

平成 21 年 5 月 1 日現在

研究種目：若手研究（B）  
 研究期間：2007～2008  
 課題番号：19791597  
 研究課題名（和文） 小児・障害児（者）歯科領域に最適な光硬化型成形修復材料の検討  
 研究課題名（英文） Irradiation conditions affected depth profiles and mechanical properties of light cure materials for children and disabled child(person)  
 研究代表者  
 池田 訓子  
 昭和大学・歯学部・助教  
 研究者番号：70365708

## 研究成果の概要：

小児歯科および障害児（者）歯科領域の歯科治療において、治療時間が短縮できることは非常に重要である。中でも成形修復処置は、歯科材料学的特性から1回の治療時間を短縮させることが困難であった。近年、開発された照射時間を短縮できるとされている高強度光照射器を用いて硬化させた歯科用材料についての報告が少ないため研究を行った。デュアルキュアタイプのレジンセメントにおいて、高強度の光重合をすると、化学重合反応が抑制されるという報告に類似している。以上の結果より、デュアルもしくはトライキュアのRMGIセメントでは、コンポジットレジンと異なり、セメントの機械的性質の向上を期待した高出力照射器を用い高強度の照射を行うと、逆にセメント硬化体の特性低下を生じさせることが認められた。

## 交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,400,000	0	2,400,000
2008年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	270,000	3,570,000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学・矯正・小児系歯学

キーワード：小児歯科学

## 1. 研究開始当初の背景

## (1) 歯科用可視光線照射器の開発

歯冠修復材料は硬化反応に可視光線領域の光重合反応を有する材料が頻用されるようになったため、多くの歯科用照射器が出現してきた。光重合型コンポジットレジンへの光照射は、光強度により光重合開始剤のフリーラジカル発生量が左右されるため光重合反

応量に影響し、さらには硬化特性にも影響することが推測された(新海航一 他, 日歯保存誌, 47, 454-459, 2004)。このため近年では、キセノンランプ、LEDランプなどを光源とする高出力の照射器が開発された。歯科臨床における高強度の光照射器は、治療時間の短縮が可能であるとしているため、特に従来から治療時間の短縮が要求されている小児や障

害児(者)に対する歯科臨床において注目されている。光重合型コンポジットレジン材料において、高強度の光照射は、短時間で高い重合率を得ることが可能である(Lohbauer U et. al., Dent Mater., 1, 608-615, 2005)。しかし同時に、急激な重合反応が光重合型コンポジットレジンの窩壁適合性に影響する(新海航一 他, 日歯保存誌, 46, 202-208, 2003)。これらのことから、急激な重合反応は、光硬化型高分子材料にどのような変化を引き起こすのかということは、基礎研究としてだけでなく、臨床においてもきわめて重要な課題である。

## (2) レジン添加型ガラスアイオノマーセメントの硬化メカニズム

### レジン添加型ガラスアイオノマー

(以下、RMGIと略記)セメントは、従来のセメントの硬化反応である酸-塩基反応とレジン成分の光重合反応と化学重合反応の3種類の硬化反応を有している材料である。(図1)

このRMGIセメントの光重合反応が急速に進行した場合、セメント内の酸塩基反応や硬化挙動全体に及ぼす影響については、光重合型コンポジットレジンよりも不明である。

申請者はRMGIセメントの重合挙動や重合率を算出するために、必須な分光分析学を用いた物理化学的手法に基づき、経時的な重合反応の変化を捉えることを明らかにした(研究業績12)。さらに、その方法を用いて、RMGIセメントのレジン成分の硬化反応である重合挙動や重合率の算出方法を報告した(研究業績7)。

### 2. 研究の目的

小児歯科および障害児(者)歯科領域の歯科治療において、治療時間が短縮できることは非常に重要である。中でも成形修復処置は、接着システムや修復材料の硬化反応の影響で、1回の治療時間を短縮させることが困難であった。近年、開発された高強度光照射器を用いて硬化させたことによる材料の硬化反応や物性への影響は未だ報告が少ない。また、乳歯、幼若永久歯は成熟永久歯よりも材料の物性への影響を受けやすい。このため、本研究は、急速な反応により硬化させた光硬化型成形修復材料の硬化反応への影響およびこれらの材料の物性が修復物や与える影響について検討し、小児歯科、障害児(者)領域の最適な成形修復材料に必要な性質について検討する。

### 3. 研究の方法

RMGIセメントにはFuji II LC(以下FLCと記す)を用い、粉液比は製造者指示の標準粉液比の3.2でセメントの練和を行った。可視光線照射器はハロゲンランプを光源に用いた照射器(Optilux 400, Demetron, USA; 以下

HALと記す)とキセノン光源に用いたHALよりも約3.5倍の光強度を有する照射器

(Wavelight, DMT Inc., USA; 以下XELと記す)の2種類の照射器を用いた。なお、照射器の光強度は光強度計を用いて10回測定し平均値を求めた。

### 1. 硬化深度測定

円柱形(直径: 4 mm, 高さ 8 mm)を中央に有する金属製分割式モールドにセメント泥を填塞し、上下部にプラスチックストリップを介してスライドガラスで圧接を行った。その後セメント泥に、HALでは5, 10, 20, 30, 60, 90秒間、XELは1, 3, 5, 10, 15, 20, 30秒間の照射条件で光照射を行なった。モールドを分割して、硬化したセメント部を取り出した後、セメント硬化体の最大長さをデジタルノギス(Caliper, Mitsutoyo, Japan)で測定してRMGIセメントの硬化深度とした。

### 2. 赤外(IR)スペクトル分析

赤外(以下IRと記す)スペクトルの測定は、フーリエ変換赤外分光分析装置(FT/IR-7300, JASCO, Japan)を用いて、薄膜法で行った。試料は、セメント泥0.5 mgを2枚のCaF<sub>2</sub>板で挟み、ホルダーに保持した。ホルダーから0 mm, 30 mm上方からそれぞれ光照射を行なった。光照射はHALの場合は30秒間照射し、XELの場合は1秒間照射したものを試料とした。測定室の室温は24°Cに保ち、試料室内に乾燥空気を通して水蒸気を除去した。Deuterium Triglycine Sulfate (DTGS)製の検出器を用いて、分解能4 cm<sup>-1</sup>、アパーチャー径8 mmの条件下で50回積算してIRスペクトルを測定した。IRスペクトルの測定は、照射前、照射直後、5分、10分、15分、30分、1時間、24時間、48時間、1週間後まで行なった。

### 3. 重合率の算出

IRスペクトルから重合反応に關与するC=C伸縮振動由来(1635 cm<sup>-1</sup>)のピーク強度を求めた。なおピーク強度は、Gauss関数を用いた波形分離を施して求めた。さらに、求めたピーク強度(A)から(1)式のように重合率(DC)を算出した。

$$DC(\%) = (1 - A_t / A_0) \times 100 \quad \dots(1)$$

A<sub>t</sub>: t時間後のC=C伸縮振動由来のピーク強度

A<sub>0</sub>: 光照射前のC=C伸縮振動由来のピーク強度

### 4. 機械的性質の測定

#### 1) 曲げ試験

曲げ試験片は、セメント泥をモールドに填入圧接後、HALは30秒間、XELは5秒間3回の分割光照射を上下方向から行ない硬化させ、ステンレス鋼製分割金型を用いてISO規

格に準じて、角柱状(3×3×25mm)の試験片を作製した。練和開始 30 分後に試験片をモールドから取り外し、37 °C 脱イオン水中に 1 週間暗室保管した。曲げ試験は支点間距離 (1) 20 mm, クロスヘッドスピード 0.5 mm/min の条件下で 3 点曲げ試験を行い、最大荷重(P)を求め、以下の(1)式から曲げ比例限、曲げ強さ、(2)式から弾性率を計算により求めた。また、最大たわみ量は、得られた荷重 - 変位曲線において、破断までに生じた試験片のたわみをチャート上から計測して求めた。

$$Bs=3Pl / 2bh^2 \quad \dots(1)$$

Bs: 曲げ強さ (MPa), P: 破断荷重, l: 支点間距離, b: 試験片幅, h: 試験片高さ

$$E= P l^3 / 4 bh^3 \quad \dots(2)$$

E: 弾性率 (GPa), : たわみ (mm)

上記に示す機械的性質試験における各応力特性値は、試料数 5 箇の平均から求めた。また、各特性値間の統計的有意差の検定は、Sutudent t-test を用いて行った。

## 2) 圧縮試験

圧縮試験片はセメント泥をガラス製モールドに填入圧接後、上下左右方向から HAL は各 30 秒間、XEL は各 5 秒間光照射を行ない、直径 4 mm, 高さ 6 mm の円柱状試験片を硬化させた。練和開始 30 分後に試験片をモールドから取り外し、37°C 脱イオン水中に 1 週間暗室保管した。圧縮試験は ISO 規格に準じて万能試験機 (1125, Instron) を用いて行い、クロスヘッドスピード 0.6mm/min の条件下で圧縮試験を行った。チャート上から 0.2% 永久ひずみを生じた荷重、ならびに破断荷重を求め、断面積で除した値をそれぞれ圧縮耐力、圧縮強さとした。また、圧縮耐力 / 圧縮強さを降伏比として計算して求め、脆性の指標とした。なお、5 箇の試験片について圧縮試験を行い、圧縮耐力、圧縮強さ、降伏比の平均値を圧縮特性値として表した。

## 4. 研究成果

### 1. 硬化深度

照射器と硬化深度の関係は HAL を用いた場合、照射時間の増加に伴う硬化深度の増加が認められた。一方、XEL を用いた場合では、15 秒までは同様に硬化深度の増加が認められたが、15 秒以上は硬化深度の増加がほとんど認められず、硬化深度も HAL で 60 秒照射した場合より小さかった。

### 3. 赤外 (IR) 分光分析

HAL を用いて異なる照射距離で RMGI セメントに照射した場合に照射距離 30 mm の条件の IR スペクトルからは、C=C 伸縮振動に帰属する 1635 cm<sup>-1</sup> のピークが照射前に比べ照射直後で減少を生じた。さらに、24 時間後の IR スペクトルでは酸 - 塩基反応により生成されるポリアクリル酸塩に帰属する 1600 cm<sup>-1</sup> のピークが認められた。

一方、HAL の照射距離 0mm の条件では 1635 cm<sup>-1</sup> のピークは照射直後に減少したが、1600 cm<sup>-1</sup> のピークは認められなかった。

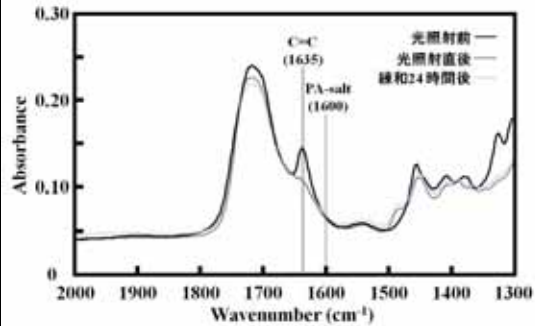


Fig.3 HAL 距離 0 mm 時における LC の IR スペクトル経時変化

XEL を用いて照射距離 30 mm の条件では、照射直後に 1635 cm<sup>-1</sup> のピークが減少したが、1600 cm<sup>-1</sup> 付近のピークが認められた。しかし、このピークは照射直後と 24 時間後にピークの高さに変動がなかった。一方、XEL の照射距離 0 mm の条件では、照射器から発生する熱が高いため CaF<sub>2</sub> に均一な硬化体が作れず GI セメントが硬化というよりは乾燥した様相を呈し、試料が不均一となり、IR 測定を行なうことができなかった。

さらに、24 時間後の HAL 30mm と XEL の両スペクトルから、XEL を用いた場合の IR スペクトルでは、酸 - 塩基反応により生成されるポリアクリル酸塩に帰属する 1600 cm<sup>-1</sup> のピークの波数が HAL のピークと異なり、さらにピークの形状も異なることが認められた。

重合率を算出したところ、HAL は 86%、XEL は 96% であった。重合率の変化は、HAL が経時変化が認められたのに対し、XEL は照射直後に 90% 以上となり経時変化はほとんど認められなかった。

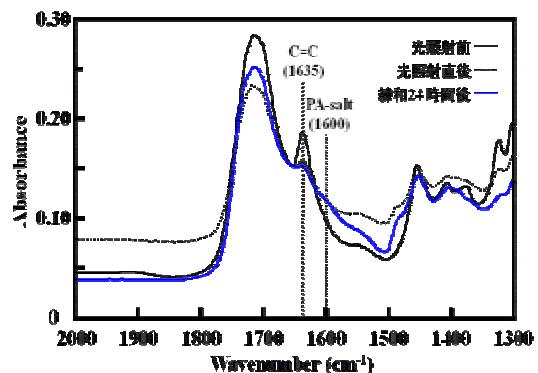


Fig.4 XEL 距離 30 mm 時における LC の IR スペクトル経時変化

### 2. 機械的性質

照射器の違いによる LC の物性は、圧縮特性はどちらの照射器の場合も、荷重 - 変位曲線から弾性変形後、わずかに塑性変形した後破断を生じた。しかし、圧縮強さは XEL を用い

た場合の方が，HAL を用いた場合よりも有意差をもって低い値を示した( $p<0.01$ )。

HAL を用いた場合の曲げ特性は，荷重 - 変位曲線から弾性変形後，わずかに塑性変形を生じて破断したが，XEL の場合では，塑性変形挙動を示さずに弾性変形内で脆性的に破断を生じた。さらに，照射器の違いによる LC の曲げ強さは，XEL を用いた場合の曲げ強さ

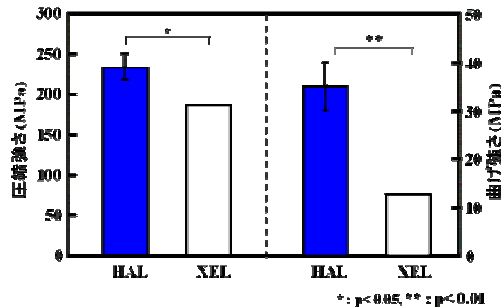


Fig.6 照射器の違いによるLCの圧縮強さ、曲げ強さ(MPa)

は HAL を用いた場合より有意差を持って低い値を示した( $p<0.01$ )。また，曲げ強さの低下率は圧縮強さの低下率よりも大きかった。

#### 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0件)

[学会発表](計0件)

[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

池田 訓子 (IKEDA KUNIKO)

昭和大学・歯学部・助教

研究者番号：70365708

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし