、本研究課題を申請した。

2. 研究の目的

修復用硬質レジンと歯質に対する審美性能に優れるものの、未だ十分満足できるとは言えず改良の努力が重ねられている。一方、材料の審美性能評価に環境温度が厳密に規定されることはほとんどなく、口腔内で想定される約4～60℃付近までの広い温度範囲での評価は不明である。一般的などのような物質も物理現象として環境温度により色調が変化するサーモクロミズム現象が生じる。修復用レジンと歯質のサーモクロミズムは不明な点が多く、この現象が審美修復精度に及ぼす影響については認識さえされていないのが現状である。

そこで、本研究では修復用硬質レジンと歯質のサーモクロミズムが審美性に及ぼす影響を明確にし、その上で耐サーモクロミズム性を有する修復用硬質レジンを開発することを目的とした。

3. 研究の方法

最初に、現在臨床で用いられる各種市販充填用コンポジットレジンと歯冠用硬質レジンと歯質の口腔内温度範囲における色調変化を厳密に規定した環境温度のもとで精密色彩色差計をもちいて測定し、サーモクロミズム現象の有無を確認するとともに、それが材料の審美性能に及ぼす影響を臨床医によ

る臨床評価を含めて明らかにした。さらに、硬質レジンベースレジンとして用いられる各種ジメタクリレート系モノマーの光学的性質の温度依存性を明確にし、それらが材料のサーモクロミズムにどのように影響を及ぼすのかを解析し、歯科用硬質レジンのサーモクロミズムを惹起させる要因を明らかにした。

4. 研究成果

歯科修復用コンポジットレジンや歯冠用硬質レジンには、口腔内で起こり得る4～60℃付近での温度変化はもとより、室温23℃と口腔内定常温度37℃間のわずかな温度差においても目視で識別可能な色調変化が生じ、明確なサーモクロミズム現象が生じることが判明した(図1)。

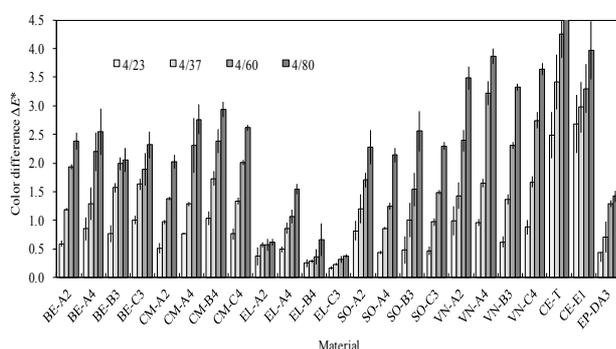


図1 23種類のコンポジットレジンと比較したときの23、37、60、80℃での色差

こうしたサーモクロミズムが惹起される要因として、硬質レジンベースレジンとして用いられる Bis-GMA、UDMA、TEGDMA といったジメタクリレート系モノマーの屈折率の温度依存性が最も大きな因子となることが判明した(図2)。すなわち温度変化に伴ってベースレジン屈折率が変化し、光透過特性、反射特性といった材料の表層、内部での光学挙動に大きな変動を及ぼすことでサーモクロミズム現象の発現を招くことが判明した。

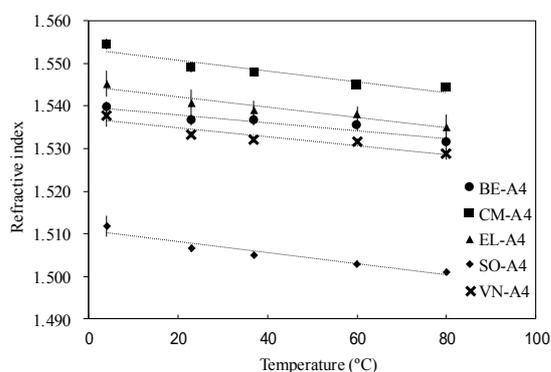


図2 5種類のコンポジットレジン(4、23、37、60、80℃)における屈折率変化

また、修復用硬質レジン温度変化による色調変化すなわちサーモクロミズム現象が存在することは、歯科臨床においてほとんど認識されていなかったが、本研究によって温度が審美修復精度に影響を及ぼす可能性があることを臨床医に広く周知することができた。

<引用文献>

- 1) Firchild MD, Grum F. Thermochromism of ceramic reference tiles. *Applied Optics*, 24, 3432-3433, 1989.
- 2) 小川桂一郎, 原田潤. 有機結晶のサーモクロミズム. *日本結晶学会誌* 43: 37-31, 2001.

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)

Arikawa H, Minesaki Y, Muraguchi K, Kono H, Kikuchi M, Thermochromism of restorative composite resins, *Dental Materials Journal*, 査読有, 2018 (in press)

[学会発表](計7件)

Arikawa H, Thermal dependence of refractive index of restorative composite resins, 10th World Congress of International Federation of Esthetic Dentistry, 2017, Toyama

河野博史, 有川裕之, 菊地聖史, ジルコニアの焼成条件が機械的特性に及ぼす影響 (第2報), 第70回日本歯科理工学会学術講演会, 2017, 新潟市

有川裕之, 修復用コンポジットレジンサーモクロミズム, 第24回日本歯科色彩学会総会・学術大会, 2016, 東京都

有川裕之, 修復用コンポジットレジン色調の温度依存性, 第27回日本歯科審美学会学術大会, 2016, 札幌市

有川裕之, 嶺崎良人, 河野博史, 菊地聖史, 修復用コンポジットレジン温度による色調変化 第4報 コンポジットレ

ジンの屈折率の温度依存性、第 69 回日本歯科理工学会学術講演会、2016、東京都

河野博史、有川裕之、菊地聖史、ジルコニアの焼成条件が機械的特性に及ぼす影響、第 69 回日本歯科理工学会学術講演会、2016、東京都

有川裕之、塚田岳司、嶺崎良人、河野博史、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 3 報 反射光 CIE L*a*b*表色系値の温度依存性、第 67 回日本歯科理工学会学術講演会、2016、福岡市

6 . 研究組織

(1)研究代表者

有川 裕之 (ARIKAWA, Hiroyuki)
鹿児島大学・医歯学域歯学系・助教
研究者番号：9 0 1 2 8 4 0 5

(2)研究分担者

村口 浩一 (MURAGUCHI, Koichi)
鹿児島大学・医歯学域歯学系・助教
研究者番号：3 0 2 9 5 2 5 8

菊地 聖史 (KIKUCHI, Masafumi)
鹿児島大学・医歯学域歯学系・教授
研究者番号：5 0 2 5 0 7 9 1

嶺崎 良人 (MINESAKI, Yoshito)
鹿児島大学・医歯学域歯学系・講師
研究者番号：7 0 1 5 7 5 7 7