

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 2 日現在

機関番号：32665

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K16977

研究課題名(和文) 新たなモダリティ評価による次世代接着システムの接着耐久性について

研究課題名(英文) Adhesion Durability of Next-Generation Adhesion Systems Based on New Modality Evaluation

研究代表者

崔 慶一 (SAI, Keiichi)

日本大学・歯学部・専修医

研究者番号：80843151

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：ユニバーサルアドヒーズブ应用型2ステップアドヒーズブであるG2-Bond Universal, 従来型2ステップアドヒーズブであるClearfil SE Bond 2およびOptiBond eTRa, および従来型ユニバーサルアドヒーズブであるScotchbond Universal Plus Adhesiveを用いてウシエナメル質に対するせん断接着強度(SBS)を測定した。接着試片は、37℃の精製水中に5分、1、6、12、24時間保管した。同様の保管期間の後にKHN測定を行った。いずれのアドヒーズブも、保管期間の延長に伴ってSBSは増加した。KHNはいずれも時間の経過とともに増加した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、ユニバーサルアドヒーズブをプライマーとして用いる2ステップ接着システムが臨床応用された。この接着システムは、機能性モノマーを含むHEMAフリーのプライマーと高い疎水性を有するアドヒーズブから構成され、従来の2ステップセルフエッチングシステムと同等以上の接着耐久性を有することが報告されている。一方、光重合型コンポジットレジン修復においては、コンポジットレジン充填時の光照射直後から、様々な負荷が接着界面に加わっている。歯質接着性を臨床的な観点から評価するため、充填直後の接着強さおよびKHNの推移について検討することで、その接着メカニズムについて新たな知見を得ることができた。

研究成果の概要(英文)：A new two-step adhesive using universal adhesive technology, G2-Bond Universal, was tested. Two conventional two-step adhesives, Clearfil SE Bond 2 and OptiBond eTRa, and an established universal adhesive, Scotchbond Universal Plus Adhesive, were used as comparison materials. Twelve specimens per group were used to measure the shear bond strength (SBS) to bovine enamel in different etching modes. The bonded specimens were stored in distilled water at 37°C for 5 min or 1, 6, 12, or 24 h before SBS testing. The KHN of the adhesive layer and resin composite was determined after the same storage periods as for SBS testing. All adhesives exhibited increased SBS with prolonged storage periods, irrespective of the etching mode. The KHN of the adhesive layer and resin composite increased over time.

研究分野：歯科保存学

キーワード：歯質接着性 プラスチック 歯質接着性 ユニバーサルアドヒーズブ应用型プライマー 2ステップ接着システム 初期接着性 ヌー

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

歯質接着システムは、接着性の向上および操作の簡略化を目的に、これまで多くの改良が繰り返されてきた。シングルステップであるユニバーサルアドヒーズは、歯質以外の異なる被着体に対しても接着性を有するとともにエッチ&リンスあるいはセルフエッチングの異なるエッチングモードでも使用可能なことを特徴としており、これまでの接着システムと異なる接着メカニズムを有する可能性が指摘されている。しかし、ユニバーサルアドヒーズは酸性機能性モノマーとともに水および溶媒をアドヒーズ中に含有するため、硬化アドヒーズ層の機械的性質は multiple ステップ接着システムのそれと比較して低く、初期接着および接着耐久性が懸念されている。

そこで、ユニバーサルアドヒーズの問題点を克服するためにアドヒーズの double-layer application あるいはユニバーサルアドヒーズ塗布後に疎水性のボンディング材の add-on テクニックが考案され、ユニバーサルアドヒーズ応用型次世代接着システムとして研究、開発が進められている。しかしながら、次世代接着システムの基礎的研究は少なく、不明な点が多い。そこで申請者は、その接着性について新たな知見を得るため本研究を企画した。

2. 研究の目的

ユニバーサルアドヒーズシステムは、異なる被着体に接着性を有するとともに歯質に対して異なるエッチングモードで使用が可能であることを特徴としている。また、塗布時間の短縮、湿潤状態に影響を受けにくい、あるいはレジンセメントの前処理材として使用可能なものなど、製品によってその用途は多彩となっている。近年、ユニバーサルアドヒーズをプライマーとして用いる 2 ステップ接着システムが臨床応用された。この接着システムは、機能性モノマーを含む HEMA フリーのプライマーと高い疎水性を有するアドヒーズから構成され、従来の 2 ステップセルフエッチングシステムと同等以上の接着耐久性を有することが報告されている。一方、光重合型コンポジットレジン修復においては、コンポジットレジン充填時の光照射直後から、重合収縮に伴う応力あるいはマトリックスの除去、形態修正などの外力による負荷が接着界面に加わっている。従って、歯質接着性を臨床的な観点から評価するには、接着後 24 時間以上経過した時点での接着強さだけでなく、充填直後の接着強さの推移についても検討する必要がある。

そこで申請者は、ユニバーサルアドヒーズ応用型 2 ステップアドヒーズの接着耐久性に加え、剪断接着強さ試験およびアドヒーズの微小硬さ試験からエナメル質初期接着性について検討を加えることでその接着メカニズムについて新たな知見を得ることを目的とした。

3. 研究の方法

供試した接着システムは、ユニバーサルアドヒーズ応用型 2 ステップ接着システムの G2-Bond Universal (GB, GC)、2 ステップセルフエッチアドヒーズの Clearfil SE Bond 2 (CS, Kuraray Noritake Dental) および OptiBond eXtra (OX, Kerr) とともに、ユニバーサルアドヒーズの Scotchbond Univesal Plus (SP, 3M Oral Care) の 4 製品を用いた。

接着試験用試片の製作および剪断接着強さ試験は、ISO 29022 に準じて行った。すなわち、ウシ歯冠部エナメル質を耐水性 SiC ペーパーの #320 まで研削を行い、被着エナメル質面とした。歯面処理条件としては、アドヒーズ塗布に先立ってリン酸エッチングを行った条件 (ER モード) およびこれを行わなかった条件 (SE モード) の 2 条件とし、各製造者指示条件に従ってアドヒーズを塗布、照射を行った。次いで、内径 2.38 mm の Ultradent 接着試験用治具を照射したアドヒーズ面に固定し、レジンペースト (Clearfil AP-X, Kuraray Noritake) を充填、照射を行ったものを接着試験用試片とした。試片は、37 °C 精製水中に 5 分、1、6、12 および 24 時間保管した。所定の保管期間が終了した試片については、万能試験機 (Type 5500R, Instron) を用いてクロスヘッドスピード毎分 1.0 mm の条件で剪断接着強さを測定した。また、それぞれの条件における破断面について、走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察用試料を作成し、加速電圧 10 kV の条件で SEM 観察した。

硬化アドヒーズのヌーブ硬さ (KHN) 測定に際しては、接着試験用試片と同様に製作したエナメル質表面に内径 6 mm、厚さ 300 μm の穴の開いたテープを貼付し、アドヒーズ塗布面とした。アドヒーズ塗布後、塗布面を透明マトリックステープで被覆し、10 秒間光照射を行った。マトリックステープ除去後、アドヒーズ表面の表層低重合層をアルコール綿球で除去し、KHN 試験用試片とした。試片は、37 °C、100% 湿潤下に 5 分、1、6、12 および 24 時間保管した。所定の保管期間が終了した試片は、微小硬度計 (HMV-2, Shimadzu) を使用し、負荷荷重 8.07 mN の条件で 5 秒間保持した。試片ごとに異なる場所で 3 回測定を行い、その平均値を試片のヌーブ硬さとした。

4. 研究成果

(1) 剪断接着強さ (SBS)

Table 1, 2 および Fig 1 に SBS の平均値を示す。3 way ANOVA による検討の結果、エッチン

グモード、保管期間、およびアドヒーズの種類は、いずれもエナメル質に対する接着強さに有意に影響することが示唆された ($p < 0.001$)。

いずれのアドヒーズにおいても、エッチングモードに関わらず、保管期間の延長に伴って SBS は大きくなる傾向を示した (Table 1 および Fig 2)。

各アドヒーズ間の同一保管期間における SBS を比較すると、GB はいずれの保管期間においても他のアドヒーズよりも有意に高い SBS を示した。一方、SP はいずれの保管期間においても他のアドヒーズよりも有意に低い SBS を示した。

Table 1 Enamel bond strengths of the adhesives over time in SE mode

	5 min	1 h	6 h	12 h	24 h
GB	32.8 (3.3) ^{aC} [71.1%]	41.3 (2.3) ^{aB} [89.6%]	43.4 (2.9) ^{aAB} [94.1%]	42.0 (3.4) ^{aB} [91.1%]	46.1 (4.1) ^{aA} [100%]
CS	25.3 (2.2) ^{bD} [62.6%]	30.6 (1.6) ^{bC} [75.7%]	35.6 (2.6) ^{bB} [88.1%]	37.3 (3.3) ^{bAB} [92.3%]	40.4 (3.6) ^{bA} [100%]
OX	23.1 (3.3) ^{bB} [60.0%]	24.4 (2.9) ^{cB} [63.4%]	35.9 (2.3) ^{bA} [93.2%]	36.6 (3.4) ^{bA} [95.1%]	38.5 (2.2) ^{bA} [100%]
SP	18.9 (3.1) ^{cB} [69.7%]	20.0 (4.0) ^{dB} [73.8%]	24.1 (2.9) ^{cA} [88.9%]	25.0 (3.3) ^{cA} [92.3%]	27.1 (2.3) ^{cA} [100%]

Percentages in brackets indicate bond strength relative to 24 h strength (n = 12), mean (SD) in MPa. Same lowercase letter in columns indicates no significant difference ($p < 0.05$). Same capital letter in rows indicates no significant difference ($p < 0.05$).

Table 2 Enamel bond strengths of the adhesives over time in ER mode

	5 min	1 h	6 h	12 h	24 h
GB	35.5 (3.0) ^{aC} [72.0%]	41.1 (3.3) ^{aB} [83.4%]	43.2 (4.8) ^{aB} [87.6%]	43.7 (3.8) ^{abB} [88.6%]	*49.3 (3.1) ^{abA} [100%]
CS	*33.1 (1.9) ^{bC} [64.5%]	*33.8 (3.2) ^{cC} [65.9%]	*43.3 (3.9) ^{aB} [84.4%]	*43.4 (1.7) ^{abB} [84.6%]	*51.3 (2.3) ^{aA} [100%]
OX	*29.3 (1.3) ^{cD} [62.7%]	*34.6 (2.5) ^{bcC} [74.1%]	*42.1 (2.6) ^{aB} [90.1%]	*46.1 (1.3) ^{aA} [98.7%]	*46.7 (3.2) ^{bcA} [100%]
SP	*32.1 (2.7) ^{bC} [72.3%]	*37.8 (3.7) ^{abB} [85.1%]	*39.8 (2.1) ^{aB} [89.6%]	*40.7 (3.1) ^{abB} [91.7%]	*44.4 (5.2) ^{cA} [100%]

Percentages in brackets indicate bond strength relative to 24 h strength (n = 12), mean (SD) in MPa. Same lowercase letter in columns indicates no significant difference ($p < 0.05$). Same capital letter in rows indicates no significant difference ($p < 0.05$). Asterisk indicates significant differences between SE mode and ER mode ($p < 0.05$).

Fig 1 Early-phase enamel bond strength with different etching modes.

GB: G2-Bond Universal
CS: Clearfil SE Bond 2
OX: OptiBond eTRa
SP: Scotchbond Universal Plus
SE: self-etching
ER: etch-and-rinse

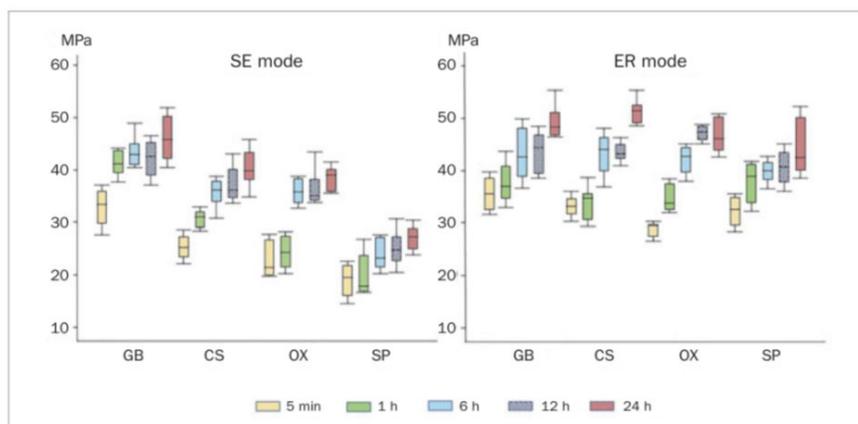
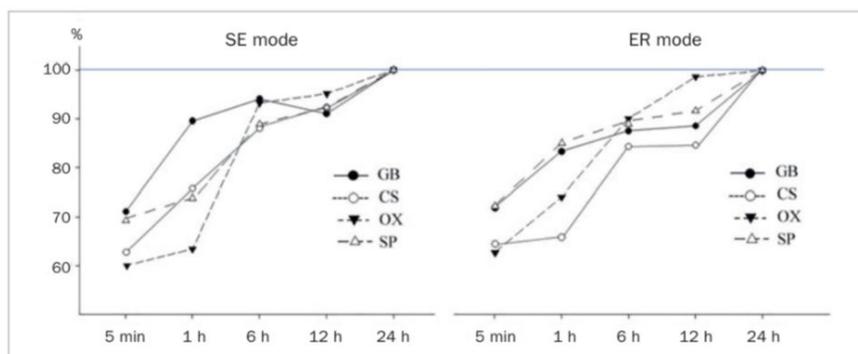


Fig 2 Changes in shear bond strength (%) with different etching modes.

GB: G2-Bond Universal
CS: Clearfil SE Bond 2
OX: OptiBond eTRa
SP: Scotchbond Universal Plus
SE: self-etching
ER: etch-and-rinse



(2) 破断面の SEM 観察

SBS 試験後の剥離試片レジジン側の代表的な SEM 画像を Fig 3~5 に示す。破壊形式は、アドヒ

ーシブ, エッチングモード, および保管期間のいずれにも影響を受けた。2ステップアドヒーズシブの破壊形式においては波状の亀裂伸展を認め, ユニバーサルアドヒーズシブである SP と比較して多くのエナメル質の付着が見られた。また, アドヒーズシブの種類に関わらず, SE モードの5分群と比較してERモードの24時間群において, より明確なエナメル質の付着が観察された。SEモードの5分群における破壊形式は比較的平坦であり, OXとSPではピーチマークは観察されなかった (Fig 4a, 5a)。

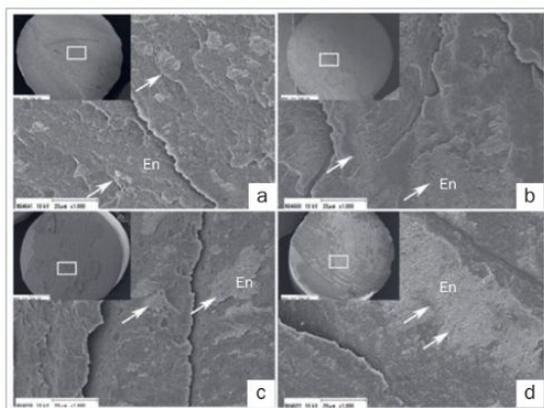


Fig 3 Representative debonded failure sites of GB (original magnifications 40X [insets] and 1000X). a. GB in SE mode at 5 min; b. GB in ER mode at 5 min; c. GB in SE mode at 24 h; d. GB in ER mode at 24 h. En: enamel. Arrows indicate cracks and cleavages.

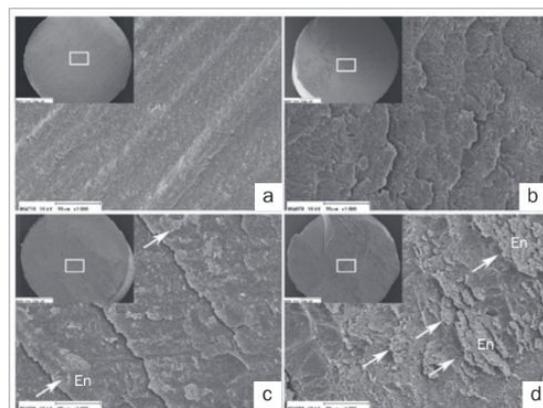


Fig 4 Representative debonded failure sites of OX (original magnifications 40X [insets] and 1000X). a. OX in SE mode at 5 min; b. OX in ER mode at 5 min; c. OX in SE mode at 24 h; d. OX in ER mode at 24 h. En: enamel. Arrows indicate cracks and cleavages.

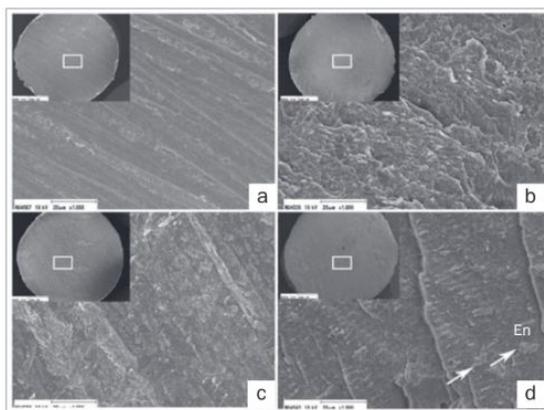


Fig 5 Representative debonded failure sites of SP (original magnifications 40X [insets] and 1000X). a. SP in SE mode at 5 min at magnifications of 40X and 1000X; b. SP in ER mode at 5 min; c. SP in SE mode at 24 h; d. SP in ER mode at 24 h. En: enamel. Arrows indicate cracks and cleavages.

(3) アドヒーズシブおよびコンポジットレジンヌーブ硬さ (KHN)

Table 3 および Fig 6a にアドヒーズシブ層の KHN の経時変化を示す。2 way ANOVA による分析の結果, 保管期間とアドヒーズシブの種類がアドヒーズシブ層の KHN に影響を与え ($p < 0.001$), 保管期間とアドヒーズシブ間の相互作用も有意であることが示唆された ($p < 0.001$)。

アドヒーズシブ層の KHN は, アドヒーズシブの種類と保管期間のいずれにも影響を受けた。いずれのアドヒーズシブも, 保管期間の延長に伴って KHN が増加した。各アドヒーズシブの 24 時間群のアドヒーズシブ層の KHN を 100% と定義したとき, 24 時間未満の群の KHN は GB で 71.5% ~ 99.2%, CS で 69.8% ~ 93.7% であった。また OX では 3.6% ~ 82.5%, SP では 6.4% ~ 85.3% (Table 3 および Fig 7a) であった。2ステップアドヒーズシブでは GB と CS が同様の傾向を示した一方, OX はシングルステップユニバーサルアドヒーズシブである SP と同様の傾向を示した。すなわち, GB と CS は 5 分群で約 70% の KHN を示したが, 一方, OX と SP では 10% 未満であった。GB は保管期間に関わらず他のアドヒーズシブよりも有意に高い KHN を示した。CS はいずれの保管期間においても GB と比較して有意に低い KHN を示したものの, OX および SP と比較して有意に高い KHN を示した。また, シングルステップユニバーサルアドヒーズシブである SP は, 6 時間, 12 時間, お

よび 24 時間群で他の接着剤よりも有意に低い KHN を示した。

Table 4 および Fig 6b にコンポジットレジン の KHN の経時的变化を示す。AP-X は保管期間の増加に伴って KHN の増加を示した。保管期間の延長に伴って KHN は増加する傾向を示し、24 時間群のコンポジットレジン の KHN を 100% と定義すると、24 時間未満の群の KHN は 65.1% ~ 94.8% であった (Fig 7b)。

Table 3 Changes in the KHN of the adhesive layer over time

	5 min	1 h	6 h	12 h	24 h
GB	27.9 (0.5) ^{aD} [71.5%]	29.9 (0.8) ^{aC} [76.7%]	32.4 (1.3) ^{aB} [83.1%]	38.7 (1.3) ^{aA} [99.2%]	39.0 (1.2) ^{aA} [100%]
CS	17.6 (0.2) ^{bE} [69.8%]	19.8 (0.5) ^{bD} [78.6%]	22.3 (0.9) ^{bC} [88.5%]	23.6 (1.4) ^{bB} [93.7%]	25.2 (0.9) ^{bA} [100%]
OX	0.5 (0.1) ^{cD} [3.6%]	0.8 (0.1) ^{cD} [5.8%]	8.1 (0.6) ^{cC} [59.1%]	11.3 (1.2) ^{cB} [82.5%]	13.7 (1.4) ^{cA} [100%]
SP	0.7 (0.1) ^{cD} [6.4%]	1.1 (0.2) ^{cD} [10.1%]	6.4 (0.7) ^{dC} [58.7%]	9.3 (1.2) ^{dB} [85.3%]	10.9 (1.3) ^{dA} [100%]

Percentages in brackets indicate KHN relative to 24 h value (n = 6), mean (SD). Same lowercase letter in columns indicates no significant difference (p < 0.05). Same capital letter in rows indicates no significant difference (p < 0.05).

Table 4 Changes in the KHN of the resin composite over time

	5 min	1h	6h	12h	24h
KHN	67.9 (1.5) ^a [65.1%]	80.1 (1.4) ^d [76.8%]	93.9 (2.5) ^c [90.0%]	98.9 (1.7) ^b [94.8%]	104.3 (2.0) ^a [100%]

Percentages in brackets indicate KHN values relative to values at 24 h (n = 6), mean (SD). Same lower case letter indicates no difference (p < 0.05).

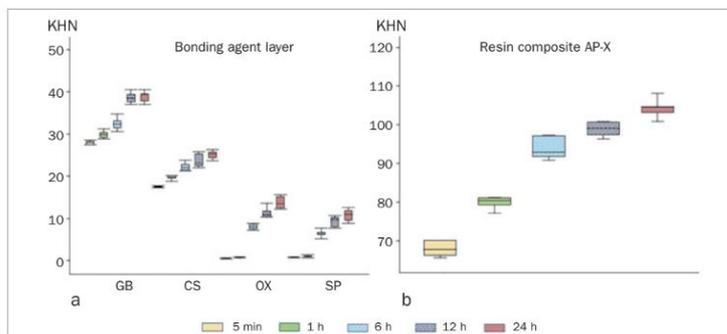


Fig 6 KHN in the cured adhesive layer and resin composite AP-X.

- a. cured adhesive layer
- b. resin composite AP-X
- GB: G2-Bond Universal
- CS: Clearfil SE Bond
- OX: OptiBond eXTRA
- SP: Scotchbond Universal Plus

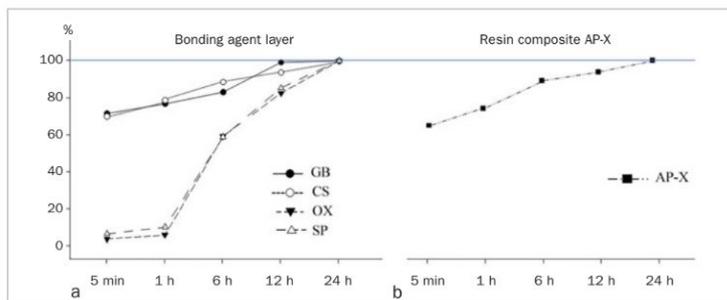


Fig 7 Changes in KHN (%) in the cured adhesive layer and resin composite AP-X.

- a. cured adhesive layer
- b. resin composite AP-X
- GB: G2-Bond Universal
- CS: Clearfil SE Bond
- OX: OptiBond eXTRA
- SP: Scotchbond Universal Plus

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Takamizawa Toshiki, Yokoyama Munenori, Sai Keiichi, Shibasaki Sho, Barkmeier Wayne W., Latta Mark A., Tsujimoto Akimasa, Miyazaki Masashi	4. 巻 11
2. 論文標題 Effect of Adhesive Application Method on the Enamel Bond Durability of a Two-Step Adhesive System Utilizing a Universal Adhesive-Derived Primer	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 7675 ~ 7675
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/app11167675	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Kei Iwase, Toshiki Takamizawa, Keiichi Sai, Sho Shibasaki, Wayne W. Barkmeiere, Mark A. Lattaf, Atsushi Kamimoto, Masashi Miyazaki	4. 巻 24(1)
2. 論文標題 Early Phase Enamel Bond Performance of a Two-step Adhesive Containing a Primer Derived from a Universal Adhesive	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 International Journal of Adhesion and Adhesives	6. 最初と最後の頁 407 ~ 420
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3290/j.jad.b3559035.	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 高見澤俊樹, 田村友彦, 廣兼榮造, 笠原悠太, 石井 亮, 辻本暁正, 崔 慶一, 宮崎真至
2. 発表標題 ユニバーサルアドヒージブ応用型2ステップ接着システムの接着耐久性について
3. 学会等名 第40回日本接着歯学会学術大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------