

## 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 4 月 20 日現在

機関番号：17301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009 ～ 2011

課題番号：21592425

研究課題名（和文） ビタミンにより象牙質接着を革新する新規プライマーの開発

研究課題名（英文） Development of the new primer which reforms dentine adhesion with vitamin

研究代表者

添野 光洋（SOENO KOHYOH）

長崎大学 大学院医歯薬学総合研究科・助教

研究者番号：50315256

研究成果の概要（和文）：

有機質コラーゲンを化学的に除去した象牙質表面に対する、ビタミン剤含有新規プライマーを開発し、その作用機序を明らかにするとともに、コラーゲンを高分子材料で置換することによって、接着耐久性が改善できることを証明した。そして、長期的な歯質の保存可能な表面処理法の臨床応用を実現した。

研究成果の概要（英文）：

While developing the vitamin tablet content new primer to the dentine surface which removed organic collagen chemically and clarifying the action mechanism, it proved that bond durability is improvable by replacing collagen by a polymer material. And clinical application of the surface treatment method which can save long-term tooth quality was realized.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2010 年度	600,000	180,000	780,000
2011 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

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：保存修復学

## 1. 研究開始当初の背景

歯質は、エナメル質に比べ象牙質に対する接着が困難であり、臨床で十分に満足できる技術は存在していない。臨床では、単に補綴物の脱離だけではなく、歯根の破折や二次齲蝕などによ

り、歯冠修復物を長く機能させることができない症例がみられる。これは、象牙質と合着用材料との接着耐久性が良好でない場合に起こりやすく、従って、長期にわたって接着力を発現する接着システムの確立が急務である。

接着性レジンとは、3元系重合開始剤を採用しているリン酸エステル系レジンや、有機ホウ素重合開始剤を採用しているカルボン酸系レジンがある。それぞれに用いられる象牙質の表面処理剤は異なっているが、カルボン酸系の4-META/MMA-TBBレジンでは、10%クエン酸と3%塩化第二鉄で表面処理（10-3処理）した象牙質との間に耐酸性のある樹脂含浸層を形成し、接着する。

しかし、10-3処理は、リン酸処理に続く次亜塩素酸ナトリウム処理（ADゲル法）に比べ、仮着材などの接着阻害因子の影響を受けやすく、接着界面のコラーゲンが徐々に加水分解されると長期間の接着耐久性が望めないといった欠点がある。一方、ADゲル法は、接着剤にリン酸エステル系レジンを用いた場合のみ有効であり、4-META/MMA-TBBレジンを用いた場合は、接着強度が低いことが示されている。すなわち、有機質コラーゲンを化学的に除去した象牙質表面に対して、カルボン酸系レジンを接着せしめる表面処理剤が存在しない。これは、象牙質表層に残留する次亜塩素酸ナトリウムが原因と考えられている。水溶性ビタミンであるアスコルビン酸が次亜塩素酸ナトリウムを中和、還元することや、塩化第二鉄が接着界面におけるレジンの重合を促進する作用があることは、公知の事実であり、我々は、以前より、アスコルビン酸と塩化第二鉄が次亜塩素酸ナトリウムの悪影響を打ち消すことを報告してきた

## 2. 研究の目的

アスコルビン酸は水に溶解後の保存安定性が悪いため、臨床応用は現状のままでは困難であることがわかった。また、すべての処理に水洗を含み、操作ステップが多い。このシステムを確立させるためには、臨床応用を実現するためには、表面処理材の保存安定性を高めるとともに、少しでもステップを少なくする工夫が必要である。

一方、アスコルビン酸は、エタノールやアセトン、HEMAといったプライマーに含まれる代表的な溶媒には溶解しない。ところが、プライマーに含まれる代表的な溶媒である2-hydroxyethyl methacrylate (HEMA)に脂溶性のビタミンE（トコフェロール）は溶解する。そこで、HEMAとビタミンEの水溶液に、塩化第二鉄を含有させた試作プライマー液を作製し、リン酸、次亜塩素酸ナトリウムで処理した象牙質に試作プライマーを塗布、4-META/MMA-TBBで接着させたところ、次亜塩素酸ナトリウムの悪影響を受けないことを突き止めた。さらに、この試作プライマーは、保存安定性も高く、水洗ステップも省ける可能性が非常に高い。

トコフェロールの次亜塩素酸ナトリウムへの還元作用、および、レジンモノマーのラジカル重合への効果的な関与を明らかにし、有機質コラーゲンを除去した象牙質表面に対して、レジンを耐久性良く接着できる方法を開発し、その接着メカニズムを解明する。

## 3. 研究の方法

トコフェロールやアスコルビン酸などのビタミン剤と塩化第二鉄を組み合わせた象牙質表面処理剤を試作し、接着試験によってそれぞれの至適濃度を求める。至適濃度の試作プライマーを用いて繰り返し荷重試験や長期水中試験を行う。そして、それらの試料に対して、接着メカニズム解明のために接着界面の形態的な観察や局所的な物性試験を行う。

### 1. 接着試験

- a. 試作表面処理材の調整、
- b. 試料作製、
- c. 微小引張り接着試験

### 2. 接着界面の観察

(接着メカニズムの分析)

- a. 接着界面硬さ試験、
- b. LVDTによる測定、
- c. SEM観察、
- d. TEM観察

### 3. 接着耐久試験

- a. 咀嚼シミュレーション装置による繰り返し荷重試験
- b. 長期水中浸漬試験

### 4. 研究成果

走査型電子顕微鏡観察からは、AD ゲル法によって石灰質内部のコラーゲンまでもが溶解除去された結果、多孔質になっていることがわかっている。その穴にレジンが浸透、硬化し、象牙質の石灰質とレジンの直接的な結合の結果、接着力が発現するとかんがえられる。したがって、接着界面の有機質コラーゲンが加水分解されることによる接着の劣化 (Nano-leakage) は生じにくく、エナメル質接着に近い、強固で耐久性のある接着となる。そして、それは AD ゲル法の後に、還元作用のあるビタミンと鉄イオンを共に溶解して成る象牙質用新規プライマーを用いることによって実現できた。これは、脱灰された象牙質表層にレジンが浸透、硬化して樹脂含浸層が形成されるのと好対照である。この層は、象牙質表層のコラーゲン線維網を高分子材料で置換した生体傾斜材料とも言えるであろう。接着耐久性が改善されたうえ、接着界面が脱灰されにくく 2 次カリエスの抑制効果も期待できる。

### 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 1 件)

Taira Y, Soeno K.

The effect of a peroxidase primer on bond strength of three luting systems to dentin.

Eur J Oral Sci. 2009 Aug;117(4):479.

[学会発表] (計 4 件)

添野光洋, 平 曜輔, 澤瀬 隆

象牙質とボンディング剤との接着における繰り返し荷後の引張り接着強さ

添野光洋, 平 曜輔, 澤瀬 隆

象牙質と 4-META/MMA-TBB レジンの微小引張り接着強さにおける還元剤含有表面処理剤の効果

江越貴文, 添野光洋, 平 曜輔, 澤瀬 隆

純チタンとレジンセメントの接着におけるプラズマ処理の効果

江越貴文, 添野光洋, 平 曜輔, 澤瀬 隆

純チタンと前装用レジンの接着におけるプラズマ処理の効果

[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:

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

添野光洋 (SOENO KOHYOH)

長崎大学・大学院医歯薬学総合研究科・助教  
研究者番号: 50315256

#### (2) 研究分担者

澤瀬 隆 (SAWASE TAKASHI)

長崎大学・大学院医歯薬学総合研究科・教授  
研究者番号: 80253681

平 曜輔 (TAIRA YOHSUKE)

長崎大学・大学院医歯薬学総合研究科・  
准教授

研究者番号: 40226725

伊藤修一 (ITO SHUICHI)  
北海道医療大学・歯学部・准教授  
研究者番号：50382495

(3)連携研究者

江越貴文 (EGOSHI TAKAFUMI)  
長崎大学・大学院医歯薬学総合研究科・  
大学院生  
研究者番号：なし