

令和 3 年 6 月 10 日現在

機関番号：12602

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2020

課題番号：17K17125

研究課題名(和文) コラーゲン内における自由水の効率的除去による接着耐久性の改善

研究課題名(英文) Improvement of resin-dentin bond durability by removing water from dentinal collagen

研究代表者

千葉 彩香 (Chiba, Ayaka)

東京医科歯科大学・歯学部・非常勤講師

研究者番号：90778911

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：親水性モノマーHEMAを含有する接着システムにおいて、強酸エッチング後水洗するモードでは、水の代わりにエタノールを用いて被着面を洗い流す前処理によって、水置換を促し接着強度が大幅に改善されることが見いだされた。このことは、エタノール可溶性であるジメタクリレートの取り込みを増加させ、レジン-象牙質接着耐久性を大きく向上させることができること可能性を大きく示唆している。また、水の残留により重合阻害が起こった場合でも、スルフィン酸塩剤による前処理は、ボンドの重合率を向上し、象牙質接着耐久性に寄与する可能性が確認された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

低侵襲歯科治療が普及し直接法コンポジットレジン接着修復が臨床で広く用いられるようになってきているが、コンポジットレジンが臨床で十分な物性、審美性を兼ね備えてきた一方で、治療の成功を支える接着は発展途上であり、接着の劣化がおこるため接着耐久性は十分とは考えられていない。本研究は、劣化を起こす水による影響を低減しよりよい長期にわたり機能する象牙質接着を獲得するため、ジメタクリレートの浸透と硬化という接着に必須のステップにおいて改良する接着技法を提案しよりよい接着治療につなげるものである。

研究成果の概要(英文)：In the adhesive system containing the hydrophilic monomer HEMA (2-Hydroxyethyl Methacrylate), in etch and rinse mode, ethanol wet bonding technique instead of water wet bonding technique may promote monomer infiltration and significantly improved the adhesive strength. It is suggested that the ethanol-soluble dimethacrylate can infiltrate, and the resin-dentin adhesion durability can be achieved considerably. In addition, it was confirmed that pretreatment with an antioxidant containing sulfinate salt improved the degree of conversion of adhesive and contribute to resin-dentin bond durability.

研究分野：接着修復学

キーワード：象牙質コラーゲン 水 歯質接着性レジン 酸エッチング

1. 研究開始当初の背景

ミニマルインターベンションコンセプトが普及し直接法コンポジットレジン接着修復が臨床上広く用いられるようになってきている。コンポジットレジンが臨床上十分な、物性、審美性を兼ね備えてきた一方で、治療の成功を支える接着は発展途上であり、接着の劣化がおこり、接着耐久性は十分とは考えられていない。接着界面で起こる様々な現象により接着劣化が起こる。象牙質コラーゲン線維間のスペースが不十分でレジンモノマーの浸透が妨げられることはその主原因の一つであると考えられている。接着耐久性の高いレジン - 象牙質接着を獲得するためには、コラーゲン中に残存している自由水や不完全結合水を除去し、モノマーを浸透させることが重要で、水とモノマーを置換させることが必要不可欠である。余分な水が蒸発により除去されるとコラーゲン線維は凝集し、レジンモノマーはコラーゲンマトリックスへ浸透できなくなる。そして、線維間に水分が残存しモノマーが浸透していないコラーゲン分子は、マトリックスメタロプロテアーゼ (MMPs) によって、ゆっくりと加水分解され、接着構造の崩壊が起こる。理想的には、水は化学的脱水により除去されるべきであり、水はマトリックスからエタノールのような親水性の溶媒へと拡散され、それと同時にエタノールもマトリックスへと拡散される。このことは酸エッチング後水洗を行うシステムで顕著である一方、セルフエッチング接着システムでは、窩洞形成後された象牙質表層に形成されるスメア層がすべて除去されないことから、スメア層内に存在する水が接着阻害因子となり、またスメア層の一部が接着界面に取り込まれ接着耐久性を脅かすと懸念される。特に、臨床上の簡便さから用いられる 1 ステップ接着システムは、重合後高い親水性を示し、既存の接着システムのボンディング材と比較すると、高い吸水性により接着界面の劣化を招くことが指摘されている。このように水に起因する接着劣化のさまざまな問題が提起されている。

2. 研究の目的

固定相に脱灰象牙質パウダーを用いたサイズ排除クロマトグラフィーによって、水を移動相として HEMA や TEGDMA の分子が水に浸した脱灰象牙質中のコラーゲンに浸透しやすいことから、HEMA 含有ワンステップセルフエッチング接着システム (1-SEA) を用いて、酸エッチング & リンスモード、セルフエッチングモードによりヒト抜去歯冠平坦象牙質面に接着処理を行い、光重合後の接着材の重合率および微小引張接着強度 (μ TBS) 測定し、あわせてスルフィン酸塩剤塗布によるボンディング材の重合向上効果、接着性能向上効果の検討を行った。

3. 研究の方法

- (1) 2種の 1-SEA、Clearfil Universal Bond Quick , Scotchbond Universal Adhesive を、酸エッチング&リンスまたはセルフエッチングモードを使用して、被着象牙質面に塗布した。実験群については、1)90 wt%エタノールによる前処理、2)前処理スルフィン酸塩剤塗布 3)UBQ または SBU とスルフィン酸塩剤との混合物による処理、4)およびコントロールである。接着試料作成後、24 時間水中保管を行い、微小引張接着試験を行い接着強度を測定し、さらに、重合率の測定は、減衰全反射フーリエ変換赤外分光法 (FTIR-ATR) を用いて行った。
- (2) 被着象牙質面の部位による接着強度測定結果への影響を検討した。

4 . 研究成果

- (1) HEMA を含有する接着システムにおいて、酸エッチング後水洗するモードでは、水洗の代わりにエタノールによるエッチング処理後の被着面を洗い流す前処理によって、水置換を促し μ TBS が大幅に改善されたことから、エタノールウェットボンディング手法により接着向上が獲得されることが見いだされた。マトリックスから自由水もしくは不完全結合水をできるだけ能率的に除去することができれば、エタノール可溶性であるジメタクリレートの取り込みを増加させ、レジン - 象牙質接着耐久性を大きく向上させることができることが示唆された。一方、セルフエッチングモードでは μ TBS が向上しなかったことからセルフエッチングシステムにおいては異なる接着耐久性向上のアプローチが必要であると考えられる。水の残留により重合阻害が起こると考えられるが、スルフィン酸塩剤による前処理は、最も高い μ TBS と重合率をもたらし、特に酸エッチング&リンスモードでそれらが大幅に改善され、コンポジットレジンの接着耐久性を向上させることが期待される。
- (2) 一連の接着研究を通して、本研究で用いられたような接着強度の高い接着システムを使った接着試験では、機械的強度の違いから被着象牙質面として中央付近ではなく冠周象牙質を使ったほうが良いことが示唆された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 2件）

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Hatayama Takashi, Kano Yukinori, Aida Asami, Chiba Ayaka, Sato Kento, Seki Naoko, Hosaka Keiichi, Foxton Richard M., Tagami Junji, Nakajima Masatoshi | 4. 巻 - |
| 2. 論文標題 The combined effect of light-illuminating direction and enamel rod orientation on color adjustment at the enamel borders of composite restorations | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Clinical Oral Investigations | 6. 最初と最後の頁 - |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s00784-019-03085-7 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 HATAYAMA Takashi, CHIBA Ayaka, KAINOSE Kimisuke, NAKAJIMA Masatoshi, HOSAKA Keiichi, WAKABAYASHI Noriyuki, FOXTON Richard M., TAGAMI Junji | 4. 巻 37 |
| 2. 論文標題 Stress distribution in tooth resin core build-ups with different post-end positions in alveolar bone level under two kinds of load directions | 5. 発行年 2018年 |
| 3. 雑誌名 Dental Materials Journal | 6. 最初と最後の頁 474 ~ 483 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.4012/dmj.2017-160 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 ARAOKA Daisuke, HOSAKA Keiichi, NAKAJIMA Masatoshi, FOXTON Richard, THANATVARAKORN Ornnicha, PRASANSUTTIPORN Taweesak, CHIBA Ayaka, SATO Kento, TAKAHASHI Masahiro, OTSUKI Masayuki, TAGAMI Junji | 4. 巻 37 |
| 2. 論文標題 The strategies used for curing universal adhesives affect the micro-bond strength of resin cement used to lute indirect resin composites to human dentin | 5. 発行年 2018年 |
| 3. 雑誌名 Dental Materials Journal | 6. 最初と最後の頁 506 ~ 514 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.4012/dmj.2017-240 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Tichy Antonin, Brabec Marek, Bradna Pavel, Hosaka Keiichi, Chiba Ayaka, Tagami Junji | 4. 巻 115 |
| 2. 論文標題 Influence of central and peripheral dentin on micro-tensile bond strength estimated using a competing risk model | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials | 6. 最初と最後の頁 104295 ~ 104295 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jmbbm.2020.104295 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

| |
|--|
| 1. 発表者名 Masatoshi Nakajima, Kano Yukinori, Asami Aida, Ayaka Chiba, Keiichi Hosaka, Naoko Seki, Richard Foxton, Taweesak Pransansuttiporn, Ornnicha Thanatvarakorn, Junji Tagami. |
| 2. 発表標題 Color adaptation at enamel-composite borders with different incidnet-light directions. |
| 3. 学会等名 96th IADR/PER General Session (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 長谷川 真夕(東京医科歯科大学 大学院歯学総合研究科う蝕制御学分野), 千葉 彩香, 久野 裕介, 荒岡 大輔, 佐藤 健人, 保坂 啓一, 池田 正臣, 中島 正俊, 田上 順次 |
| 2. 発表標題 マルチモード接着システムの象牙質接着性能に及ぼすデュアルキュアアクティベーター前塗布の影響 |
| 3. 学会等名 第149回日本歯科保存学会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 畑山貴志、千葉彩香、貝ノ瀬公典、中島正俊、保坂啓一、若林則幸、田上順次。 |
| 2. 発表標題 ポスト先端部と歯槽骨（皮質骨・海綿骨）の位置関係と荷重方向の違いがレジンコア築造歯の応力分布に与える影響。 |
| 3. 学会等名 第146回日本歯科保存学会学術大会 |
| 4. 発表年 2017年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 | | | |
|---------|---------|--|--|--|
| タイ | チェンマイ大学 | | | |
| 英国 | ロンドン大学 | | | |
| チェコ | チャールズ大学 | | | |