

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 25 日現在

機関番号：32667

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008 ～ 2011

課題番号：20592314

研究課題名（和文）新規低収縮性低粘性混合モノマーを用いたコンポジットレジンの開発

研究課題名（英文） Development of dental composite resin utilizing novel low-shrinking and low-viscous monomer mixtures

研究代表者

宮坂 平 (MIYASAKA TAIRA)

日本歯科大学・生命歯学部・教授

研究者番号：40147773

研究成果の概要（和文）：粘性が低く、重合収縮も小さいと予想されるエトキシ化率が異なる 2 種類の 2,2-ビス[4-(メタクリロキシ・ポリエトキシ)フェニル]プロパンを用いて光重合型コンポジットレジンを試作し、稠度や重合収縮率および機械的性質に及ぼす影響を検討した。この結果、エトキシ化率の大きなモノマーの含有率が高いほど稠度が低くなり、2 種のモノマーを等量混合したもので従来と同等の機械的強さを示すことが明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：Two types of monomer, differ in number of ethoxides and expected to possess lower viscosity and shrinkage, were used to make experimental light cure dental composites. The consistency, curing shrinkage and mechanical strength was investigated. The consistency of composites was decreased with the increase of more ethoxide monomer content. The composite made by the mixture in equal amount of two monomers showed similar strength to conventional bis-GMA base composites.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2009年度	600,000	180,000	780,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学・医用工学・再生歯学

キーワード：歯科理工学

1. 研究開始当初の背景

充填用コンポジットレジンとは、近年、MI の概念の発達に伴い、光重合型のフロアブルと呼ばれる低粘性のものが広く臨床応用されるようになって来ている。しかし、このフロアブルタイプのコンポジットレジンについては、単に、フィラー含有率を低くするこ

とにより、稠度を下げているものが多いため、重合収縮を始めとして、機械的性質の低下など未解決の問題も多く存在する、発展途上の材料であると考えられる。一般に、歯科用コンポジットレジンが具備すべき性質としては、①修復後の微小漏洩が少ない、②流動性が高い、③充填専用器具がいらない、④短時

間の修復が可能である、⑤為害作用がない、⑥審美的である、⑦予後の成績がよいなどが挙げられる。この中で特に重合収縮による修復後の辺縁漏洩については、コンポジットレジジンと歯質の接着を向上させることにより解決を目指すのが現在の主流であるが、これらがモノマーの重合収縮という本来の原因の対策とはなり得ないのは明白である。

2. 研究の目的

そこで我々は、コンポジットレジジンの重合収縮という点に問題を絞って、その最大の原因であるモノマー自身の重合収縮を小さくするために、新規低収縮性モノマー混合物を用いたコンポジットレジジンの開発を目的とした。このとき、粘性の小さいモノマーとすることにより、フロアブルタイプとしたり、フィラーの配合率を大きくしたりすることが可能となるため、さらにナノレベルのフィラーを混合したハイブリッド型フィラーを用いたものについても検討を行い、低収縮性低粘性のコンポジットレジジンを開発することを最終目的とした。

以前に我々は、ウレタン系モノマーの高重合性という長所を生かし、特殊多官能性モノマー（特許出願公開番号2000-204125）を新規に合成し、従来のbis-GMA系モノマーや従来のウレタン系モノマーと比較して、極めて低い収縮性と極めて小さい粘性を持つこのモノマーを用いて、機械的性質に優れたコンポジットレジジンを作製した。これらの研究を進展させて、ウレタン系以外で粘性の低いベースモノマーの候補を模索したところ、bis-GMA類似の化合物の中から、エポキシ化率の異なるビスフェノールA系モノマーのある種の混合物が極めて低い粘性を示すことを見出した。この低粘性のエポキシ化ビスフェノールA系モノマー混合物のコンポジ

ットレジジンへの応用の可能は大きいと考えられる。さらに、このような粘性の低いベースモノマーを用いることにより、希釈剤を必要としないため、一定体積のモノマー混合物を考えたとき、その体積中のモノマーの分子数（モル）が減少する結果、希釈剤モノマーを必要とするものに比べて、重合収縮率が極めて小さくなることが期待される。また、このようなモノマーをコンポジットレジジンのベースモノマーとして用いることにより、フィラー構成にも大きな影響を与えられ、フロアブルタイプやハイブリッド型への応用も可能となると考えられる。本研究では、この低粘性のエポキシ化ビスフェノールA系モノマー混合物のコンポジットレジジンへの応用の可能性を検討することを目的とした。

3. 研究の方法

この目的に応じて、bis-GMA 類似の構造を持ちながら、はるかに粘性が低いことが知られている2種類のベースモノマー（図1、 $n+m=4$ の略号：ME4、 $n+m=10$ の略号：ME10）を用い、この2種類のベースモノマーを0~100%まで20%毎に混合モノマーを

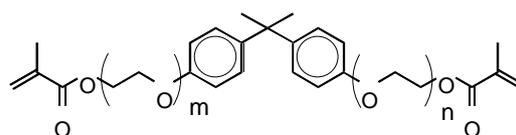


図1 実験に用いたモノマー

作製した。フィラーとしては、平均粒径 $1\mu\text{m}$ の石英フィラーと平均粒径 50nm のマイクロフィラーを用いた。平均粒径 $1\mu\text{m}$ のマクロフィラーとマイクロフィラーとの混合に際しては、マイクロフィラーの分率が $30\text{wt}\%$ となるように混合した。このように混合したフィラーについて、混合フィラーの総表面積に対して γ -MPTS が $5\text{molecule}/\text{nm}^2$ となるように濃度

を調整した 95%エタノール水溶液を用いて、振盪器中で 50°C 2 時間振盪を行い、次いで、溶媒のエタノールをエバポレートして、ハイブリッド型フィラーのシラン処理を行った。先の混合モノマー（表 1）にカンファーキノン、ジメチルアミノエチルメタクリレート（DMAEMA）を、それぞれモノマーに対して 1wt%の割合で加え、続いてハイブリッド型フィラーを含有率 75wt%となるように添加した。この混合物を自転・公転ミキサー（あわとり練太郎、AR-500、シンキー）を用いて、2分ごとに手練和を行いながら合計 6 分間混合を行い、最後に 1 分間の脱泡を行って試作コンポジットレジンを作製した。

表 2 混合モノマーの組成

略号	M1	M2	M3	M4	M5	M6	GMA
ME-4	100	80	60	40	20	0	bis-GMA 2:
ME-10	0	20	40	60	80	100	TEGDMA 1

試作したコンポジットレジンについて、テフロン型を用いて 2x2x25mm の曲げ試験片、内径 4x6mm のガラス管を用いて圧縮試験片、φ 6x3mm のガラス管を用いて間接引張試験片を、光重合（α-ライト、モリタ）により作製した。光照射は、ポリエステル製ストリップスを介して行い、光照射時間は、試料の上下からそれぞれ 15 分間とした。作製した試料は、注水下で #600 まで研磨し、24 時間水中保存後に試験に供した。曲げ試験は、ISO 4049:2009 Dentistry -Polymer-based restorative materials に準じて行った。精密力量計（PL-300、丸菱）を用い、規格に準じた曲げ試験用治具を用いて、支点間距離 20mm の 3 点曲げにより測定を行った。圧縮試験および間接引張試験は、オートグラフ（DCS-10T、島津）を用いて、クロスヘッドスピード 1mm/min で行った。

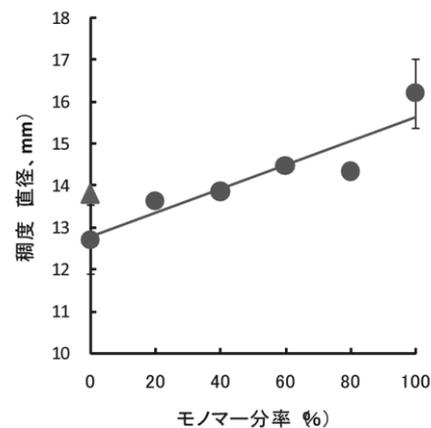
また、硬化時の重合収縮は、赤色半導体レーザーを用いた、拡散反射型の分解能 0.01 μm 高精度高速レーザー変位計（HL-C203B、

Sunx）を用い、自作したプログラムにてデータを PC に取り込み測定した。試作コンポジットレジンに直立させた内径 4mm 高さ 8mm のガラス管に充填し、レーザー変位計を用いて測定を開始する。測定開始後、ただちに可視光線照射器（VL-II、ジーシー）にて 120° 毎に方向を変えながら、それぞれ 20 秒ずつ、合計 120 秒間の光照射を行った。光照射開始から 90 分間の寸法変化の測定を行い、測定値を試料長で割って寸法変化率を求めた。

4. 研究成果

(1) 稠度について

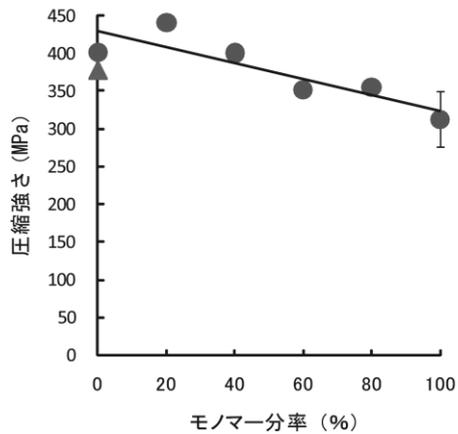
作製したコンポジットレジンの稠度は、GMA ベースのコントロール（図中の▲）に比べて、ME10 の含有率が大きくなるに従い、大きくなる傾向を示した。これは、ME4 に比べて、ME10 のほうが、粘性が低いことに起因すると思われる。



(2) 機械的強さ

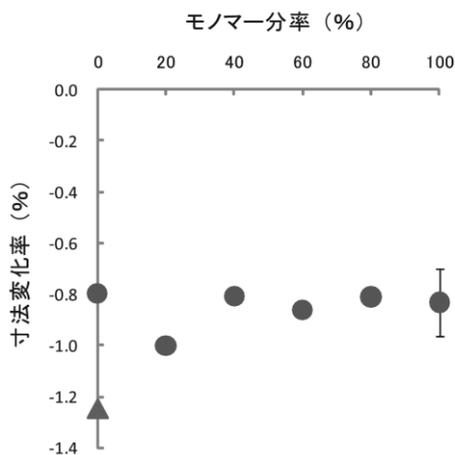
作製したコンポジットレジンの機械的性質を調べた結果、図に示すように、圧縮強さは、ME10 の含有率が高くなるにつれて、低下する傾向を示した。間接引張強さ、曲げ強さも同様の傾向を示し、コントロールの GMA を用いたコンポジットレジンと比較すると、ME10 の添加率で 40~60%は、同程度の機械的

強度を示すことが明らかとなった。



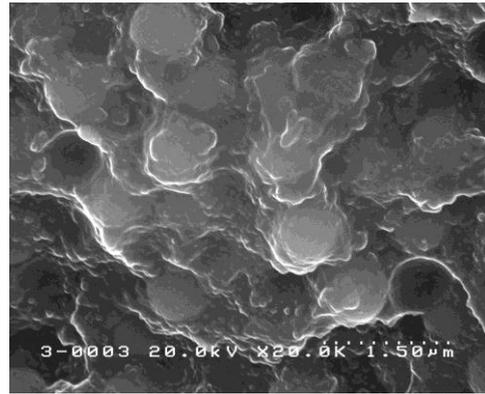
(3) 重合収縮率

作製したコンポジットレジンの重合収縮率は、90分後の値でGMAベースのコンポジットレジンと比較すると、0.4%程度小さな値となった。これは、作製したコンポジットレジンは、希釈剤モノマーを含まないベースモノマーのみであるため、モノマー1分子あたりの体積が大きく、重合により消費される炭素・炭素の二重結合の単位体積当たりの数が少ないことによるものと考えられる。



(4) SEM像について

ME10含有率100%のコンポジットレジンのSEM像を示す。本質的には、他の含有率においても同様のSEM像を示し、フィラーとの混合が均一となっている様子が認められた。



以上より、今回用いたモノマーは、フロアブル型のコンポジットレジンのモノマーとして有用であると結論できる。

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1件)

宮坂 平、岡村弘行、萩原恒夫、低粘性モノマーを用いたコンポジットレジンの試作—モノマー組成の検討—、歯科材料・器械、vol. 27、No. 5、2008、pp365.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宮坂 平 (MIYASAKA TAIRA)
日本歯科大学・生命歯学部・教授
研究者番号：20592314

(2) 研究分担者

岡村 弘行 (OKAMURA HIROYUKI)
日本歯科大学・生命歯学部・准教授
研究者番号：40095089

(3) 連携研究者

なし ()