

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 21 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21592409

研究課題名（和文） ナノテク材料使用によるレジン系歯科接着材への影響

研究課題名（英文） Effect of using nanotechnological materials on the resin bonding material

研究代表者

田中 享（TANAKA TORU）

北海道大学・北海道大学病院・講師

研究者番号：90179771

研究成果の概要（和文）：ナノテクノロジー技術によって製造された白金ナノコロイドを市販の歯科接着材料を使用する際、メーカーの推奨する手順に加えて接着させる象牙質の表面に白金ナノコロイドを塗布、水洗すると使用条件によって接着力が向上する可能性があることが確認された。さらに、その接着力の耐久性を接着させた試料に負荷をかけることによって調べたところ、耐久性が向上する可能性が示唆されたが、臨床で使用するためにはさらなる研究によって確実な使用法を確立する必要がある。

研究成果の概要（英文）：The colloidal platinum nanoparticles (CPN) produced by nanotechnology. In case of using the commercial dental bonding material, priming with CPN on the dentin surface and then water-rinsing in addition to its procedure recommended by manufacturer could raise bonding strength in some applying conditions. Moreover, bonding specimens prepared by above-mentioned procedure were loaded and investigated about the durability of bonding strength. It was suggested that the durability of bonding strength might be enhanced in some cases. But more studies need to establish the certain procedure for clinical use of CPN.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	500,000	150,000	650,000
2010 年度	900,000	270,000	1,170,000
2011 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	2,000,000	600,000	2,600,000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学・保存治療系歯学

キーワード：ナノテクノロジー、白金ナノコロイド、4-META/MMA-TBB レジン、微小引張り接着試験、スーパーボンド

1. 研究開始当初の背景

原子や分子の配列をナノスケールで自在に制御する技術と定義されるナノテクノロジーは、歯科領域においても様々に応用されている。近年、宮本らの開発した白金ナノコロイドは、高い還元作用と触媒機能を持ち、

活性酸素を抑える働きがあることが報告されていた。これらの作用が歯質接着材料の接着界面を強化するのではないかと考え、レジン系歯科接着材である 4-META/MMA-TBB レジン（スーパーボンド）の接着能を検討した結果、象牙質接着強さが著しく向上する可能性

があることが示唆された。臨床応用するには、この接着能の向上はどのような使用条件で発揮するのか、また、耐久性はどうであるかを検討する必要がある。

2. 研究の目的

レジン系歯科接着材である 4-META/MMA-TBB レジンが白金ナノコロイドの使用によって強い接着能を発揮しそれが長期にわたって保つことができるかを *in vitro* と *in vivo* において微小引張り接着試験、接着界面の形態観察によって検討する。*in vitro* においては、試料への負荷試験を行うことによって接着力の耐久性について検討し、*in vivo* においては、カニクイザルの歯を用いて接着力の耐久性について検討する。

3. 研究の方法

(1) 白金ナノコロイド塗布後の水洗時間の影響

健全ヒト抜去大白歯の歯冠中央部をモデルトリマーで切削し露出させ、健全な象牙質を露出させた後、600番の耐水研磨紙を用いて研磨したものを被着面とした。まず、Control 群として被着面を表面処理材グリーン(10-3水溶液, サンメディカル, 滋賀)(10%クエン酸, 3%塩化第二鉄が成分の溶液)5秒塗布後に5秒水洗し乾燥後、スーパーボンド(サンメディカル, 滋賀)を用いてアクリル棒と接着させた。次に、被着面を10-3水溶液で5秒塗布後に5秒水洗し乾燥後、白金ナノコロイド原液(CPN, アプト, 東京)または10%のCPNを60秒塗布後、水洗時間を3秒、5秒、10秒、20秒と4条件に分け、その後、乾燥し、スーパーボンドを用いてアクリル棒と接着させた。アクリル棒に接着させた歯を37°C水中に24時間浸漬し、その後精密低速切断機(Isomet low speed saw, Buehler, USA)、を用いて1mm×1mmのスティック状試料を作製し、小型卓上試験機(EZ-Test, 島津製作所, 京都)を用いて微小引張り接着試験をクロスヘッドスピード1mm/minの条件にて行った。

(2) 白金ナノコロイドの塗布時間の影響

被着面とControl群は(1)と同様とした。次にEtch-Pt群として、被着面を10-3水溶液5秒塗布後に5秒水洗し乾燥後、10%のCPNを10秒、20秒、30秒、60秒の4条件に分け塗布後、20秒水洗、その後乾燥し、スーパーボンドを用いてアクリル棒と接着させた。また、Pt-Etch群として、10%のCPNを同様の4条件で塗布後、20秒水洗、乾燥後、10-3水溶液を5秒塗布、5秒水洗し、乾燥の後、スーパーボンドを用いてアクリル棒と接着させた。(1)と同様に微小引張り接着試験を行った。

また、レジンと象牙質の接着界面はSEMを用いて観察した。

(3) サーマルサイクリング負荷試験が接着に与える影響

(1)と同様にヒト抜去大白歯の歯冠中央部の象牙質を被着面とした。コントロールも

(1)と同様の条件で被着面を10-3水溶液で処理した(Control群)。実験群として10-3水溶液を5秒塗布、5秒水洗し、乾燥の後にCPNまたは10%のCPNを30秒塗布し、その後20秒水洗、乾燥した(各々CPN群、10%CPN群)。被着面を各々の条件で処理後、スーパーボンド(ティースカラ)を混合法にて塗布、PMMAブロックを圧接し、6分硬化を待ち、37°Cの脱イオン水中で24時間保存した。試料全てはIsometを用いて、注水下で1mm×1mmのスティック状に切断した。その後、これらは5°Cおよび55°Cの水中に各60秒間浸漬を1サイクルとするサーマルサイクリング

(TC)試験0回の群、10,000回の群、および20,000回の群に分けて行われた。なお、TC試験はスティック状試料をPCRチューブ内の脱イオン水中に浸漬し、PCRサーマルサイクラー(Mastercycler gradient, eppendorf, Germany)を用いた。EZ-Testを用い、(1)と同様に微小引張り接着試験を行った。

また、レジンと象牙質の接着界面はSEMとTEMを用いて観察した。

(4) *in vivo*(カニクイザルの歯)における実験

本動物実験は「国立大学法人北海道大学動物実験に関する規定」に基づき、北海道大学動物実験委員会の承認を得て行われた。1頭のカニクイザル(オス、年齢6歳、体重7.1kg)の歯、32歯を用いた。ケタミン(ケタラール、三共、東京)筋注による全身麻酔下および歯科用キシロカインカートリッジで浸潤麻酔下にて顔面側歯頸部に高速注水下の球状のダイヤモンドポイントを用いて象牙質窩洞を形成した。窩洞の処理は以下の①~③の3条件とした。①スーパーボンド 附属の10-3水溶液を5秒塗布、5秒水洗、乾燥(Control群)、②10-3水溶液5秒塗布、5秒水洗、乾燥の後にCPNを30秒塗布、20秒水洗、その後乾燥(CPN群)③10-3水溶液5秒塗布、5秒水洗、乾燥の後に10%CPNを30秒塗布、20秒水洗、その後乾燥(10%CPN群)。各々の条件で窩洞を処理し、スーパーボンド(ティースカラ)を充填した。充填処置は顎骨からの歯の取り出しの時期から逆算し、取り出し4週前に12歯、7日前に11歯、1日前に9歯に対して実施した。これにより実験期間は1日、7日、4週となる。顎骨からの歯の取り出しは、ラボナール静注によって麻酔死した後、行った。取り出した歯から微小引張り接着試験のため、接着面が1mm×1mmになるようにダンベル状の試料を作製し、EZ-TESTを

用いて引張り接着試験を行った。

4. 研究成果

(1) 白金ナノコロイド塗布後の水洗時間の影響

CPN 原液を用いた場合では Control 群：32.38MPa、3 秒水洗：17.26MPa、5 秒水洗：21.40MPa、10 秒水洗：21.78MPa、20 秒水洗：38.36MPa であった。Control 群と 20 秒水洗した群が、3 秒、5 秒、10 秒水洗した群に対し有意に高い接着強さを示した。

10%の CPN を用いた場合では Control 群 32.38MPa、3 秒水洗：22.42MPa、5 秒水洗：27.93MPa、10 秒水洗：35.26MPa、20 秒水洗：52.91MPa であった。Control 群に対し、20 秒水洗した群が、有意に高い接着強さを示した。本実験より水洗時間は 20 秒が高い接着力を示すのに最適と考えられた。また、10%CPN が CPN 原液より高い接着力を示す条件と考えた。

(2) 白金ナノコロイドの塗布時間の影響 Etch-Pt 群では Control 群：32.38MPa、10 秒塗布：38.95MPa、20 秒塗布：49.18MPa、30 秒塗布：59.70MPa、60 秒塗布：52.91MPa であった。30 秒塗布した群と 60 秒塗布した群が、Control 群、10 秒塗布した群、20 秒塗布した群に比べて有意に高い接着強さを示した。

Pt-Etch 群では、10 秒塗布：41.93MPa、20 秒塗布：50.57MPa、30 秒塗布：62.15MPa、60 秒塗布：59.08MPa であった。30 秒塗布した群と 60 秒塗布した群が、Control 群、10 秒塗布した群に比べて有意に高い接着強さを示した。

また、接着界面の SEM 観察では、CPN を用いると Control 群に比較して幅が厚く、長いレジクタグが観察された。

次の負荷試験は Etch-Pt 群で行うこととした。

(3) サーマルサイクリング負荷試験が接着に与える影響

Control 群の微小引張り強さは 29.3MPa (TC 0 回)、36.6MPa (TC 10,000 回)、32.8MPa (TC 20,000 回) であった。10% CPN 群では 30.4MPa (TC 0 回)、40.3MPa (TC 10,000 回)、32.1MPa (TC 20,000 回) であった。CPN 群では 24.2MPa (TC 0 回)、12.0MPa (TC 10,000 回)、10.7MPa (TC 20,000 回) であった。Control 群と 10% CPN 群は TC 試験前後で接着強さに有意差は認められなかった。CPN 群の接着強さは TC 試験後に有意に低下した。

接着界面の SEM 観察において CPN 群では TC 試験後に Control 群と 10% CPN 群と比べて短いレジクタグが観察された。接着界面の TEM 観察では 10% CPN 群、および CPN 群において、樹脂含浸層の上縁に細かい粒子状構造物の

存在が認められた。白金ナノコロイド表面処理した象牙質接着強さには濃度が影響していると考えられた。

(4) in vivo(カニクザルの歯)における実験

Control 群、CPN 群、10%CPN 群の各期間における測定試料が用いる歯によって制限があること、技術的な問題により各歯から得られる測定試料が少なかったことなどから、接着強さを統計的に処理するために十分な数の測定試料を得ることは困難であった。すなわち、経時的に特徴的な傾向を見出すには至らなかった。また、各期間の 3 群の間の接着強さに関しても特徴的な違いは認めるには至らなかった。

(5) まとめ

in vitro ではある条件での CPN の使用は接着強さを向上させ、耐久性も維持できる可能性が示唆された。しかし、本研究では歯種の違いなどの複雑な因子が絡む in vivo の試験では被験歯の数を増やすばかりではなく被験歯の条件を可能な限り揃えるように努める等の配慮をし、更なる検討が必要であると考えられた。

臨床で安全かつ安定して応用するためには、術者の技術的な差、CPN 使用時の操作時間の確実性、スーパーボンドの製品自体も数種類もあるなど解決しなければならない問題があると思われた。

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 5 件)

①五十嵐豊、付佳楽、角田晋一、田中享、中沖靖子、佐野英彦、プラチナナノコロイド象牙質処理が 4-META/MMA-TBB レジンのサーマルサイクリング負荷前後の接着に与える影響、北海道歯学雑誌、査読有、32 巻、2012、177-192

②Shuhei HOSHIKA, Futam NAGANO, Toru TANAKA, Takahiro WADA, Kiyotaka ASAKURA, Kenichi KOSHIRO, Denis SELIOVIC, Yusei MIYAMOTO, SK SIDHU, Hidehiko SANO, Expansion of nanotechnology for dentistry; effect of colloidal platinum nanoparticles on dentin adhesion mediated by 4-META/MMA-TBB, The Journal of Adhesive Dentistry, 査読有、13、2011、411-416
DOI:10.3290/j/jad.a19818.

③Shuhei HOSHIKA, Futam NAGANO, Toru TANAKA, Takatsumi IKEDA, Takahiro WADA

Kiyotaka ASAKURA, Kenichi KOSHIRO, Denis SELIOVIC, Yusei MIYAMOTO, SK SIDHU, Hide Hiko, SANO, Effect of application time of colloidal platinum nanoparticles on the microtensile bond strength to dentin, Dental Materials Journal, 査読有、29、2010、682-689

DOI:10.492/dmj.2009-125

- ④星加修平、田中享、佐野英彦、象牙質接着強さに与える白金ナノコロイド塗布の影響、北海道歯学雑誌、査読有、31巻、2010、14-16
- ⑤星加修平、安本恵、長野二三、田中享、佐野英彦、ナノテクノロジーを用いた Total etching system の接着性能改良の試み：白金ナノコロイド処理による象牙質接着への影響、接着歯学、査読有、27巻、2009、84-88

[学会発表] (計1件)

- ①安本恵、星加修平、長野二三、田中享、池田考績、中沖靖子、佐野英彦、CPN のエッチアンドリンスアドヒーシブへの効果の検討、日本歯科保存学会 2010 年度春季学術大会、2010 年 6 月 5 日、崇城大学市民ホール (熊本県)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 享 (TANAKA TORU)
北海道大学・北海道大学病院・講師
研究者番号：90179771

(2) 研究分担者

池田 考績 (IKEDA TAKATSUMI)
北海道大学・大学院歯学研究科・助教
研究者番号：90222885

(3) 連携研究者

なし