

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 9 月 6 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25861825

研究課題名(和文)劣化促進モデルを用いた義歯床用材料の劣化評価方法の提案

研究課題名(英文)The study of evaluation method for acrylic resin degradation

研究代表者

竹内 裕尚(TAKEUCHI, YASUHISA)

東北大学・歯学研究科(研究院)・助教

研究者番号：80586511

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：歯科用アクリルレジン(熱重合型アクリルレジン)は義歯床用材料として広く用いられている。本研究では熱重合型アクリルレジンと軟性加熱重合型アクリルレジン、シリコン製軟性裏装材を用いて曲げ強さならびに唾液処理による表面性状の変化について基礎的検討を行った。軟性加熱重合型アクリルレジン(熱重合型アクリルレジン)の50%程度からシリコン製の軟性裏装材と同程度まで幅のある弾性の調整ができた。また、軟性加熱重合型アクリルレジン(熱重合型アクリルレジン)の唾液処理を行った後の表面粗さおよび表面ぬれ性は、PMMAと似た傾向を示した。一方、シリコン製軟性裏装材はこれらの表面性状においてアクリルレジン(熱重合型アクリルレジン)が示した挙動とは異なる傾向を示した。

研究成果の概要(英文)：PALATE RESIN SOF(PRS, GC) is a heat-polymerized soft acrylic resin for denture bases and lining materials. PRS, Acron (PMMA, GC) and GC RELINE Soft (Silicone, GC) were prepared as test plates by the manufacturers' instructions. For bending strength test, two types of PRS, hard type and soft type were used, and for the other tests, moderate type of PRS were used. Bending strength, surface roughness and water contact angle of the test plates were measured by three-point bending, with non-contact measurement and water drop method respectively. The latter two values were measured before and after salivary treatment, in which test plates were coated with human stimulated saliva. These results indicate that PRS was more elastic than PMMA and silicone, depending on the powder/liquid ratio, while the surface roughness and contact angle of PRS had a similar behavior to PMMA by saliva treatment.

研究分野：有床義歯学

キーワード：有床義歯

1. 研究開始当初の背景

義歯床用材料として広く用いられる歯科用アクリルレジン、歯科用樹脂の中で優れた耐候性を持つが、義歯の長期使用により、物性の低下や材料表面の粗造化など材料そのものに経年的な劣化が起こる。このような劣化を起こした材料では、表面のみならず内部にも微生物が繁殖し、微生物叢(バイオフィーム)を形成する(Takeuchi Y. et al 2012)。そのため、義歯そのものが、義歯使用者や免疫機能低下者の口臭や日和見感染症、誤嚥性肺炎などの重篤な呼吸器感染症を発症する病原性因子になる(Sumi Y. et al 2002)。

長期間使用した義歯は、咬合力や義歯洗浄剤などの物理的、化学的ストレスにより、材料表面の粗造化や微小なポア、クラックなど微生物が侵入可能な大きさのマイクロサイズの劣化(micro-sized deterioration)が生じる(Kuhar M. et al 2005)。

そこで、申請者らは、これまでにこの微小亀裂を通して義歯内部に細菌が侵入すると予測し、研究してきた。その結果、実際に長期間使用した義歯のアクリルレジン部内部には口腔内細菌が生存することを明らかにした(Takeuchi Y. et al 2012)。

また、歯科用アクリルレジンの多孔性、吸水性という性質より、材料内部には唾液の侵入も起こると考えられる。そのため、材料内部は、唾液中の分解酵素、微生物やそれらの代謝産物を取り巻く生物学的ストレス環境に長期間置かれることになる。そして、材料を構成する分子の欠落や分子鎖の断裂等を伴うナノサイズの劣化(nano-sized deterioration)を招く可能性がある。

すなわち、材料の劣化は、これらの各種ストレスが複雑に作用して促進されるものと推測される。しかし、これまでに、各ストレスを選択的に与え、その劣化をマイクロサイズ、ナノサイズに分け、多面的に評価した研究はなく、特に生物学的ストレスによる材料の劣化については全く報告がない。

2. 研究の目的

本研究では、パラサイト(微生物)付着制御、増殖制御に加え、抗劣化性を付与した現行の歯科用アクリルレジンに代わる、より衛生的な新しい義歯床用材料創製の基礎検討のために、現在歯科臨床にて用いられている各種義歯用材料のうち加熱重合型義歯床用アクリリックレジン(アクロン[®]、株式会社ジーシー、以下 PMMA)、加熱重合型軟性アクリリックレジン(パレートレジンソフト[®]、ジーシー、以下 PRS)、シリコン製軟性裏装材(ジーシーラインソフト[®]、ジーシー、以下 SOFT)を試料として用いた。そして、劣化の検討に先駆け統一された試料の作製方法の検討とこれらの物理的性質を評価するために3点曲

げ強さを測定し、また、唾液による影響、細菌付着性との関連を検討するために、水接触角ならびに表面粗さを測定することとした。

3. 研究の方法

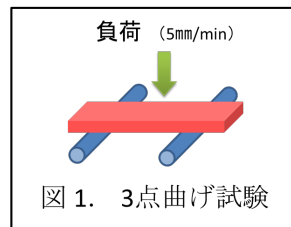
(1) 試料の曲げ強さ

各試料は、下表の粉液比にて、それぞれの添付文書に沿って作製した。用いた試料のうち PRS は粉液比を変えて粉の割合の高いものからそれぞれ PRS hard、PRS moderate、PRS soft とした。各試料は混和後、餅状期に50x10x3 mmの型にて填入、重合を行った。研磨面を想定して填入時にナイロンシート介して製作した。試料製作後は残留モノマー等の除去の為、脱イオン水に24時間以上浸漬した。

3点曲げ試験は、INSTRON 社製の試験機にてクロスヘッドスピードを5mm/minで行った(n = 5、図1)。分析は One-way-ANOVA、Turkey-Kramer 試験を行う事とした。

表. 試料の粉液比

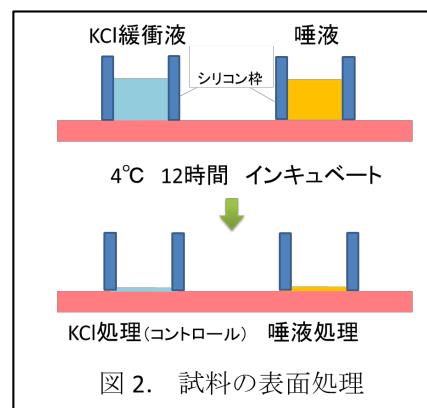
試料	粉/液
PMMA	10/4.3
PRS hard	10/5
PRS moderate	10/7
PRS soft	10/9
SOFT	-



(2) 試料表面の表面粗さ、水接触角

健康な成人男性1名より刺激時唾液を採集し、フィルター滅菌を施したものを密栓容器にて4℃にて保管した。

各試料にシリコン枠を圧接してウェルを作り、各ウェルに滅菌後の唾液を注入した(図2)。4℃にて12時間、振盪器の上でインキュベートした後、各ウェルを塩化カリウム(KCl)緩衝液にて2度洗浄した。コントロールにはKCl緩衝液を用いた。



表面粗さは、非接触式粗さ測定試験器 (LEXT OLS3500® オリンパス) を用いて唾液処理部より 25 μ m \times 25 μ m 領域を 無作為に異なる 5 か所をスキャンし、その Ra 値を求めた (図 3 上)。

水接触角も同様に唾液処理部の 5 か所において、唾液処理部に 2 μ L の水滴を作成し、その水接触角を接触角測定試験器 (Master DM-501®, 共和界面科学株式会社) にて測定した (図 3 下)。

なお、表面粗さおよび水接触角の試験では、PRS は moderate タイプの試料のみを対象とした。これらの測定は、1 つの同一試験片に対して行い、また、データの分析は Two-way ANOVA、Turkey-kramer 比較試験を行うこととした。

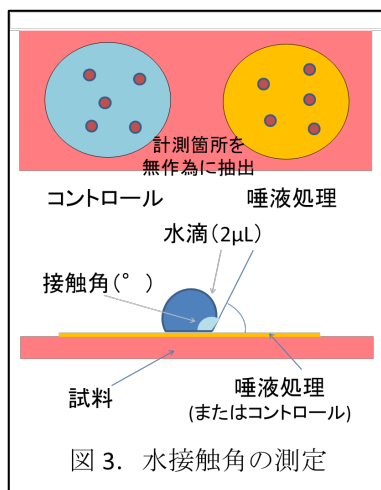


図 3. 水接触角の測定

(3) 試料表面の付着タンパク質の検出

(2) と同様にそれぞれの試料表面に唾液および KCl 緩衝液にて表面処理し、唾液処理後 4 にて 6 時間、12 時間インキュベート後、KCl 緩衝液にて 2 回洗浄した。

Lamlli sample buffer® を表面処理部に滴下して混和した。試料表面から付着成分とともに回収し、SDS-PAGE を行った後に Coomassie Brilliant Blue® を用いて染色し、ゲル上のバンドを観察した。

4. 研究成果

(1) 試料の曲げ強さ

図 4 より曲げ強さは PRS hard の曲げ強さは PMMA の約 50% であることが分かった。また、PRS moderate や PRS soft の曲げ強さは SOFT の値に近かった。これらの値は試料に対して物理的ストレスを与えるシミュレーションする際に上限値を決める参考データになる。しかし、上限値を越えなくとも物理的ストレスの蓄積により試料の破断に至ることを考慮する必要があるため、段階的な疲労試験とその後の物性評価ならびに試験片のクラックの発生等について適正な負荷の大きさを検討する必要がある。また、臨床的な観点より PRS が粉液の割合により弾力性を調整できることが示唆された。

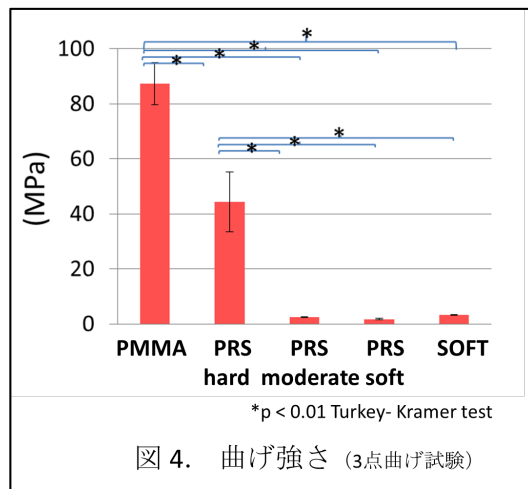


図 4. 曲げ強さ (3点曲げ試験)

(2) 試料表面の表面粗さ、水接触角

図 5 より、唾液処理後の表面粗さは、コントロールと比較して有意差は認められなかった。一方、図 6 より水接触角の唾液処理を行った試料は、コントロールに比べて有意に低い値が得られた。また、3 つの試料それぞれの材料間比較では、唾液処理、コントロールともに PMMA、PRS moderate、SOFT の順で有意に低い値が示された。このことより、試料表面に付着した唾液中に含まれるタンパク質が、試料の表面ぬれ性を強めることに影響する可能性が考えられた。

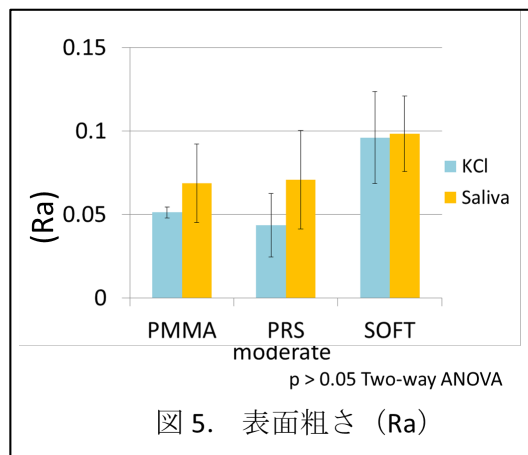


図 5. 表面粗さ (Ra)

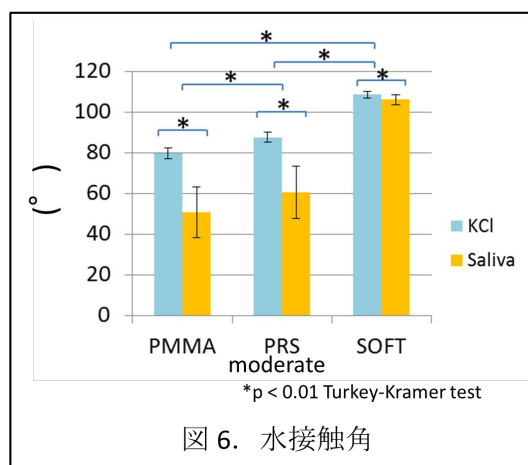
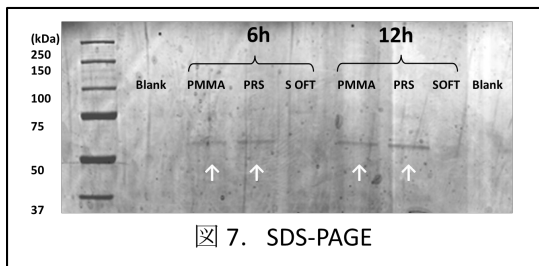


図 6. 水接触角

(3) 試料表面の付着タンパク質の検出

図7より、PMMAおよびPRSの6時間後、12時間後において、約60kDaのタンパク質が検出された。SOFTからはタンパク質が検出されなかった。唾液中にはさまざまな種類のタンパク質が含まれるが、検出されたタンパク質は分子量よりアミラーゼである可能性が考えられた。



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1件)

佐藤奈央子、白石成、小山重人、石河理紗、神藤佑亮、竹内裕尚、富士岳志、塙総司、佐々木啓一：東北大学病院顎口腔再建治療部で対応した頭頸部領域の腫瘍、先天性疾患ならびに外傷を有する患者の実態調査 顎顔面補綴雑誌 37: 60-63, 2014 <http://square.umin.ac.jp/jamfp/journal/e-21-2014.htm> (査読有)

[学会発表](計5件)

佐藤奈央子、白石成、小山重人、石河理紗、竹内裕尚、富士岳志、塙総司、佐々木啓一 東北大学病院顎口腔再建治療部における頭頸部領域腫瘍、先天性疾患、外傷を有する患者の実態調査 東北大学病院・顎口腔再建治療部他 第31回日本顎顔面補綴学会学術大会2014年6月20-22日、仙台国際センター(仙台)

折居雄介、竹内裕尚、道井貴幸、福島庄一、石黒和子、鷺尾純平、阿部二郎、熊谷知弘、高橋信博、佐々木啓一 CAD/CAM総義歯用アクリルレジンへの *S. mutans* の付着に関する検討 第123回日本補綴歯科学会学術大会2014年5月24、25日、仙台国際センター(仙台)

石黒和子、鷺尾純平、佐久間陽子、竹内裕尚、福島庄一、佐々木啓一、高橋信博 歯周病関連菌の義歯用レジン(PMMA)表面への付着性および唾液による影響 第55回歯科基礎医学会学術大会・総会2013年9月20-22日、岡山コンベンションセンター(岡山)

TAKEUCHI Y, Fukushima S, Washio J, Ishiguro K, Takahashi N And Sasaki, K, The Bending Strength And Surface Property Of A Soft Acrylic Resin For Denture Material In Comparison With Conventional Denture

Materials, 15th Biennial Meeting of the Internatinoal College of Prosthodontists, トリノ(イタリア)2013年9月18-21日

竹内裕尚、小山重人、佐々木啓一 サージカルガイドを用いた皮弁減量により口腔内容積を回復した症例 一般社団法人第30回日本顎顔面補綴学会総会・学術大会2013年6月20-22日、郡山市民交流プラザ(郡山)

[図書](計1件)

Sato T, Kawamura Y, Yamaki K, Ishida N, Tian L, Takeuchi Y, Hashimoto K, Abiko Y, Mayanagi G, Washio J, Matsuyama J, Takahashi N: Oral microbiota in crevices around dental implants: profiling of oral biofilm. In: K. Sasaki, O.Suzuki, N. Takahashi (eds.) Interface Oral Health Science 2014: Innovative Research on Biosis-Abiosis Intelligent Interface, Springer, Tokyo, pp. 45-50, 2015. (査読無)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

竹内 裕尚 (TAKEUCHI YASUHISA)
東北大学・大学院歯学研究科・助教
研究者番号：80586511