

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 15 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25462967

研究課題名(和文) 支台築造用レジンの根管象牙質に対する接着メカニズムの解明

研究課題名(英文) Effect of light intensity on bond strength and surface free energy characteristics

研究代表者

坪田 圭司 (TSUBOTA, Keishi)

日本大学・歯学部・助教

研究者番号：20386113

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：光強度が象牙質に対する支台築造レジンの接着性および支台築造レジンの歯質接着性およびアドヒージブの表面自由エネルギーに及ぼす影響に関する検討を行った。その結果、接着試験においては、光強度が200mw/cm²以下の条件で接着強さは有意に低い値を示したとともに、試験後の破壊形式では界面破壊が大勢を占めた。表面自由エネルギーにおいては、光強度が400mw/cm²以上の条件で200mw/cm²以下の条件に比較して有意に低い値を示した。以上のことから、照射光線の光強度は支台築造レジンの接着性および表面自由エネルギーに影響を及ぼすことが判明した。

研究成果の概要(英文)：This study was to evaluate the effect of light intensity on dentin bond strength and surface free energy characteristics of core build-up resins. Shear bond strength test and surface free energy measurements of adhesive treated dentin surface were done to monitor the effects of power density on the polymerization behavior of dual-cured core build-up resins. The dentin bond strength and surface free energy characteristics of the core build-up resins were affected by the power density of the curing unit.

研究分野：保存修復

キーワード：接着性 表面自由エネルギー 光強度 象牙質

1. 研究開始当初の背景

歯冠崩壊が著しい失活歯症例においては、印象採得後にメタルを用いた支台築造が用いられてきた。この支台築造法は、間接修復法によって製作されるため、技工操作に伴う制約などがあるために、便宜的な健康歯質の削除を余儀なくされている。また、メタルを用いた支台築造では、その装着のために合着用セメントを用いる必要があるが、鑄造体の適合性が不良な場合には応力集中が生じ、ひいては歯根破折などを生じる危険性が指摘されている。さらに、無髄歯における歯根破折の報告は増加する傾向にあることから、可及的に歯質を保存することによって、歯の延命を図る修復方法の確立が望まれている。そこで、金属と比較して歯に近い弾性率を有し、歯質の削除量が比較的少なく、さらに残存根管歯質の構造的な強化を目指して、これまで歯冠修復材で蓄積された接着技法を応用した直接修復法のレジン支台築造が注目されている。

しかし、これらレジン支台築造の根管内象牙質に対する接着機構に関しては、歯冠部修復用レジンのそれを応用したものであり、有機質コラーゲンに富んだ象牙前質を含んだ髓腔内象牙質に対する接着性に関しては、ほとんど解明されていないのが現状である。そこで、接着試験および表面性状の解析を行うことで接着メカニズムの解明を行うことを企画した。

2. 研究の目的

最近の齲蝕治療のコンセプトに沿った歯質保存的修復治療の一環として、失活歯の残存歯質を構造的に強化することによって、口腔内におけるその機能を保持させることを目指して、歯質接着性のあるレジンを支台として用いるために、根管内象牙質に対する接着の確立を目的とした。また、接着試験というパラメータ以外に、象牙質およびアドヒーズシステム界面性状からも検討を加えた。これらは、接着の予後に影響を及ぼす重要な因子と考えられている。界面性状の評価においては、界面化学的手法として、接触角測定器を用いて、被着対象である根管内象牙質のアドヒーズ処理後の接触角を測定することによって、表面自由エネルギーを算出し、接着界面で生じている現象あるいは接着界面を構成する部材の相互作用について評価した。

3. 研究の方法

供試したレジンコアシステムはクリアフィル DC コア オートミックス(クラレノリタケデンタル)、ユニフィルコア EM (GC)およびエステライトコアクイック(トクヤマデンタル)の合計3製品とした。可視光線照射器としてはオプチラックス 400(Kerr)を用い、スライドレギュレータに接続して光強度を 0, 200, 400 および 600mw/cm² の4条件に設定し

て使用した。

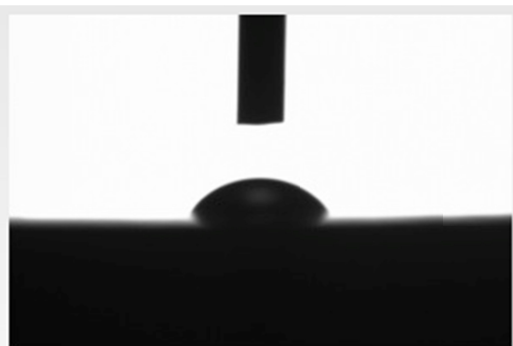
接着試験にはウシ下顎前歯をシリコンカーバイドペーパー #600 で調整したものを使用した。製造者指示条件でアドヒーズ処理を行った後、設定した光強度にて照射を行った。直径 4mm のモールドを固定し、レジンペーストを填塞、アドヒーズと同条件にて製造者指示条件時間で照射したものを接着試験用試片とした。24 時間水中保管後、万能試験機を用いてクロスヘッドスピード 1mm/min の条件で剪断接着試験を行った。各試験片の数は 10 個とし、得られた平均値と標準偏差から統計学的処理を行った。また、接着試験後の破断面の破壊形式を分類した。

電子顕微鏡 (SEM) 観察は、接着試験と同様に作成した試片をエポキシ樹脂に包埋した後、通法にて鏡面研磨を行った後、アルゴンイオネッチングおよび金蒸着を施した試片を ERA 8800-FE (エリオニクス) を用いて加速電圧 10kV の条件で SEM 観察した。

表面自由エネルギーの測定には、表面自由エネルギーが既知の液体としてプロモナフタレン、ジヨードメタンおよび蒸留水を使用した。接触角の測定は、接着試験と同様にアドヒーズ処理した試片に対して全自動接触角計 (Drop Master DM500, 協和界面科学) を用い、セシルドロップ法でそれぞれの液体を 1 μ L 滴下し、 $\theta/2$ 法で測定を行った (図 1)。



Drop Master DM500
(Kyowa Interface Science)



$\theta/2$ method

図 1 (接触角計: ドロップマスター, $\theta/2$ 法)

得られた接触角から、各被着面における表面自由エネルギーの各成分を算出した。表面自由エネルギーと接触角の関係は、液体の表面自由エネルギーを γ_L 、固体の表面自由エネルギーを γ_s 、固体液体の界面張力を γ_{SL} および接触角を θ としたとき、拡張 Fowkes の理論式 (1) で定義される。

$$\gamma_L(1+\cos \theta)=\left(\gamma_s^d+\gamma_L^d\right)-\gamma_{SL}^d=2\left(\gamma_s^d \cdot \gamma_L^d\right)^{1 / 2}-2\left(\gamma_s^p \cdot \gamma_L^p\right)^{1 / 2}-2\left(\gamma_s^h \cdot \gamma_L^h\right)^{1 / 2} \quad (1)$$

この拡張 Fowkes の理論式を用いて、コア用レジンのアドヒーズブ塗布面における表面自由エネルギー (γ_s) について、分散 (γ_s^d)、双極子 (γ_s^p) および水素結合 (γ_s^h) の各成分を、次に示す理論式から算出した。

$$\gamma_{SL}=\gamma_s^d+\gamma_L^d-2\left(\gamma_s^d \cdot \gamma_L^d\right)^{1 / 2}-2\left(\gamma_s^p \cdot \gamma_L^p\right)^{1 / 2}-2\left(\gamma_s^h \cdot \gamma_L^h\right)^{1 / 2} \quad (2)$$

$$\gamma_s=\gamma_s^d+\gamma_s^p+\gamma_s^h \quad (3)$$

$$\gamma_L=\gamma_L^d+\gamma_L^p+\gamma_L^h \quad (4)$$

4. 研究成果

光強度がコア用レジンの接着試験に及ぼす影響の成績を表1に示した。いずれのシステムにおいても光強度が低いものでその接着強さは低下する傾向を示し、0mW/cm² の条件では他の光強度と比較して有意に低い値を示した。また、200mW/cm² においては400mW/cm² 以上の条件と比較して有意に低い値を示した。光強度400と600mW/cm² においては接着強さに有意差は認められなかった。

また、接着試験後の破壊形式に関しては光強度が200mW/cm² 以下の条件では界面破壊が大勢を示したのに対して、400mW/cm² 以上の条件で、界面破壊が減少し、歯質あるいはレジンの凝集破壊が増加する傾向を示した。

表1 光強度が象牙質接着性に及ぼす影響

Code	0	200	400	600	(mw/cm ²)
DC	12.8 (1.8) 0/0/10	15.8 (1.8) 1/0/9	17.5 (2.7) 7/0/3	17.8 (3.3) 8/0/2	
UC	10.0 (2.4) 0/0/10	12.3 (2.0) 1/0/9	15.2 (1.7) 6/0/4	15.7 (2.9) 5/0/5	
EC	12.5 (2.3) 0/0/10	15.8 (2.2) 0/1/9	17.1 (2.6) 0/3/7	17.5 (1.9) 0/3/7	

n = 10, values in parenthesis indicate standard deviations.
Failure mode: adhesive failure/ cohesive failure in dentin/ cohesive failure in resin

コア用レジンと象牙質との接合面の代表例としてDCのSEM像を図2に示した。いずれの条件においても、歯質とアドヒーズブの接着界面においてギャップは認められないものの、光強度の低い条件で光強度400および600mW/cm² に比較してアドヒーズブ層は薄くなる傾向を認めるとともに、アドヒーズブとコア用レジンの界面付近では、アドヒーズブ内にコア用レジンのフィラーが混在している層が一部に観察された。また、光照射を行わない条件ではアドヒーズブとコア用レジンの境界で脆弱な層も観察された。

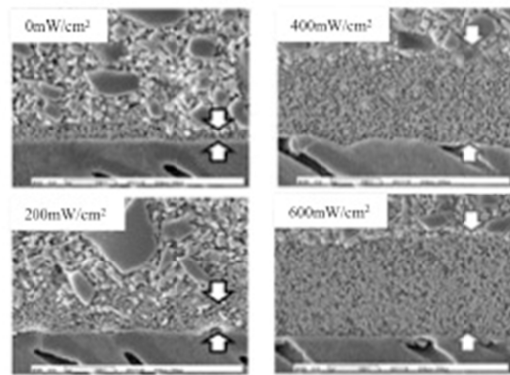


図2 コア用レジンと象牙質の接合界面 (DC)

アドヒーズブに対する照射光線の光強度がその表面自由エネルギー及ぼす影響の成績を表2に示した。

表2 表面自由エネルギー(mN・m⁻¹)

Code	Intensity	γ_s^d	γ_s^p	γ_s^h	γ_s
DC	0	41.1 (0.2)	3.1 (0.7)	24.9 (1.7)	69.1 (2.1)
	200	41.1 (0.1)	1.8 (0.5)	16.4 (1.1)	59.3 (2.0)
	400	39.8 (0.3)	0.7 (0.3)	8.9 (0.6)	49.4 (1.7)
	600	39.2 (0.2)	0.7 (0.3)	8.8 (0.6)	48.7 (1.6)
UC	0	41.1 (0.2)	5.6 (0.7)	21.0 (1.6)	67.2 (2.2)
	200	41.1 (0.3)	3.9 (0.9)	17.6 (1.2)	62.6 (2.1)
	400	40.0 (0.4)	1.4 (0.6)	14.9 (1.1)	56.3 (2.0)
	600	39.8 (0.3)	1.0 (0.6)	14.8 (1.1)	55.6 (1.8)
EC	0	40.9 (0.3)	9.1 (1.3)	21.1 (1.8)	71.1 (2.2)
	200	40.7 (0.3)	8.8 (1.3)	16.5 (1.4)	66.0 (1.9)
	400	39.8 (0.4)	7.5 (1.3)	12.1 (1.1)	59.4 (1.7)
	600	39.1 (0.3)	7.5 (1.3)	11.7 (1.1)	58.7 (1.7)

n = 10, values in parenthesis indicate standard deviations.
 γ_s^d : dispersion force, γ_s^p : polar force, γ_s^h : hydrogen-bonding force, γ_s : surface free energy

アドヒーズブの表面自由エネルギーは、いずれのレジンコアシステムにおいても光強度の上昇に伴って、有意に低下する傾向を示した。表面自由エネルギー (γ_s) を構成する成分で比較すると、分散成分では光強度による影響を受けなかったものの、双極子成分は光強度400および600mW/cm² の条件で0および200mW/cm² の条件と比較して有意に低い値を示した。また、水素結合成分も双極子成分と同様に光強度400および600mW/cm² の条件で有意に低い値を示した。

以上の結果から、支台築造レジンおよびアドヒーズブに対する光強度の違いが、歯質接着性および表面自由エネルギーに及ぼす影響について検討した結果、可視光線照射器の光強度の影響を受けることが判明した。すなわち、光強度の上昇に伴って接着強さは向上するものの、アドヒーズブの表面自由エネルギーは低下することが明らかになった。臨床に際しては、照射器の光強度が十分に到達しない部では、接着性の低下および支台築造レジンの物性が留意するとともにアドヒーズブに対する確実な光線照射が重要であることが示唆された。

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 4 件)

- (1) 清水裕亮, 辻本暁正, 柴崎 翔, 松吉佐季, 土屋賢司, 坪田圭司, 宮崎真至, 岩内伸雄 (2015) 光強度が支台築造用レジンに付随するアドヒーズブの表面自由エネルギーおよび象牙質接着強さに及ぼす影響. 接着歯学 33, 17-23. 査読あり
- (2) 田村ゆきえ, 島村 穰, 瀧本正行, 村山良介, 坪田圭司, 高見澤俊樹, 黒川弘康, 宮崎真至, 日野浦 光 (2014) 照射器光線の種類が試作 2 ステップセルフエッチシステム(KBV-100)の歯質接着製に及ぼす影響. 接着歯学 32 (1), 1-7. 査読あり
- (3) Shimizu Y, Tsujimoto A, Furuichi T, Suzuki T, Tsubota K, Miyazaki M, Platt JA (2015) Influence of light intensity on surface free energy and dentin bond strength of core build-up resins. Oper Dent 40 (1), 87-95. 査読あり, DOI:10.2341/13-283-L
- (4) Ishii R, Tsujimoto A, Takamizawa T, Tsubota K, Suzuki T, Shimamura Y, Miyazaki M (2015) Influence of surface treatment of contaminated zirconia on surface free energy and resin cement bonding. Dent Mater J 34 (1), 91-97. 査読あり, DOI:10.4012/dmj.2014-066

[学会発表](計 2 4 件)

- (1) 崔 慶一, 高見澤俊樹, 松吉佐季, 島村穰, 坪田圭司, 瀧川智義, 宮崎真至, アクティブ処理の有無がユニバーサルアドヒーズブのエナメル質接着性に及ぼす影響. 第 34 回日本接着歯学会学術大会, 2015 年 12 月 19 日, 船堀タワーホール(東京都江戸川区)
- (2) 高見澤俊樹, 辻本暁正, 坪田圭司, 野尻貴絵, 佐藤愛子, 宮崎真至, 細矢由美子, リン酸エッチングの有無がユニバーサルアドヒーズブの象牙質接着耐久性に及ぼす影響. 第 34 回日本接着歯学会学術大会, 2015 年 12 月 19 日, 船堀タワーホール(東京都江戸川区)
- (3) 島村 穰, 田村ゆきえ, 高見澤俊樹, 吉田ふみ, 大内 元, 坪田圭司, 金澤知恵, 宮崎真至, 松村正鴻, サーマルサイクリングがユニバーサルアドヒーズブの接着強さに及ぼす影響. 日本歯科保存学会 2015 年度秋季学会(第 143 回), 2015 年 11 月 12 日, 文京シビックホール(東京都文京区)

- (4) 高見澤俊樹, 坪田圭司, 川本 諒, 遠藤肇, 辻本暁正, 宮崎真至, リン酸エッチング時間がセルフエッチシステムの象牙質接着性に及ぼす影響. 第 66 回日本歯科理工学会学術講演会, 2015 年 10 月 3 日, 船堀タワーホール(東京都江戸川区)
- (5) 松吉佐季, 柴崎 翔, 土屋賢司, 坪田圭司, 黒川弘康, 瀧川智義, 宮崎真至, 金丸壽良, 根管象牙質の異なる部位におけるレジンコアシステムの接着性. 日本歯科保存学会 2015 年度春季学会(第 142 回), 2015 年 6 月 26 日, 北九州国際会議場(福岡県北九州市)
- (6) 坪田圭司, ユニバーサル接着システムの異なる被着体に対する接着性に関する検討. 日本歯科保存学会 2015 年度春季学会(第 142 回), 2015 年 6 月 26 日, 北九州国際会議場(福岡県北九州市)
- (7) Tsubota K, Takamizawa T, Miyazaki M, Latta MA, Barkmeier WW, Wear Characteristics of Flowable Resin Composite for Posterior. 93rd IADR/AADR/CADR General Session & Exhibition, Boston, 2015 年 3 月 11-13 日, Boston (USA)
- (8) Ishi R, Tsujimoto A, Iino M, Takamizawa T, Tsubota K, Miyazaki M, Influence of Surface Treatment of Contaminated Zirconia on Surface Free-energy. 93rd IADR/AADR/CADR General Session & Exhibition, 2015 年 3 月 11-13 日, Boston (USA)
- (9) Kurokawa H, Takamizawa T, Rikuta A, Tsubota K, Miyazaki M, 12 Years Clinical Evaluation of One-Step Self-etch Adhesive Systems. 93rd IADR/AADR/CADR General Session & Exhibition, 2015 年 3 月 11-13 日, Boston (USA)
- (10) 田村ゆきえ, 横川未穂, 利根川雅佳, 川本 諒, 坪田圭司, 高見澤俊樹, 宮崎真至, 日野浦 光, ユニバーサル接着システムの基本的接着性能. 第 33 回接着歯学会学術大会, 2014 年 12 月 13-14 日, ニチイ学館神戸ポートアイランドセンター(兵庫県神戸市)
- (11) 高見澤俊樹, 辻本暁正, 坪田圭司, 古市哲也, 黒川弘康, 金澤知恵, 宮崎真至, 細矢由美子, Latta MA, セルフエッチシステムの象牙質接着疲労耐久性. 第 33 回接着歯学会学術大会, 2014 年 12 月 13-14 日, ニチイ学館 神戸ポートアイランドセンター(兵庫県神戸市)

- (12) 大塚詠一朗, 竹中宏隆, 鈴木英梨子, 佐藤愛子, 土屋賢司, 松吉佐季, 坪田圭司, 宮崎真至ユニバーサル系接着システムの補修修復への応用. 第 33 回接着歯学会学術大会, 2014 年 12 月 13-14 日, ニチイ学館 神戸ポートアイランドセンター(兵庫県神戸市)
- (13) 清水裕亮, 石井 亮, 辻本暁正, 坪田圭司, 宮崎真至, 青島 裕, 光強度がデュアルキュア型支台築造用レジンの表面自由エネルギーおよび象牙質接着強さに及ぼす影響. 第 25 回日本歯科審美学会学術大会, 2014 年 11 月 22-23 日, 高松国際ホテル(香川県高松市)
- (14) 白土康司, 坪田圭司, 高見澤俊樹, 黒川弘康, 宮崎真至, 北原信也, CAD/CAM 用ブロックにおける補修修復に関する研究—コンポジットレジンとの接着耐久性について—. 第 25 回日本歯科審美学会学術大会, 2014 年 11 月 22-23 日, 高松国際ホテル(香川県高松市)
- (15) 坪田圭司, フロアブルレジンの耐摩耗性に関する研究. 日本歯科保存学会 2014 年度秋季学会(第 141 回), 2014 年 10 月 30-31 日, 山形テルサ(山形県山形市)
- (16) 白土康司, 古市哲也, 竹中宏隆, 田村ゆきえ, 市野 翔, 山路 歩, 坪田圭司, 宮崎真至, 鈴木敏裕, ユニバーサル接着システムの基本的接着性能. 日本歯科保存学会 2014 年度春季学会(第 140 回), 2014 年 6 月 19-20 日, 滋賀県立芸術劇場(滋賀県大津市)
- (17) 高見澤俊樹, 辻本暁正, 坪田圭司, 宮崎真至, バークマイヤー ウェイン, ラタマーク, セルフエッチシステムのエナメル質接着耐久性. 日本歯科保存学会 2014 年度春季学会(第 140 回), 2014 年 6 月 19-20 日, 滋賀県立芸術劇場(滋賀県大津市)
- (18) 野尻貴絵, 辻本暁正, 田村ゆきえ, 遠藤肇, 石井 亮, 坪田圭司, 升谷滋行, 宮崎真至, シングルステップアドヒーズの接着耐久性に関する界面科学的検討. 第 66 回日本大学歯学会総会・学術大会, 2014 年 5 月 18 日, 日本大学歯学部(東京都千代田区)
- (19) Tsubota K, Wear and mechanical properties of CAD/CAM resin materials. 43rd Annual Meeting & Exhibition of the AADR, 2014 年 3 月 20-22 日, Charlotte, (USA)
- (20) 白土康司, 古宅真由美, 大塚詠一朗, 坪

田圭司, 安藤 進, 宮崎真至, 細矢由美子, CAD/CAM 用ブロックにおける補修修復に関する研究. 第 32 回日本接着歯学会学術大会, 2013 年 11 月 30 日-12 月 1 日, 福岡歯科医師会館(福岡県博多市)

(21) 清水裕亮, 古市哲也, 鈴木英梨子, 山路歩, 大塚詠一朗, 利根川雅佳, 坪田圭司, 黒川弘康, 宮崎真至, 試作レジンコアシステム(TDK-03)の象牙質接着強さの経時的推移. 日本歯科保存学会 2013 年度秋季学会(第 139 回), 2013 年 10 月 17-18 日, 秋田アトリエ(秋田県秋田市)

(22) 石井 亮, 辻本暁正, 坪田圭司, 陸田明智, 安藤 進, 宮崎真至, ジルコニアの唾液汚染がレジンセメントの接着性に及ぼす影響. 第 24 回日本歯科審美学会, 2013 年 7 月 20-21 日, 日本歯科大学生命歯学部(東京都千代田区)

(23) 古宅真由美, 坪田圭司, 黒川弘康, 安藤進, 宮崎真至, 歯面処理法がシーラントのエナメル質接着耐久性に及ぼす影響. 第 24 回日本歯科審美学会, 2013 年 7 月 20-21 日, 日本歯科大学生命歯学部(東京都千代田区)

(24) 清水裕亮, 辻本暁正, 瀧本正行, 陸田明智, 坪田圭司, 升谷滋行, 宮崎真至, 光強度の違いがコア用レジンの歯質接着性に及ぼす影響. 第 65 回日本大学歯学会総会・学術大会, 2013 年 5 月 19 日, 日本大学歯学部(東京都千代田区)

〔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 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

坪田 圭司 (TSUBOTA Keishi)

日本大学・歯学部・助教

研究者番号：20386113

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：