

機関番号 : 32665

研究種目 : 基盤研究 (C)

研究期間 : 2008~2010

課題番号 : 20592238

研究課題名 (和文) レーザースペックル法をモダリティとした光重合型レジンの重合収縮挙動観察

研究課題名 (英文) Polymerization shrinkage characteristics observation of light-cured resin composites of which modality is laser speckle analysis

研究代表者

陸田 明智 (RIKUTA AKITOMO)

日本大学・歯学部・助教

研究者番号 : 40287660

研究成果の概要 (和文) : 微小領域における試片の変位測定が可能であるレーザースペックル干渉法に着目し、光重合型レジンの重合硬化の過程における重合収縮挙動について本法を用いて検討した。その結果、供試したフィラー含有量や圧流度などの異なる試作コンポジットレジンにおいて、光線照射初期における重合収縮挙動は、照射開始とともに急激に低下して再び上昇する傾向を示したが、その変化は、供試した試作コンポジットレジン間では明らかな違いは認められなかった。

研究成果の概要 (英文) : The purpose of this study was to evaluate the polymerization characteristics of light-cured resin composites using laser speckle analysis. As a result, in different experimental resins including filler content and degree of pressure flow tested, polymerization shrinkage behavior tended to decrease to rise again. The changed among the tested experimental resin composites was observed obvious difference.

交付決定額

(金額単位 : 円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2009 年度	900,000	270,000	1,170,000
2010 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野 : 医歯薬学

科研費の分科・細目 : 歯学・保存治療系歯学

キーワード : 光重合型レジン, レーザースペックル法, 重合収縮

## 1. 研究開始当初の背景

光重合型レジンは、その重合硬化に伴って重合収縮という現象を生じる。重合収縮の発生は、修復物と窩壁との間にギャップを形成し、辺縁漏洩ひいては歯髄刺激の原因となり、修復物の予後への影響が大きいところからそ

の挙動に関してはこれまでに多くの報告がある。しかし、これらの検討のほとんどは、レジンペーストを一塊として測定するものであり、同一ペースト内の異なる部位における重合挙動に着目したものは少ない。そこで、微小領域における試料の状態変化をナノセ

ナノ秒単位で計測可能であるレーザースペックル法を応用し、光重合型レジンの重合反応に伴って生じるレジンペーストの重合収縮量を測定し、重合収縮応力ならびにその方向を解明する。

これまで、試料の変位、変形あるいは歪みなどの計測にレーザを応用する試みがされてきたが、これはレーザの直線性あるいはコヒーレントな性質を利用することによって、非接触でサブミクロンオーダーの微小な変位を精度よく計測できるためであった。これらのレーザ計測技術のうちで、レーザースペックル法は、物体表面にレーザ光線を照射した際に、その表面の微細な凹凸における散乱光が互いに干渉して生じる、不規則でありながら明瞭な縞模様（スペックルパターン）を画像処理することによって、試料の変形を精度良く検出する計測法である。

そこで、これらの臨床あるいは研究背景から、レーザースペックル法を光重合型レジンの重合硬化挙動を把握するための新しいモダリティとする研究を企画した。

## 2. 研究の目的

光重合型レジンにおいては、光線が照射された部からその重合反応が開始されることは明らかではあるが、その表層と深部での重合反応開始の時期の差異は、硬化物内部に残留する応力、ひいてはその修復物のクオリティに影響することが考えられることから、詳細な検討が待たれている。

その光重合型レジンは、重合硬化に伴って微細な動きを示すが、これに伴ってスペックルパターンは激しく動き、硬化の進行に伴ってパターンの動きが緩慢になり、やがて停止する。このような、スペックルパターンの変化を検出することによって、ナノ秒単位で光重合型レジンの重合硬化挙動を検出し、その重合硬化挙動を適格に把握する手法を

確立することによって、光重合型レジンの重合収縮挙動を制御する臨床術式の確立、重合収縮を限りなく少なくした光重合型レジンの組成の開発を目的とした。

## 3. 研究の方法

### (1) スペックルパターンの測定

光重合型レジンの重合収縮挙動を計測する装置としては、スペックライザ ST-I（東洋精機製作所）を改良したものをを用いた。本装置は、半導体レーザ照射装置、CCD カメラおよびスペックルパターン解析装置から構成されている。（Fig. 1）

検出方法としては、レジペーストが充填されたガラスモールドを、試料台に静置する。レーザ光を試料に照射し、スペックルパターンの変化を 1/1000 秒単位で検出し、光線照射前の状態とのスペックルパターンとの一致率として算出、グラフを描記した。



Fig.1 Laser speckle contrast measurement system

### (2) 供試光重合型レジン

実験には、フィラー含有量や圧流度などの異なる試作コンポジットレジンをを用いた。

(Table 1)

Table 1 Resin composites used in this study

Code	SP-1	SP-2	SP-3
Filler contents (wt%)	55.6	76.6	80.0
Pressure stylus degree (mm)	40.0	27.5	16.5
Flexural strength (MPa)	97.0	102.0	114.5
Elastic modulus (GPa)	4.7	8.0	10.0

### (3) 光線照射強度の影響

レジペーストに対する光線照射条件を  $100\text{mW}/\text{cm}^2$  と  $600\text{mW}/\text{cm}^2$  の 2 条件を設定し、レジペースト表面で生じたスペックルパターンを解析することによって、その変位を表示し、さらにディラトメーターを用いて体積重合収縮量の測定を行い検討した。(Fig. 2)

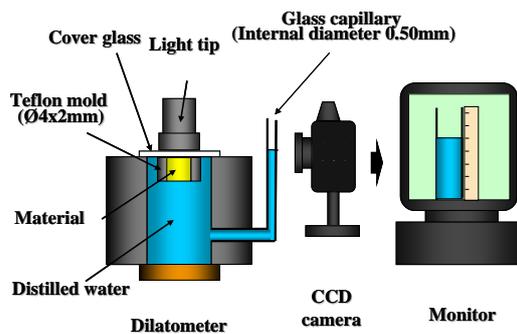


Fig.2 Schema of the water-filled dilatometer used for volumetric measurement

### (4) 分光波長分布の影響

分光波長分布を  $470\text{nm}$  以外に長波長域側の  $515\text{nm}$ 、短波長域側の  $400\text{nm}$  に変更した 2 条件を設定した。その分光波長分布および光強度に関しては、波長別エネルギー分析装置 (Li-1800, Li Cor) を用いて測定、調整を行った後に実験に用いた。

### (5) FE-SEM 観察

レジペーストのフィラー形状を観察するために、通法に従い、その硬化試片を研磨、アルゴンイオンエッチングを行い、次いで金蒸着を施し、FE-SEM 観察を行った。

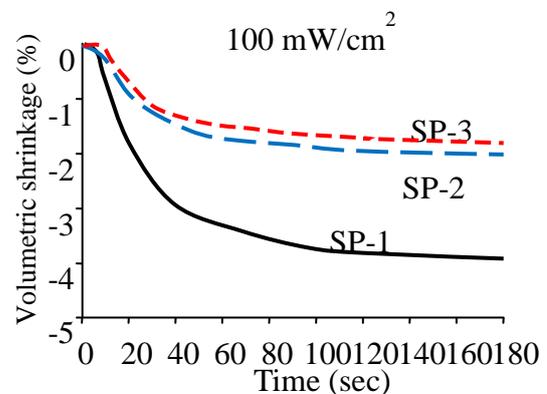
## 4. 研究成果

### (1) 光線照射強度の影響

圧流度が  $40.0\text{ mm}$ 、 $27.5\text{ mm}$  および  $16.5\text{ mm}$  の 3 種類の試作レジを用いた。照射器としては Optilux 501 (sds Kerr) を、その光強度が  $100$  あるいは  $600\text{ mW}/\text{cm}^2$  になるように調整し、30 秒間照射した。

体積重合収縮率の測定は、精製水を満たしたディラトメーター内にレジペーストを静置し、照射に伴って生じる体積変化を CCD カメラにて照射開始から 180 秒後までガラス管内の精製水の見盛り移動量 ( $\text{mm}$ ) を連続撮影し、その移動量から体積収縮率として算出した。

スペックルパターンの測定は、レジペースト表面から得られたスペックルパターンを照射開始から 120 秒後まで連続して記録した。供試試作レジの重合収縮率は、いずれの試作レジにおいても、照射開始から照射終了時まで急激な収縮を示し、それ以降はなだらかな一定の曲線となる傾向を示した。照射開始から 180 秒後における重合収縮率は、試作レジによって違いが認められたものの、いずれの試作レジにおいても光強度が  $100\text{ mW}/\text{cm}^2$  の条件と比較して  $600\text{ mW}/\text{cm}^2$  では有意に高い値を示した。(Fig. 3)



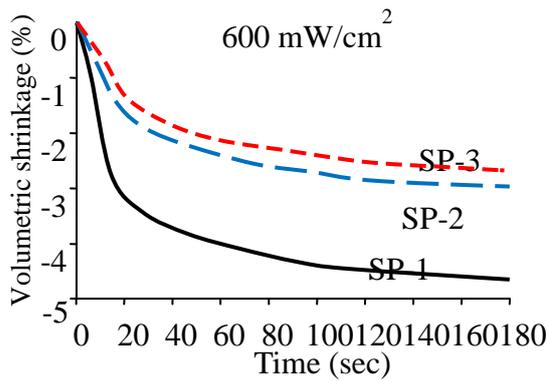


Fig.3 Changes in volumetric shrinkage during and after light irradiation

また、スペックルパターンの変化は、いずれの試作レジンにおいても、照射開始とともに急激に低下し、その変化は、供試試作レジン間では明らかな違いは認められなかった。(Fig. 4)

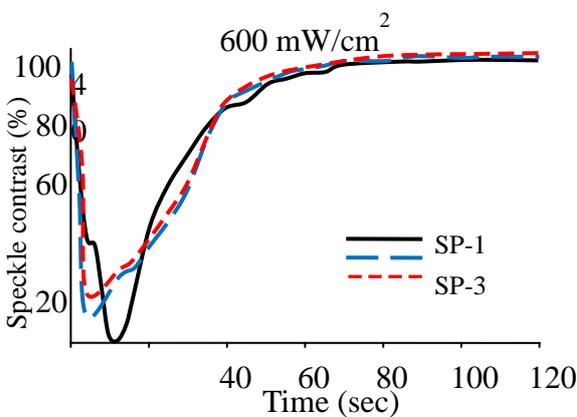
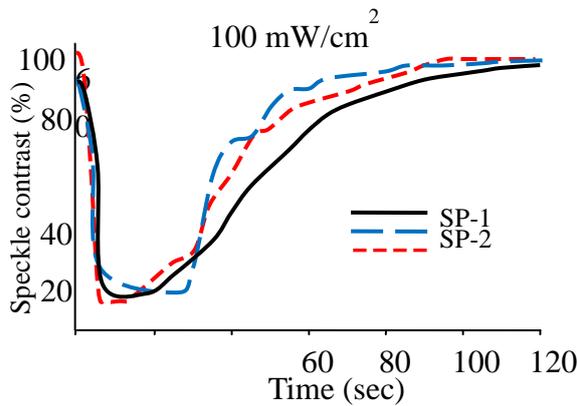


Fig.3 Speckle contrasts measured on the lateral surface as a function of time

## (2) 分光波長分布の影響

波長別エネルギー分析装置を用いて、分光波長分布を 470 nm 以外に長波長域側の 515 nm、短波長域側の 400 nm に変更した 2 条件を設定し実験に用いた。

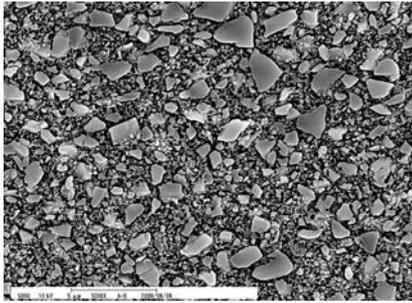
その結果、スペックルパターンの相関は、いずれの波長においても光線照射開始とともに急激に低下して再び上昇したが、その変化は、波長間では明らかな違いは認められなかった。また、470 nm と比較して長波長域側の 515 nm、短波長域側の 400 nm ともに一致度の回復に時間がかかる傾向が認められた。これは光重合型レジンの重合開始剤であるカンファーキノンの吸収光域は 390~510 nm であるが、そのピークが 470 nm 付近であるためと考えられた。

## (3) FE-SEM 観察

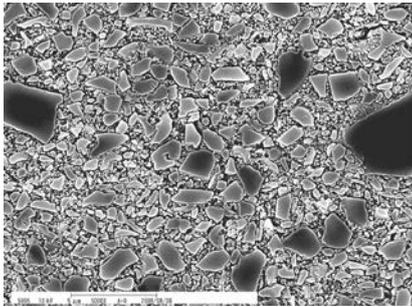
フィラー含有量が 55.6 wt%, 76.6 wt% および 80.0 wt% の 3 種類の試作レジンの FE-SEM 観察像は、SP-1 では粒径 1~3  $\mu\text{m}$  の不定形フィラーの間隙を 1  $\mu\text{m}$  以下のフィラーが埋めるように充填されていた。SP-3 は SP-1 と同様なフィラーが充填されていたが、その充填率は SP-1 に比較して多く観察された。SP-2 においては、粒径 5 および 1  $\mu\text{m}$  の不定形フィラーの間隙を、1  $\mu\text{m}$  以下のフィラーが埋めるような像を呈していた。

材料間でスペックルパターンの変化を比較すると、SP-1 でその移動量大きいものの、フィラー含有量に関わらずそのパターンに差は認められなかった。これは、光重合型レジンの重合硬化反応の進行には、フィラー含有量による影響は少なく、重合開始剤系の影響の方が大きいことを示すものと考えられた。(Fig. 5)

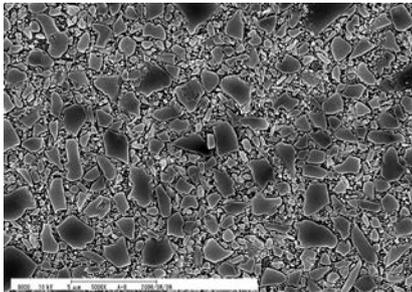
SP-1



SP-2



SP-3



(Original magnification ×5,000)

Fig.5 SEM pictures of the cured resin composite

## 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4件)

- ① 陸田明智, 大塚詠一郎, 遠藤 肇, 山路歩, 太田舞子, 市野 翔, 安藤 進, 宮崎真至, 日野浦 光, シングルステップセルフエッチアドヒーシブの酸蝕エナメル質に対する接着性, 接着歯学, 査読有, 28巻, 2010, 73-79
- ② 岩佐美香, 小倉由佳理, 村山良介, 坪田圭司, 吉田武士, 高見澤俊樹, 陸田明智, 宮崎真至, 同一製造者によるセルフエッチアドヒーシブの歯質接着性—とくに glutaraldehyde の効果について—, 接着歯学, 査読有, 28巻, 2010, 21-27

- ③ 山本 明, 陸田明智, 三富純一, 三富朝子, 山田健太郎, 浅野和正, 千葉康史, 宮崎真至, レーザースペックル法を用いた試作コンポジットレジン<sup>®</sup>の重合収縮挙動の観察, 日本歯科保存学雑誌, 査読有, 52巻, 2009, 413-425

[学会発表] (計5件)

- ① 山本 明, 試作光重合型レジンの初期重合挙動の観察, 第52回日本歯科理工学会学術講演会, 2008.9.20, 千里ライフサイエンスセンター, 大阪
- ② 陸田明智, エナメル質表層脱灰がシングルステップシステムの接着性に及ぼす影響, 第54回日本歯科理工学会学術講演会, 2009.10.1, かごしま県民交流センター, 鹿児島
- ③ 陸田明智, CPP-ACPがシングルステップシステムの歯質接着性に及ぼす影響, 第21回日本歯科審美学会学大会, 2010.8.27, 安比プラザ・リゾートセンター, 岩手

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

陸田 明智 (RIKUTA AKITOMO)  
日本大学・歯学部・助教  
研究者番号: 40287660

### (2) 研究分担者

宮崎 真至 (MIYAZAKI MASASHI)  
日本大学・歯学部・教授  
研究者番号: 70239391

黒川 弘康 (KUROKAWA HIROYASU)  
日本大学・歯学部・助教  
研究者番号: 10291709

坪田 圭司 (TSUBOTA KEISHI)  
日本大学・歯学部・助教  
研究者番号: 20386113