

令和元年5月19日現在

機関番号：33703

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K20472

研究課題名(和文)自己接着型フロアブルコンポジットレジンの開発

研究課題名(英文)Development of self-adhesive flowable composite resin

研究代表者

小竹 宏朋(Kotake, Hirotomo)

朝日大学・歯学部・講師

研究者番号：40440565

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：研究結果の概要

自己接着型フロアブルコンポジットレジン を新たに試作し、歯質引張接着強さについて市販の自己接着型コンポジットレジン、ガラスアイオノマーセメントと比較検討した。ヒトエナメル質、象牙質に対しコンポジットレジン、ガラスアイオノマーセメントを接着し、温度サイクル(4、60、50回)後に引張り接着強さ試験を行った。試作したレジンではエナメル質、象牙質ともに24時間後およびサーマル50回で、比較検討したものより高い値となった。しかし、現在日常で使用されているボンディングシステムよりは値が低い。従来型ガラスアイオノマーセメントの適応部位に用いることが可能と考えられる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

社会的意義

これまでコンポジットレジン修復は歯質への接着力の強化とともに、接着処理手順の簡略化することが進められた。自己接着型フロアブルコンポジットレジン は接着手順を必要としないためこれから求められるコンポジットレジン修復の材料となる。今回、開発した自己接着型フロアブルコンポジットレジン の歯質接着強さは従来の接着システムに対して大きく劣るものとなったが、ガラスアイオノマーセメントと同等以上の接着強さを示したことから、ガラスアイオノマーセメント修復に替わり使用できることが示唆された。練和が不要であるためより迅速に填塞する必要がある小児の治療や在宅医療への応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：It prepared trial self-adhesive flowable composite resins (trial resin), and compared trial resin with glassionomer cements by the adhesive strength test to human enamel and dentin. For adhesive strength test, some specimens were left in humidity 99% air at 37 for 24 hours, and the others underwent 50 thermal cycles of repetitive immersion in distilled water 4 and 60 for one minute. The mean adhesive strength test to enamel, trial resin was 4.4 ± 2.5 MPa (mean \pm SD), FX ultra was 3.0 ± 1.7 MPa, Fuji IX GP extra was 3.9 ± 2.0 MPa, after thermal cycles, trial resin was 5.3 ± 3.7 MPa, FX ultra was 3.1 ± 1.5 MPa, Fuji IX GP extra was 3.8 ± 2.0 MPa. The mean adhesive strength test to dentin of trial resin was 5.3 ± 2.7 MPa, FX ultra was 2.5 ± 1.4 MPa, Fuji IX GP extra was 3.2 ± 1.7 MPa, after thermal cycles of all specimens was very low (2.4MPa or low). It is suggested that the adhesive strength of trial resins prepared was sufficient for clinical application as a glassionomer cements.

研究分野：保存修復学

キーワード：自己接着型フロアブルコンポジットレジン

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、歯科用接着材料の進歩は目覚しく、従来のエッチング、プライミング、ボンディングの3ステップボンディングシステムからステップの簡略化が図られ、セルフエッチングシステムや、ウエットボンディングシステムなどの2ステップシステム、さらに1液で完結する1ステップシステムや、ボンディング材を全く使用せずセルフエッチングプライマーのみで歯質に接着させるシステムなど、接着手順をより簡便な方法にするものが開発・臨床応用されている。ステップの簡略化を実現することによるメリットは、チェアタイムの短縮化が可能になり、患者様の負担も少なく、操作ミスが減らすことが可能で、臨床操作が効率的であることはあきらかである。また、経済的にもボンディングシステムを使用しないためコストパフォーマンスの高い処置が期待できる。しかしながら、これまで強固に接着するゼロステップコンポジットレジン接着システムは確立されていない。現在までに試作した自己接着型フロアブルコンポジットレジン¹⁾は、フィラーとマトリックスレジン²⁾を重量比1:1、練板上で混和して作成しているが、約5MPaの象牙質接着力が得られている¹⁾。しかし、気泡の混入部からの試作レジンの混合破壊、接着力の不安定さが明らかになった。そこで、一般に市販されているフロアブルコンポジットレジン³⁾の製法にならい、少量の材料で攪拌・分散、脱泡を効率的に行える自転公転ミキサーを用いて試作レジンを作製し、安定した歯質接着力の獲得と、配合比を機械的強度の向上を目指した。すでに、試作した自己接着型フロアブルコンポジットレジンはあるが、象牙質接着強さが約5MPaあり、試験結果にばらつきが大きく接着システムとして成立していない。特に練和は手指感覚によるところが大きいため、気泡の発生などが物性や接着力を低下させている。そこで、新しい試作自己接着型フロアブルコンポジットレジン⁴⁾を市販されているフロアブルコンポジットレジンと同様の製法で作成し、接着力の安定した試作レジンを得る。平成29年度には、今まで作製が困難だったフィラー含有率の高い試作レジンを作製し機械的性質の向上を図り、また配合条件を細分化し歯質接着力が高い試作レジンを作製する。

1)自己接着フロアブルコンポジットレジン¹⁾の象牙質に対する接着強さ:田沼哲也,小竹宏朋,日下部修介,堀田正人,日歯保存誌,査読あり,57,73-82,2014.

2. 研究の目的

近年、コンポジットレジン⁵⁾の接着システムは簡略化がされ、臨床応用されているが、さらなる簡略化のために自己接着型フロアブルコンポジットレジン⁶⁾の開発が急務であると考えられる。これまでに試作・開発した自己接着型フロアブルコンポジットレジン⁷⁾は、象牙質引張り接着強さが約5MPaと高い接着力を有しているとは言えず、製作過程での問題点も明らかになり、レジンとフィラーの均一な混和が困難で、気泡などの欠陥から試作自己接着型フロアブルコンポジットレジン⁸⁾の凝集破壊が確認されている。そこで、本研究では、一般に市販されているフロアブルコンポジットレジン⁹⁾の製法にならい、少量の材料で攪拌・分散、脱泡を効率的に行える自転公転ミキサーを用いて試作レジンを作製し、ボンディングシステムを使わない強力な歯質接着力を有する自己接着型フロアブルコンポジットレジン¹⁰⁾を開発することを目的とする。

3. 研究の方法

自転・公転ミキサー(あわとり練太郎 ARE-310、シンキー)を用い、練和条件を変化させ現在までに判明している配合比で試作レジンを作製し象牙質接着強さを評価する。接着強さに関してはヒト新鮮抜去歯の象牙質を用いて、#600の耐水研磨紙で表面が平坦になるように研磨する。平坦化したエナメル質、象牙質上に内径3.0mm、深さ2.0mmのテフロンモールドを固定し、各試作レジン¹¹⁾を填入し、光照射を行い重合させる。各群とも試料数は10個とし、作製した試料片は、37℃蒸留水中に24時間保管後、引張り接着試験用アダプターに固定し、精密万能試験機(オートグラフ AGS-X、SHIMADZU)を使用し、クロスヘッドスピード0.5mm/minの条件で引張り、破断時の値を単位面積当たりに換算し引張り接着強さを測定する。

平成28年度までに試作した自己接着型フロアブルコンポジットレジン¹²⁾は、フィラーとマトリックスレジン¹³⁾を重量比1:1で練板上で混和して作製しているが、約5MPaの象牙質接着力が得られている。しかし、気泡の混入部からの試作レジンの混合破壊(凝集破壊と界面破壊)接着力の不安定さが明らかになった。そこで、一般に市販されているフロアブルコンポジットレジン¹⁴⁾の製法にならい、少量の材料で攪拌・分散、脱泡を効率的に行える自転公転ミキサーを用いて試作レジン¹⁵⁾を作製し、引張り接着強さ試験に供した。

引張り接着強さ試験はヒト抜去歯の象牙質を用いて、#800の耐水研磨紙で表面が平坦になるように研磨する。平坦化した象牙質上に内径3.0mm、深さ2.0mmのクリアレジンモールドを固定し、試作レジン¹⁶⁾を填入し、光照射を行い重合させる。試料数は15個とし、作製した試料片は、37℃湿度99%保管箱に24時間保管後、引張り接着試験用アダプターに固定し、精密万能試験機(オートグラフ AGS-X、SHIMADZU)を使用し、クロスヘッドスピード0.5mm/minの条件で引張り、破断時の値を単位面積当たりに換算し引張り接着強さを測定した。引張り接着強さ試験後の破壊形態及びその破断面の様相を観察するために象牙質側破断面を実態顕微鏡にて観察した。

トクヤマボンドフォースII(トクヤマ)を用いた試作レジン¹⁷⁾の引張り接着強さ試験の結果の平均値と標準偏差は 3.1 ± 2.7 MPaと過去に行った値と比較して低いものとなった。また、最大値は8.2MPa、最小値は0.4MPaと非常にばらつきが大きくなった。

実態顕微鏡観察にて破断面の界面破壊は9試料、界面破壊と試作レジンの凝集破壊が存在する混合破壊が6試料であった。

平成28年度に判明した練和条件において、フィラーの配合比、各レジン成分を配合比を変え、新たな試作レジンを作製する。接着性モノマーの種類、フィラー含有量に関しては最良の条件が判明していない為さまざまな条件で試作レジンを作製し実験に供試する。また、試作レジンは一様な練和により気泡の混入が大きく減じられることが予想され、各種機械的強度測定を行う。

現在までに試作した自己接着型フロアブルコンポジットレジン、一般に市販されているフロアブルコンポジットレジン、自転公転ミキサーを用いて市販のワンステップボンディング材のレジン成分と無機フィラーを1:1で配合・練和し試作レジンを作製し、引張接着強さ試験に供した。また、新たに接着性モノマーとベースレジン、フィラーを配合した新規試作レジン(SI-R21701)を作製し引張接着強さ試験に供した。

引張接着強さ試験はヒト抜去歯の象牙質を用いて、#800の耐水研磨紙で表面が平坦になるように研磨した。平坦化した象牙質上に内径3.0mm、深さ2.0mmのクリアレジンモールドを固定し、試作レジンを填入し、ブルーレックスプラス(ヨシダ)にて象牙質面に垂直に10秒、側面2方向から10秒ずつ、計30秒間光照射を行い重合させた。試料数は15個とし、作製した試料片は、37湿度99%保管箱に24時間保管後、引張り接着試験用アダプターに固定し、精密万能試験機(オートグラフAGS-X、SHIMADZU)を使用し、クロスヘッドスピード0.5mm/minの条件で引張り、破断時の値を単位面積当たり換算し引張り接着強さを測定した。トクヤマボンドフォースII(トクヤマ)を用いた試作レジン、引張接着強さ試験の結果の平均値と標準偏差は 3.1 ± 2.7 MPaと過去に行った値と比較して低いものとなった。また、最大値は8.2MPa、最小値は0.4MPaと非常にばらつきが大きくなった。クリアフィルトライエスポンドNDクイック(クラレノリタケデンタル)Gボンドプラス(ジーシー)を用いた試作レジン、引張強度は24時間保管中に破断される試料が散見されたため測定が困難であった。新たに試作したSI-R21701の引張接着強さ試験の結果の平均値と標準偏差は 4.3 ± 2.2 MPaとやや高い値を示しばらつきが少なかった。

平成28年度までに試作した自己接着型フロアブルコンポジットレジンを用い、市販されている従来型自己接着型フロアブルコンポジットレジンであるFusio™ Liquid Dentin A3(ペントロンジャパン)と従来型ガラスアイオノマーセメントであるガラスアイオノマーFXウルトラ(松風)およびフジIX_{GP}エクストラ(ジーシー)の2種類に対し、引張り接着強さを検討した。引張り接着強さ試験に使用した歯はヒト抜去歯の上下顎大白歯のエナメル質および象牙質を用いた。モデルトリーマーにてエナメル質は歯根部を切除し、象牙質は歯冠部を切除後、エナメル質は歯冠部のみを常温重合レジン(ユニファーストクリア、松風)にて包埋後、直径3.0mm以上の平坦面が得られるように#600の耐水研磨紙で研削した。象牙質も同様に研削し平坦面を得られるようにした。エナメル質および象牙質の平坦面に対し内径3.0mm、深さ2.0mmのクリアレジンモールドを固定し、試作レジン0.5mm未満で填入して、光照射を行い重合させ、さらにレジン0.5mm未満で填入し、光照射を行い重合させた。従来型ガラスアイオノマーセメントは添付文書に従って練和し、シリンジを用いてセメント泥をクリアモールドに填入し硬化させた。

試料数は各20個とし、試料片は37蒸留水中に24時間保管後、引張り接着試験用アダプターに固定し、精密万能試験機(オートグラフAGS-X、SHIMADZU)を使用し、クロスヘッドスピード0.5mm/minの条件で引張り接着強さを測定した。さらにサーマルサイクル試験(4と60に各1分間浸漬)を10000回負荷した後の引張り接着試験を同様に測定した。

試作レジン、サーマルサイクル試験後の引張り接着強さはエナメル質および象牙質において、10000回に達する前に試料がすべて剥がれ落ちてしまった。サーマルサイクル試験の設定回数を2000回に変更し、同様に実験を行ったが途中ですべて剥がれ落ちてしまった。

そこで、ブルーレックスプラス(ヨシダ)からブルーレックスプラスアルファ(ヨシダ)に光照射器を変更し、クリアレジンモールドを固定するのが困難であったため、試作レジンおよび従来型自己接着フロアブルレジン、平坦化した被着面に対して直径3.0mmの穴を空けた両面テープを貼り、試作レジン0.5mm未満で填入してスライドガラスを用いて圧接し光照射した。その上から内径3.0mm、深さ2.0mmのクリアレジンモールドを固定し、さらにレジン0.5mm未満で填入し、光照射を行い重合させた。従来型ガラスアイオノマーセメントも同様に両面テープを用いた。また、サーマルサイクル試験の設定回数を2000回から1000回に変更した。サーマル試験を1000回行ったが、今回は引張り接着試験用アダプターに固定する段階ですべて剥がれたため、サーマルサイクル試験回数を100回に変更した。しかし、100回に変更して前回よりはサーマル試験後に接着している試料数は多かったが、引張り接着試験用アダプターに固定する段階で多くが剥がれ落ちたため、50回に変更することとした。

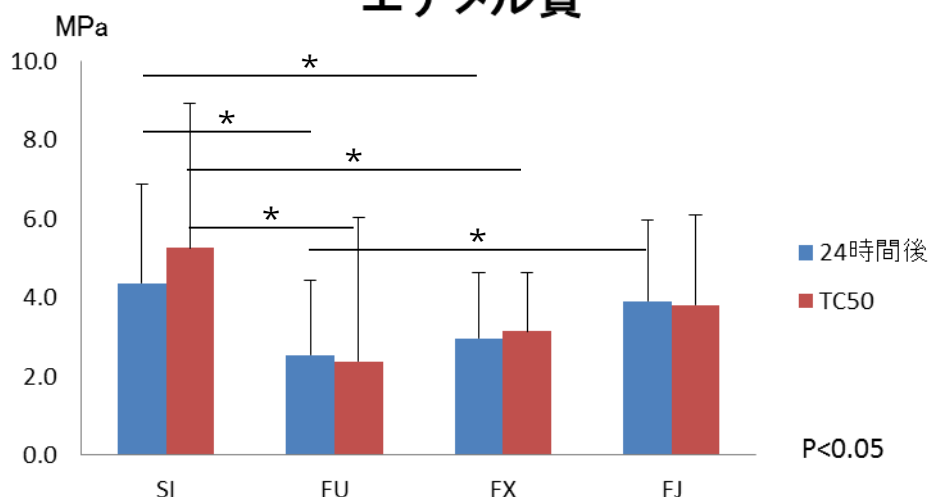
4. 研究成果

引張り接着強さ試験はヒト抜去歯のエナメル質および象牙質を用いて、#600の耐水研磨紙で平坦化後にレジン0.5mm未満で填入し、スライドガラスにて圧接して光照射し、内径3.0mm、深さ2.0mmのクリアレジンモールドを固定し、さらにレジン0.5mm未満で填入し、光照射を行い重合させる。試料数は20個とし、試料片は37湿度99%保管箱に24時間保管後、精密万能試験機(オートグラフAGS-X、SHIMADZU)を使用し、クロスヘッドスピード0.5mm/minの条件で引張り接着強さを測定

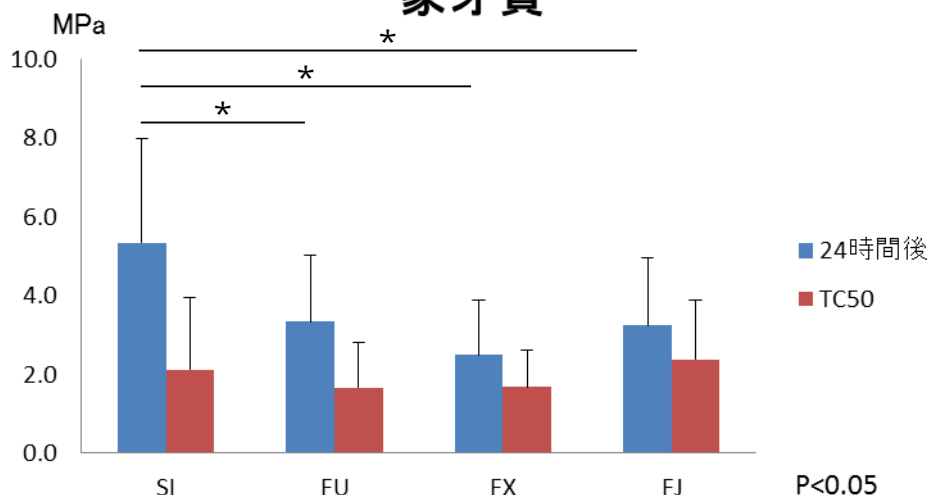
した。さらにサーマルサイクル試験（4 と 60 に各 1 分間浸漬）を 50 回負荷した後の引張り接着試験を同様に測定した。一元配置分散分析（ANOVA）と多重比較検定（Fisher's Least Significant Difference (LSD) test, $P < 0.05$ ）を行った。

引張り接着試験の結果の平均値と標準偏差は、試作自己接着型フロアブルコンポジットレジン（SI-R21701, SI）ではエナメル質において 24 時間後で 4.4 ± 2.5 MPa で最大値は 9.6MPa、最小値は 0.3MPa で、サーマル 50 回では 5.3 ± 3.7 MPa で最大値は 12.8MPa、最小値は 0.50MPa であった。象牙質においては 24 時間後で 5.3 ± 2.7 MPa で最大値は 13.0MPa、最小値は 1.1MPa で、サーマル 50 回では 2.1 ± 1.8 MPa で最大値は 7.2MPa、最小値は 0.01MPa で非常にばらつきが大きくなった。従来型自己接着フロアブルコンポジットレジン（ペントロンジャパン, Fu）および従来型ガラスアイオノマーセメントであるガラスアイオノマー-FX ウルトラ（松風, FX）およびフジ IX_{GP} エクストラ（ジーシー, FJ）の 2 種類よりは、エナメル質では 24 時間後で FU および FX に対して、TC50 で FU に対し有意に高く、象牙質では 24 時間後で FU、FX および FJ に対し有意に高いが、TC50 で有意差は認められなかった。

エナメル質



象牙質



しかしながら現在日常で使用されているボンディングシステムを用いたフロアブルコンポジットレジンの歯質との引張り接着強さが 40MPa 以上、サーマルサイクル後の値も約 40MPa あることから、改良の余地がかなりある結果となった。現在日常で使用されているボンディングシステムよりは値が低い、従来型ガラスアイオノマーセメントの主な適応部位の 5 級窩洞や根面う蝕に用いることが可能と考えられる。

これまでコンポジットレジン修復は歯質への接着力の強化とともに、接着処理手順の簡略化することが進められた。自己接着型フロアブルコンポジットレジンは接着手順を必要としないため、これから求められるコンポジットレジン修復の材料となる。今回、開発した自己接着型フロアブルコンポジットレジンの歯質接着強さは従来の接着システムに対して大きく劣るもの

となったが、グラスアイオノマーセメントと同等以上の接着強さを示したことから、グラスアイオノマーセメント修復に替わり使用できることが示唆された。練和が不要であるためより迅速に填塞する必要がある小児の治療や在宅医療への応用が期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 0 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。