

原 著

S-PRG フィラー含有 MMA 常温重合レジン of 抗プラーク性

渡 邊 一 弘¹⁾ 眞 岡 知 史¹⁾ 瀧 田 史 子²⁾
岩 堀 正 俊²⁾ 都 尾 元 宣²⁾

Anti-plaque characteristics of MMA Self-curing Resin Containing S-PRG Filler

WATANABE KAZUHIRO¹⁾, SANAOKA SATOSHI¹⁾, TAKITA FUMIKO²⁾,
IWAHORI MASATOSHI²⁾ and MIYAO MOTONOBU²⁾

MMA 常温重合レジン は、細菌付着やプラーク形成の顕著な材料である。そのため、長期間口腔内に保持する症例において、二次齲蝕の罹患や歯周病を助長する問題が生じている。また、硬さや耐摩耗性が低く、十分な強度を有していない。

グラスアイオノマーセメントの粉成分である Surface Reaction Type Pre-Reacted Glass-ionomer フィラー (S-PRG) を含有したコンポジットレジン、歯面コート材には、細菌付着を抑制する傾向が確認されており、補綴分野においても義歯用コーティング材へ応用がなされている。本研究では MMA 常温重合レジンへの、細菌付着およびプラーク形成の抑制を目的として S-PRG を含有した MMA 常温重合レジンを試作し、*in vivo* にて抗プラーク性、*in vitro* にて細菌付着性および抗菌性の試験を行うとともに S-PRG の表面分布、曲げ強さ、ビッカース硬さ、歯ブラシ摩耗量についても検討した。

その結果、S-PRG の含有量が多くなるに従い、試料表面にはフィラーが多く分布することが確認された。曲げ強さ、ビッカース硬さでは、すべての試料において JIS の基準値を満たしていた。摩耗量は有意に少ない値を示した。また、抗プラーク性試験ならびに細菌付着性試験において、初期付着細菌に対して有意に抗プラーク性、細菌付着の減少傾向が観察されたが、その効果は含有量に相関していなかった。

以上のことから、S-PRG フィラー含有 MMA 常温重合レジン は、抗プラーク性を有する材料であり、5 ~10wt% の含有量において優れた物性を示す材料であることが明らかとなった。

キーワード：S-PRG, MMA 常温重合レジン, 抗プラーク性, *Streptococcus mutans*, *Actinomyces viscosus*

MMA self-curing resin is a prominent material in bacterial adhesion and plaque formation. Therefore, in cases in which it is kept in the oral cavity over a long period, the problem of its fostering the contraction of secondary caries or periodontal disease is a concern. Also, given that it lacks sufficient strength, its material properties also need to be improved.

A tendency in composite resins and tooth surface coating materials containing surface reaction-type pre-reacted glass-ionomer filler (S-PRG), which is the main body of glass-ionomer cement, to inhibit bacterial adhesion has been confirmed, and application of the materials has been made as a coating material for dentures in the field of dental prosthetics. In this study, a trial MMA self-curing resin containing S-PRG was produced with the aim of inhibiting bacterial adhesion and plaque formation on MMA self-curing resin. The material's anti-plaque properties were tested in vivo, its bacterial adhesion and anti-bacterial properties were tested in vitro, moreover, the surface distribution of S-PRG, bending strength, Vickers hardness number, and toothbrush

本論文の要旨は、第111回朝日大学大学院歯学研究科発表会（平成22年11月24日、岐阜）において発表した。本論文の一部は、平成22年度社団法人日本補綴歯科学会東海支部学術大会（平成22年11月21日、長野）において発表した。

¹⁾朝日大学歯学部口腔病態医療学講座口腔外科学分野

²⁾朝日大学歯学部口腔機能修復学講座歯科補綴学分野局部床義歯学 501-0296 岐阜県瑞穂市穂積1851

¹⁾Department of Oral and Maxillofacial Surgery, Division of Oral Pathogenesis and Disease Control

²⁾Department of Prosthodontics, Division of Oral Functional Science and Rehabilitation

Asahi University School of Dentistry

Hozumi 1851, Mizuho, Gifu 501-0296, Japan

(平成24年12月3日受理)

wear volume were examined.

The results of the investigation of the material properties confirmed that as the content of S-PRG filler increased more filler was distributed to the surface of the test piece. Bending strength and Vickers hardness number fulfilled the standard value of JIS in all the samples. The amount of abrasion showed a significantly low value. Also, in the anti-plaque and bacterial adhesion tests, significant anti-plaque properties to the initial bacterial adhesion and a reduction of the amount of bacterial adhesion were observed, however, there was no correlation between the effect of bacterial adhesion and the amount of the MMA self-curing resin containing S-PRG filler.

Based on this, it became clear that MMA self-curing resin containing S-PRG filler is a material that possesses anti-plaque properties and that content of 5-10wt% provides a physically superior material.

Key words: S-PRG, MMA Self-curing Resin, Anti-plaque characteristics, *Streptococcus mutans*, *Actinomyces viscosus*

緒 言

MMA 常温重合レジンとは、臨床における使用頻度が極めて高い材料の一つであり、その利用は、プロビジョナルレストレーションの製作や義歯修理など多岐にわたっている。しかし、MMA 常温重合レジンには細菌付着やプラーク形成の顕著な材料でもある¹⁾。そのため、長期間口腔内に保持する症例において、プロビジョナルレストレーションの隣在歯との接触部や支台歯のマージン部、部分床義歯の支台歯との接触部における二次齲蝕の罹患や辺縁歯周組織の発赤、腫脹など歯周病を助長する問題が生じている²⁻¹²⁾。

歯科用レジンには有機系ならびに無機系の様々な種類の抗菌剤^{13-15, 23, 24)}が添加され、その抗菌効果が検討されている。ガラスアイオノマーセメントの粉成分であるSurface Reaction Type Pre-Reacted Glass-ionomer フィラー（以下、S-PRG と略す）を含有したコンポジットレジン¹⁶⁻²⁰⁾、歯面コート材²¹⁾には、細菌付着の抑制効果があることが報告されており、補綴分野においても義歯用コーティング材として応用²²⁾されている。MMA 常温重合レジンにおいては、田中ら²³⁾は銀系無機抗菌剤を添加させ、また越智ら²⁴⁾は第四アンモニウムのトリメチルアミノエチルメタクリレートを追加させ抗菌効果が得られたことを報告している。しかし、MMA 常温重合レジンに他の物質を添加することは物性の低下につながる懸念される。

そこで、本研究ではMMA 常温重合レジンへの、細菌付着およびプラーク形成の抑制を目的としてS-PRG を含有したMMA 常温重合レジンを試作し、*in vivo*にて抗プラーク性、*in vitro*にて細菌付着性および抗菌性の試験を行うとともにS-PRG の表面分布、曲げ強さ、ビッカース硬さ、歯ブラシ摩耗量についても検討した。

材料および方法

1. 供試材料

実験群としてS-PRG を5, 10, 15, 20wt%含有させたMMA 常温重合レジン（以下、5, 10, 15, 20wt%試料と略す）を使用した。なお本材料においては、S-PRG の分散を均一にする目的で平均粒径 $1\mu\text{m}$ とし、重合後における脱落を防止する目的で、ポリシロキサン処理と、シラン処理を施した。コントロール群としてS-PRG を含有させていないMMA 常温重合レジン（以下、cont と略す）を用いた（表1）。

2. 試料作製方法

各供試材料を粉:2.0g, 液:1.0mlの割合で混和し、型枠に入れ加圧重合器(PERMA POT UP-1, ジーシー)にて $2.0\sim 2.5\text{kgf}/\text{cm}^2$ で10分間加圧した。重合後、大気圧中にて30分間放置し、型枠から取り出し 37°C 蒸留水中にて24時間浸漬し、注水下にて耐水研磨紙#10,000まで研磨後、鏡面研磨したものを試料とした。

3. S-PRG 分布の画像解析

走査電子顕微鏡(S-4500, 日立製作所, 以下、SEM と略す)を用いて、直径5mm, 厚さ1mmに調整した試料を自然乾燥後、オスミウムコーティング装置(HPC-1C, 真空デバイス)にて導電処理を施し、加速電圧15kVの条件(反射電子)にて観察した。試料表面をImage J (NIH)にてS-PRG部とMMA部に2値化し、S-PRGの分布を画像解析した後、重量率と表面分布率の比較を行った。

4. 曲げ強さ試験

JIS T6518 (アクリル系歯冠用レジン)に準じて、 $2\times 2\times 25\text{mm}$ に調整した試料を用いた。3点曲げ用

表1 供試材料

供試材料	cont	5wt%試料	10wt%試料	15wt%試料	20wt%試料
MMA	100wt%	95wt%	90wt%	85wt%	80wt%
S-PRGフィラー	0wt%	5wt%	10wt%	15wt%	20wt%

試験治具は、直径 2 mm の円柱状先端をもつ平行間距離 20 ± 0.1 mm の 2 つの試料支持部と試料中央に垂直に負荷を与えるための直径 2 mm の円柱状先端をもつ負荷プランジャーからなり、電気機械式万能試験機 (5567A, INSTRON) にてクロスヘッドスピード 1 mm/min の条件で最大荷重時における曲げ強さを測定した。なお 1 試料につき各 5 個ずつ試験を行い、平均値を算出すると共に、一元配置分散分析と多重比較検定 Tukey にて有意差検定 ($P < 0.05$) を行った。

5. ビッカース硬さ試験

JIS T6518 (アクリル系歯冠用レジン) のビッカース硬さ試験に準じて、直径 10 mm, 厚さ 2 mm に調整した試料を用いて、微小硬さ試験機 (Hardness Testing Machine HM, Mitutoyo) にて、荷重: 200 gf, 荷重時間 10 秒の条件における試料表面のビッカース硬さを測定した。なお 1 試料につき各 3 個ずつ試験を行い、各試料につき 3 ヶ所ずつ測定し平均値を各試料の硬さとして算出すると共に、一元配置分散分析と多重比較検定 Tukey にて有意差検定 ($P < 0.05$) を行った。

6. 歯ブラシ磨耗試験

$20 \times 15 \times 2.5$ mm の型枠にて作製した試料を用いて、 37°C 蒸留水中に 24 時間浸漬後、歯ブラシ磨耗試験機を用いて試料を滑走速度: 126 回/min, 荷重: 185 g の条件にて 30,000 回滑走させた。歯ブラシ: ペリオ (サンスター), 歯磨材: ホワイト (サンスター) 25 g, 蒸留水: 1 ml を介在させ、歯ブラシ磨耗試験を実施した。歯ブラシの磨耗による重量減 (wt%) を歯ブラシ磨耗量とした。なお 1 試料につき各 5 個ずつ試験を行い、平均値を算出すると共に、一元配置分散分析と多重比較検定 Tukey にて有意差検定 ($P < 0.05$) を行った。

7. 抗プラーク性試験

加熱重合レジン (アクリル, ジーシー) を用いてあらかじめ作製した口腔内保持装置 (図 1) に S-PRG 未含有フロアブルコンポジットレジンを用いて、直径 5 mm, 厚さ 1 mm に調整した試料の辺縁に 40 秒間光照射し、試料を固定した。試験前には被験者に対して口腔内のブラッシングを十分に行うように指示し、試験中のブラッシングは禁止とした。その後、口腔内に 2 時間, 4 時間, 8 時間保持して得られた試料に対して、2% グルタルアルデヒドにて 30 分間固定し、1% 四酸化オスミウムにて 30 分間 2 次固定を行い、70%, 80%, 90%, 99.5% の T-ブチルアルコールにそれぞれ 2 分間浸漬し、試料を凍結乾燥した。その後、試料台にカーボンテープおよびカーボンペーストを用いて試料を静置し、オスミウムコーティング装置にて導電処理を施し、SEM にて加速電圧 5 kV の条件にて

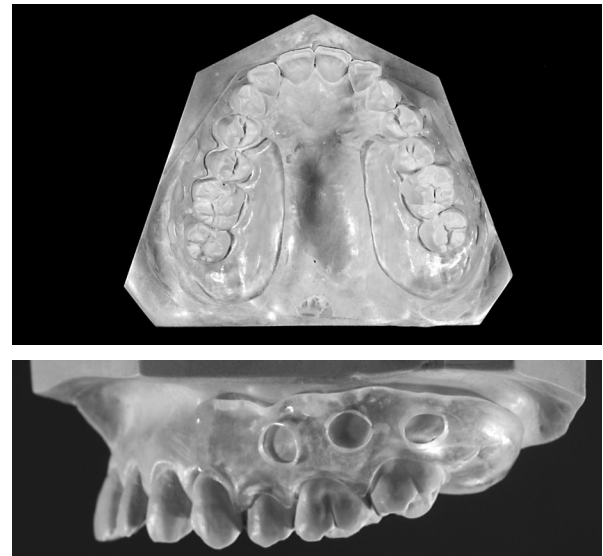


図 1 口腔内保持装置

表面の観察を行った。

8. 細菌付着性試験

供試細菌には齲蝕原性菌として重要と考えられている^{25,26)} *Streptococcus mutans* ATCC25175 (以下, *S. mutans* と略す) およびペリクル上に初期付着細菌として吸着し、反対側の線毛にレンサ球菌等が付着する特徴をもつ^{26,27)} *Actinomyces viscosus* ATCC19246 (以下, *A. viscosus* と略す) を用いた。佐藤ら²⁸⁾ の方法に従い、*S. mutans* は最終濃度 74 kBq/ml の $[6\text{-}^3\text{H}]$ thymidin, *A. viscosus* は最終濃度 37 kBq/ml の $[^{14}\text{C}]$ thymidin を含む 20 ml の 0.5% Yeast extract を含む Trypticase Soy Broth (以下, TSBY と略す) に接種し、 37°C 18 時間嫌気条件下にてラベルした。培養後、15,000 回転/min, 20 分間遠心沈殿を行った後、ラベルされた細菌を 0.05 M Phosphate buffered saline (pH 7.0) (以下, PBS と略す) で洗浄した。これを 3 回繰り返す。菌液を $1.0 \sim 5.0 \times 10^6$ CFU/ml に調整した。次に流動下のラベルされた各調整菌液中に、本多ら¹⁷⁾ の方法に従い調整したヒト唾液に 72 時間浸漬した試料および無処理の試料を 37°C , 2 時間, 4 時間, 8 時間浸漬した。浸漬後、PBS にて 3 回洗浄し非付着性の菌体を取り除き、全自動試料燃焼装置 (ASC113, Aloka) を用いて各試料表面に付着した菌体を完全燃焼させ、遊離したラジオアイソトープ (RI) を $[6\text{-}^3\text{H}]$ は $^3\text{H}_2\text{O}$ として、 $[^{14}\text{C}]$ は $^{14}\text{CO}_2$ として回収し、液体シンチレーションカウンター (LSC5100, Aloka) にて測定した。なお 1 試料につき各 4 個ずつ試験を行い、その平均値を算出すると共に、一元配置分散分析と多重比較検定 scheffé にて有意差検定 ($P < 0.05$) を行った。本実験では *S. mutans* と *A. viscosus* の混合菌液中での付着

性とそれぞれの単体菌液中での付着性を検討した。

抗プラーク性試験および唾液採取に関しては、朝日大学倫理委員会（承認番号21073）の承認を得て行った。

9. 抗菌性試験

供試細菌として *S. mutans* を使い、TSBY に接種し、37℃、10～12時間にて嫌気培養を行い、その後PBSを用いて、 1×10^6 CFU/ml に調整した。次に各調整菌液中に試料を浸漬し、37℃、24時間嫌気条件下にて抗菌性を検討した。菌数の測定はPBSを用いて10倍連続希釈を行った後、各希釈液の100 μ lをTSBY平面培地上に滴下し37℃、72時間にて嫌気培養を行った。培養後、100個前後のコロニーの発育が認められた平板を選んで生菌数を測定し、一元配置分散分析と多重比較検定schefféにて有意差検定 ($P < 0.05$) を行った。

結 果

1. S-PRG 分布の画像解析

各試料表面の反射電子像から、S-PRGの含有量が増すにつれて表面への分布は多くなる傾向を認めた。また、20wt%試料においてS-PRGが部分的に凝集した箇所を観察した(図2)。

S-PRG含有量と表面分布率の散布図を図3に示す。散布図から、S-PRGの含有量が増すにつれて表面分布率は上昇傾向を示した。

2. 曲げ強さ

3点曲げ強さ試験の結果、その平均値は10wt%試料が最大で73.1MPa、15wt%試料が最小で64.5MPaを示し、10wt%試料と比較して15wt%試料が有意に小さい値を示した(図4)。また試料が破折したものは全4本中、cont、5wt%試料、10wt%試料は0本、

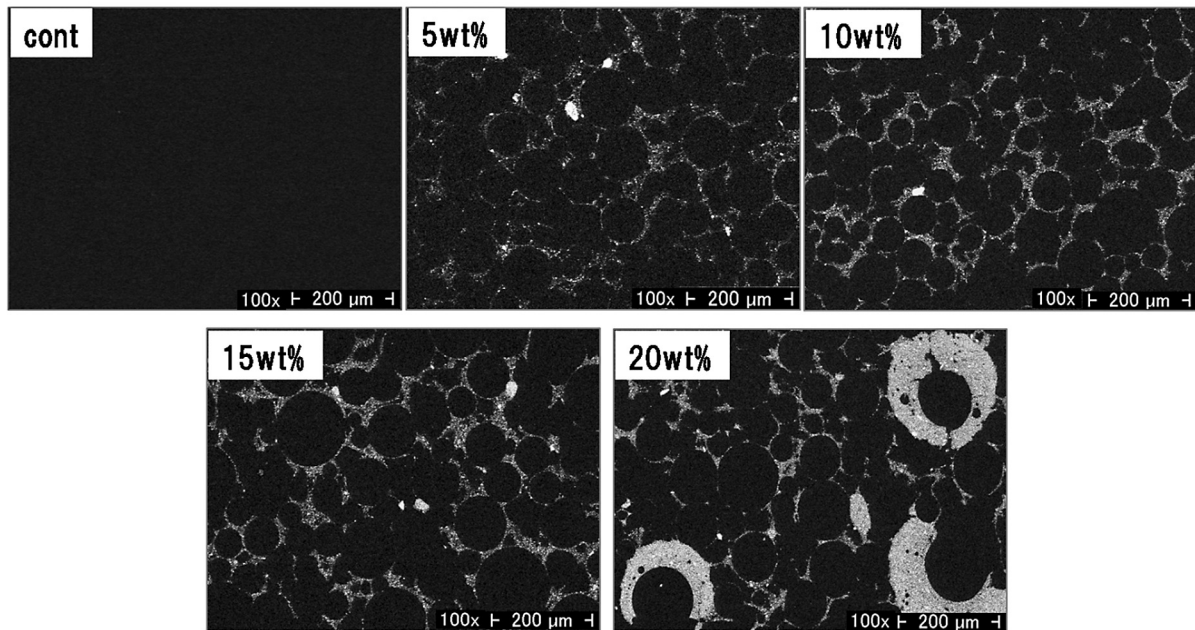


図2 試料表面の反射電子像

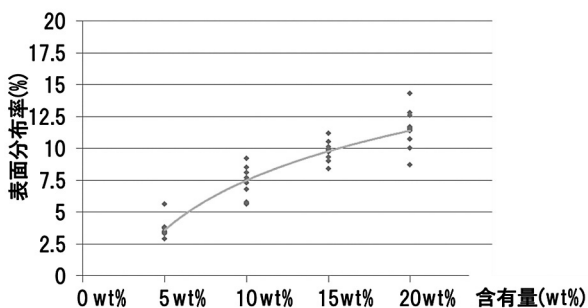


図3 S-PRGの含有量 (wt%) と散布図の表面分布率との関係

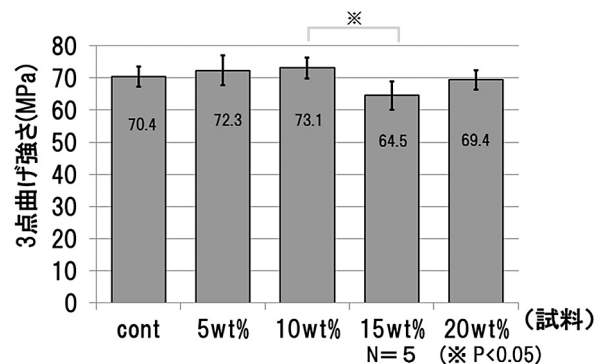


図4 各試料の曲げ強さ

表2 曲げ強さ試験における試料破折数

試料	cont	5wt%試料	10wt%試料	15wt%試料	20wt%試料
破折数	0	0	0	1	4

15wt%試料で1本, 20wt%試料で4本であった(表2)。

3. ビッカース硬さ

ビッカース硬さ試験の結果, 20wt%試料が最大で15.1, contおよび5wt%試料が最小で14.0を示し, 20wt%試料はcont, 5wt%試料, 15wt%試料と比較して有意に硬い値を認めた(図5)。

4. 歯ブラシ摩耗量

歯ブラシ摩耗試験の結果, contが最大で4.5wt%の摩耗量を示し, 10wt%試料が最小で2.5wt%を示し, contと比較して5, 10, 15, 20wt%試料に有意に少ない量を示した。しかし, 5, 10, 15, 20wt%試料間に有意差は認められなかった(図6)。

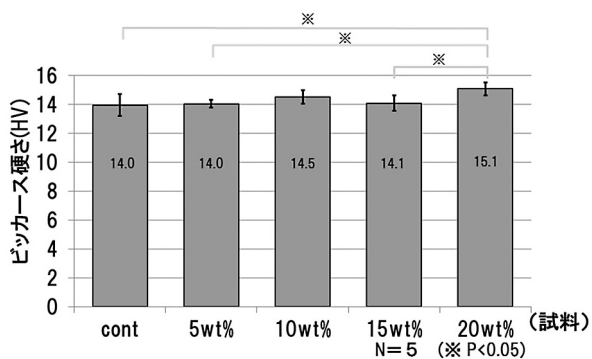


図5 各試料のビッカース硬さ

5. 抗プラーク性

各試料を, 口腔内に2時間, 4時間, 8時間保持し, 得られたレジン表面に形成されたプラークのSEM像を図7~図9に示す。

1) 2時間保持

図7に示すように, すべての試料に細菌の初期付着はほとんど認められず, 試料間の違いは観察されなかった。また, 試料表面には全体に一層ペリクル様の構造物を認めた。

2) 4時間保持

図8に示すように, contでは細菌の初期付着およびプラーク形成が認められた。5, 10, 15, 20wt%試料では, 点在性に細菌の初期付着を認めるもののプラーク形成はなく, その差は明らかであった。

3) 8時間保持

図9に示すように, 8時間保持においてcontは4時間保持よりも成熟したプラーク形成を認めた。5,

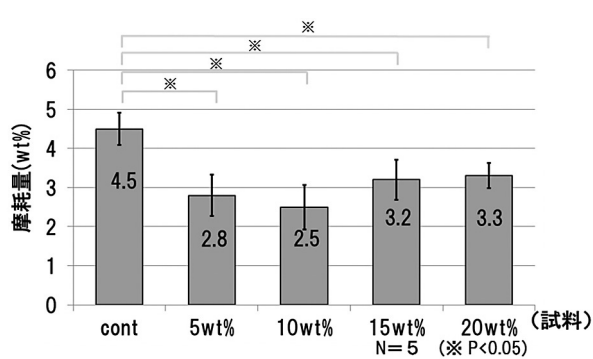


図6 各試料の歯ブラシ摩耗量

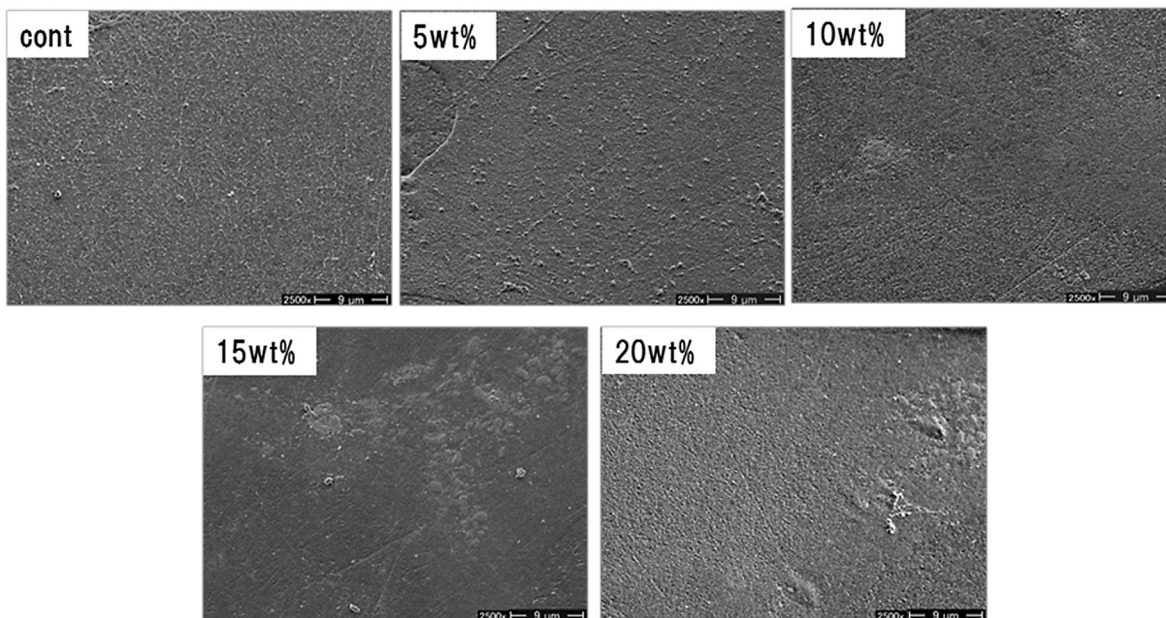


図7 口腔内に2時間保持した各試料のSEM像

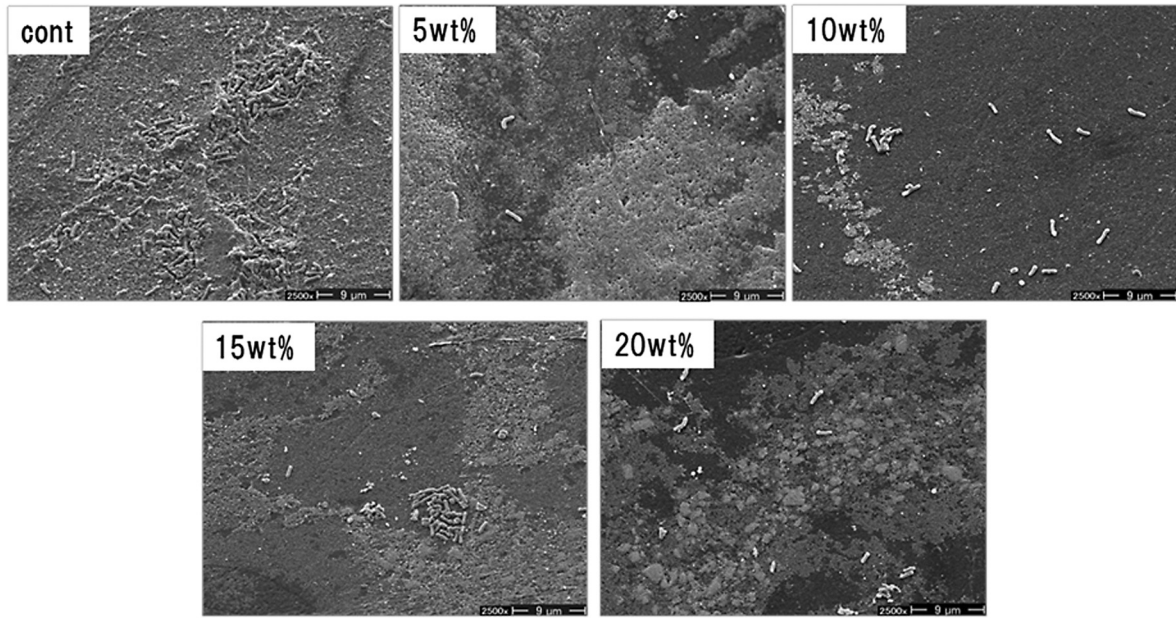


図8 口腔内に4時間保持した各試料のSEM像

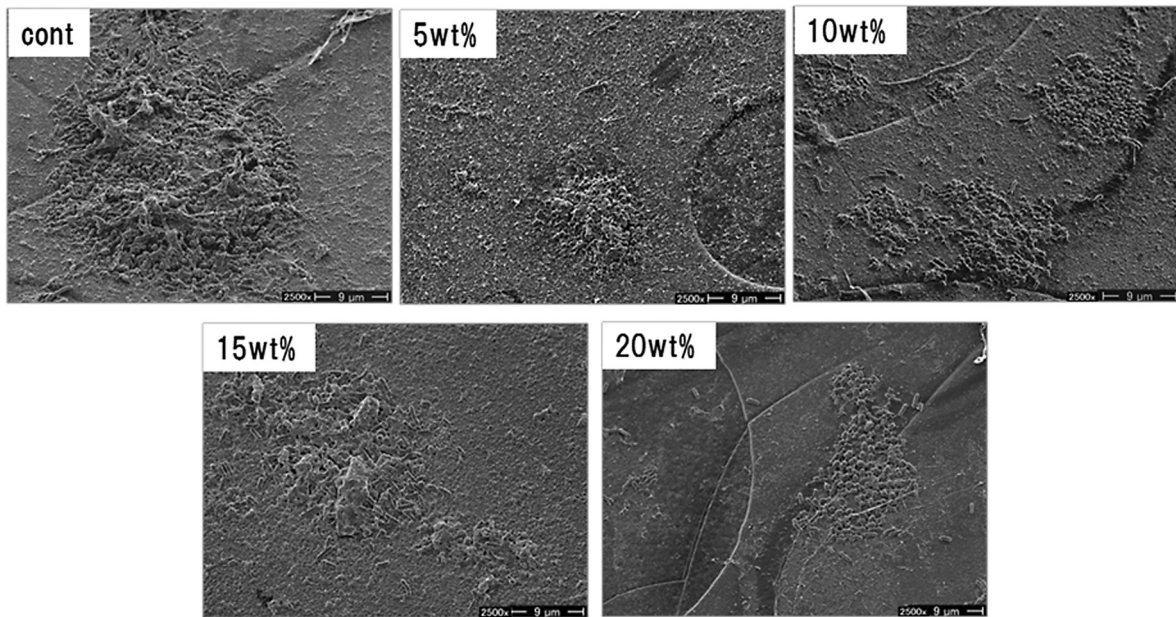


図9 口腔内に8時間保持した各試料のSEM像

10, 15, 20wt%試料においてもプラーク形成を認めた。そのため、初期付着細菌に対して、8時間保持では明らかな差は観察されなかった。

6. 細菌付着性

1) 混合菌液における *S. mutans* の細菌付着性

試料を唾液浸漬した群では2時間、4時間の5, 10, 15, 20wt%試料にcontと比較して、有意に細菌付着の低下を認めた。8時間においては、contと15wt%試料に有意差を認めたものの、その他に有意差は認められなかった。無処理の群では、2時間のcontと

20wt%試料、4時間のcontと10wt%試料に有意差を認めた(図10)。

2) 混合菌液における *A. viscosus* の細菌付着性

試料を唾液浸漬した群では2時間、4時間の5, 10, 15, 20wt%試料にcontと比較して、有意に細菌付着の低下を認めた。しかしながら、8時間において、有意差は認められなかった。

無処理の群では、2時間のcontと15wt%試料, contと20wt%試料, 8時間のcontと15wt%試料, contと20wt%試料に有意差が認められた。*A. viscosus*にお

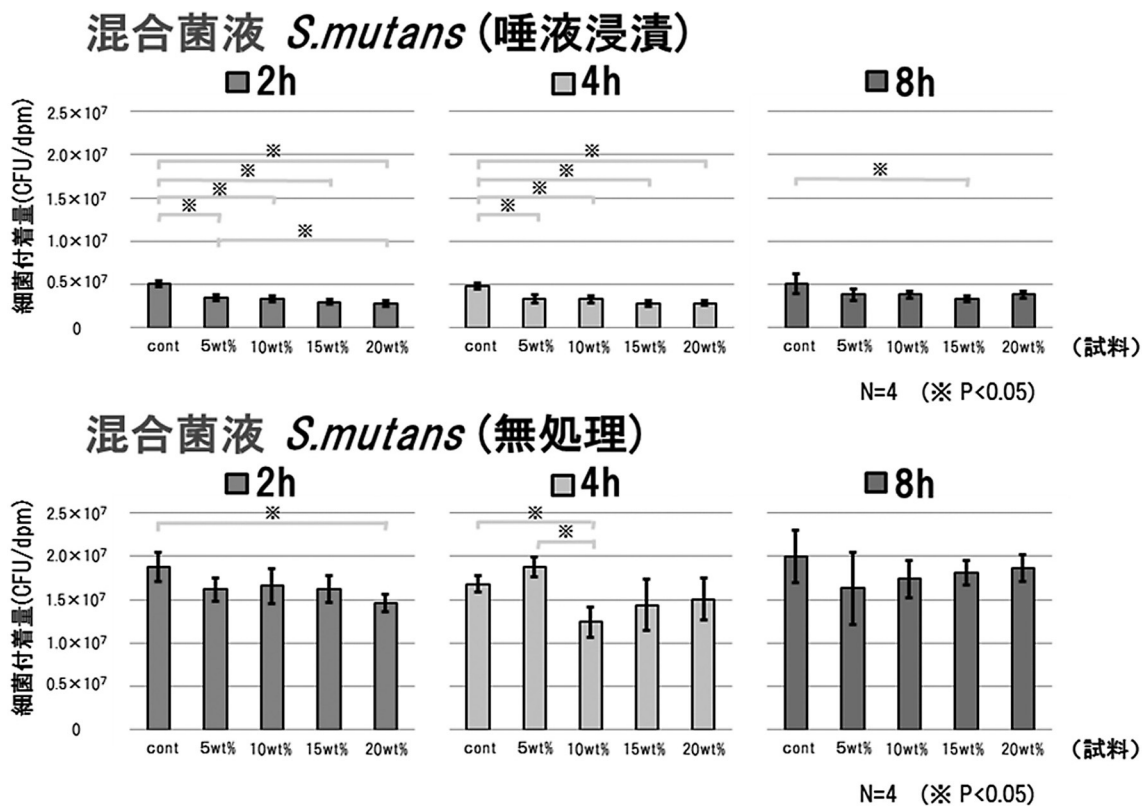


図10 混合菌液における *S. mutans* の細菌付着性

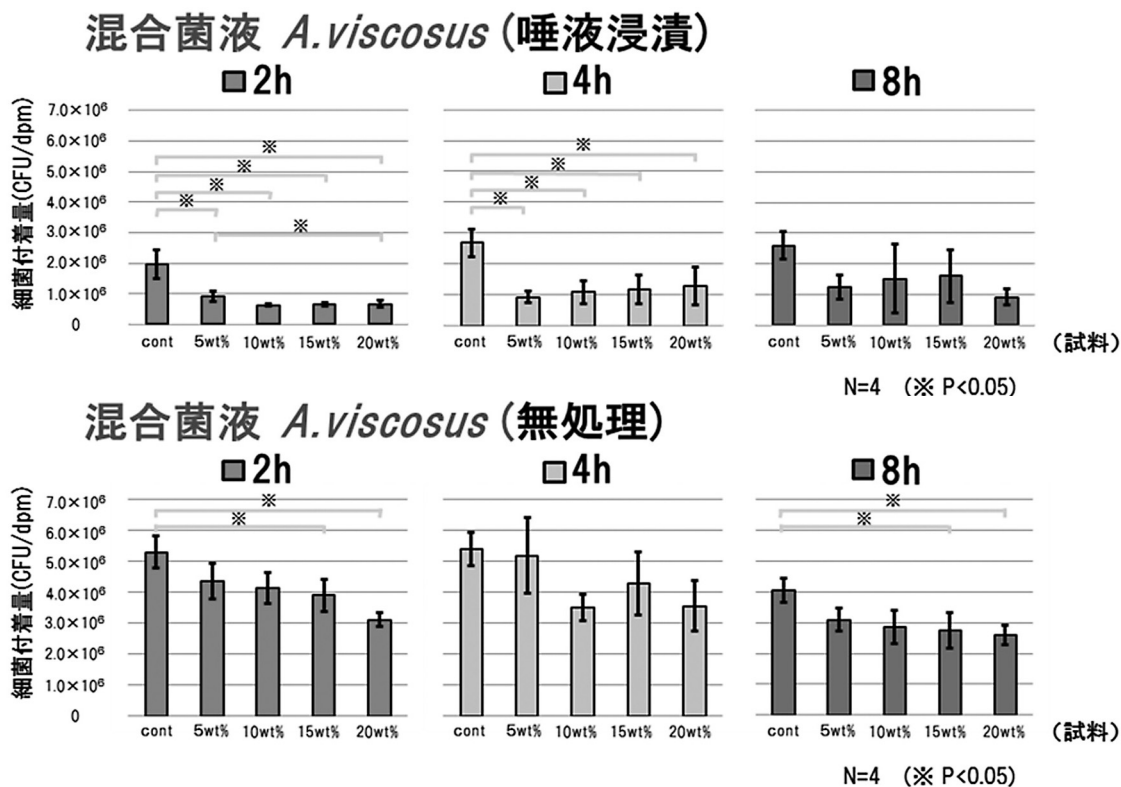


図11 混合菌液における *A. viscosus* の細菌付着性

考 察

いて、S-PRG含有量の多い試料に細菌付着の低下傾向を観察したものの、明らかな抑制効果は得られなかった(図11)。

3) 単体菌液における *S. mutans* の細菌付着性

試料を唾液浸漬した群で2時間、4時間、8時間の5、10、15、20wt%試料にcontと比較して、有意に細菌付着の低下を認めた。無処理の群では、細菌付着の抑制は認められなかった(図12)。

4) 単体菌液における *A. viscosus* の細菌付着性

唾液浸漬した群で2時間、4時間の5、10、15、20wt%試料にcontと比較して有意に細菌付着の低下を認めた。

無処理の群では、2時間のcontと15wt%試料、contと20wt%試料、4時間のcontと20wt%試料に有意差は認められたものの、その他に有意差は認められず細菌付着の抑制は認められなかった(図13)。

8. 抗菌性

S. mutans において、contでは 2.58×10^7 CFU/ml、5wt%試料では 2.64×10^7 CFU/ml、10wt%試料では 2.27×10^7 CFU/ml、15wt%試料では 2.52×10^7 CFU/ml、20wt%試料では 2.66×10^7 CFU/mlであった。contと比較して5、10、15、20wt%試料に差はなく、抗菌性は認められなかった(図14)。

MMA常温重合レジンは、プロビジョナルレストレーションの製作や義歯修理などに用いられ、臨床における使用頻度の高い材料である。プロビジョナルレストレーションや義歯修理では長期間口腔内に保持される症例も決して少なくない。MMA常温重合レジンは、コンポジットレジンなどと比較して、細菌付着やプラーク形成が、顕著な材料である¹⁾。プロビジョナルレストレーションにおける、隣在歯との接触面および支台歯のマージン部²⁻⁵⁾、また部分床義歯ではクラスプ鉤脚部およびガイドプレーン下部⁶⁻¹²⁾など、特にプラークの形成が起こりやすい部位に用いられることが多い。この場合、二次齲蝕や辺縁歯周組織の発赤、腫脹などの歯周病の助長、義歯性口内炎などの問題が生じている²⁹⁻³¹⁾。

ヒト難治性細菌感染症の80%以上はバイオフィーム形成細菌が関与しているとされており³²⁾、デンタルプラークも口腔内バイオフィームと考えられている³³⁾。McGhieら³⁴⁾は、口腔レンサ球菌が細菌性心内膜炎の発症に深く関与していると報告しており、近年の超高齢化社会による高齢者の全身管理との関係からも、細菌の付着を阻害しプラーク形成を抑制する材料の開発

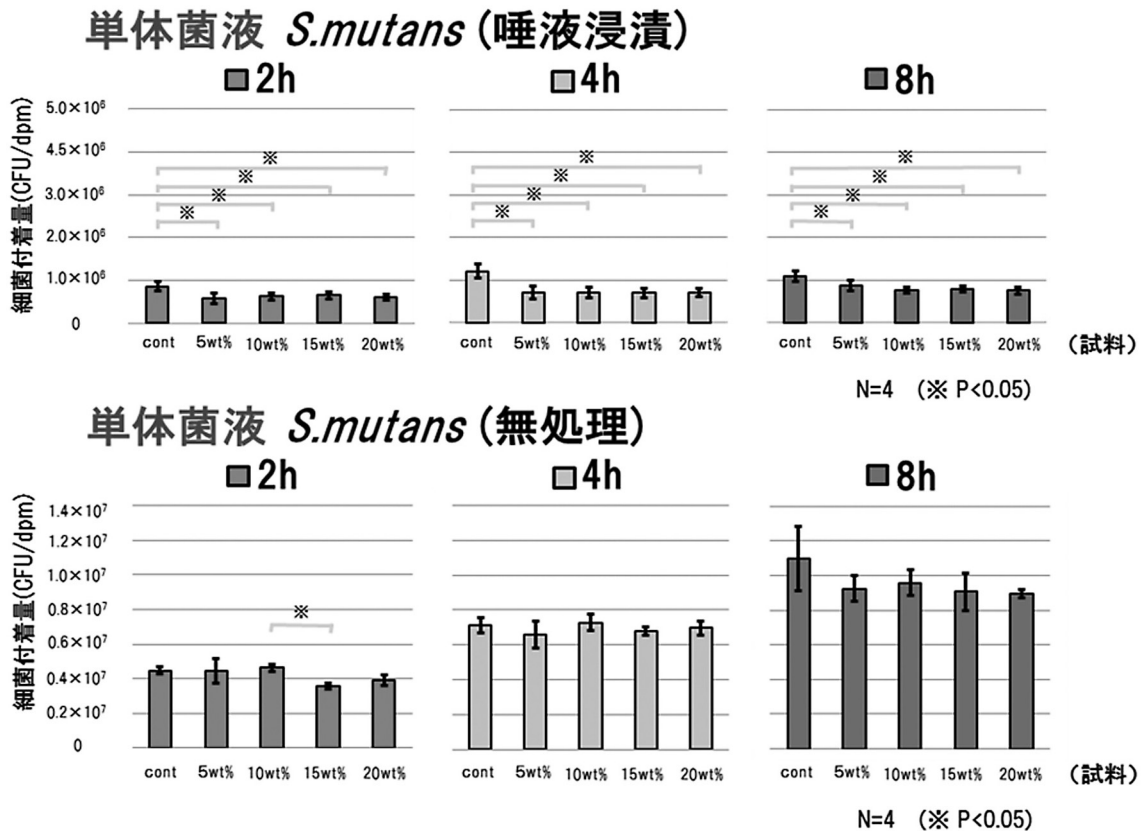


図12 単体菌液における *S. mutans* の細菌付着性

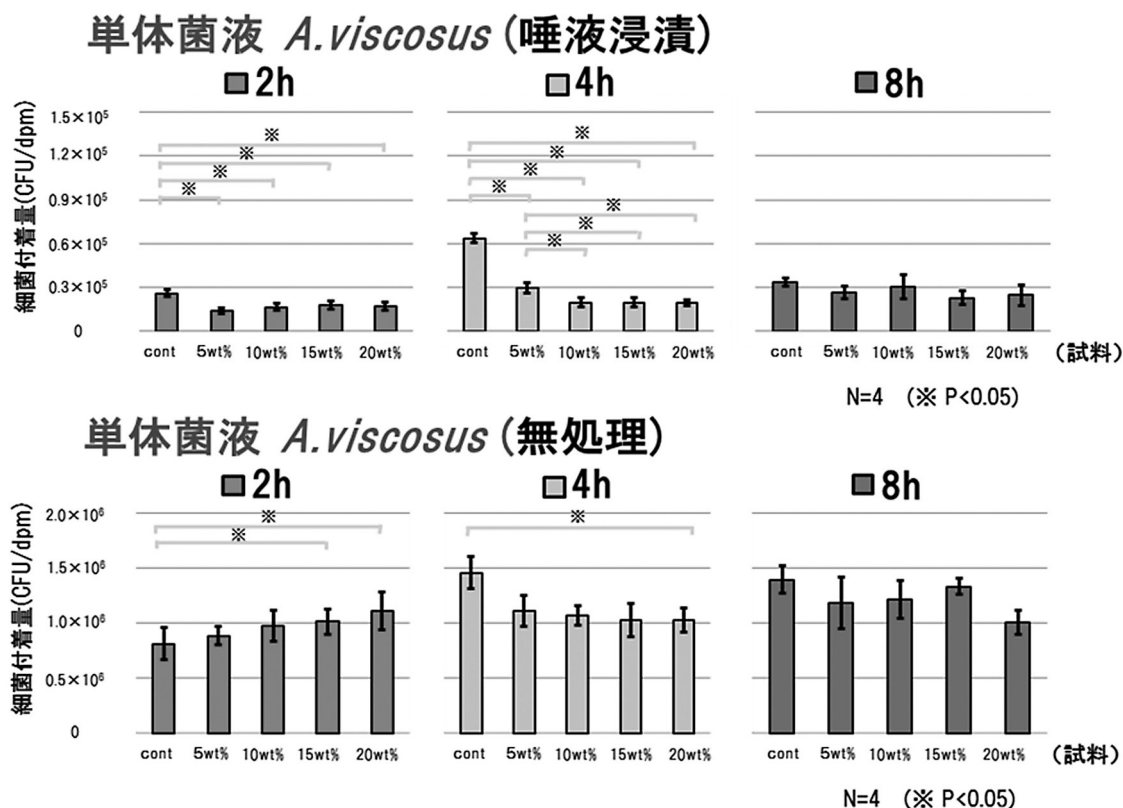
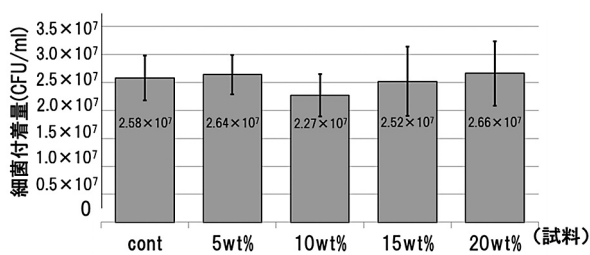
図13 単体菌液における *A. viscosus* の細菌付着性

図14 各試料の抗菌性

は必要であると考えられる。

これまでにもレジン系材料に銀イオンなどの抗菌性物質を添加させた報告³⁵⁻³⁹⁾が多くなされている。西尾ら¹⁶⁾や山本ら⁴⁰⁾は、フッ素リリース能およびリチャージ能を有するガラスアイオノマーセメントの粉成分である S-PRG に注目し、口腔内で試料表面におけるプラーク形成について検討した結果、抗プラーク性を確認している。本多ら¹⁷⁾は、S-PRG を含有したレジン界面に形成されるフィルム様構造物が、抗プラーク性に関与している可能性を報告している。廣瀬ら¹⁸⁾は、そのフィルム様構造物の分析を行い、ブラッシングにより消失した S-PRG レジン界面におけるフィルム様構造物の再形成を確認し、その形成にはアルブミンをはじめとする唾液成分の関与を明らかにしており、長期

間に渡る抗プラーク性が期待されることを報告している。また、上松ら²²⁾により S-PRG を含有した義菌用コーティング材が試作され、抗プラーク性を確認している。そのため、高齢者歯科医療にも大きな役割を果たす材料であると考えられている。

MMA 常温重合レジンには細菌付着やプラーク形成が顕著な材料であるとともに、硬さや耐摩耗性が低く、十分な強度を有していない。物性の向上を目的として、石上ら⁴¹⁾はシクロホスファゼンモノマーを配合したレジンの硬さおよび耐摩耗性の検討を、河野⁴²⁾は竹繊維を含有した際の補強効果を検討し、それぞれ物性の向上を認めているが、今後も物性の向上について検討していく必要がある。

そこで、本研究では S-PRG を含有した MMA 常温重合レジンを試作し、抗プラーク性、細菌付着性および抗菌性の試験を行うとともに、S-PRG の表面分布、曲げ強さ、ビッカース硬さ、歯ブラシ摩耗量についても検討した。

市村ら⁴³⁾の報告から、S-PRG には高い X 線造影性が確認されており、その造影性には S-PRG の構成元素が強く関与していることが報告されている。今回、試料表面の反射電子像を観察した結果、S-PRG の存在が明確に観察され、含有量が増すにつれて表面への分

布も多くなる傾向を認めた。20wt%試料の表面からは、S-PRGが凝集した箇所が多く観察され、15wt%試料以下の試料とは明らかに異なる分布を示した。これは、MMAレジンとS-PRGの質量の差により、粉液混和の際にある一定以上のS-PRGが含有されると均一な分散が得られず、偏りを生じてしまうことが推察された。また、S-PRG含有量と表面分布率の散布図から、表面分布率は上昇傾向を示したが、各含有量の表面分布率の上昇は概ね緩やかであり、表面分布率はS-PRGを20wt%以上含有したとしても、一定以上上昇せず、表面に分布するS-PRGに差が生じなくなると考えられた。

曲げ強さについては、10wt%試料と15wt%試料に有意差を認め、15wt%試料に64.5MPaと有意に小さい値を示した。contとの有意差は認められなかったものの、JISの基準値(50MPa以上)は、すべての試料でクリアしていた。また、試料の破折数は、15wt%試料に1本と20wt%試料に4本観察された。特に、20wt%試料には先に述べた画像解析の結果から、S-PRGの凝集を確認したが、凝集部に応力が集中したことで破折したのではないかと考えられた。5wt%試料および10wt%試料では破折を認めず、粘りのある性質が保持されていた。

ビッカース硬さは、20wt%試料に最大15.1HVを示し、contおよび5wt%試料に最小14.0HVを示し、20wt%試料はcont、5wt%試料および15wt%試料と比較して有意に硬い値を確認した。ビッカース硬さにおいても、JISの基準値(10±0.2HV以上)であったことからS-PRGを含有しても物性への影響は少ないことが示唆された。20wt%試料に有意に硬い値を示した原因は、試料の破折と同様、S-PRGの凝集が考えられた。ビッカース試験の圧子が、その凝集した箇所を計測した際には有意に数値の変動が予想される。凝集した箇所とそれ以外の箇所が計測可能な圧子の小さな硬さ試験、ナノインデンテーションによる詳細な各試料間の比較が必要であったと思われる。

歯ブラシ摩耗量においては、contと比較してすべての含有量(wt%)において、有意に耐摩耗性の向上を認めた。Liら⁴⁴⁾、de Geeら⁴⁵⁾は、コンポジットレジンに平均粒径の細かいマイクロフィラーを含有させた際に、フィラー含有量が20wt%以上では、耐摩耗性はフィラー含有量とともに低下すると報告している。Germainら⁴⁶⁾も同じように0.02 μ mのマイクロフィラーにおいて、25~29wt%では、フィラー含有量と共に耐摩耗性は低下し、15~20wt%ではマトリックスレジンに比較してやや耐摩耗性は良好となったと報告している。つまり、微細なフィラーの混入は

試料の摩擦係数を大きくすることが考えられる。また、湯浅は⁴⁷⁾平均粒径の異なるフィラーを含有したコンポジットレジンの歯ブラシ摩耗量において検討しており、マクロフィラーを用いた場合、フィラー含有量の増加は、明らかに耐摩耗性を改善させたと報告している。しかし、本研究ではS-PRGの粒径が大きくなり、含有量も多くなるほど、質量の違いによる不均一な分散が懸念されるため、平均粒径1 μ mとし含有量も5~20wt%の範囲内において、耐摩耗性の向上を認め、最適な粒径であったことが推察された。また中林ら⁴⁸⁾は、耐摩耗性におけるマトリックスレジンとフィラーの結合が、シラン処理により大きく向上したと報告しており、それを参考に本研究の試料においてもS-PRGへのシラン処理を行った。

抗プラーク性試験において、齊藤ら⁴⁹⁾は成人24人に対して唾液中の細菌数と生活習慣との関連性を検討しており、就寝前および食後の歯磨きを行わなかったものに有意に細菌の増加傾向があると報告しているため、試験前にはブラッシングを行い、試験中のブラッシングは禁止とした。含有量の異なるS-PRGを用いた抗プラーク性は、口腔内に2時間保持した場合において、contと5、10、15、20wt%試料における試料間に顕著な差は認められなかったが、表面には一層のペリクル様構造物を確認した。4時間保持において、5、10、15、20wt%試料に明らかな抗プラーク性を確認したが、その試料間に差は認められなかった。また、8時間保持において、contに成熟したプラーク形成を認め、5、10、15、20wt%試料にもcontほどではないもののプラーク形成を認めた。

田村ら⁵⁰⁾は、S-PRGフィラー含有コンポジットレジン試料を切断し表面に形成された構造物を解析する目的で元素分析を行った結果、S-PRG特有の構成元素の検出を報告している。本研究も同様に、口腔内保持2時間、4時間後において、S-PRG特有の構造物が認められ、これらの構成元素の影響により、S-PRGフィラー含有MMA常温重合レジンにも抗プラーク性があるのではないかと考えられた。8時間後においては、抗プラーク性にあまり差を認めなかった。試料を長時間口腔内に保持したことでS-PRG含有の各試料表面に点在性に認められた細菌が層状の成熟プラークの形成に至ったものと推察された^{25~27)}。また、5、10、15、20wt%試料の間にあまり差を認めなかった原因として、先に述べたS-PRG分布の画像解析の結果から、MMA常温重合レジンにコンポジットレジンのように大量にフィラーを含有させることが不可能であり、表面に分布するS-PRGに顕著な差がないためではないかと推察された。

歯科修復材料は口腔内において、常に唾液の影響を受ける。唾液中には、有機質としてムチンなどのタンパク質、アミラーゼ、リゾチームなど、無機質としては、ナトリウム、カリウム、塩素、カルシウム、リンなどが含まれる⁵¹⁾。廣井ら⁵²⁾は、ハイドロキシアパタイト、レジンおよびアマルガム基質表面に形成されたベリクルのタンパク組成を比較し、その組成は材料に関係せず唾液の組成に類似していたと報告している。本多ら¹⁷⁾の、ヒト保存唾液中に試料を72時間浸漬させ、十分な表面構造物の形成を確認したという報告を参考に、本研究でも試料に唾液処理を行い、無処理の試料と共に、調整菌液に2時間、4時間、8時間浸漬させた。その結果、混合菌液、単体菌液のそれぞれにおいて唾液処理を行った群では、contと比較して有意差が認められた。試料を唾液処理した際の細菌付着の抑制は、2時間、4時間保持において過去に行われた研究と一致していた^{16~22,40,50)}。

本研究では、抗プラーク性、細菌付着性において有意に付着の抑制が確認されたにもかかわらず、抗菌性試験において、試料間に有意差は認められなかった。ガラスアイオノマーセメントの利点であるフッ素徐放作用について Forss ら⁵³⁾は、プラーク中の細菌の酸産生を抑制すると述べている。また、それをコンポジットレジンに応用した充填材料による耐酸性の向上や再石灰化による歯質強化についての報告もなされている^{54~56)}。また Ten Cate ら⁵⁷⁾は、修復材料にフッ素を応用し抗菌性を付与させるには、常時高濃度が必要であると報告している。本研究では、S-PRG から溶出される主要構成元素が、細菌の活性を抑制する濃度に達していなかったと考えられた。

以上のことから、S-PRG フィラー含有 MMA 常温重合レジンには、抗プラーク性を認め、初期付着性細菌に有意に付着の抑制を示した。しかし、長時間経過した場合においては、適切なブラッシングの必要性が考えられた。また、*S. mutans*, *A. viscosus* の付着性についても、唾液処理群に有意な付着の抑制が確認された。さらに、S-PRG を5~10wt%含有させることで、contと比較して物性の向上が確認され、S-PRG フィラー含有 MMA 常温重合レジン⁵⁾の歯科臨床への応用が期待された。

結 論

本研究では、S-PRG フィラー含有 MMA 常温重合レジンについて、抗プラーク性、細菌付着性および抗菌性を観察するとともに S-PRG の表面分布、曲げ強さ、ビッカース硬さ、歯ブラシ摩耗量について検討し、以下の結論を得た。

1. 画像解析の結果、S-PRG は含有量増加に伴って試料表面に多く分布することが確認された。20wt% 試料においては S-PRG の部分的な凝集が認められた。また、S-PRG 含有量と表面分布率の散布図から、表面分布率は上昇傾向を示した。
2. 曲げ強さ試験の結果、すべての試料は JIS の定める強度を有していた。5 wt% 試料および 10wt% 試料では破折を認めず、粘りのある性質が保持されていた。
3. ビッカース硬さ試験の結果、すべての試料は JIS の定める硬度を有しており、20wt% 試料が最も硬い値を示した。
4. 歯ブラシ摩耗試験の結果、摩耗量は cont と比較して 5, 10, 15, 20wt% 試料が有意に少ない値を示した。
5. 抗プラーク性試験の結果、2時間保持の各試料表面には、細菌付着はほとんど観察されなかったが、4時間保持では cont と比較して、5, 10, 15, 20wt% 試料に明らかな細菌付着の抑制が認められた。また、S-PRG を含有した各試料間に違いは観察されなかった。8時間保持では cont と 5, 10, 15, 20wt% 試料間に明確な違いは観察されなかった。
6. 細菌付着性試験の結果、唾液浸漬を行った試料において cont と、5, 10, 15, 20wt% 試料に有意差を認めた。無処理の試料においては、細菌付着性に有意差は認められなかった。
7. 抗菌性試験の結果、cont と、5, 10, 15, 20wt% 試料に有意差は、認められなかった。

以上のことから、S-PRG フィラー含有 MMA 常温重合レジン⁵⁾は、抗プラーク性を有する材料であり、5~10wt% の含有量において優れた物性を示す材料であることが明らかとなった。

文 献

- 1) 石橋寛二, 吉江弘正, 川浪雅光, 池田雅彦, 山森徹雄, 坂上竜資, 池田和博, 角田雅健, 安田 登, 高柴正悟, 渡邊文彦, 三邊正人, 伊藤創造, 渡辺 久, 山田 了, 平井敏博. 「歯周病患者に対する補綴歯科治療のありかた」に関する提案書. 日歯周誌. 2009; 51: 191-212.
- 2) Waerhaug J and Zander HA. Reaction of gingival tissues to self-curing acrylic restorations. *J Am Dent Assoc.* 1957; 54: 760-768.
- 3) Donaldson D. Gingival recession associated with temporary crowns. *J Periodontol.* 1973; 44: 691-696.
- 4) Garvin PH, Malone WF, Toto PD and Mazur B. Effect of self-curing acrylic resin treatment restorations on the crevicular fluid volume. *J Prosthet Dent.* 1982; 47: 284-289.

- 5) Luthardt R, Stöbel M, Hinz M and Vollandt R. Clinical performance and periodontal outcome of temporary crowns and fixed partial dentures: A randomized clinical trial. *J Prosthet Dent.* 2000; 83: 32-39.
- 6) 清水隆夫. クラスプの形態と鉤歯のプラーク付着について. 補綴誌. 1983; 27: 356-373.
- 7) 関根弘, 岸正孝, 矢崎秀昭. 上顎可撤性局部義歯症例における床隣接歯の歯齦の状態に関する臨床調査. 歯科学報. 1983; 83: 1455-1461.
- 8) 浜田泰三, 二川浩樹. デンチャープラークとオーラルヘルスケア. 補綴誌. 2001; 45: 561-581.
- 9) Tanaka J, Nishikawa M, Tatsuta M, Tanaka M and Kawazoe T. Differences in the oral environment of the elderly wearing fixed prostheses and those with removable prostheses. *J Osaka Dent Univ.* 2003; 37: 109-114.
- 10) Kashiwabara T, Yoshijima Y, Hongama S, Nagao K, Hirota K and Ichikawa T. Denture plaque microflora in geriatric inpatients and maxillary defect patients. *Prosthodont Res Prac.* 2007; 6: 153-158.
- 11) 亀水忠宗, 柿本和俊, 小正裕. アクリルレジン義歯上のバイオフィルム形成細菌. 歯科医学. 2008; 71: 49-58.
- 12) 佐藤文彦, 小山重人, 千葉貴大, 門脇研司, 川田哲男, 佐々木啓一. 可撤性部分床義歯装着が残存歯歯周組織状態に及ぼす影響. 補綴誌. 2009; 1: 130-138.
- 13) 寺岡文雄, 高橋純造. 竹エキスの抗菌性と歯科への応用に関する研究 第1報 竹エキス濃度と抗菌性の関係. 歯材器. 1995; 14: 219-224.
- 14) 倉田茂昭, 榎本貢三. ホスホニウム塩を用いた抗菌性歯科用レジン材料に関する研究. 歯材器. 1997; 16(特別29): 91.
- 15) Imazato S, Imai T, Russell R R B, Torii M and Ebisu S. Antibacterial activity of cured dental resin incorporating the antibacterial monomer MDPD and an adhesion-promoting monomer. *J Biomed Mater Res.* 1998; 39: 511-515.
- 16) 西尾政文, 山本宏治. フッ化アルミノシリケートガラス配合コンポジットレジンの抗プラーク性. 日歯保存誌. 2002; 45: 459-468.
- 17) 本多忠之, 作誠太郎, 山本宏治. S-PRG フィラー配合レジン界面に形成されるフィルム様構造物. 日歯保存誌. 2004; 47: 391-402.
- 18) 廣瀬雅之, 作誠太郎, 山本宏治. S-PRG レジン表面に形成されるフィルム様構造物の分析. 日歯保存誌. 2006; 49: 309-319.
- 19) 田本晃生, 作誠太郎, 山本宏治. 改良型S-PRG フィラー配合低粘度コンポジットレジンの抗プラーク性と窩壁適合性に関する研究. 日歯保存誌. 2006; 49: 658-668.
- 20) Saku S, Kotake H, Scougall-Vilchis R, Ohashi S, Hotta M, Horiuchi S, Hamada K, Asaoka K, Tanaka E and Yamamoto K. Antibacterial activity of composite resin with glass-ionomer filler particles. *Dent Mater J.* 2010; 29: 193-198.
- 21) 井殿泰造, 作誠太郎, 山本宏治. 酸反応性フッ素含有ガラスフィラーの歯面コート材への応用. 日歯保存誌. 2009; 52: 237-247.
- 22) 上松信助, 苦瓜明彦, 岩堀正俊, 都尾元宣. 酸反応性フッ素含有ガラスフィラー (S-PRG) 含有義歯用コーティング材の開発. 岐歯学誌. 2012; 38: 149-157.
- 23) 田中孝明, 水川一廣, 志田耕一郎, 小林 平, 妻鹿純一. 銀系無機抗菌剤の歯科材料への応用—*Streptococcus mutans* に対する抗菌性—. 補綴誌. 2000; 44: 651-657.
- 24) 越智守生, 近澤慶, 広瀬由紀人, 久保裕治, 坂口邦彦. 第四級アンモニウム含有抗菌レジンモノマーの抗菌効果に関する研究. 歯産学誌. 2000; 14: 21-26.
- 25) 前田伸子. 齲蝕の原因菌研究はここまで進んだ 齲蝕原因菌の現況—口腔内常在菌を中心に—. 歯界展望. 1997; 89: 336-344.
- 26) 奥田克爾. デンタルバイオフィルム. 第1版. 東京: 医歯薬出版; 2010: 29-39.
- 27) 武笠英彦. ミュータンスレンサ球菌の臨床生物学. 第1版. 東京: クインテッセンス出版; 2003: 28-46.
- 28) Sato M, Nagayama M, Yamaguchi R, Fujiwara S and Takeuchi H. Influence of secondary colonizers and human plasma on the adherence of *Porphyromonas gingivalis* in vitro. *Euro J Oral Sci.* 2002; 110: 225-229.
- 29) 山賀保, 薦田安伸, 糸坂直志, 野首孝祠. 根面齲蝕とデンタルプラークの齲蝕活動性について. 補綴誌. 1995; 39: 1069-1073.
- 30) 大村直幹, 弘田克彦, 蟹谷容子, 永尾寛, 柏原稔也, 市川哲雄. デンチャープラークと咽頭の微生物叢との関連性. 補綴誌. 2002; 46: 530-538.
- 31) 角保徳, 譽田英喜, 道脇幸博, 砂川光宏, 佐々木俊明. 要介護高齢者のプラーク内の肺炎起炎菌. 老年歯科医学. 2003; 17: 337-341.
- 32) Davies D. Understanding biofilm resistance to antibacterial agents. *Nat Rev Drug Discov.* 2003; 2: 114-122.
- 33) Marsh PD. Dental plaque as a microbial biofilm. *Caries Res.* 2004; 38: 204-211.
- 34) McGhie D, Hutchison JG, Nye F and Ball AP. Infective endocarditis caused by *Streptococcus mutans*. *Br Heart J.* 1977; 39: 456-458.
- 35) Yamamoto K, Ohashi S, Aono M, Kokubo T, Yamada I and Yamauchi J. Antibacterial activity of silver ions implanted in SiO₂ filler on oral streptococci. *Dent Mater.* 1996; 12: 227-229.
- 36) 大橋静江, 山本宏治. 銀を含有するシリカガラスの抗菌性. 歯材器. 1997; 16: 241-248.
- 37) 齊藤繁徳. 銀無機系抗菌剤含有床用レジンに関する研究. 岐歯学誌. 2000; 27: 249-260.

- 38) 本間文将, 山本宏治. 銀無機抗菌剤の歯科用レジンへの応用. 日歯保存誌. 2002; 45: 450-458.
- 39) 倉田茂昭, 二瓶智太郎, 媒本貢三. メタクリル酸銀を応用した抗菌性歯科用レジン材料(第1報). 歯材器. 2005; 24: 466-470.
- 40) 山本宏治, 大橋静江, 作誠太郎. 抗プラーク性を有する機能性高分子材料の開発. 岐歯学誌. 2004; 30: 115-132.
- 41) 石上恵一, 武田友孝, 大木研一, 福士賢治, 大木一三. 市販常温重合レジン物性向上に関する研究—シクロフォスファゼンモノマーを配合したレジン硬さおよび耐摩耗性の検討. 補綴誌. 1995; 39: 984-988.
- 42) 河野浩之. 常温重合レジンへの竹繊維の応用—レジンへの竹繊維含有による補強効果と吸水およびモノマー溶出への影響—. 歯材器. 2006; 25: 466-470.
- 43) 市村 崇, 堀田正人, 山本宏治. 各種ボンディングシステムにおけるボンディング材の物性. 日歯保存誌. 2008; 51: 379-395.
- 44) Li Y, Swartz ML, Phillips RW, Moore BK and Roberts TA. Effect of filler content and size on properties of composites. *J Dent Res.* 1985; 64: 1396-1401.
- 45) de Gee AJ, Ten Harkel HC and Davidson CL. Abrasion of Microfilled BIS-GMA/TEGDMA resin in relation to its filler content. *J Dent Res.* Abstr 1984; 63: 532.
- 46) St Germain H, Swartz ML, Phillips RW, Moore BK and Roberts TA. Properties of Microfilled composite resins as influenced by filler content. *J Dent Res.* 1985; 64: 155-160.
- 47) 湯浅清一. コンポジットレジン歯ブラシ磨耗に及ぼす組成の影響特にフィラーの粒度と含有量の影響. 歯材器. 1990; 9: 659-678.
- 48) 中林宣男, 友田浩三. 歯冠用硬質レジンにおけるフィラーと理工学的性質の関係. 歯材器. 1987; 6: 713-718.
- 49) 齊藤秀樹, 田中とも子, 佐藤 勉, 八重垣 健. 成人におけるミュータンスレンサ球菌の検出状況とう蝕罹患および生活習慣との関連. 日歯医療管理誌. 2005; 39: 309-318.
- 50) 田村大輔, 作誠太郎, 山本宏治, 堀田正人. S-PRG フィラー含有コンポジットレジンに吸着する唾液タンパク. 日歯保存誌. 2010; 53: 191-206.
- 51) 森本俊文, 山田好秋. 基礎歯科生理学. 第5版. 東京: 医歯薬出版; 2009: 415-417.
- 52) 廣井隆親, 高尾正己, 是枝雄二, 並木勇次, 福島和雄. 修復材上ペリクルのタンパク組成と streptococci 吸着能. 日歯保存誌. 1991; 34: 821-827.
- 53) Forss H, Jokinen J, Spets-Happonen S, Seppä L and Luoma H. Fluoride and mutans streptococci in plaque grown on glass ionomer and composite. *Caries Res.* 1991; 25: 454-458.
- 54) Meyer JM, Cattani-Lorente MA and Dupuis V. Compomers between glass-ionomer cements and composites. *Biomaterials.* 1998; 19: 529-539.
- 55) Chung CK, Millett DT, Creanor SL, Gilmour WH and Foye RH. Fluoride release and cariostatic ability of a compomer and a resin-modified glass ionomer cement used for orthodontic bonding. *J Dent.* 1998; 26: 533-538.
- 56) Smales RJ and Gao W. In vitro caries inhabitation at the enamel margins of glass ionomer restoratives developed for the ART approach. *J Dent.* 2000; 28: 249-256.
- 57) Ten Cate JM. Consensus statements on fluoride usage and associated research questions. *Caries Res.* 2001; 35: 71-73.