

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 16 日現在

機関番号：12602

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23792165

研究課題名(和文)接着破壊メカニズムの3次元動的解析 - 疎水性接着システム開発への応用 -

研究課題名(英文)The dynamic analysis of the fracture mechanism of resin-dentin bond

研究代表者

保坂 啓一 (HOSAKA, KEIICHI)

東京医科歯科大学・医歯(薬)学総合研究科・助教

研究者番号：80451946

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：本プロジェクトは、レジン - 象牙質接着界面の破壊メカニズムを解析し接着耐久性を兼ね備えた新しい接着システムの開発へ応用することを目的として行われた。微小試料の超高速現象の観察に必要な撮影技法の開発によって、微小接着試験中の接着界面におけるき裂進展または開口さらには接着界面における接着界面構成要素の破片の飛散などの超高速破壊現象の可視化に成功し、疎水性の高いボンド層でつくられるレジン - 象牙質接着界面の破壊様相が接着システムに依存することが明らかとなった。さらなる接着破壊メカニズムの解明は、臨床における適切な材料選択や新しい接着システム・接着技法の開発に貢献するものと期待される。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this project was to develop a innovative ultra-high-speed photography technique and investigate the fracture phenomena of the resin-tooth interface, especially resin-dentin interface for improving the durability of the adhesive restorations. The fracture phenomena like crack propagation or opening, and flying fragments within the resin-dentin interface could be successfully visualized by this technique. From the results of this study, the crack location of the resin-dentin interface depends on the adhesive systems. Understanding of the fracture mechanism aids in the selection of the adhesive systems for clinical applications and in the development of new adhesives.

研究分野：保存修復学

科研費の分科・細目：歯学・保存治療系歯学

キーワード：歯質接着性レジン 接着破壊

1. 研究開始当初の背景

目覚ましい接着歯学の発展に伴い、“Minimal Intervention”コンセプトに基づく保存修復治療は、臨床的有効性と経済的効率の観点から大きく期待されていた。特に接着性レジンを用いたコンポジットレジン修復は審美性と機能性を兼ね備えており、単なるう蝕治療に限らず、失活歯の修復、歯間離開の閉鎖症例、少数歯欠損症例、酸蝕歯列などさまざまな症例に応用されるようになり、その一方修復範囲は拡大していた。しかしそのようなこれまで考えられなかった大型修復症例では、接着修復破壊が起こり修復治療の長期耐久性が脅かされるような状況であった。

2. 研究の目的

接着界面の物理的な破壊メカニズムの解明は接着歯学研究における興味深いテーマの一つである。本研究の目的は、レジン—象牙質接着界面において超高速で起こる接着破壊の瞬間の動的観察を可能とする超高速撮影技術の開発、そしてその技術利用によって接着システムによる破壊様相の特徴を解析し、ボンド層を含めた接着界面の物性などの諸性質と接着破壊の関係を考察し耐久性のある接着システム・接着技法を検討することであった。

3. 研究の方法

超高速動的観察法の確立

接着破壊現象は高速現象と想定され、その観察はこれまで困難であるとされてきた。本研究では微小接着試験中の、レジン—象牙質界面の破壊について高速観察することを試みた。そのためには微小試料を撮影するための高倍率レンズ、高速現象を撮影するハイスピードカメラ、大容量の光源、録画し

た画像を再生し分析するためのコンピュータソフトウェアが必要であった。レンズはライカ社製アポズーム 1 軸レンズ、ハイスピードカメラは Vision Research 社の CMOS センサーを備えたデジタルハイスピードカメラ Phantom シリーズ (Vision Research 社) を数種使用した。光源に関しては、高速撮影には大きな光量が必要であることから高輝度メタルハライドファイバー照明 (150W) とイルミネーションパルスレーザーを用いた。得られた連続フレーム画像はカメラコントロールソフトウェア (PCC 2.0, Vision Research) 上で分析し、接着界面の破壊の瞬間のスロースピード再生を行いき裂の発生・進展、およびき裂場所について詳細に解析を行った。撮影速度は 1,000 フレーム/秒 (fps) 以上、最高撮影速度 1,000,000 フレーム/秒 (fps) で撮影し、接着試験中に起こる接着破壊の観察を行った。

接着システムによる破壊現象の違いに関する検討

ヒト健全抜去大白歯の歯冠中央部に歯軸と垂直に平坦象牙質を作製し #600 耐水研磨紙で仕上げ、被着象牙質面とした。それらを 2 群に分け、2 ステップセルフエッチングシステム、クリアフィルメガボンド (Kuraray Noritake) (SE 群)、及び 35% リン酸エッチング (10 秒) + エタノールウエットボンディング法 + クリアフィルメガボンド・ボンド (EW 群) の 2 種の歯面接着処理を行った。ボンドへの光照射は両群とも 10 秒間行い (XL 3000, 3M ESPE)、コンポジットレジンを築盛した。試料は 37℃ 水中に 24 時間保管し、ビーム型試片を切り出しクロスヘッドスピード 1mm/min にて微小引張接着試験を行った

(被着面積: 1mm²)。接着試験中の試料の破壊について高速度撮影技法を用いて動的観察した。

ソルベントフリーワンステップシステムの接着性能を向上させる因子の検討

これまで操作ステップが簡略化され臨床的に期待が寄せられてきたワンステップ接着システムであるが、残存溶媒が存在し接着耐久性を低下させる懸念があった。そこで溶媒を含有しない接着システムが開発されたが、その接着性を向上させる因子についての検討を行った。すなわちこのシステムでは象牙質表層の水分に脱灰効果を依存していることが考えられ、象牙質表層の湿潤状態が接着性能に与える影響について検討した。

4. 研究成果

微小引張接着試験中に接着界面において起こるき裂の発生と進展、開口、および微小破片の飛散などの高速度破壊現象の観察条件について、メタルハライドランプの代わりにパルスレーザーイルミネーションを用いると、試料の温度上昇を招くことなく、必要な光量を確保できることが分かった。また撮影速度を高くすれば高くするほど解像度が小さくなり接着破壊の観察が困難となることから、試料サイズと撮影速度、解像度のバランスが撮影には非常に重要であることがわかり、最高約 300,000 ~ 400,000fps 程度の超高速撮影速度での観察が可能となった。この超高速撮影により、微小引張り接着試験中におけるき裂の進展の観察に成功した。接着界面と同一平面からの動的観察は、破壊発生部位の特定に有効であった。また 3 次元観察に関しては、カメラを数台設置して、シンク口させながら撮影する手法を用いれば実現

可能性が高いことが示唆された。

破断面分析の結果と照らし合わせると、放射状に広がる波状構造が観察され、その中心はき裂の起始点と一致した。すなわち破断面の SEM 像における波状構造が破壊の進展方向を示すこと、その中心にき裂の起始点が存在することが示唆された。破壊試料における破断面観察ではき裂の起点を見つけることが重要であるが、波状構造がき裂の起始点を推測する手掛かりになる可能性が示されたとも言い換えられる。

接着システムによる接着破壊様相の違いについてであるが、SE 群と EW 群とも比較的疎水性の高いボンド層を形成し、微小引張接着強さについては、両群間に統計学的有意差は認められなかったが、接着破壊であるき裂の発生部位は両群間で明らかな違いが認められ、両者の接着メカニズムが異なることが示唆された。セルフエッチングシステムではレジン - 象牙質接着界面の接着は強固で、接着材とコンポジットレジンとの接合部の破壊が多く観察され、この部位の接着を強化することが今後より接着耐久性のある接着システムの開発に必要である。一方、エタノールウエットボンディング法を用いたトータルエッチング法では象牙質の脱灰とレジンモノマーの不十分な浸透によるものと考えられる接着破壊がレジンと象牙質の界面に発生した。このことよりトータルエッチング法では、エタノールウエットボンディング法を用いて疎水性ボンドを応用したとしても象牙質との界面が弱点になりやすいという知見が得られた。SEM 観察による破壊形態分析では SE、EW 両群ともにボンド層の凝集破壊が高い割合で認められたが、ボンド層内

部でも、CR との界面付近の破壊なのか象牙質との界面付近の破壊なのかは明らかでなく、界面と同平面からの動的破壊観察が有効であった。SE 群ではボンド層と CR との界面、EW 群では象牙質とボンド層との界面付近に、応力集中につながる欠陥構造が存在する可能性があることが示唆された。両群は同じ疎水性ボンドを採用しており、SE 群と EW 群が異なる破壊挙動を示した原因は、歯面処理方法の違いに基づく樹脂含浸層の形成メカニズムとその性質の違いによるものと推測される。両群において、ボンドの凝集破壊が多く観察されたが、象牙質や CR の 1/10 程度と報告されるボンドの機械的強度をさらに向上させることは、接着破壊の防止と更なる接着耐久性の向上に有効であると推測される。

ソルベントフリーワンステップシステムの象牙質への接着性能は、被着体である象牙質面の湿潤状態を変えるとその接着強度は有意に変化した。その結果より象牙質の乾燥程度を高くすると接着材と象牙質とのヌレが低下し接着強度が低下することがわかり、適切な湿潤状態が溶媒を含有しないワンステップシステムの接着強度に重要であることが判明した。

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9件)

保坂啓一、高橋真広、中島正俊、田上順次. ボンディングの劣化が接着耐久性の及ぼす影響. 日本歯科理工学会誌. 2013;32(4):269-272. 査読なし

Nishitani Y, Hosaka K, Hoshika T,

Yoshiyama M, Pashley DH. Effects of chlorhexidine in self-etching adhesive: 24 hours results. Dent Mater J. 2013;32(3):420-424. 査読有

Tsubone M, Nakajima M, Hosaka K, Foxton RM, Tagami J. Color shifting at the border of resin composite restorations in human tooth cavity. Dent Mater. 2012;28(8):811-817. doi: 10.1016/j.dental.2012.04.032. 査読有

Horie K, Nakajima M, Hosaka K, Kainose K, Tanaka A, Foxton RM, Tagami J. Influences of composite-composite join on light transmission characteristics of layered resin composites. Dent Mater. 2012;28(2):204-211. doi: 10.1016/j.dental.2011.10.006. 査読有

Takai T, Hosaka K, Kambara K, Thitthaweerat S, Matsui N, Takahashi M, Kishikawa R, Nakajima M, Otsuki M, Foxton RM, Tagami J. Effect of air-drying dentin surfaces on dentin bond strength of a solvent-free one-step adhesive. Dent Mater J. 2012;31(4):558-563. 査読有

Kambara K, Nakajima M, Hosaka K, Takahashi M, Thanatvarakorn O, Ichinose S, M Foxton R, Tagami J. Effect of smear layer treatment on dentin bond of self-adhesive cements. Dent Mater J. 2012;31(6):980-987. 査読有

Shinoda Y, Nakajima M, Hosaka K, Otsuki M, Foxton RM, Tagami J. Effect of smear layer characteristics on dentin bonding durability of HEMA-free and HEMA-containing one-step self-etch

adhesives. Dent Mater J. 2011;30(4):501-510. 査読有
Takahashi M, Nakajima M, Hosaka K, Ikeda M, Foxton RM, Tagami J. Long-term evaluation of water sorption and ultimate tensile strength of HEMA-containing/-free one-step self-etch adhesives. J Dent. 2011;39(7):506-512. doi: 10.1016/j.jdent.2011.04.008. 査読有
Seki N, Nakajima M, Kishikawa R, Hosaka K, Foxton RM, Tagami J. The influence of light intensities irradiated directly and indirectly through resin composite to self-etch adhesives on dentin bonding. Dent Mater J. 2011;30(3):315-322. 査読有
〔学会発表〕(計 8 件)

K. HOSAKA, Estehtic and functional direct composite restoration based on adhesive dentistry, 36th Annual Scientific Conference on Dental Research, University of Medicine and Pharmacy, Ho Chi Minh City, ベトナム、2014 年 3 月 31 日

保坂啓一、田代浩史、佐藤健人、畑山貴志、千葉彩花、高橋真広、中島正俊、田上順次 . 超高速撮影技術を用いたレジオン象牙質接着破壊の可視化、第 32 回日本接着歯学会学術大会、福岡、2013 年 11 月 30 日

K. Sato, K. Hosaka, A. Chiba, S. Thitthaweera, M. Takahashi, M. Nakajima, M. Otsuki, H. Tashiro, W. Komada, H. Miura, J. Tagami. Dentin bond strength and mechanical properties of two-step self-etch adhesives. 2nd IADR-APR, タイ、2013 年 8 月 23 日

M. Takahashi, K. Hosaka, M. Nakajima, J. Tagami, DSL. Scheffel, RM. Carvalho, A. Mazzoni, MRO. Carrilho, A. Tezvergil-Mutluay, L. Breschi, L. Tjaderhane, FR. Tay, DH. Pashley. The size-exclusion characteristics of type I collagen in dentin matrices. 2nd IADR-APR, タイ、2013 年 8 月 22 日

K. HOSAKA, M. Takanashi M, M. NAKAJIMA, Y Nishitani, DH. Pashley, J. TAGAMI. Ultra-high-speed fracture observation in resin-dentin interface under microtensile load. 6th IAD、米国、2013 年 6 月 14 日

K. HOSAKA, M. NAKAJIMA, M. TAKAHASHI, S. THITTHAWEERAT, M. OTSUKI, and J. TAGAMI, Effect of Dentin Surface Moisture on mTBS of Solvent-free 1-SEA、90th General Session & Exhibition of the IADR、ブラジル、2012 年 6 月 21 日

M. TAKAHASHI, T. WIBOONPIN, K. HOSAKA, M. NAKAJIMA, and J. TAGAMI、90th General Session & Exhibition of the IADR、ブラジル、2012 年 6 月 21 日

高井智行、保坂啓一、神原啓介、高橋真広、大槻昌幸、田上順次 被着面の乾燥状態がソルベントフリーワンステップシステムの象牙質接着性能に与える影響 第 30 回日本接着歯学会学術大会 函館 2012 年 1 月 21 日

〔図書〕(計 0 件)

なし

〔産業財産権〕

出願状況（計 0 件）

なし

取得状況（計 0 件）

なし

〔その他〕

http://aqua.tmd.ac.jp/ResDB/DispRsch/dsp_resdata.php?id=1440&la=ja

6 . 研究組織

(1)研究代表者

保坂 啓一（HOSAKA KEIICHI）

東京医科歯科大学・大学院医歯（薬）学総合
研究科・助教

研究者番号：80451946

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし