

令和 3 年 5 月 30 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K17109

研究課題名(和文)CAD/CAM冠合着後の早期負荷が冠のひずみ及び脱離に及ぼす影響

研究課題名(英文)Effect of early load after CAD / CAM crown luting on crown strain and detachment

研究代表者

勝田 悠介 (KATSUDA, Yusuke)

東北大学・大学病院・助教

研究者番号：70781277

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：CAD/CAM冠の早期脱離について、接着性レジンセメントの重合反応動態を多角的に解明することにより、その解決方法を探索することを目的とした。レジンセメントの重合反応がラジカル反応であることから、電子スピン共鳴法(ESR)を用いてフリーラジカル生成量の評価を行い、重合反応動態の評価を行った。また重合度やビッカース硬さとの相関関係を求めた。併せて、重合阻害因子がレジンセメントの機械的強度に及ぼす影響についても評価した。これらを硬化促進プライマーおよび光照射の有無の条件群で比較したところ、プライマー併用によりフリーラジカル反応は活性化され、重合阻害を軽減させる効果を認めた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

レジンセメントの重合開始から30分後までの短期間においては、重合度とビッカース硬さ、重合度とラジカル生成量、ラジカル生成量とビッカース硬さとの間に、それぞれ高い正の相関関係を認めた。さらに、重合阻害因子である水や大気に暴露させることで、機械的強度であるビッカース硬さは低下したが、プライマーを併用することで重合阻害を軽減させることは可能であった。以上より、確実な接着が求められるCAD/CAM冠の接着に際しては、フリーラジカル反応を活性化させ、重合阻害を軽減させる効果のあるプライマー併用が、臨床的に推奨されることが示唆された。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study was to find a solution to the early detachment of the CAD/CAM resin crowns by studying the polymer reaction of the adhesive resin cement from various angles. Since the polymerization reaction of resin cement is a radical reaction, the amount of free radicals produced was evaluated using electron spin resonance (ESR), and the kinetics of polymerization was evaluated. In addition, the correlation with the degree of conversion(DC) and Vickers hardness was determined. At the same time, the effect of polymerization inhibitors on the mechanical strength of resin cement was also evaluated. Specimens were prepared by mixing the cement paste with or without adhesive primer, and/or light-curing. Therefore, it is suggested that application of the adhesive primer is beneficial to achieve higher DC and mechanical property of self-adhesive resin cement by enhancing free radical reactions.

研究分野：歯科補綴学

キーワード：CAD/CAM冠 脱離 レジンセメント

1. 研究開始当初の背景

歯科用 CAD/CAM 技術の発展と普及、および口腔内における審美の要求の向上により、日本の保険診療に平成 26 年より小臼歯に限定して CAD/CAM 法を用いて作製される CAD/CAM 製硬質レジックラウン (以下 CAD/CAM 冠) が導入された。その後、CAD/CAM 冠の適用部位は一部条件があるものの、大臼歯にまで拡大された。適用拡大の背景には、硬質レジックブロックの強度の向上が挙げられる。研究代表者の所属する研究グループは基礎実験で CAD/CAM 冠の大臼歯への適用の可能性や 5 年間で想定した長期疲労における抵抗性を示した (Harada et al. 2015, Ankyu et al. 2016)。以上の背景より国民のニーズに伴い、今後益々の普及が期待される技術である。

しかし、小臼歯 CAD/CAM 冠はわずか 6 か月間で 9.1% の高頻度で脱離していることが報告され問題となっている (末瀬 2015)。脱離に抵抗する手段として、接着を強化する方法が研究され、装着時の適切な接着操作を行うことで実験上では十分な接着強度を得られることが報告されている (Higashi et al. 2016)。一方で接着操作が重要ということが周知されてきたにも関わらず、クラウン脱離の報告は続いており、接着操作以外の要因が脱離に大きく関わっていることが推察されるが、未だ明らかにされていない。

2. 研究の目的

本研究の大きな目的は早期のクラウン脱離に及ぼす影響について、接着操作以外の因子について評価し、その解決方法を探索することである。特に研究代表者は「クラウンの弾性係数」と「セメント硬化前の負荷」に着目している。硬質レジックの弾性係数は小さいために、セメントへの負荷の影響は大きいことが予想される。セメント硬化前における咬合力や熱ストレスが、特に弾性係数の小さい CAD/CAM 冠においては接着強度の低下を招き、臨床で問題となっている早期脱離に至っていると仮説を立てた。以上のことから本研究では、弾性係数の小さい CAD/CAM 冠への装着後早期の負荷が、セメントの接着強度に及ぼす影響を調査し、様々な因子を調整することで、CAD/CAM 冠脱離の防止・長期安定性の向上に向けた材料学的データを集積し、その解決方法を探索することを目的とする。

さらに、近年では様々な接着性レジックセメントが臨床において応用されているが、セメントペーストに酸性機能性モノマーを含有するセルフアドヒーシブ型レジックセメントに、支台歯側からの化学重合促進を目的とするプライマーを併用するものも存在する。そこで、接着強度を評価するうえで、重合初期段階におけるレジックセメントの重合反応動態に着目し、プライマーや光照射が及ぼす影響について分析することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、デュアルキュア型セルフアドヒーシブ型レジックセメント (G-CEM ONE, GC) を用いた。支台歯側からの化学重合促進を目的としているプライマー (接着強化プライマー, GC) および光照射が重合反応動態に及ぼす影響を分析するために、(1) フーリエ変換赤外分光法 (FTIR) による重合度の評価、(2) ビッカース硬さ試験による機械的強度の評価、(3) 電子スピン共鳴法 (ESR) によるフリーラジカル生成量の評価を行った。以下に、設定した 4 条件を示す。

- ・ P(+)L(+) ; プライマー 1 μ L を混和したセメントに 10 秒間の光照射を行い光重合させる群
- ・ P(+)L(-) ; プライマー 1 μ L を混和したセメントに光照射せず化学重合のみさせる群
- ・ P(-)L(+) ; プライマーを混和させないセメントに 10 秒間の光照射を行い光重合させる群
- ・ P(-)L(-) ; プライマーを混和させないセメントに光照射せず化学重合のみさせる群

(1) 重合度の評価

重合度 (DC) の経時的変化を FTIR で評価した。練和したセメントを 2 枚の KBr プレートで挟み、プレート間のセメント層の厚みが可及的に薄くなるように手指圧を加えた直後、未重合の試料として計測を行った。その後、光照射する群 [L(+)] は 1.5 mm の厚みの CAD/CAM レジックブロック (CeraSmart 270 A3LT, GC) の板状試料を介して、LED 光照射器による 10 秒間の光照射を行った。光照射終了直後に再度 FTIR の計測を行い、0 min の波形として記録した。光照射を行わない群 [L(-)] に関しては、未重合の試料を計測した後、L(+) の計測タイミングに合わせて再度計測を行い 0 min のデータとして記録した。その後、重合開始から 1 週間後まで同一試料の繰り返し分析を行った。計測時以外は 37°C の遮光したインキュベータ内で試料を保管した。得られた赤外線スペクトルから、脂肪族炭素二重結合 (aliphatic C=C ; 1637 cm^{-1}) に対する炭素酸素二重結合 (C=O ; 1720 cm^{-1}) の吸光度の比率、および窒素水素結合 (N-H ; 1530 cm^{-1}) の吸光度の比率を算出し、DC (%) は以下の計算式を用いて算出した。

$$DC = 100 \times (1 - R_{\text{cured}} / R_{\text{uncured}})$$

$$R = \text{Abs}_{\text{aliphatic C=C}} / \text{Abs}_{\text{C=O}} \text{ or } \text{Abs}_{\text{N-H}}$$

Abs は吸光度を示し、 R_{cured} 、 R_{uncured} はそれぞれ各計測時間および未重合の試料における 1637 cm^{-1} に対する 1720 cm^{-1} もしくは 1530 cm^{-1} のピーク比率である。

(2) 機械的強度の評価

重合開始後におけるビッカース硬さの経時的変化を分析した。厚み 90 μm の PTFE テープをスライドガラスに貼った上に、幅の狭い 2 本の PTFE テープを間隔が 10 mm になるよう平行に貼ってセメントスペースを規定し、厚み 1.5 mm のレジブロックを圧接した。光照射する群 [L(+)] は、レジブロック側から LED 光照射器による 10 秒間の光照射を行い、37°C の水中に試料を保管した。光照射を行わない群 [L(-)] に関しては、レジブロックの板状試料を圧接後、37°C の水中に試料を保管した。試料を水中にそれぞれ 10 分間、20 分間保管したのち、PTFE テープを貼ったスライドガラスから剥がしてビッカース硬さを計測した。30 分間水中に保管してからスライドガラスから剥がした試料は、ビッカース硬さを計測したのち、同一試料を 1 週間後まで繰り返し分析を行った。繰り返し計測に用いた試料は、37°C のインキュベータ内に保管し、ビッカース硬さは以下の計算式を用いて算出した。

$$Hv0.2 = 0.1891 \times F/d^2$$

$Hv0.2$ はビッカース硬さ、 F は試験力 (N)、 d は圧痕の対角線の長さ (mm) である。

(3) フリーラジカル生成量の評価

重合反応によって生成されるフリーラジカル量の経時的変化を ESR にて分析した。練和したセメントを、長さ 10 mm、外径 3 mm、内径 2 mm の PTFE チューブのモールドに填入した後、セメントが大気に暴露されるのを防ぐため、チューブの両端を長さ 2 mm の PTFE プラグを用いて封鎖した。光照射する群 [L(+)] は PTFE チューブにセメントを填入したのち、PTFE モールドを介して LED 光照射器による 10 秒間の光照射を行った直後に ESR を計測し、0 min のデータとして記録した。光照射を行わない群 [L(-)] に関しては PTFE チューブへのセメント填入が終わり次第、ESR 計測を行い 0 min のデータを記録した。その後、同一試料を用いて、重合開始から 1 週間後まで繰り返し分析を行った。計測時以外は 37°C のインキュベータ内で試料を保管した。フリーラジカルのスピン濃度算出においては、得られた一次微分スペクトルの二重積分を求めることでスピン濃度を算出した。

さらに、メタクリレートに特有の成長ラジカル (RI) とアリルラジカル (RIII) から構成される 9 本線スペクトルを分析するため、計算スペクトルシミュレーションと最小二乗フィッティングを行い、RI と RIII の比率およびを算出した。RI と RIII のスピン濃度は、最小二乗フィッティングで算出された RI と RIII の比率と、総スピン濃度から算出した。前述したように、濃度はシミュレーションから得られたスペクトルの二重積分により求めた。

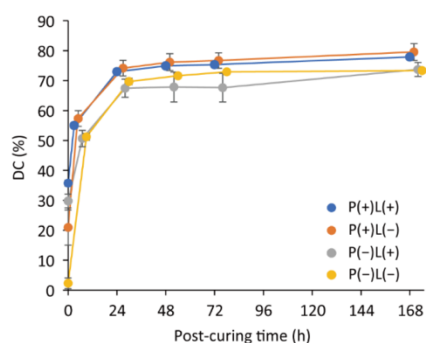
(4) セメントの重合反応に及ぼす水と大気の影響の評価

前述したビッカース硬さ試験において、試料の保管方法を変更することで、水と大気が重合反応に及ぼす影響について分析を行った。37°C の水中に試料を 30 分間保管後、ブロックをスライドガラスから剥がしてビッカース硬さを計測する群と、37°C の水中に試料を 10 分間保管後、ブロックをスライドガラスから剥がし、そのブロックを 20 分間 37°C の水中もしくはインキュベータ内で保管してからビッカース硬さを計測する群をそれぞれ比較した。

4. 研究成果

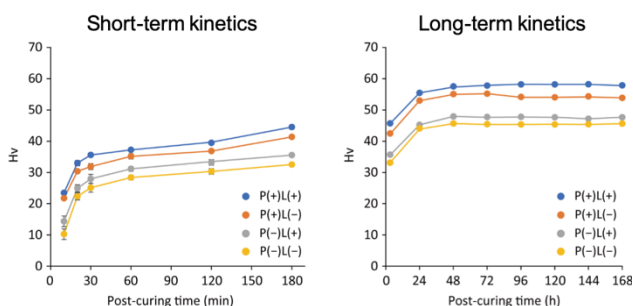
(1) セメントの重合度

全ての条件において、重合度は重合開始から最初の 30 分間に急上昇した後、48 時間後まで緩やかに上昇してプラトーに到達し、最終的な重合度は約 70% であった。プライマーを併用した群 [P(+)] の方が、併用しない群 [P(-)] よりも重合度は高い傾向にあったが、24 時間後以降は各条件間に有意差を認めなかった。光照射する群 [L(+)] は、重合開始から最初の 20 分間のみ、光照射しない群 [L(-)] よりも高い重合度を示した。以上より、プライマーおよび光重合は重合度上昇に影響を及ぼし、特に光重合は重合開始直後における重合度上昇に関与していることが明らかとなった。



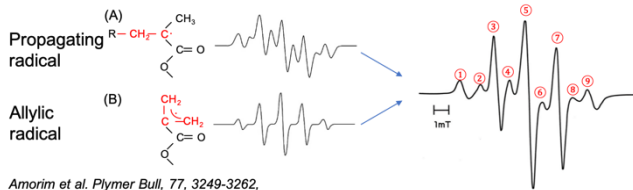
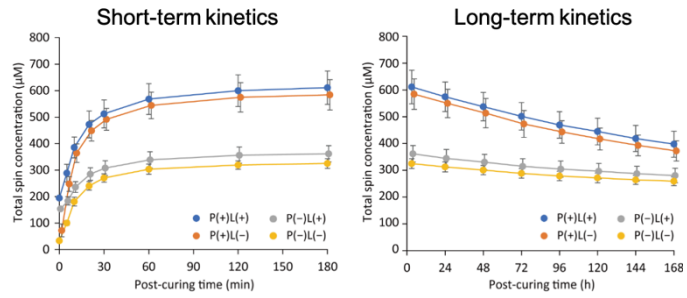
(2) セメントのビッカース硬さ

ビッカース硬さは時間経過と共に上昇し、重合開始から 48 時間後にプラトーに到達した。プライマーおよび光重合は共にビッカース硬さを上昇させるが、光重合よりもプライマーの方がその効果は大きく、 $P(+)/L(+)$ > $P(+)/L(-)$ > $P(-)/L(+)$ > $P(-)/L(-)$ であった。なお、初期硬化度が最終硬化度に影響を及ぼすことも明らかとなった。



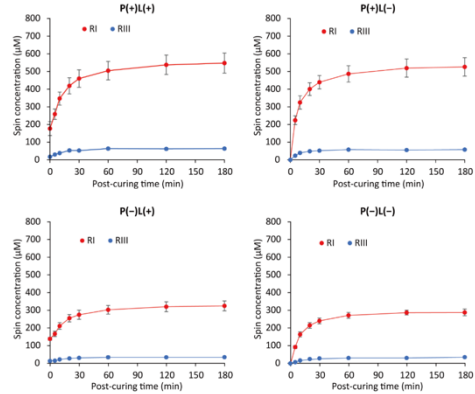
(3) セメントのフリーラジカル生成量

フリーラジカル生成量は60分後まで増加してプラトーに到達した後、重合開始から3時間後以降には生成量の減少を認めた。重合開始直後（光照射終了直後）においては光重合の与える影響が大きかったが、それ以降はプライマーを併用する群 [P(+)]の方が、併用しない群 [P(-)] よりもフリーラジカル生成量は有意に多かった。



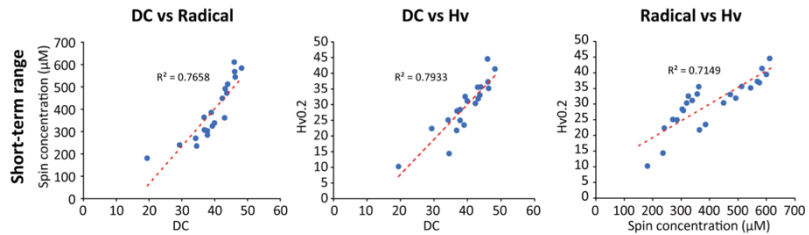
Amorim et al. *Polymer Bull.* 77, 3249-3262, 2020

スペクトルシミュレーションとフィッティングを行った結果、重合に関与する成長ラジカル RI がフリーラジカル生成量全体の約 90% を占め、残りの約 10% は、重合に関与しない安定したアリルラジカル RIII であった。



(4) 相関関係

3時間後までの短期間においては、重合度とビッカース硬さ、重合度とフリーラジカル生成量、フリーラジカル生成量とビッカース硬さとの間には高い正の相関関係を認めたが、1週間後までの長期間では相関関係はほぼ認めなかった。



(5) セメントの重合反応に及ぼす水と大気の影響

水や大気に暴露するとビッカース硬さは有意に低下したが、プライマーを併用している群 [P(+)] は併用していない群 [P(-)] と比較して、水や大気に暴露しなかった場合からのビッカース硬さの低下率は小さかった。一方、光照射を行った群 [L(+)] は、行わなかった群 [L(-)] と比較しても、水や大気に暴露したことによるビッカース硬さの低下を軽減させることはできなかった。このことより、プライマーは重合阻害因子である水や大気の影響を軽減させることが示唆された。

Hv (% of control)

	Untreated	Water	Air
P(+)/L(+)	100%	84.3%	82.4%
P(+)/L(-)	100%	90.5%	88.5%
P(-)/L(+)	100%	65.4%	59.5%
P(-)/L(-)	100%	65.0%	45.4%

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 尾崎 茜, 原田章生, 勝田悠介, 木村葉月, 江草 宏
2. 発表標題 CAD/CAM冠を介した光照射がデュアルキュア型レジンセメントの接着に及ぼす影響
3. 学会等名 公益社団法人日本補綴歯科学会 第128回学術大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------