

平成 21 年 5 月 28 日現在

研究種目：基盤研究 (C)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19592202
 研究課題名 (和文) レーザー処理象牙質における最適照射条件の策定とポリ酸系接着材の新規開発
 研究課題名 (英文) Assessment of optimal irradiation parameters of adhesive properties of resinous materials and development of poly-acid based adhesives for lased dentin
 研究代表者
 富士谷 盛興 (FUJITANI MORIOKI)
 愛知学院大学・歯学部・准教授
 研究者番号：60190055

研究成果の概要：

臨床において、痛みを感じないレベルの低出力のレーザーでむし歯を削ると、その後に充填するレジン接着剤の接着性は一般に低下する。しかし、中出力～高出力で削ると痛みは感じるが、後続のレジン接着剤の接着性はあまり低下しないことを明らかにした。この研究成果より、低出力 (50 mJ/10 pps) で虫歯を注意深く除去した後、中出力 (150 mJ/ pps) でその面をもう一度レーザー照射すると (フィニッシング照射)、臨床的にほとんど痛みなく、かつ、レジン接着剤の接着性も低下しないことを見出した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2008年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

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：Er:YAG レーザー、照射エネルギー、超微細構造、象牙質接着、接着性レジン
フィニッシング照射

1. 研究開始当初の背景

(1) 本研究に関連する国内・国外の研究動向及び位置づけ

近年、QOL を考慮した齲蝕治療法の一つとして、レーザーによる齲蝕除去に関する研究がなされるようになってきた。とくに、レーザー処理象牙質に対するレジン接着剤の接着性に関する研究は、「歯牙硬組織切削用」レーザー装置 (とくに Er:YAG レーザー) が高価であり普及していないこと、平坦な被着面を調製できないので実験手技が煩雑な微小引

張り試験に依らなければならないことなどの理由から国内外を通じて一部の機関が遂行しているのみである。

また、それらのほとんどが、複数のレーザーを用いて、種々のシステムのボンディング材の象牙質接着性を検討しただけで、レジン接着剤の接着性向上に効果的に寄与する戦略は十分に整っていないのが現状である。すなわち、バー切削面とは異質のレーザー処理面の性状を種々の機器を用いて多様な角度から超微細構造学的、分析化学的に詳細に検討し、

さらにレジンの接着耐久性をも考慮した最適な照射条件を検索した研究は見当たらない。

一方、レーザー処理面に対する新規接着材開発の必要性は、当該分野の研究を遂行している研究機関より指摘されているものの、基本的にはレジン系接着材に関するものがほとんどで、現在のところ歯面処理剤や機能性モノマーの工夫に留まっているものが多い。ところが、いわゆるハイブリッド層とは異なった接着機構を有するガラスアイオノマーセメントの概念を取り入れたポリ酸系モノマーを展開するような着想を有した研究は見当たらないのが現状である。

(2) これまでの研究成果を踏まえ着想に至った経緯

市販の接着システムは、スマア層の処理を前提に開発されているため、スマア層のないレーザー処理面には安定した接着効果は得られない。さらに、痛みなく使用可能な照射条件では、種々の構造欠陥や熱変性層が生じ構造学的変化を来しているため、これらの処理も含めレーザー専用の接着システム開発の必要性を申請者らは明らかにした（新谷他、日歯医学誌、2003、Fujitani M et al., Excerpta Medica ICS 1248, 2003）。

一方、レジンの接着性は低下しないとの報告も見られ混乱を来しているが、それら照射面の性状変化に関する詳細な超微細構造学的・分析化学的考察は加えられていないのみならず、接着性が低下しない明確な科学的根拠が提示されていない。

そこで申請者らは、両者の実験条件を比較検討し、照射エネルギーが大きいとその影響は表層に限局され、レジンの接着性はあまり低下しないこと、また、レジンモディファイドガラスアイオノマーセメントの接着性は照射エネルギーにあまり影響されず安定していることを明らかにした（富士谷、日歯誌、2006）。

以上の背景を踏まえ、最適照射エネルギーの策定とポリ酸モディファイドレジンのレーザー専用接着剤の開発を目指すという着想に至った。

2. 研究の目的

歯牙硬組織切削に最適なレーザーのひとつである Er:YAG レーザーを用い、照射された象牙質面において最もダメージの少ない最適照射条件を策定すること、ならびに GIC の性質を有したレーザー専用のポリ酸モディファイド新規接着システムの骨格を検索することを目的とした。

具体的には、主として Er:YAG レーザーの照射エネルギーをさらに細かく変化させ、象

牙質表層の構造学的・分析化学的变化をさらに詳細に検討した。また、レジンの接着性向上を指向して、異なるエネルギーの照射を併用した場合の表層の性状変化とレジンの接着性を比較検討し、最適照射エネルギーの策定を行った。さらに、接着性の低下しなかった GIC の性質を有したレーザー専用の新規接着システムの基本骨格の設計を行った。

被着面の性状解析は、ハイドロキシアパタイトとマトリックスコラーゲンに注目して種々の機器を用いて超微細構造学的ならびに分析化学的に行った。さらに、既存の接着システムとの接着界面の様相も同様に検討し、これらの整合性を検策することにより最も侵襲の少ない照射エネルギーを策定すると共に、レーザー処理象牙質におけるレジンの接着性向上のための因子や方策を具体的に検討した。

新規接着剤は、低分子のジカルボン酸モノマー、フッ化アルミノシリケートガラスを基本骨格とし、水の配合比を変化させガラスアイオノマーセメントの性質を有するポリ酸モディファイドレジ系新規接着剤の開発を目指した。

以下に、年度ごとの研究目的について具体的に記載した。

【平成 19 年度】 歯牙硬組織切削に最適なレーザーである Er:YAG レーザーにより照射された象牙質面において最もダメージの少ない最適照射条件を策定することを目的とした。

すなわち、照射エネルギーを細かく変化させ、象牙質表層の変化をハイドロキシアパタイトとマトリックスコラーゲンに注目して種々の機器を用いて超微細構造学的ならびに分析化学的に検討した。さらに、既存の接着システムとの接着界面の様相も同様に検討し、これらの整合性を検策することにより最も侵襲の少ない照射エネルギーを策定すると共に、レーザー処理象牙質におけるレジンの接着性向上のための因子や方策を具体的に検討した。

【平成 20 年度】 歯牙硬組織切削に最適で厚労省の許認可を受けたレーザーである Er:YAG レーザーにより、痛みなくレジンの接着性も低下させないという蝕除去法の確立を最終目的とする。

当該年度は、本レーザーにより照射、蒸散された象牙質において最もダメージの少ない照射方法を開発し、当該面におけるレジンの接着性を検討することによりレーザー専用の新規接着システムの設計を行うことを目的とした。

すなわち、平成 19 年度は、照射エネルギーを細かく変化させその象牙質に対する侵襲の程度を分析したが、本年度は痛みの出現

は少ないが熱変性層の発生が避けられない低出力によるレーザー照射をベースとし、それに他の照射条件を組み合わせることにより、痛みの発生が少なくかつ熱変性層の生成も克服可能な臨床的でかつ侵襲の少ない照射方法を開発する。さらに当該照射面におけるレジンの接着性も検討し、レーザー専用のボンディング材の設計を試みた。

3. 研究の方法

(1) 平成 19 年度

1) 各種照射エネルギー下におけるレーザー処理象牙質表面の性状変化の超微細構造学的・分析化学的検討

主として Er:YAG レーザーにより、低、中低、中高、および高出力照射された象牙質表面の亀裂や層状構造物を、SEM 観察に加え AFM を用いて湿潤状態で観察し、亀裂や表面の Profile を検討した。

また、表面のアパタイトならびにコラーゲンの組成変化を XPS を用いて分析化学的に検討し、さらに、低出力照射後、引き続き高出力照射した正常象牙質表面の性状変化を同様に検討した。

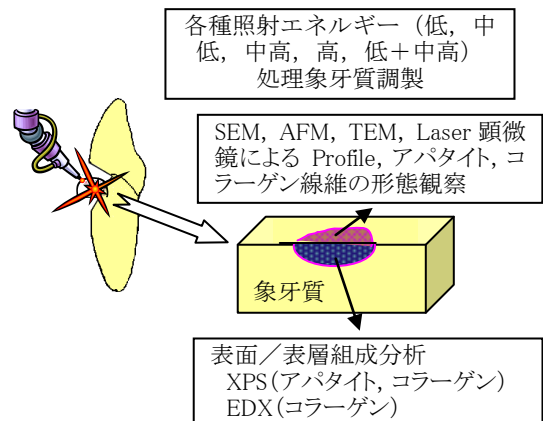
2) 各種照射エネルギー下におけるレーザー処理象牙質表面の性状変化の側視断面における超微細構造学的・分析化学的検討

各種照射面の側視断面を、主として TEM により検討した。その際、脱灰切片および非脱灰切片の両者を比較検討し、アパタイト結晶とマトリックスコラーゲンの蒸散量と破壊程度も併せて検索した。また、組成変化は EDX により検討した。

3) 各種出力で照射したレーザー処理象牙質におけるレジンの接着性の検討

c-factor も考慮した WSD 窩洞におけるレジンの接着強さを μ TBS 法により検討し、また、破壊形態を SEM 等で観察し、応力集中部位を検索した。

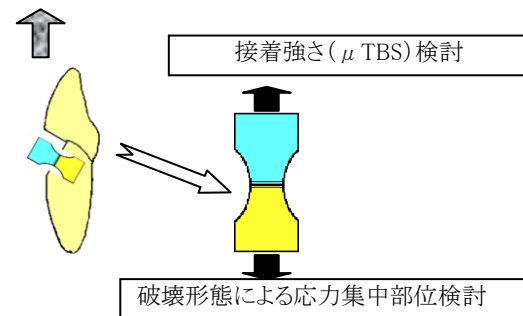
以上の成果より、各種出力で照射したレーザー処理象牙質の性状変化とレジンの接着性能の整合性の検討、ならびに侵襲が極小でかつレジンの接着性のほとんど低下しない最適照射エネルギーの策定を行った。



最も侵襲の小さい照射出力検討

最適照射エネルギーの策定

接着性の低下しない照射出力検討



(2) 平成 20 年度

1) 各種出力で照射したレーザー処理象牙質面におけるレジンの接着性の検討

回転切削器具により形成された WSD 窩洞の窩壁面を各種出力でレーザー照射し、それぞれの面におけるレジンの接着強さを μ TBS 法により検討した。

また、破壊形態を SEM 等で観察し、応力集中部位の観察と応力分散の対策を図った。

2) 低出力照射後、中出力で同一部位を追照射 (フィニッシング照射) した象牙質表面ならびに表層の性状変化の超微細構造学的検討

低出力照射された象牙質面を中出力でフィニッシング照射し、その表面の profile を走査電子顕微鏡により他の照射条件のそれと詳細に比較検討した。

また、フィニッシング照射された照射面の側視断面を、透過電子顕微鏡により検討した。その際、非脱灰未染色切片を作成し、アパタイト結晶とマトリックスコラーゲンの蒸散量と破壊程度も併せて検討した。

3) フィニッシング照射された象牙質におけるレジンの接着性の検討

フィニッシング照射された WSD 窩洞におけるレジンの接着強さを μ TBS 法により検討した。また、破壊形態を SEM 等で観察し、応力集中部位の観察を行った。

4) ジカルボン酸系モノマーあるいはホスホン酸系モノマーのフィニッシング照射された象牙質に対する接着性の検討とレーザー専用のボンディング材の設計

疎水基の長い構造を持つジカルボン酸系モノマーやホスホン酸系モノマーにフッ素徐放性の S-PRG フィラー配合のボンディング材の接着性を検討した。

その結果をもとに、ポリ酸系セルフエッチングシステムのボンディング材の設計を行った。

4. 研究成果

(1) 概要

レーザー処理象牙質におけるレジンの接着性は一般に低下するが、照射エネルギーによりその影響は異なる。そこで Er:YAG レーザー照射エネルギーの大きさを変化させてレーザー処理象牙質とレジンの接着性を比較検討するとともに、至適照射条件を設定することを目的としてそれぞれの照射条件における象牙質表層の超微細構造を観察した。

低出力照射 (50, 100 mJ/10 pps) 象牙質表層では、外形不明瞭で横紋構造が消失し変性したコラーゲン線維を有する無定形の一層が観察された。中出力 (150 mJ/10 pps) および高出力照射 (200, 250 mJ/10 pps) では、低出力照射群で観察された無定形の層はほとんど生成されず、正常象牙質との識別が困難であり、部分的にコラーゲン線維が断裂した様な像が散見された。一方、接着試験では、低出力照射はレジンの接着性が有意に低下したが、中出力ならびに高出力照射では、低出力照射で観察されたほどの低下は観察されなかった。

照射エネルギーが小さいとレーザー照射の影響を受けた変性象牙質が蒸散しきれず表層にとどまり、結果的にレジンの初期接着性を低下させたものと考えられた。コラーゲン線維への侵襲度を考慮すると、中出力照射が適当と考えられた。

これらを要約すると、レーザー処理象牙質におけるレジンの接着性を低下させない照射条件の策定を図ったところ、中出力照射が象牙質表層のコラーゲン線維への侵襲度が小さく、レジンの接着性も低下させないことが判明した。

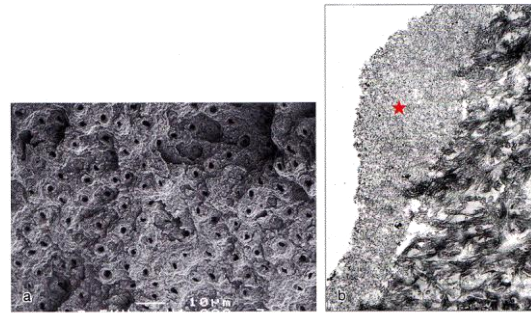
以上の経緯を踏まえ、痛みもなくレジンの接着性も低下させないレーザー照射法を開発するとともに、当該処理面に最適なレーザー専用ボンディング材の開発を指向して研究を遂行した。

一般に痛みをほとんど感じない低出力 (50 mJ/10 pps) で照射した後、中出力 (150 mJ/10 pps) で「フィニッシング照射」された象牙質においては、部分的にコラーゲン線維が断裂した様な像が散見されたのみで正常象牙質との識別が困難であり、低出力照射群で観察された無定形の層は認められなかった。一方、接着試験では、低出力照射によりは低下したレジンの接着性が、フィニッシング照射を施すと有意に上昇したが、無処理の面より低かった ($p<0.05$)。

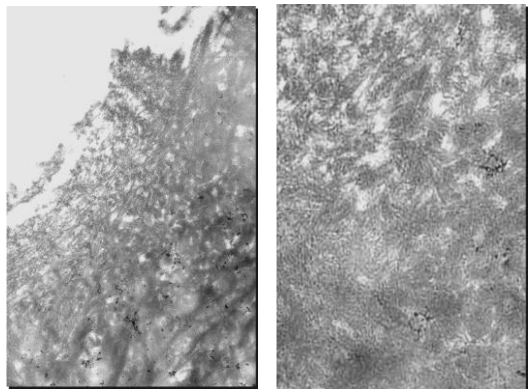
照射エネルギーが小さいため蒸散しきれ

ずに残存した変性層が、中出力のフィニッシング照射により蒸散した結果、レジンの接着性が回復したものと考えられた。一方、フィニッシング照射された象牙質面におけるレジン添加型 G I C の接着性は、無処理の面と変わらず、ポリアシッド系のモノマーの有効性が確認された。

これらのことを踏まえ、今後は、モノマーの構造や配合などの条件を検討する予定である。



a : SEM像。スミヤ層は形成されず、象牙細管は開口している。また、亀裂や層状構造物など構造欠陥が生じている。
b : TEM像。象牙質コラーゲンが破壊され、境界明瞭で無構造な変性層が生じている (★)。いわゆる「レーザーエッチング」による接着促進効果は認められないどころか、構造欠陥や熱変性層により接着性は低下する。



低出力照射 (50 mJ/pulse) + フィニッシング照射 (150 mJ/pulse) で照射された象牙質表層の TEM 像。コラーゲン線維が引きちぎられたような像が認められるが、性状はほぼ正常のように思われる。

(2) 得られた成果の位置づけとインパクト、今後の展望

レーザー処理象牙質におけるレジンの接着性に関する研究は接着強さの検討や接着界面の SEM, TEM 観察がほとんどであり、また、性状変化は EPMA 等を用いた Ca, P の濃度変化検討に留まる研究が多い。このような状況下で、我々は AFM, TEM や超深度形状測定レーザー顕微鏡による超微細構造学的解析、ならびに X 線光電子分析装置 (XPS), EDX や EPMA を用いた分析化学的解析を遂行しており、有機的に解析した豊富な基礎データを所有しているところに特徴がある。

さらに、それらの手法を用いて被着面の性状変化をレジンの接着性向上に応用し、レー

ザー専用の接着材の新規開発に活かそうとする試みは極めて独創的である。すなわち、パー切削面とは性状の異なるレーザー処理面においてレジンの接着性向上を目指すには、レーザー照射面の変化を多角的に知る必要があるという当然のことではあるが原点に戻ることに特色を有する。

また、ガラスイオノマーセメントの接着安定性により着想したポリ酸系レジ接着材は、水の配合比を変化させることによりガラスイオノマーセメントのコンセプトが導入できる接着材である。さらに、脱灰力の比較的強いリン酸エステル系モノマーも混合併用することは、レーザーの影響を多少なりとも被った層の処理をも指向したボンディング材として極めて独創的であり、このような接着材に注目したことに本研究の特色がある。

また、レジンの接着機構に関する従来の研究は、被着面がスマエ層の存在する切削面であることからそのパラメータは接着システムであった。しかし、本研究ではレーザー処理によりパー切削面とは性状の全く異なる被着面もパラメータとして使用できるため、異なった被着面に対する新たなボンディングレジンや従来型のボンディングレジンの接着の様相を比較検討することにより、レジンの歯質接着機構解明にも大きく貢献することができよう。

さらに、レーザーによる侵襲の少ない歯質切削、ならびに専用の接着剤を併用することで、齲蝕治療の QOL 向上に大きく寄与するものと思われ、新たな齲蝕治療法の確立が可能のものと考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 5 件)

1. 富士谷盛興：う蝕予防／初期う蝕進行抑制 —Er:YAG レーザーを用いて。日本歯科評論，査読無，増刊号，2008，180-181.
2. 富士谷盛興：う蝕処置 —Er:YAG レーザーを用いて。日本歯科評論，査読無，増刊号，2008，50-51.
3. 播磨貴裕，富士谷盛興，峯岡 茜，西村英紀：Er:YAG レーザーによりフィニッシング照射された象牙質における界面の超微細構造とレジンの接着性。日本レーザー歯学会雑誌，査読無，19，2008，96.
4. 峯岡 茜，播磨貴裕，富士谷盛興，西村英紀：レーザー処理象牙質におけるレジンの接着 —最適照射条件の策定—。日本歯科保存学雑誌，査読無，50，2007，158.
5. 播磨貴裕，富士谷盛興：レーザー処理象牙質における界面の超微細構造とレジンの接着性 —照射エネルギーの相違が及ぼす影響—。日本レーザー歯学会雑誌，査読無，18，

2007，55.

〔学会発表〕(計 4 件)

1. 成橋昌則，森田有香，青山則夫，堀江卓，山田三良，富士谷盛興，千田彰：炭酸ガスレーザー照射された象牙質における接着性セメントの接着性能について。日本歯科保存学会 2008 年度秋季学術大会 (第 129 回)，2008.11.6-7，富山市.
2. 富士谷盛興：レーザーを使ったコンポジットレジン接着修復の要点。第 19 回日本歯科審美学会，2008.10.12-13，新潟市.
3. 青山剛大，中野健二郎，成橋昌剛，山田三良，富士谷盛興，小島卓，千田彰：低出力レーザー照射が腫瘍細胞に及ぼす影響 第 1 報 He-Ne レーザー照射が細胞の増殖能に及ぼす影響について。第 20 回日本レーザー歯学会，2008.9.20-21，大阪市.
4. 播磨貴裕，富士谷盛興，峯岡 茜，西村英紀：Er:YAG レーザーによりフィニッシング照射された象牙質における界面の超微細構造とレジンの接着性。第 19 回日本レーザー歯学会，2007.11.24-25，鶴見市.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

富士谷 盛興 (FUJITANI MORIOKI)

愛知学院大学・歯学部・准教授

研究者番号：60190055

(2) 研究分担者

① 千田 彰 (SENDA AKIRA)

愛知学院大学・歯学部・教授

研究者番号：80097584 (2008 年度参画)

② 播磨 貴裕 (HARIMA TAKAHIRO)

広島大学・病院・助教

研究者番号：90343293 (2007 年度参画)

③ 西村 英紀 (NISHIMURA FUSANORI)

広島大学・大学院医歯薬学総合研究科・教授

研究者番号：80208222 (2007 年度参画)