

平成22年 6月27日現在

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2006 ～ 2009

課題番号：18390507

研究課題名（和文）：形状記憶ポリマーを用いた生体機能材料の開発と根管充填への応用

研究課題名（英文）：Development of functional biomaterial consists of shape memory polymer and application to root canal filling material.

研究代表者

塚田 岳司 (TSUKADA GAKUJI)

鹿児島大学・大学院医歯学総合研究科・助教

研究者番号：70236850

研究成果の概要（和文）：トランスポリイソプレンを用いて形状記憶機能を持つ根管充填用ポイントを試作した。操作性や封鎖性について調べた結果、シーラーやアクセサリーポイントを併用しなくとも、口腔内の温度刺激による単一のポイントの形状回復のみで、容易に且つ緊密に根管内を封鎖することが可能であり、約2年にわたる封鎖性試験においても良好な結果が得られた。また、形状記憶機能を利用することによって、仮着用セメントを用いなくとも仮着が可能であり、接触点の調整や咬合調整の必要がほとんどない暫間被覆冠の試作も行った。

研究成果の概要（英文）：The point for root canal filling which had a function of shape memory was produced by using Trans-1, 4-Polyisoprene experimentally. As the result of examination for the properties of workability and sealing, the space of root canal could be sealed by the recovery of shape for only one trial point for root canal filling easily and completely without the sealer and accessory point, and satisfactory sealing was gained for about two years. The temporary crown which could be cemented without temporary cement was also produced experimentally. The trial temporary crown almost not needed the adjustment for contact and occlusion.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2005年度			
2006年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
2007年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2008年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2009年度	2,300,000	690,000	2,990,000
総計	10,800,000	3,240,000	14,040,000

研究分野：保存治療系歯学

科研費の分科・細目：歯学・保存治療系歯学

キーワード：形状記憶ポリマー、根管充填材、トランスポリイソプレン、暫間被覆冠

1. 研究開始当初の背景

(1) 歯内療法の最終的な仕上げの処置である根管充填は、その歯牙の予後の良否を左右する極めて重要な処置であるにもかかわらず、現在臨床で行われている数種の根管充填法はい

ずれも、直視することが不可能であり、また、形状が把握しづらい根管内を、歯科医の感覚を頼りに充填するというような確実性に乏しい方法である。そのために、複雑なテクニックを必要とせず、もっと簡単な操作で効率よく確実に

根管を封鎖できるような新しい根管充填法に対する歯科医の要望は依然として高い。さて、近年、外部からの熱、光、電気、圧力などのさまざまな刺激に応答して効率的に作業を行うことのできる機能を持った材料、すなわち機能材料と呼ばれる材料がにわかにな注目されてきており、いろいろな機能材料が開発され、さまざまな分野で応用されている。このような機能材料の代表的なものの一つに形状記憶材料がある。申請者らは、保存治療における多くの処置のなかでも、極めて厄介な処置の一つである根管充填において、根管充填材に形状記憶機能を付与し、根管内でこの機能を発揮することにより、歯科医の手を煩わせることなく、根管充填材自らが自動的に根管を緊密に封鎖していくような、現行の根管充填法よりも格別に効率のよい根管充填法を開発するために、形状記憶ポリマーを応用することは、非常に有効な手段であると考えられた。

(2)形状記憶ポリマーの歯科治療への応用を想定した場合に、根管充填材への応用と並んで有効であると考えられたのが、暫間被覆冠への応用であった。現在、臨床で行われている暫間被覆冠の作製及び仮着作業は、かなりの時間を要し、また、問題点として、モノマー臭や重合時に発生する重合熱による不快感、切削時の切削片の飛散による診療室の汚染、分離剤や仮着用セメントを支台歯表面から除去する際の疼痛、そして最大の問題点として、分離材や仮着用セメントを用いることによる最終的な接着への影響などいろいろと指摘されているが、このような暫間被覆冠の問題点を克服するための手段として、形状記憶ポリマーを応用することにより暫間被覆冠を試作してみることにした。

(3)現在、歯科医が日常の臨床において、根管充填材や仮封材として頻繁に使用しているトランスポリイソプレン（以下TPIと略記する）は、60～70℃に融点を有する結晶性ポリマーであるという性質と、主鎖中に二重結合をもつジエン系ポリマーで容易に架橋することができるという2つの性質を併せ持つ材料であり、この2つの性質を利用することによって、形状記憶機能を付与することが可能である（第113回秋季日本歯科保存学発表）。そこで、まずはこのトランスポリイソプレンを用いて、臨床応用が可能である形状記憶ポリマーの開発を手掛けることにした。

2. 研究の目的

(1)根管充填とは、根管充填材を用いて根管という非常に狭い管状のスペースを緊密に充填することである。そのため根管充填用

ポイントはかなり細長い形状をしているが、この細長い形状の根管充填用ポイントに形状記憶という機能を付与し、歯科医が、根管充填の際に、根管内に根管充填用ポイントを挿入すると、根管内の温度刺激により根管充填用ポイントの形状回復が始まり、根管充填用ポイント自らが根管壁に密着していき、最終的には根管を緊密に封鎖していくような操作性や封鎖性に優れた新規の根管充填法を開発することを目的とする。

(2)暫間被覆冠の場合は、研究開始当初の背景で述べたように、臨床において様々な問題点が指摘されている。そこで、形状記憶ポリマーを暫間被覆冠に応用することにより、暫間被覆冠を口腔内の支台歯に被せると、口腔内温度の刺激により暫間被覆冠の形状が回復し、冠の内面が支台歯に適合していき、最終的には冠の内面が支台歯に緊密に密着し、且つ冠が支台歯をしっかりと把持し、冠の接点や咬合の調整についても、歯科医が切削したり盛り足したりすることなく、冠自体が自ら調整し、口腔内での環境に適合していくような新しい暫間被覆冠の開発を目的とする

3. 研究の方法

(1) 形状記憶ポリマー試料作製

トランスポリイソプレンを主成分とし、架橋剤として硫黄やジクミルペルオキサイド、架橋促進剤として酸化亜鉛やステアリン酸等を配合し、これらの混練を行って未架橋のコンパウンドを作製する。この混練を行った未架橋のコンパウンドを、試料作製用金型に填入し、その後、熱処理によって架橋を行う。ただし、熱処理については酸化による試料の劣化を防ぐために、空気中ではなく窒素ガス中で行う（真空乾燥器DRV220DA：東洋製作所：現有設備）。熱処理温度および熱処理時間についても、それらの条件をいろいろと設定して試料作製を行い、理工学的性質にどのような影響を及ぼすかを調べる。

(2) 形状記憶ポリマーの理工学的性質についての測定

作製した試料について以下の測定を行う。

- ①形状回復特性（レーザー変位計LC-2100：キーエンス社製：現有設備）
- ②粘弾性測定（引張圧縮試験機 TG-1KN：ミネベア社製：現有設備）
- ③変形回復応力測定（引張圧縮試験機 TG-1KN：ミネベア社製：現有設備）
- ④熱分析測定(DSC-7000:島津社製:現有設備)

以上のデータを1)にフィードバックし、さらに材料設計、および材料作製法のデータ収集を行う。

(3) 形状記憶ポリマー製の根管充填用ポイントの試作

形状記憶ポリマーを用いて、形状記憶機能を備えた根管充填用ポイントを作製する。ポイントの形状は、根管充填の対象となる根管よりも一回り太い形状とし、ポリマー間の架橋を行い、形状を記憶させる。そのポイントを加熱軟化し、根管に挿入可能な太さまで細く変形し、その細い形状のままポイントの冷却を行い、細く変形させたポイントの形状を固定する。この細く変形したポイントは、口腔内温度(37℃)で、形状回復し元々記憶していた形状へと復元することが可能となるように作製する。

(4) 根管充填の術式

図1に、本実験で考案した形状記憶ポリマー製の根管充填用ポイントを用いた根管充填法を示した。一例として80番のKファイルで最終拡大を行なった根管における根管充填の術式を示す。まず、先端の径が1.1mmの形状で架橋を行い、形状を記憶させた根管充填用ポイントを作製する(図1-A)。次に、先端の径が0.8mmの80番のポイントと同様な形状をしたポイントへと変形させて、その形状を固定する(図1-B)。変形を固定したポイントは、根管充填に使用するまでは転移温度以下の場所に保存しておく。人工根管の模式図および人工根管の写真を示す(図1-C)

(図2の左側)。この根管に変形を固定したポイントを挿入し、根管内で口腔内温度(37℃)の刺激によって形状を回復させて、根管充填を行う(図1-D)(図2の右側)。シーラーやアクセサリポイントは併用しない。

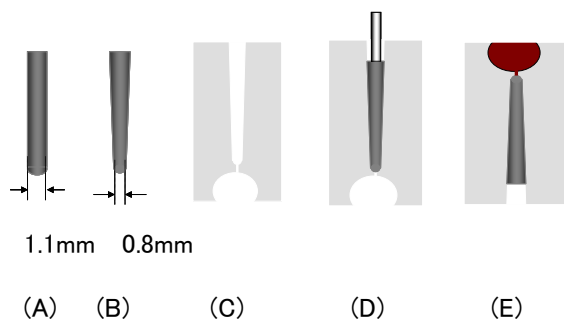


図1

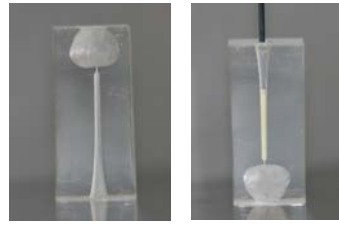


図2

(5) 根管充填後の封鎖性の評価

根管充填後、根尖側の窪みを1%フクシン溶液で満たし(図1-E)、直ちに図3に示したような37℃で湿度100%の容器中に保存し、色素浸透試験を開始する。

37℃で湿度100%の容器中に保存すると、窪みに満たした1%フクシン溶液の水分量はほとんど変化しないので、長期的な色素浸透試験が可能である。

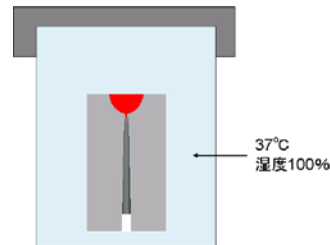


図3

(6) 形状記憶ポリマー製暫間被覆冠の試作

研究開始当初の背景で述べたような、暫間被覆冠の様々な問題点を克服するために、形状記憶ポリマーを暫間被覆冠に応用することにより、歯科医の手間を可能な限り減少させて、接点部や咬合などについては暫間被覆冠自らが自動的に調整するような、また、仮着用セメントも必要としない図4に示すような暫間被覆冠の装着法を考案してみた。

①図4-Aに示すようなキャップ状の試作の暫間被覆冠を作製する。接点部と咬合面以外(ア)は、変形固定した形状から37℃の温度刺激によって元来記憶させた形状へと回復可能な配合率(トランスポリイソプレン100に対して、酸化亜鉛30、ステアリン酸1、硫黄1.25、ジクミルペルオキシド7.5)で、接点部(イ)については、37℃雰囲気中では、ポリマーの結晶化が生じる配合率(トランスポリイソプレン100に対して、酸化亜鉛30、ステアリン酸1、硫黄0.75、ジクミルペルオキシド4.5)で、また、咬合面(ウ)については、接点部よりも、さらに架橋剤を減少させて、ポリマーの結晶化により高い弾性率を示すような配合率(トランスポリイソプレン100に対して、酸化亜鉛30、ステアリン酸1、硫黄0.5、ジクミルペルオキシド3)で、それぞれ混練を行った後、同一の金型へ

填入し、150℃で30分間の加熱処理で架橋を行なう。

②次に、この試作の暫間被覆冠を80℃空气中で加熱軟化しながら、支台歯よりやや径の大きな器具を用いて冠の内部を拡大し、5℃空气中で10分間の冷却により変形の固定を行なう(図4-B)。

③この変形の固定を行った暫間被覆冠の歯頸部については、支台歯の辺縁形態に適合するようにトリミングを行なう。

④図4-Cに示すように支台歯に被せて、少し浮かせた状態で頬舌的な接触点の位置を決めた後、接触点部(図4-A-I)に50~60℃程度の温度刺激を数秒間与えて軟化させる。

⑤その後、接触点部を歯間部に押し込んで咬合させる(図4-D, E)。

⑥図4-A-Aについては、37℃の口腔内の温度刺激で形状回復を行なう。また、図4-A-Iについては、再結晶化が生じるまで放置し、接触点の付与を行なう(図4-F)。

⑦咬合面4-A-Uについては、37℃空气中で、図4-A-A部分の形状回復を行っている間に、対合歯によって圧縮された部位に圧痕が記録される(図4-F)。

⑧この部位を50~60℃程度の温度刺激で加熱軟化させた後(G)、ポリマーが結晶化するまで再度対合歯と咬合させて、側方運動なども行い咬合調整を行なう(図4-H)。

⑨試作の暫間被覆冠の装着が完了(図4-I)

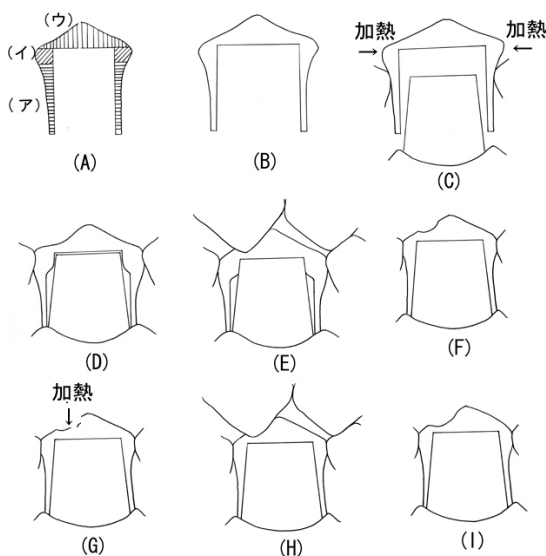


図4

4. 研究成果

(1) 根管充填用ポイント(80番)の試作

試作した根管充填用ポイントの一例を図5に示す。左側のポイントは既製の80番のガッタパーチャポイント、右側が未架橋のコンパウンドを架橋することによって80番のポイントよりもやや太めに作製したポイント、中央のポイントは左側のポイントを加熱軟化した後に、80番のポイントとほぼ同じ形状に変形させて、変形を固定したポイントである。細く変形させたポイントは、37℃の温度刺激により、太いポイントへと復元させることが可能であった。



図5

(2) 根管充填の術式の検討および封鎖性試験について

トランスポリイソプレンを架橋することによって作製した形状記憶ポリマーは、架橋剤の添加量が増加するに従って形状回復温度は低下し、また、変形回復応力は増加する傾向を示した。80番のKファイルを用いて拡大した人工根管を用いて行なった封鎖性試験では、トランスポリイソプレン100に対して、酸化亜鉛30、ステアリン酸1、硫黄1.42、ジクミルペルオキシド8.5の配合率で混練を行った後、100℃に加熱したポイント作製用金型へ填入し、金型の温度を15分程度で約170℃まで上昇させることによって、トランスポリイソプレン分子間の架橋を行い作製した根管充填用ポイントを用いて行なった試験の操作性や封鎖性が優れていた。

図6は、日常の臨床において一般的に根管充填の対象となるような根管を想定し、根尖孔を15番のリーマーで穿通させた人工根管を用いて行なった根管充填後1日後(左側)と約2年後(右側)の色素浸透試験の結果であるが、2年経過してもほとんど変化は認められず、長期にわたって良好な封鎖が認められた。

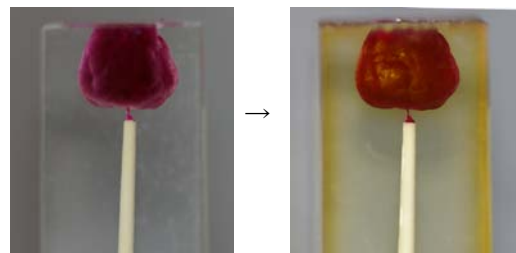


図6

図7は、根管充填の操作が困難とされる根尖孔が大きく開いた根管を想定し、根尖孔を60番のリーマーで大きく穿通させて、根尖部で80番のポイントが止まるように形成した人工根管について、形状記憶ポリマー製のポイントを用いて根管充填を行なった場合の色素浸透試験の結果である。根管充填後14日後（左側）と20ヶ月後（右側）を比較してもほとんど変化は認められず、長期にわたって良好な封鎖が認められた。

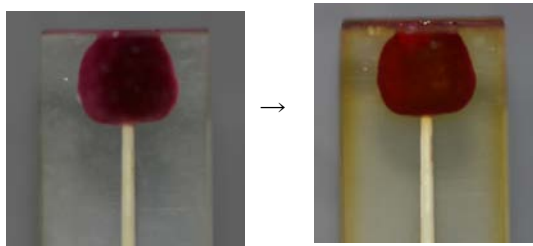


図7

(3) 暫間被覆冠の試作

形状記憶ポリマーを用いて試作した暫間被覆冠を図8-Aに示す。架橋により形状を記憶させた元々の冠の内径は支台歯の外形より小さくなるように作製した(図8-B)。次に、図8-Cに示すように、冠の内径が大きくなるように変形させて、その変形を固定した。変形を固定した暫間被覆冠の内径は、支台歯の外径よりもやや大きめとなるようにした(図8-D)。

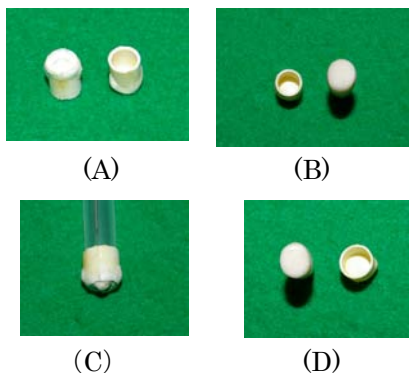


図8

(4) 暫間被覆冠の装着

形状記憶ポリマー製の暫間被覆冠を図8に示すような術式で顎模型の人工歯(図9-A)に装着させた。まず、支台歯の辺縁に適合するようにトリミングを行った(図9-B)。ポケット探針を使用すると、容易にトリミングを行うことが可能であった(図9-C)。次に、支台歯に軽く被せた状態で、接触点部に50~60℃程度の温度刺激を数秒間与えて軟化させ(図9-D)、接触点部を歯間部に押し込み(図9-E)、咬合させた状態で37℃の空气中に保存し(図9-F)、図4-A-(ア)部

の形状回復を行い、支台歯へと適合させた。また、(図9-G)に示すように対合歯との接触部に圧痕が記録されているので、圧痕部を50~60℃程度の温度刺激を数秒間与えて軟化させた後(図9-H)、咬合させ(図9-I)、最終的な咬合面形態を付与した。(図9-J)に示すように良好な咬合接触関係を記録することが可能であった。咬合面については、咬合圧を考慮し、口腔内温度でのポリマーの弾性率を高めるために、架橋剤の配合率を少なくしてみたが、この配合率では、50℃程度で数秒間の加熱により、容易に非晶化することが可能であり、また、再結晶化に要する時間も2~3分程度とかなり短縮できた。この結果より、比較的短時間で、容易に咬合面形態の付与を行なうことが可能であると思われる。接触点部は37℃雰囲気中に十数分程度保存することにより、50μm厚さのコンタクトゲージの挿入は可能となり(図9-K)、110μm厚さのコンタクトゲージの挿入は、不可能であった(図9-L)。接触点の調整については、接触点部を50~60℃で数秒間加熱することにより、同部の結晶構造が非結晶化して軟化し、容易に接触点部を歯間部へ圧入することが可能となった。さらに、同部は、37℃で結晶化するように材料設計されており、図10に示すように支台歯と隣在歯とで圧接された形状のまま次第にポリマーの結晶化が生じて変形が固定されたために、良好な接触点を付与することが可能であった。

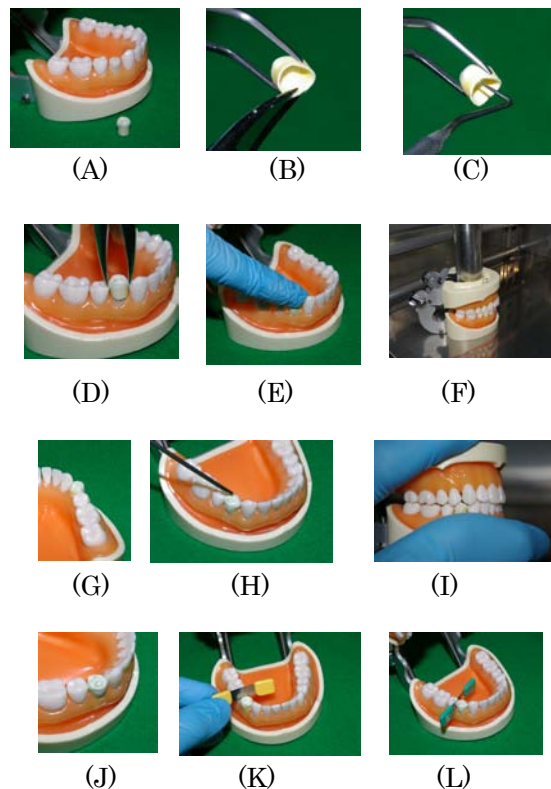


図9

装着した暫間被覆冠は、非破壊的に支台歯から除去するのは困難であり、仮着用セメントを用いなくても装着が可能であると思われた。これを、1%フクシン溶液(37℃)に3日間浸漬して、漏洩試験を行い、冠を除去したところ、図11に示すように、ほとんど色素の浸透は認められず比較的良好な封鎖が得られた。



図 10



図 11

これまでの結果をふまえて、症例によっては、形状記憶ポリマーを暫間被覆冠に応用することにより、現在一般的に行われている歯科用暫間被覆冠の作製法および仮着法の欠点を克服する可能性が期待できる。

これまでの研究より、形状記憶ポリマーを歯科治療へ応用することによって、新しい治療法開発の可能性が期待できる。

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)

[学会発表] (計5件)

①塚田岳司、田中利明、長岡成孝、鳥居光男：形状記憶ポリマーの根管充填材への応用—根尖孔が大きく開いた人工根管での封鎖性の検討—、平成21年6月12日、札幌コンベンションセンター

②塚田岳司、田中利明、長岡成孝、鳥居光男、形状記憶ポリマーの根管充填材への応用—80番まで形成した人工根管での封鎖性の検討—、日本歯科保存学会、平成20年11月7日、富山国際会議場(大手町フォーラム)

③塚田岳司、金丸憲一、田中利明、長岡成孝、鳥居光男、形状記憶ポリマーを用いた暫間被覆冠—歯冠形態の付与について—、日本歯科保存学会、平成20年6月5日、新潟コンベンションセンター(朱鷺メッセ)。

④塚田岳司、金丸憲一、田中利明、蟹江隆人、長岡成孝、鳥居光男、形状記憶ポリマーを用いた暫間被覆冠—ポリマーの結晶性を利用した接触点の付与—、日本歯科保存学会、2007年11月8日 岡山コンベンションセンター。

⑤塚田岳司、金丸憲一、田中利明、蟹江隆人、長岡成孝、鳥居光男、形状記憶ポリマーを用いた暫間被覆冠、日本歯科保存学会 2007年6月7日 大宮ソニックシティ。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

塚田 岳司 (TSUKADA GAKUJI)

鹿児島大学・大学院医歯学総合研究科・助教

研究者番号：70236850

(2) 研究分担者

蟹江 隆人 (KANIE TAKAHITO)

鹿児島大学・大学院医歯学総合研究科・助教

研究者番号：70152791

鳥居 光男 (TORII MITSUO)

鹿児島大学・大学院医歯学総合研究科・教授

研究者番号：30116066