

令和 4 年 5 月 9 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K10159

研究課題名（和文）バイオミメティクスを応用した次世代型フロアブルコンポジットレジンの開発

研究課題名（英文）Development of next-generation flowable composite resin applying biomimetics

研究代表者

黒川 弘康（KUROKAWA, Hiroyasu）

日本大学・歯学部・准教授

研究者番号：10291709

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）：試作フロアブルレジンの分光反射率は、背景色、試片厚さおよびフィラー含有量によって異なる傾向を示した。また、各フロアブルレジンの分光反射率は、フィラー含有量の減少にともない低下する傾向を示したが、色調適合性はフィラー含有量の増加にともない向上した。したがって、構造色を有するフロアブルコンポジットレジンの特性を発揮し、審美的な修復処置を行うためには、より高いフィラー含有量が必要であることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

構造色を応用したフロアブルコンポジットレジン開発により、その優れた操作性と相まって、簡便で審美的な修復処置が可能となる。さらに、構造色の特徴である、黒色背景での発色の顕著化、あるいは微細構造の変化がなければ色調適合性が損なわれないという工学的特徴から、不要な再修復を減少させることが可能となり、医療経済面においても意義が高い。

研究成果の概要（英文）：The spectral reflectance of experimental composites showed different trends in different backgrounds, plate thickness, and filler contents. The percent reflectivity tended to decrease with a decrease of the filler contents. The color matching abilities of the experimental composites improved with the increase in the filler contents. Higher filler contents might be needed to achieve the optimal color properties of structural colored flowable resin composites, thereby improving the restoration esthetics.

研究分野：保存治療系歯学

キーワード：構造色 フロアブルコンポジットレジン 分光反射率 色調適合性

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

コンポジットレジンとは半透明性という光学的性質を有することから、窩洞の明度が低い場合、背景の暗さが反映されることで修復物が灰色を帯びてしまう。このような症例で色調適合性を得るためには、オペク性の高いレジンペーストを積層し、修復物の明度をコントロールするが、これに関しては術者の知識とともに経験が必要であり、十分なチェアタイムを費やしたものの、満足のいく審美性が得られない場合も少なくない。したがって、臨床の観点からは、簡便な操作で天然歯同様の色調再現が可能なコンポジットレジンの開発が望まれるところである。

### 2. 研究の目的

バイオミメティクスである構造色を応用することで、単一ペーストでさまざまな症例に対して色調適合性を示すフロアブルコンポジットレジンを開発することを目的とする。

### 3. 研究の方法

#### (1) フィラー含有量の違いが試作フロアブルコンポジットレジンの分光反射率に及ぼす影響

粒径 260 nm の球状フィラーを 79 wt% 含有することで構造発色するユニバーサルタイプのコンポジットレジンであるオムニクロマ (OC、トクヤマデンタル) をベースとし、フィラー含有量を 70 wt% (E70)、60 wt% (E60)、50 wt% (E50)、40 wt% (E40) および 30 wt% (E30) と変化させたフロアブルコンポジットレジンを試作した。対照として、顔料を含有するグレースフィルローフ (GL、ジーシー) のユニバーサルシェードを用いた。

各レジンペーストを内径 8 mm、厚さ 1.5 mm あるいは 3 mm のテフロン型に充填し、各製造者指示条件で照射して重合、硬化させた。これを、37 精製水中に 24 時間保管したものを測色用試片とした。

分光反射率の測定には、高速分光光度計 (CMS-35F S/C、村上色彩) と、これに接続したフレキシブルセンサー (FS-3、村上色彩) を用いた。また、背景色として黒色基準板 (Y=0.01、X=0.01、Z=0.01) および白色基準板 (Y=90.56、X=92.14、Z=110.90) を用いた。

測色用試片を各基準板上に精製水を介して静置し、波長 400~700 nm の範囲の光の反射率を 10 nm ごとに測定することで分光反射率曲線を求めた。なお、各条件における試片数は 6 個とした。

#### (2) フィラー含有量の違いが試作フロアブルコンポジットレジンの機械的性質に及ぼす影響

試作フロアブルコンポジットレジンとして、E70、E60、E50、E40 および E30 を、対照として OC および GL を用いた。

各レジンペーストを 2×2×25 mm のステンレス製割型に充填した後、割型の上面および下面からそれぞれ 40 秒間照射して重合、硬化させた。これを、37 精製水中に 24 時間保管したものを測定用試片とした。

万能試験機 (Type 5500R、Instron) を用いて支点間距離 20mm、クロスヘッドスピード 1.0mm/min の条件で 3 点曲げ試験を行うとともに、応力-歪曲線から曲げ弾性率を算出した。さらに、サーマルサイクル 10,000 回負荷後の測定用試片についても検討した。なお、各条件における試片数は 6 個とし、Tukey HSD test によって有意水準 5% の条件で統計学的検討を行った。

#### (3) フィラー含有量の違いが試作フロアブルコンポジットレジンの色調適合性に及ぼす影響

試作フロアブルコンポジットレジンとして E70 および E60 を、対照として OC および GL を用いた。

人工歯 (ゼンオパール、シェード A2 および A4、ジーシー) の唇側面中央付近に、直径 4 mm、深さ 1.5mm あるいは 3 mm で、窩縁形態がバットジョイントの規格円形窩洞を形成した。この窩洞内面に対して、サンドブラスト (アルミナ粒子: 50 μm) を 5 秒間、0.2 MPa の条件で行った後、ボンドマーライトレス (トクヤマデンタル) を用いて製造者指示条件で処理した。次いで、各レジンペーストを充填し、各製造者指示条件で照射して重合、硬化させた。なお、人工歯のシェードと充填するレジンペーストのシェードの組み合わせは、A2 および A4 シェードの人工歯のいずれに対しても、OC および GL とともにユニバーサルシェードとした。これらの試片を 37 精製水中に 24 時間保管した後、窩洞から溢出したレジンペーストを、耐水性シリコンカーバイド (SiC) ペーパーの #2000 を用いて注水下で研削した。次いで、コンポジットレジン研磨用ペースト (PRG コンポグロス、松風) および研磨用パフディスク (スーパースナップパフディスク、松風) を用いて、製造者指示条件で最終研磨を行った。

高速分光光度計とフレキシブルセンサーを用いて、試片のレジン充填部および窩洞周囲の切縁側および歯頸側の人工歯を測色し、各部位での L\* 値、a\* 値および b\* 値を求めた。これらの値をもとに、以下の計算式を用いて、レジン充填部と窩洞周囲の切縁側および歯頸側の人工歯との色差値 (E\*ab 値) をそれぞれ算出し、その平均をもって色調適合性の指標とした。なお、各条件における試片数は 12 個とした。

$$E^*ab = [(\Delta L^*)^2 + (\Delta a^*)^2 + (\Delta b^*)^2]^{1/2}$$

(4)構造色を有した試作フロアブルコンポジットレジンの色調適合性評価

粒径 260 nm の球状フィラーを 71 wt%含有することで構造発色するフロアブルコンポジットレジ (OCF) を試作した。対照として、エステライトユニバーサルフロー (ELU、トクヤマデンタル) およびフィルテックシュープリームウルトラフロー (FSU、3M ESPE) を用いた。

人工歯 (ゼンオパール、ジーシー) の唇側面中央付近に、直径 4 mm、深さ 1.5mm あるいは 3 mm で、窩縁形態がバットジョイントの規格円形窩洞を形成した。この窩洞内面をサンドブラストした後、ポンドマーライトレスを用いて製造者指示条件で処理した。次いで、各レジペーストを充填し、各製造者指示条件で照射した。なお、人工歯のシェードと充填するレジペーストのシェードの組合せは表 1 の通りとした。

表 1 人工歯と充填するレジペーストのシェード

Artificial tooth shade	OCF shade	ELU shade	FSU shade
A1	Universal	A1	A1
A2		A2	A2
A3		A3	A3
A4		A4	A4

これらの試片を 37 精製水中に 24 時間保管した後、窩洞から溢出したレジペーストを、SiC ペーパーの #2000 を用いて研削した。次いで、PRG コンポグロスおよびスーパースナップバディディスクを用いて、製造者指示条件で最終研磨を行った。

高速分光光度計とフレキシブルセンサーを用いて、試片のレジ充填部および窩洞周囲の切縁側および歯頸側の人工歯を測色し、各部位での L\* 値、a\* 値および b\* 値を求めた。これらの値をもとに、レジ充填部と窩洞周囲の切縁側および歯頸側の人工歯との E\*ab 値を算出した。なお、各条件における試片数は 12 個とした。

4. 研究成果

(1) フィラー含有量の違いが試作フロアブルコンポジットレジンの分光反射率に及ぼす影響

各レジペーストの分光反射率曲線を図 1 に示した。黒色基準板上での分光反射率曲線は、OC で、いずれの試片厚さにおいても波長 430~700 nm の範囲の光を均等に反射し、フラットな形状を示したのに対し、GL では中波長域をピークとする緩やかな山型を示した。一方、白色基準板上での分光反射率曲線は、OC で、400 nm から 430 nm にかけて急激に上昇し、それ以降で緩やかに上昇する曲線を示したのに対し、GL では、中波長域を変曲点とする S 字状を示した。また、いずれの条件においても、OC の分光反射率は GL と比較して高い値を示した。

OC は、背景色が黒の場合、入射した光が吸収されることで構造色が顕著化し、長波長域での分光反射率の低下が抑制されたのに対し、背景色が白の場合では、背景色による光の反射の影響を受けることで分光反射率の低下が抑制された可能性が考えられ。一方、GL は顔料による発色であり、背景色の違いによる反射光の変化が各波長での分光反射率に影響を及ぼすことで、OC と異なる傾向を示したものと考えられた。

試作フロアブルコンポジットレジンの分光反射率曲線は、いずれの条件においても OC と同様の形状を示したが、分光反射率はフィラー含有量の減少にともない低下した。したがって、試作フロアブルコンポジットレジンは構造発色するものの、フィラー含有量により発色現象が影響を受けることが示された。

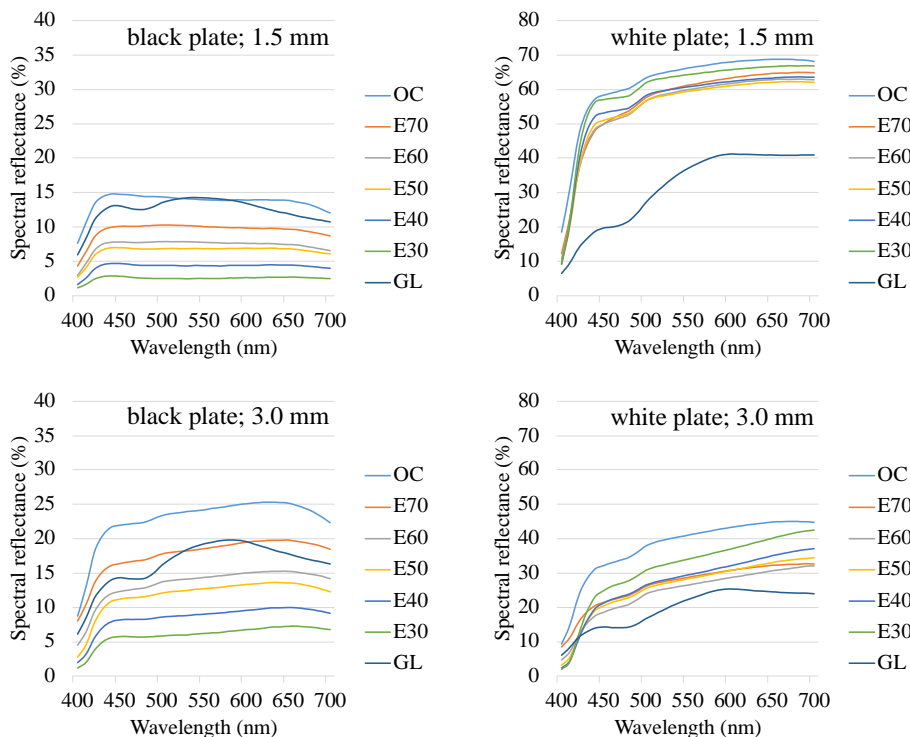
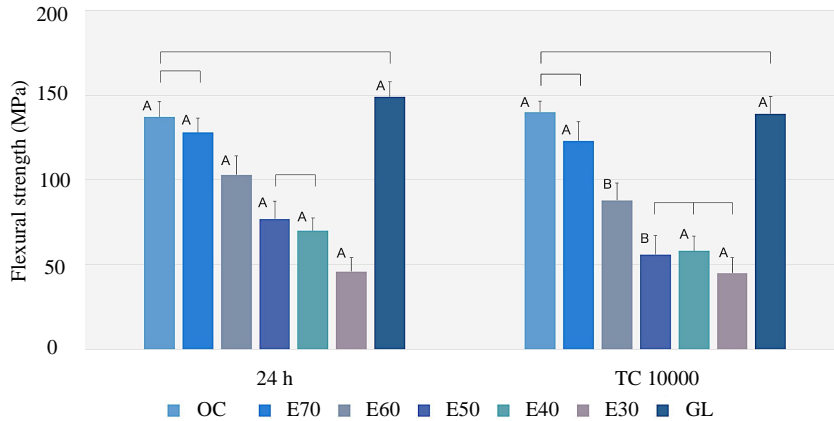


図 1 背景色ならびに試片厚さの違いが試作フロアブルコンポジットレジンの分光反射率曲線に及ぼす影響

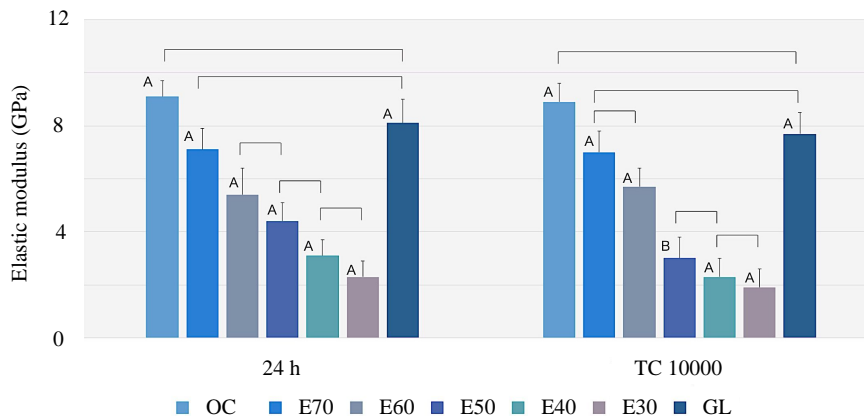
(2) フィラー含有量の違いが試作フロアブルコンポジットレジンの機械的性質に及ぼす影響

各レジンペーストの曲げ強さおよび曲げ弾性率の成績を図 2 および 3 に示した。試作フロアブルコンポジットレジンの曲げ強さおよび曲げ弾性率は、サーマルサイクル負荷の有無にかかわらず、フィラー含有量が少なくなるにつれて低下する傾向を示したが、E70 では、OC と比較して有意差は認められなかった。一方、試作フロアブルコンポジットレジンの操作性はフィラー含有量の低下にともない流れやすくなり、とくに 50、E40 および E30 では賦形性が損なわれた。したがって、構造発色を示すフロアブルコンポジットレジンの開発においては、70 wt%程度のフィラー含有量が必要であることが示された。



Within groups, means connected by horizontal lines are not significantly different (Tukey-Kramer post-hoc test,  $p > 0.05$ ).  
Between groups at the same storage times, means with the same superscript letter are not significantly different (Tukey-Kramer post-hoc test,  $p > 0.05$ ).

図 2 フィラー含有量の違いが試作フロアブルコンポジットレジンの曲げ強さに及ぼす影響



Within groups, means connected by horizontal lines are not significantly different (Tukey-Kramer post-hoc test,  $p > 0.05$ ).  
Between groups at the same storage times, means with the same superscript letter are not significantly different (Tukey-Kramer post-hoc test,  $p > 0.05$ ).

図 3 フィラー含有量の違いが試作フロアブルコンポジットレジンの曲げ弾性率に及ぼす影響

(3) フィラー含有量の違いが試作フロアブルコンポジットレジンの色調適合性に及ぼす影響

レジン充填部と窩洞周囲の人工歯との  $E^*ab$  値を表 2 に示した。OC の  $E^*ab$  値は 1.4~2.4 であり、いずれの人工歯に対しても良好な色調適合性を示し、窩洞深さの影響は認められなかった。一方、試作フロアブルコンポジットレジンは、E70 で 1.7~5.6 および E60 で 2.8~5.7 を示し、とくにフィラー含有量が低くなる条件で、OC と比較して  $E^*ab$  値が大きくなる傾向を示した。コンポジットレジンの色調適合性は、使用するレジンペーストの光透過性と光散乱性に関連があり、フィラーとマトリックスレジンの屈折率に加えて、フィラー粒径や形状、フィラーの組成および充填率に影響を受ける。したがって、試作フロアブルコンポジットレジンは、フィラー含有量の減少にともない重合後の透明性が変化するとともに、フィラー粒子間距離の変化により構造発色が影響を受けることで、色調適合性が低下したものと考えられた。

表 2 人工歯のシェードならびに窩洞深さが試作フロアブルコンポジットレジンの色調適合性に及ぼす影響

Cavity depth	Artificial tooth shade	OC	E70	E60	GL
1.5 mm	A2	2.2 (0.3)	4.0 (0.5)	4.7 (0.4)	4.9 (0.0)
	A4	1.4 (0.1)	1.7 (0.2)	2.8 (0.3)	2.4 (0.3)
3.0 mm	A2	2.4 (0.2)	5.6 (0.5)	5.7 (0.7)	5.4 (0.6)
	A4	1.5 (0.2)	2.8 (0.1)	3.2 (0.8)	2.8 (0.5)

n = 12, values in parenthesis indicate standard deviations.

(4)構造色を有した試作フロアブルコンポジットレジンの色調適合性評価

レジン充填部と窩洞周囲の人工歯との  $E^*ab$  値を表 3 に示した。 $E^*ab$  値は、いずれのフロアブルコンポジットレジンにおいても人工歯の明度が低い、あるいは窩洞が深くなる条件で大きくなる傾向を示し、とくに ELU および FSU で顕著であった。コンポジットレジンは半透明性という光学的性質を有することから、ELU および FSU では、窩洞が深い場合、背景の色調が反映されることで修復物の明度が低下し、色調適合性が影響を受けたものと考えられた。一方、OCF では、窩洞の明度が低い条件で構造色の発現が顕著となることで、ELU および FSU と比較して良好な色調適合性を示したものと考えられた。

以上より、OCF は背景色の影響を受け、黒色と白色とでは構造発色が異なるものの、その特性から広範な色調適合性を有することで、簡便かつ審美的な修復処置を行うことが可能であることが示された。

表 3 人工歯のシェードならびに窩洞深さが構造色を有するフロアブルコンポジットレジンの色調適合性に及ぼす影響

Cavity depth	Article tooth shade	OCF	ELU	FSU
1.5mm	A1	2.2 (0.5)	2.5 (0.5)	3.1 (0.5)
	A2	2.1 (0.1)	2.3 (0.2)	4.0 (0.2)
	A3	3.1 (0.7)	4.3 (0.4)	2.7 (0.2)
	A4	2.0 (0.4)	3.5 (0.5)	3.4 (0.4)
3.0mm	A1	1.7 (0.0)	3.0 (0.2)	2.2 (0.2)
	A2	2.0 (0.1)	2.3 (0.3)	3.7 (0.3)
	A3	2.9 (0.1)	3.7 (0.0)	3.1 (0.2)
	A4	2.9 (0.2)	4.1 (0.4)	2.9 (0.6)

n = 12, values in parenthesis indicate standard deviations.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Mizutani K, Takamizawa T, Ishii R, Shibasaki S, Kurokawa H, Suzuki M, Tsujimoto A, Miyazaki M	4. 巻 46
2. 論文標題 Flexural Properties and Polished Surface Characteristics of a Structural Colored Resin Composite	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Operative Dentistry	6. 最初と最後の頁 E117 ~ E131
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2341/20-154-L	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Saegusa M, Kurokawa H, Takahashi N, Takamizawa T, Ishii R, Shiratsuchi K, Miyazaki M	4. 巻 46
2. 論文標題 Evaluation of Color-matching Ability of a Structural Colored Resin Composite	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Operative Dentistry	6. 最初と最後の頁 306 ~ 315
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2341/20-002-L	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Arai Yuiko, Kurokawa Hiroyasu, Takamizawa Toshiaki, Tsujimoto Akimasa, Saegusa Makoto, Yokoyama Munenori, Miyazaki Masashi	4. 巻 33
2. 論文標題 Evaluation of structural coloration of experimental flowable resin composites	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Esthetic and Restorative Dentistry	6. 最初と最後の頁 284 ~ 293
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/jerd.12674	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 三枝 眞, 黒川弘康, 新井友依子, 高橋奈央, 柴崎 翔, 宮崎真至
2. 発表標題 構造色を応用した試作フロアブルコンポジットレジンの色調適合性評価
3. 学会等名 第77回日本歯科理工学会学術講演会
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 白土康司, 黒川弘康, 三枝 眞, 杉村留奈, 須田駿一, 宮崎真至
2. 発表標題 構造色を応用したコンポジットレジンの色調適合性評価 - 窩洞深さが色調適合性に及ぼす影響について -
3. 学会等名 第77回日本歯科理工学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三枝 眞, 小森谷康司, 杉村留奈, 飯島達也, 奥脇岳人, 甘利佳之, 黒川弘康, 宮崎真至
2. 発表標題 窩洞の深さが構造色を応用したコンポジットレジンの色調適合性に及ぼす影響
3. 学会等名 第73回日本大学歯学会学術大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三枝 眞, 黒川弘康, 高橋奈央, 柴崎 翔, 高見澤俊樹, 佐藤幹武, 岩崎圭祐, 宮崎真至
2. 発表標題 表面粗さの違いが構造色を有するコンポジットレジンの色調適合性に及ぼす影響
3. 学会等名 日本歯科保存学会2021年度秋季学術大会 (第155回)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三枝 眞, 黒川弘康, 高橋奈央, 宮崎真至
2. 発表標題 各種コンポジットレジンの色調適合性評価
3. 学会等名 日本歯科審美学会第32回学術大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 黒川弘康、瀧本正行、高橋奈央、齋藤慶子、寺井里沙、宮崎真至
2. 発表標題 窩洞深さの違いが構造色を有したコンポジットレジンの色調適合性に及ぼす影響
3. 学会等名 日本歯科保存学会2020年度春季学術大会（第152回）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 黒川弘康、瀧本正行、下山侑里子、齋藤慶子、笠原悠太、三枝 眞、宮崎真至、福本敬一
2. 発表標題 構造色を応用した試作フロアブルコンポジットレジンの色調適合性評価
3. 学会等名 日本歯科保存学会2019年度秋季学術大会（第151回）
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
---------	---------