

学 位 論 文 題 名

Radiation effect of carbon ions and gamma ray
on UDMA based dental resin

(歯科用 UDMA レジンに及ぼす炭素イオンおよびガンマー線照射効果)

学位論文内容の要旨

[研究目的]

歯科用レジンは金属に比べ、審美性には優れているものの、機械的・物理的性質では劣り、応用範囲は限られているため、それらの性質の向上が求められている。また金属製補綴物、インプラント等はエックス線CTなどの検査に際しては、アーティファクトの原因となり頭頸部領域の診断の障害となっている。ここでは、歯科用レジンの強化方法として、放射線照射に注目して研究を行った。

本研究の目的は、歯科用UDMAレジンに放射線照射を行い、それにより生じるレジンの機械的・物理的性質の向上程度を測定し、そのメカニズムを各種のスペクトロスコピーにより解析して明らかにすることである。

[材料と方法]

レジンは光重合Urethane-dimethacrylate(UDMA)レジン (サンメディカル) からフィラーを除いたものを使用した。ガラス製モールド (25mm×25mm×50mm) にレジンのモノマーを注入し、専用の可視光照射器 (GC)、にて十分な照射を行った後に紫外線照射器 (東邦産業)にて30分の追加照射を行った。光照射により作製されたレジンプロックから、各種試験片を非加熱的に切断し研磨を行った。

放射線照射は、290MeVのシンクロトロンで加速した¹²Cイオン (放射線医学研究所) と⁶⁰Coの γ 線 (北海道大学) で行った。照射線量は640 Gyとした。

機械的・物理的性質の測定は、ヴィッカースおよびHU硬さ、曲げ強さ、耐摩耗性、熱膨張係数、接触濡れ角について行った。さらに、FT-IR, ラーマンスペクトル、¹³C-NMR、蛍光スペクトルを用いて分子レベルでの変化測定を行った。

[結果および考察]

¹²Cイオン照射により、ヴィッカース硬さは約40%上昇し、曲げ強さは約20%上昇し、耐摩耗性は約30%上昇した。 γ 線照射によりヴィッカース硬さは約20%上昇したが、曲げ強さと耐摩耗性の変化はコントロールに比べ誤差範囲内であった。

熱膨張係数については¹²Cイオン照射も γ 線照射も変化はみられなかった。また、接触角は¹²Cイオン照射により46° から41° へと5度減少し、濡れ性の向上がみられた。

以上より、放射線照射により歯科用UDMAレジンの機械的・物理的性質の向上が得られ、 ^{12}C イオンの効果は γ 線の2倍程度であることが示唆された。実際、生物学的効果比も同様の値が報告されている。この効果の違いは、散乱断面積の相違によると考えられた。

FT-IRのスペクトル解析から、UDMA分子の重合前後で変化しないC=O基(1717cm^{-1})およびN-H基(3373cm^{-1})に対する重合で減少する炭素二重結合C=C基(1634cm^{-1})の放射線照射による減少率：相対転換率(DC)は、 ^{12}C イオン照射により DC_{1717} ：37%、 DC_{3373} ：38%であり、 γ 線照射では DC_{1717} ：11%、 DC_{3373} ：6.7%であり、 ^{12}C イオン照射でより大きく増加していた。これから、残留モノマーとポリマーの両端の炭素二重結合の減少が確認され、放射線照射により同部位での反応が促進されたことが明らかになった。

ラーマンスペクトル解析から、バックグラウンドがコントロール・ γ 線照射群と比較して、 ^{12}C イオン照射群で著明に低下していた。この現象は、ポリマー間の架橋形成を示唆しており、FT-IRの結果と合わせると、放射線照射によりポリマーと残留モノマーとの反応と同時にポリマー間の架橋形成が生じていると考えられる。

NMRのスペクトル解析から、 CH_3 を示す18ppmのピークは γ 線照射群・コントロール・レジンモノマーでは同程度であったが、 ^{12}C イオン照射群では消失していた。この結果はFT-IRの結果である炭素二重結合の反応と矛盾しない。

蛍光スペクトル解析では、 ^{12}C イオン照射群・ γ 線照射群ともコントロールに比べ500nmから650nmで強い信号が観察された。これは光増感剤としてモノマーに添加されたカンファーキノンの影響と考えられる。

[まとめ]

^{12}C イオン照射により、歯科用UDMAレジン of 構造敏感な特性である硬さ・曲げ強さ・耐摩耗性の機械的性質が向上した。 γ 線照射では、その効果は約半分程度であった。

FT-IR・ラーマン・NMRのスペクトル解析から、放射線照射により残留モノマーの重合促進とポリマー間の架橋形成が示唆された。特にFT-IRのピーク解析から得られた炭素二重結合の単結合への転換率(DC)から、 ^{12}C イオンと γ 線による機械的特性の改善率を半定量的に説明することができた。放射線照射効果を明らかにし、歯科用レジンの強化法の一つとして臨床応用を検討する上で有用な知見を得ることができた。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 亘 理 文 夫
副 査 教 授 中 村 太 保
副 査 教 授 佐 野 英 彦
副 査 助 教 授 滝 波 修 一

学 位 論 文 題 名

Radiation effect of carbon ions and gamma ray on UDMA based dental resin

(歯科用 UDMA レジンに及ぼす炭素イオンおよびガンマー線照射効果)

まず、本人から研究の要旨につき以下のように説明がなされた。

[研究目的]

歯科用レジンは金属に比べ、審美性には優れているものの、機械的・物理的性質では劣り、応用範囲は限られているため、それらの性質の向上が求められている。また金属製補綴物、インプラント等はエックス線CTなどの検査に際しては、アーティファクトの原因となり頭頸部領域の診断の障害となっている。ここでは、歯科用レジンの強化方法として、放射線照射に注目して研究を行った。

本研究の目的は、歯科用UDMAレジンに放射線照射を行い、それにより生じるレジンの機械的・物理的性質の向上度を測定し、そのメカニズムを各種のスペクトロスコピーにより解析して明らかにすることである。

[材料と方法]

レジンは光重合のUDMAレジンからフィラーを除いたものを使用した。ガラス製モデルにレジンのモノマーを注入し、専用の可視光照射器にて十分な照射を行った後に紫外線照射器にて30分の追加照射を行った。光照射により作製されたレジンブロックから、各種試験片を非加熱的に切断し研磨を行った。

放射線照射は、照射線量を640 Gyとし、290 MeVのシンクロトロンで加速した ^{12}C イオンと ^{60}Co の γ 線で行った。

機械的・物理的性質の測定は、ヴィッカースおよびHU硬さ、曲げ強さ、耐摩耗性、熱膨張係数、接触濡れ角について行った。さらに、FT-IR、ラマンスペクトル、 ^{13}C -NMR、蛍光スペクトルを用いて分子レベルでの変化測定を行った。

[結果および考察]

^{12}C イオン照射により、ヴィッカース硬さは約40%上昇し、曲げ強さは約20%上昇し、耐摩耗性は約30%上昇した。 γ 線照射によりヴィッカース硬さは約20%上昇したが、曲

げ強さと耐摩耗性の変化はコントロールに比べ誤差範囲内であった。

熱膨張係数については ^{12}C イオン照射も γ 線照射も変化はみられなかった。また、接触角は ^{12}C イオン照射により 46° から 41° へと5度減少し、濡れ性の向上がみられた。

以上より、放射線照射により歯科用UDMAレジン機械的・物理的性質の向上が得られ、 ^{12}C イオンの効果は γ 線の2倍程度であることが示唆された。この効果の違いは、散乱断面積の相違によると考えられた。

FT-IRのスペクトル解析から、UDMA分子の重合前後で変化しないC=O基(1717cm^{-1})およびN-H基(3373cm^{-1})のそれぞれに対する重合で減少する炭素二重結合C=C基(1634cm^{-1})の放射線照射による減少率：相対転換率(DC)は、 ^{12}C イオン照射により $\text{DC}_{1717} : 37\%$ 、 $\text{DC}_{3373} : 38\%$ であり、 γ 線照射では $\text{DC}_{1717} : 11\%$ 、 $\text{DC}_{3373} : 6.7\%$ であり、 ^{12}C イオン照射でより大きく増加していた。これから、残留モノマーとポリマーの両端の炭素二重結合の減少が確認され、放射線照射により同部位での付加重合反応が促進されたことが明らかになった。

ラーマンスペクトル解析から、バックグラウンドがコントロール・ γ 線照射群と比較して、 ^{12}C イオン照射群で著明に低下していた。この現象は、ポリマー間の架橋形成を示唆しており、FT-IRの結果と合わせると、放射線照射によりポリマーと残留モノマーとの反応と同時にポリマー間の架橋形成が生じていると考えられる。

NMRのスペクトル解析から、 CH_3 を示す18ppmのピークは γ 線照射群・コントロール・レジンモノマーでは同程度であったが、 ^{12}C イオン照射群では消失していた。この結果はFT-IRの結果である炭素二重結合の反応と矛盾しない。

蛍光スペクトル解析では、 ^{12}C イオン照射群・ γ 線照射群ともコントロールに比べ500nmから650nmで強い信号が観察された。これは光増感剤としてモノマーに添加されたカンファーキノンの影響と考えられる。

[まとめ]

^{12}C イオン照射により、歯科用UDMAレジン構造敏感な特性である硬さ・曲げ強さ・耐摩耗性の機械的性質が向上した。 γ 線照射では、その効果は約半分程度であった。

FT-IR・ラーマン・NMRのスペクトル解析から、放射線照射により残留モノマーの重合促進とポリマー間の架橋形成が示唆された。特にFT-IRのピーク解析から得られた炭素二重結合の単結合への転換率(DC)から、 ^{12}C イオンと γ 線による機械的性質の改善率を半定量的に説明することができた。放射線照射効果を明らかにし、歯科用レジンの強化法の一つとして臨床応用を検討する上で有用な知見を得ることができた。

各審査委員が行った主な質問は、以下の通りである。

- 1) DC(relative degree of conversion)について、論理と方法の説明を求めた。
- 2) そのDCについて、モノマーとポリマーではどれ程差があったか？
- 3) 放射線照射後の重合促進の原因は何か？
- 4) 放射線照射による重合促進によって収縮や変形があるか？
- 5) 他の光重合レジン、例えばBis-GMAレジンの場合は放射線照射によってどのような変化が期待されるか？
- 6) 摩耗試験の方法と負荷を100gとした理由は？

- 7) 放射線照射線量を減少させると、機械的強度はどのように変化するか？
- 8) 口腔ガンの放射線治療で照射される線量ではどのような変化が予想されるか？
- 9) 炭素イオン照射を水中で行った理由は？
- 10) 人体に640Gyの照射をすると、どうなるか？

これらの質問に対して、論文申請者から明確な回答ならびに説明がなされ、さらに今後の研究についても明確な方向性をもっていると判定した。

審査委員は全員、本研究が学位論文として十分値し、申請者が博士（歯学）の学位を授与される資格を有するものと認めた。