

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 6 日現在

機関番号：17701

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2013

課題番号：22592188

研究課題名(和文) 歯質との自己審美整合機能を有する高審美性修復用コンポジットレジンの開発

研究課題名(英文) Development of aesthetic light-activated restorative composite resin with self-esthetic matching system

研究代表者

有川 裕之 (ARIKAWA, HIROYUKI)

鹿児島大学・医歯(薬)学総合研究科・助教

研究者番号：90128405

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円、(間接経費) 1,080,000円

研究成果の概要(和文)：歯質の光学的性質や色調に近似したモノマーやフィラー、光重合開始剤を導入し、これらの組成の最適化をはかることで歯質の質感や色調を自己整合できる機能をもち、審美修復精度を高めた修復用コンポジットレジンを開発をおこなった。

試作コンポジットレジンでは、光透過特性や光拡散特性においてエナメル質と象牙質のほぼ中間の特性を示し、色調においても歯質との高い整合性を得ることができた。一方、口腔内で想定される温度変化に対してレジンの屈折率の変動がみられ、それに伴って試作レジンでの光透過特性等も変動することが判明した。これはコンポジットレジン修復物と歯質との審美的整合性を得る上で障害となることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：The aim of this study was to develop the esthetic restorative composite resin with self-esthetic matching system. Considering the optical properties and color characteristics, some resin monomers, silica filler and photoinitiators, which have desirable benefits for trial composite resin, were selected. Measurements of the refractive index, light transmittance and reflectance characteristics, and CIEL*a*b* color values were carried out. The optical properties and color characteristics for the trial composite resin agreed with those for enamel and dentin of natural tooth. However, there were significant differences in optical properties and color of the resin at different temperatures from 40 to 60°C. From these results, the trial composite resin had high esthetic characteristics. However, the resin showed thermochromism, which was the thermal changes in optical and color characteristics. This would affect the esthetic matching between natural tooth and restorative composite resin.

研究分野：歯科理工学

科研費の分科・細目：歯学・保存治療系歯学

キーワード：コンポジットレジン 屈折率 光透過係数 審美性 温度変化 サーモクロミズム 色彩値

1. 研究開始当初の背景

歯科用コンポジットレジンとは、出現当時から現在までに幾多の改良、改善が加えられ、臨床上要求されるほぼ十分な操作性や物性を発揮するに至っている。一方、修復用レジン材料として要求される歯質との審美的整合性の発現とその維持という観点からみると、未だ重大な弱点を抱えており、近年の審美意識の高まりと相俟って早急な改善が強く望まれている。申請者はこれまで材料の光学的性質の観点から修復用レジンの審美性および歯質との審美的整合性について検討を加えており、歯質との審美的整合性を困難にしている要因として次の3点を明らかにしてきた。①：可視光増感剤として一般的に光重合型レジンに使用されているカンファキノン濃黄色を呈し、わずかな添加量でも材料を強く黄変させる。また、反応時に変色することで重合前後の材料の色調に差異を生じさせる。②：レジンモノマーは重合前後の密度変化から光学的性質が変化するため、重合前後での材料の色調や質感に差異が惹起される。③：レジンモノマーとフィラーから成るコンポジットレジンの光学的性質が歯質のそれと大きく異なっていることで材料間の光学挙動にも差異が生じる。こうした要因により修復用レジンの歯質との審美的整合性とその維持を困難にしていると考えられ、とくに光透過率および光屈折率の差異が材料の審美性に大きな影響を及ぼしている。修復部周辺の歯質と材料間の審美的整合性とその維持の困難さは内外の報告で再三指摘されているところであり、臨床医は審美的要求に応えるため、熟練した技術や経験の蓄積を必要とし、また多大な時間と労力を費やさなければならない。この問題を解消するため、シェード選択手法の改善や、シェードの細分化などの方法が報告されているが、先に挙げた①～③の要因を包括的に改善することで審美性の向上を目指した研究は見当たらない。

については研究代表者の科学研究費受給研究 (No.19592208) において検討をほぼ終了しており、フォスフィンオキサイド系光増感剤を用いることで材料の色調に与える影響を最小限に抑制することができる。②については重合前後での光学的性質の変化は不可避であるが、フィラーの光学的性質をモノマーのそれに接近させることで審美性への影響を最小限にできることを確認している。③については、研究代表者の科学研究費受給研究 (No.12671895) において光透過特性について歯質とコンポジットレジンの差異を確認し、モノマーとフィラーの材質やフィラー形状を最適化することで歯質との差異を小さくすることができることを確認している。一方、審美的整合性に大きな役割を果たすと考えられる光学的性質のひとつである光屈折率については、コモノマーの混合比を変えることで屈折率をエナメル質のそれ

($n=1.61$) に近づけることでできること、Aluminum(hydr)oxide 微粒子などをフィラーとして使用することで歯質に近接した屈折率をもつコンポジットレジンが実現できるものと考えている。さらに、修復用レジン材料の光学的性質を歯質と近接させることで、歯質と材料間の光挙動の不連続性が解消され、修復材料に周辺部の歯質の色調や質感がレジン材料に投影される、いわゆるカメレオン効果によって見かけ上、材料自らが色調を変化させる自己審美整合機能を有する修復用レジンを実現できると考えている。近年、内外の修復用レジン製造会社が歯質との審美的整合性の向上を模索した製品を発表しているが、これらは先に挙げた要因①のみの軽減に力点を置いており、これだけで十分な審美的整合性が得られるものではないと考えており、過去の研究成果を踏まえさらに根本的な改善を加える必要があると考えた。

2. 研究の目的

現在、歯科用コンポジットレジンに使用されているモノマーは Bis-GMA、UDMA、TEGDMA を混合したものがほとんどである。しかし最近モノマーとして BMPEPP のような比較的高い屈折率を示すモノマーが出現しており、これと従来のモノマーとコモノマーを作成することでレジンマトリックスの屈折率を歯質とくにエナメル質の屈折率に近接させることができると考えられる。また、フィラーについても Aluminum(hydr)oxide などを使用することでレジン内部での光散乱が小さく高い透明性を保持しつつ、エナメル質に近接した屈折率をもつ修復用コンポジットレジンを実現できると考えられる。また、こうした特性によって周辺歯質との自己審美整合機能を有する修復用コンポジットレジンを実用化することを目的としている。

3. 研究の方法

(1) 基材モノマー、フィラー、重合開始剤の選定と試作レジンの作成

固有色、光学的性質を選定基準としてモノマー、フィラー、重合開始剤を選定した。選定にあたっては固有色が無色か淡色であること、光学的性質のうち屈折率および光透過率が歯質と可能な限り近接することを重視して選定した。フィラーについてはその形状や粒径が審美性に大きく影響することを過去の研究で確認しているため屈折率とともにこれらを基準に選定した。選定した材料について、光透過係数、反射係数、拡散係数、屈折率を分光スペクトロメーター、ゴニオフォトメーター、アッペ屈折計、また固有色については色彩色差計および分光透過率計を用いて計測し特性を確認した。選定した数種類のモノマーを用いて混合比の異なる各種コモノマーを作成しフィラー、および光増感剤を添加した試作コンポジットレジンを作成した。

(2) 歯質との審美的整合性の検討

歯科用修復材料の審美性については、歯質との審美的整合性が得られることが重要となるため、臨床での修復状況にできるだけ近似するよう試作コンポジットレジンに歯牙に填入した試験片を作成し、試作レジンと歯質の色調との整合性を検討した。色調は色彩色差計、分光透過率計を用いてCIE L*a*b*、RGB色彩値を測定し、これを基に算出した色差値とともに分析した。

(3) 物理的および機械的性質の検討

試作コンポジットレジンの物理的性質については、重合収縮率、熱膨張率、吸水率、重合時の温度上昇について検討した。機械的性質については、硬さ、曲げ強さ、耐摩耗、衝撃強さの各試験をおこなった。これらの物性評価試験から、従来の市販レジン材料とほぼ同等の物理的および機械的性質が得られるかについて検討した。

(4) 光学的性質の検討

半透明材料であるコンポジットレジンの審美性はその光学的性質に依るところが大きいため、試作コンポジットレジンの光透過係数、反射係数、拡散係数、屈折率を測定し、歯質との光学的性質の整合性を検討した。

また、口腔内で想定される温度変化における光学的性質および色調の変化を測定し、温度が試作コンポジットレジンと歯質との光学的ならびに色調といった審美的整合性に与える影響を検討した。

4. 研究成果

歯質の光学的性質に近似したモノマーやフィラー、光重合開始剤を導入し、これらの組成の最適化をはかることで歯質の質感や色調といった審美的特性を自己整合できる機能を持ち、修復治療における審美修復精度を高めた修復用コンポジットレジンの開発をおこなった。

試作硬質レジン、光透過特性においてエナメル質と象牙質のほぼ中間の光透過係数を示し、また短波長領域から長波長領域にかけて透過係数が上昇し、エナメル質のそれと近似する波長特性を示した。色調においても歯質の色彩値と比較的よく一致しており、歯質との光学的特性ならびに色調における高い整合性を得ることができた。

一方、口腔内で想定される4~60の温度変化に対してレジンマトリックス部の屈折率は約0.5%変化することが判明した (Fig. 1)。これに対して、シリカフィラーの屈折率は温度による影響をほとんど受けないことからレジンとフィラーの混合体としてのコンポジットレジンではフレネルの理論から4~60の温度変化に対して光透過係数は5~10%程度の変化率を示すことが予測されたが、市販歯科用硬質レジンの4~60の温度領域における測定値は理論上予想される範囲に近似していた (Fig. 2)。光透過率は半透明材料の色調に大きな影響を与えることは以前の研

究 (科学研究費受給研究 (No.12671895)) で確認しており、口腔内での温度変化が修復用レジンにいわゆるサーモクロミズム現象を惹起し修復用硬質レジンと歯質との審美的整合性の障害となることが明らかとなった。

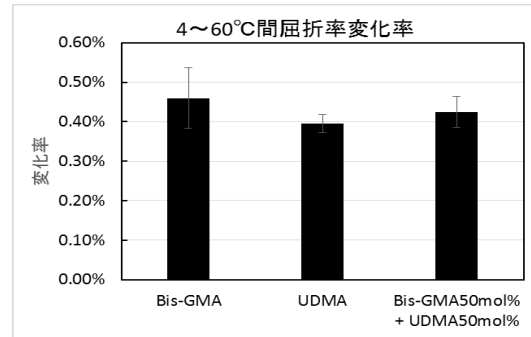


Fig. 1 歯科用主要ポリマーの4~60間の屈折率の変化率

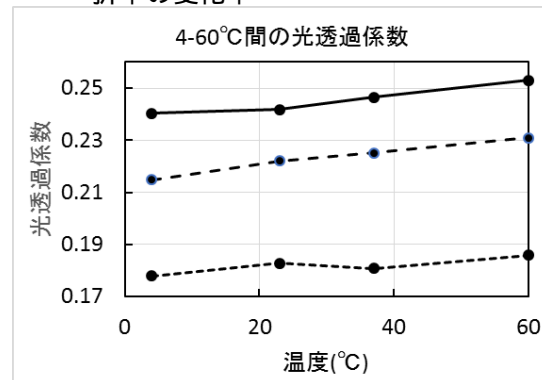


Fig. 2 コンポジットレジンの4~60間の光透過係数の変化

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)

Kanie T, Kadokawa A, Nagata M,

Arikawa H.

A comparison of stress relaxation in temporary and permanent luting cements.

Journal of Prosthodontic Research, 査読有, 57, 46-50, 2013.

Tsuruki J, Kono H, Okuda Y, Noda M,

Arikawa H, Kanie T, Ban S.

Factors affecting on the bond strength of dental zirconia to veneering porcelains.

Key Engineering Materials, 査読有, 24, 507-511, 2013.

Arikawa H, Takahashi H, Minesaki Y,

Muraguchi K, Matsuyama T, Kanie T, Ban S.

A method for improving the light intensity distribution in dental light-curing units.

Dental Materials Journal, 査読有, 30(2), 151-157, 2011.

Arikawa H, Kanie T, Fujii K.
Light transmittance and reflectance characteristics of restorative composite resins. Proceedings of the International Dental Materials Congress, 査読有, 285, 2011.

[学会発表](計8件)

門川明彦, 蟹江隆人, 嶺崎良人,
柳田廣明, 村口浩一, 村原貞昭,
有川裕之, 菊地聖史, 南 弘之.
咀嚼官能試験を利用したインプラントの
評価法.
日本補綴歯科学会第123回学術大会,
2014年5月25日, 仙台市

有川裕之, 蟹江隆人, 菊地聖史.
修復用コンポジットレジンの温度による
色調変化.
第62回日本歯科理工学会学術講演会,
2013年10月5日, 新潟市

蟹江隆人, 有川裕之, 菊地聖史,
門川明彦.
メタクリル酸エステルポリマー/モノマ
ー混合溶液から作製した重合体の機械的
特性.
第62回日本歯科理工学会学術講演会,
2013年10月5日, 新潟市

有川裕之, 鶴木次郎, 蟹江隆人.
コンポジットレジンの光学的性質に關す
る研究 - 光透過ならびに反射特性の角
度依存性 -
第22回日本歯科医学会総会,
2012年11月10日, 大阪市

鶴木次郎, 野田 誠, 奥田祐司,
河野博史, 蟹江隆人, 有川裕之, 伴 清治.
ジルコニアと陶材との接着強さ(第7報)
ボンディング陶材の効果.
第60回日本歯科理工学会学術講演会,
2012年10月14日, 福岡市

中山 歩, 岩下洋一郎, 田松裕一,
有川裕之 他7名.
教員の教育能力向上の取り組み
- CBT 作問を通じて -
第31回日本歯科医学教育学会総会,
2012年7月21日, 岡山市

有川裕之, 蟹江隆人.
歯冠用硬質レジンの光学的性質に關す
る研究 - 光透過ならびに反射特性の角
度依存性 -
第59回日本歯科理工学会学術講演会,
2012年4月14日, 徳島市

蟹江隆人, 有川裕之, 鶴木次郎,
門川明彦.
仮着用及び合着用セメントの応力緩和特
性.
第59回日本歯科理工学会学術講演会,
2012年4月14日, 徳島市

6. 研究組織

(1) 研究代表者

有川 裕之 (ARIKAWA HIROYUKI)
鹿児島大学・医歯学総合研究科・助教
研究者番号: 90128405

(2) 研究分担者

村口 浩一 (MURAGUCHI KOICHI)
鹿児島大学・医学部・歯学部附属病院・
助教
研究者番号: 30295258

嶺崎 良人 (MINESAKI YOSHITO)
鹿児島大学・医学部・歯学部附属病院・
講師
研究者番号: 70157577

松山 孝司 (MATSUYAMA TAKASHI)
鹿児島大学・医歯学総合研究科・准教授
研究者番号: 40253900