

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 26 日現在

機関番号：15301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25861799

研究課題名(和文)ハイドロキシアパタイトを配合した新規接着剤の研究

研究課題名(英文)The study of the new adhesive which combined hydroxyapatite

研究代表者

星加 知宏 (Hoshika, Tomohiro)

岡山大学・大学病院・助教

研究者番号：20609953

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：ボンディングレジンにHApを配合した試作ボンディング材について検討を行った。
1)：機械的性質への影響：配合量を増加させることで吸水および溶出量が抑制される傾向が見られた。2)：象牙質接着における影響：同一保管期間内で同象牙質群内において、明らかな差は認めなかった。また24時間と12ヶ月後の比較ではいずれの群においても接着強さは同じであった。健全象牙質と比較し脱灰象牙質に対する微小引張接着強さは有意に低かった。3)：歯髄組織への影響：HAp配合接着システム群では象牙質様の硬組織の形成が観察される切片が得られたが、サンプル数は少なく、また観察期間の検討のため、追加の実験が必要である。

研究成果の概要(英文)：In this study, I examined the experimental bonding system that combined HAp with bonding resin of the self-etching system.

1).Influence on mechanical property：The increase of the ratio of HAp combination in resin showed a tendency to inhibit amount of absorbing water and elution. 2).Influence in the dentin adhesion：There is no difference of the bond strength in same dentin group during the same storage period.In addition, the bond strength was the same by the comparison for 24 hours and for 12 months in each bonding groups.The microtensile bond strength for the decalcified dentin was significantly low in comparison with the sound dentin. 3).Influence on pulp tissue：There was the graft that the formation of the dentinoid hard tissue was observed in the HAp combination adhesion system group.However, there is little number of the samples, and an additional experiment is necessary for the further examination of the observation period again.

研究分野：保存修復学

キーワード：象牙質 接着 ハイドロキシアパタイト

1. 研究開始当初の背景

近年、う蝕に関する研究や、歯質に対する接着システムの研究・開発が進み、特に 2000 年に FDI (Federation Dentaire Internationale) が必要最小限の侵襲により歯質の保存を目指す Minimal Intervention というコンセプトを提唱して以来、それを支える優れた接着性を示す製品が多くみられるようになった。同時に抗う蝕性を高めるためにフッ素徐放性や抗菌性などの機能を付与した多機能性接着システムなどの開発が進められている。

その一方で、さまざまな要因による接着性の低下によって、修復物の脱離や辺縁漏洩、二次う蝕等の発生が報告されている。象牙質接着おける劣化の要因の一つとして、う蝕の残存した象牙質切削面や接着システムにおける歯面処理後の接着性レジンの浸透が不十分なため残存した脱灰象牙質の存在、未重合レジンの溶出などによって接着界面に微小な空隙が生じることが報告されている。この構造欠陥であるナノスペースの存在が、コラーゲン線維やレジンの加水分解やレジンの溶出を促進することから、経時的な接着界面の劣化の起始点となり、重大な影響を与える可能性が示唆されている。

2. 研究の目的

申請者はハイドロキシアパタイトの石灰化物形成誘導能に着目した。すなわち、接着界面で生じる経時的劣化の起始点である構造欠陥を抑制するために、ハイドロキシアパタイトを接着システムに用いることで、歯質の石灰化の促進や、接着界面に生じたナノスペースを石灰化物で封鎖し、コラーゲンおよびボンディング材の加水分解を抑制する可能性に着目した。ハイドロキシアパタイトは、骨や象牙質を構成する主要な無機成分であり、生体親和性に優れており、また骨組織と直接強固に結合できる生体活性材料として、骨補填材としても活用されている。さらにこ

のような生体活性材料は生体内で表面にアパタイト層を形成し、骨と結合する。また、微細な空隙への適用を目的とし、より広い表面積による高い反応性を期待し、申請者らはナノサイズのハイドロキシアパタイト粒子を用いた。

ハイドロキシアパタイトを配合することで、接着材本来の機能を維持しつつ、疑似体液浸漬条件下では長期経過により石灰化物の形成が見られるなどの効果が認められ、ナノハイドロキシアパタイト配合接着システムは石灰化物形成誘導能を持つ新規接着材料として有用な可能性が示されている。

また、高い接着性と石灰化物形成誘導能を持つことから、覆髄処置において、早期の修復象牙質形成の起点となりうる、かつ十分な物理的強度を有した覆髄材として有用な可能性も示している。

今後、さらなる比較・検討を通じて、より一層の機能解析を行い、接着性修復物の長期耐久性の向上への足掛かりをつかみたい。

3. 研究の方法

本研究では、ハイドロキシアパタイトが接着性修復物の耐久性および歯髓組織へ与える影響について検討した。

(1). 接着材へのハイドロキシアパタイトを配合することによる機械的性質への影響

セルフエッチングシステムのボンディングレジンにナノサイズのハイドロキシアパタイトを配合することによるボンディング材の機械的性質への影響について検討を行った。

セルフエッチングボンディングシステムのボンディング材にフィラーを含まないものを試作し、そこにハイドロキシアパタイトを配合したものを試作ボンディング材として用いた。ハイドロキシアパタイトの配合量を 0%、5%、10% と変えそれぞれのボンディン

グ材をモールドに流し込み、直径 6mm 厚さ 0.5mm のディスク状に硬化させ、水中浸漬およびその後の乾燥による重量変化を分析天秤 (AUW220D, 島津製作所) を用いて重量の変化が見られなくなるまで継時的に測定することで吸水率 (water sorption) と溶出率 (solubility) への影響を検討した。

(2). 試作接着システムの象牙質接着における影響

接着に用いる象牙質は、健全象牙質と、人工脱灰象牙質 (う蝕象牙質モデル) の 2 種類を用いて研究を行った。

脱灰象牙質はヒト大白歯を歯軸に対し垂直方向に歯冠中央部までモデルトリマーを用いて削除後、露出象牙質面を耐水研磨紙 #600 まで研磨し、象牙質露出面を除いたすべての歯面をネイルパーニッシュでコーティングした後、1N KOH で pH5.0 に調整した 2.2mM CaCl₂、2.2mM Na₂HPO₄、50mM CH₃COOH 含有脱灰溶液に 5 日間浸漬し脱灰させたものを脱灰象牙質とした。

ハイドロキシアパタイトの配合量と初期接着性の関連

#600 耐水研磨紙で研磨したヒト大白歯歯冠部露出象牙質に対して、従来製品 (MB) および、試作ボンディング材を適用し、コンポジットレジンで築盛した。その接着試料を 24 時間 37 °C で水中保管した後、硬組織精密低速切断機 (Isomet low speed saw, Buehler Ltd, Evanstone, IL, USA) を用いて接着界面に垂直に厚さ約 0.7mm の連続切片に切り出し、更に切片を接着面積が約 0.7mm × 0.7mm のビーム状になるように切断し、微小引張接着試験を行い、比較した。

また、合わせてその接着界面を走査電子顕微鏡で観察し、その形態を比較した。

ハイドロキシアパタイトの配合量と長期接着性の関連

上記の方法で作成した試料を、棒状に切断した後、12 ヶ月間 37 °C の疑似体液 (SBF) に

浸漬・保管した。その後、微小引張接着試験を行い、ハイドロキシアパタイト配合による接着強さへの影響を検討した。

また、その接着界面を走査電子顕微鏡で観察し、その形態を比較した。

(3). 直接覆髄材として用いた際の歯髄組織への影響

試作接着材を覆髄材として用いて、ラット大白歯に点状に露髄させた窩洞を作成後、同部位に試作ボンディング材を用いて充填を行い、直接覆髄モデルとして、3 週間経過後、歯髄組織の反応を顕微鏡下で観察し、その形態を比較した。

4. 研究成果

(1). 接着材へのハイドロキシアパタイトを配合することによる機械的性質への影響

0~10% へと配合量を増加させることで吸水および溶出量が抑制される傾向が見られた。

	water sorption (wt%)	solubility (wt%)
MB	6.53 ± 0.52	-0.55 ± 0.54
HAp 0%	7.31 ± 0.25	-0.47 ± 0.23
HAp 5%	6.25 ± 0.25	-0.58 ± 0.26
HAp 10%	5.57 ± 0.57	-0.59 ± 0.54

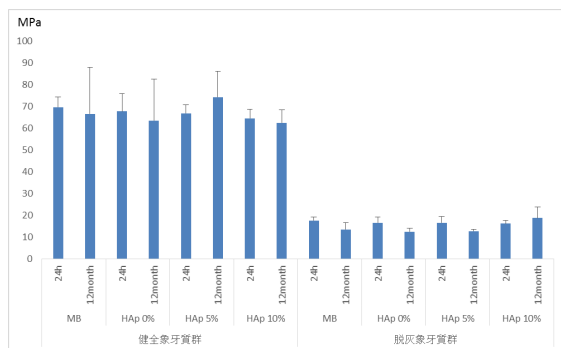
(2). 試作接着システムの象牙質接着における影響

24 時間後、12 ヶ月後の微小引張試験強さはともに同象牙質群内において、0%、5%、10%、MB それぞれ明らかな差は認めなかった。保管期間の比較では、微小引張接着強さは 12 ヶ月の観察期間でいずれの群においても接着強さは同じであった。

一方健全象牙質と比較し脱灰象牙質に対する微小引張接着強さは有意に低かった。

また、引張接着試験後の破断面形態観察には、脱灰象牙質に対する HAp5%・10%群において一部の試料で石灰化物様の結晶構造物の形成が確認された。このことから、接着界面の劣化によって生じる微小空隙への石灰化物形成による封鎖の可能性が示唆され

た。



(3) 試作接着システムの歯髄組織への影響

HAp 配合接着システム群では充填物直下に象牙質用の硬組織の形成が観察される切片が得られた。しかしながら、サンプル数が少なく、また充填後の実験期間の検討のため、追加の実験が必要である。

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 2件)

Hoshika T, Nishitani Y, Yoshiyama M, Key WO 3rd, Brantley W, Agee KA, Breschi L, Cadenaro M, Tay FR, Rueggeberg F, Pashley DH. Effects of quaternary ammonium-methacrylates on the mechanical properties of unfilled resins. Dent Mater. 査読有, Nov;30(11) 2014. pp1213-23.

DOI: 10.1016/j.dental.2014.08.365.

Nishitani Y, Hosaka K, Hoshika T, Yoshiyama M, Pashley DH. Effects of chlorhexidine in self-etching adhesive: 24 hours results. Dental Materials Journal, 査読有, 32(3) 2013, pp420-4.

DOI:なし

[学会発表](計 5件)

星加 知宏, 西谷 佳浩, 高橋 圭, 吉山

昌宏. 新規ワンステップボンディング材における象牙質微小引張接着強さについて. 日本歯科保存学会 2014 年度秋季学術大会(第 141 回), 山形テルサ(山形県山形市) 2014 年 10 月 30 日

Nishitani Y, Hoshika T, Yoshiyama M, Pashley D: Effects of incorporating cross-linking agent into all-in-one adhesives, IADR-SEA Annual meeting 2014, Kuching(Malaysia), 2014 年 8 月 13 日.

高橋 圭, 星加 知宏, 西谷 佳浩, 吉山 昌宏. 新規光硬化型動揺歯固定材料の接着強さと接着耐久性の評価. 日本歯科保存学会 2014 年度春季学術大会(第 140 回), 滋賀県立芸術劇場 びわ湖ホール(滋賀県大津市). 2014 年 6 月 20 日

Shimizu H, Nishitani Y, Hoshika T, Yoshiyama M: Evaluation of the dentin permeability of the four dentin desensitizers, 43rd Annual Meeting & Exhibition of the AADR/38th Annual Meeting of the CADR, Charlotte (U.S.A), 2014 年 3 月 22 日.

高橋 圭, 西谷 佳浩, 星加 知宏, 吉山 昌宏. 新規光硬化型動揺歯固定材料の耐着色性の評価. 第 24 回日本歯科審美学会学術大会, 日本歯科大学生命歯学部(東京都千代田区) 2013 年 7 月 21 日,

[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:

出願年月日:

国内外の別：

取得状況（計0 件）

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

出願年月日：

取得年月日：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6．研究組織

(1)研究代表者

星加 知宏 (HOSHIKA Tomohiro)

岡山大学 岡山大学病院 助教

研究者番号：20609953

(2)研究分担者

()

研究者番号：

(3)連携研究者

()

研究者番号：