# 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4年 5月22日現在

機関番号: 17701 研究種目: 若手研究 研究期間: 2019~2021

課題番号: 19K19003

研究課題名(和文)白金ナノコロイドを応用した1ステップアドヒーシブの脱灰象牙質接着性の向上

研究課題名(英文)Effect of Colloidal Platinum Nanoparticles on Bonding Performance to Demineralized Dentin and 1 Step Bonding Agent

### 研究代表者

勝俣 愛一郎(Katsumata, Aiichiro)

鹿児島大学・医歯学域鹿児島大学病院・講師

研究者番号:60779891

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文):白金ナノコロイド処理による1ステップアドヒーシブと脱灰象牙質の歯質接着性の改善を目的とし、脱灰象牙質への1ステップアドヒーシブと白金ナノコロイドの至適処理方法の検討と、歯質長期接着耐久性の獲得に対する白金ナノコロイドの評価を行った。その結果、短期条件において健全象牙質も脱灰象牙質も1%に希釈した白金ナノコロイとリン酸を混和しリン酸濃度を35%にしたものを1秒間塗布し、水洗した条件が高い接着強さを示した。長期データでも白金ナノコロイドを使用すると高い接着強さを示した。また、形態学的評価として電子顕微鏡による観察を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義 現在高齢化が年々進み、歯科の疾患構造も変化し在宅での治療頻度が増し、根面う蝕などによる脱灰象牙質を残 置せざるを得ない状況が増加している。しかし、脱灰象牙質への効果的な接着方法については未だ明らかになっ ていない。本研究では抗菌タンパクの誘導能を認める白金ナノコロイドを用いて歯質接着性の改善と最新の歯科 材料への臨床応用を目的とした。その結果、白金ナノコロイドを現代の臨床で使用頻度の高い1ステップアドヒ ーシブの前処理剤として用いると健全・脱灰象牙質のいずれにも良好な接着強さを示すことが判明した。このこ とは歯質接着分野に、ナノテクノロジーの応用として白金ナノコロイドが大きく貢献する可能性を示している。

研究成果の概要(英文): The purpose of this study was to evaluate the dentin bond strength for demineralized dentin in resin composite restoration with colloidal platinum nanoparticles (CPN). CPN was used as a pretreatment material for one-step adhesive system, and aimed to obtain long-term adhesive durability.

In short term, both sound and demineralized dentin, the highest bond strength was shown under the condition that 1% CPN and phosphoric and were mixed (phosphoric acid concentration 35%), applied for 1 second and washed with water. Also in long term data showed high bond strength when CPN was used. Resin-dentin interfaces were observed using a scanning electron microscope.

研究分野: 歯科保存修復学

キーワード: 白金ナノコロイド 1ステップアドヒーシブ 脱灰象牙質

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

### 1.研究開始当初の背景

超高齢社会の現在、要介護者への訪問診療が増加している。そのような状況下では十分な診療環境・チェアタイムの確保が厳しく、完全なう蝕の除去が困難な状況が多く見られる。コンポジットレジンに対し、う蝕象牙質・脱灰象牙質では接着力が健全象牙質よりも低下することは様々な研究から明らかになっている。このことから健全象牙質への接着のみならずう蝕の影響を受けた脱灰象牙質への接着の検討は重要である。

一方、近年歯科接着領域、なかでも象牙質への接着は3ステップによる接着システムが開発されたことにより発展した。その後、操作性の単純化とチェアタイムの減少が求められ3つの歯面処理を同時に行う1ステップアドヒーシブが開発された。この1ステップアドヒーシブは、レジン充填、象牙質知覚過敏処置や補綴物の接着等、実際の臨床の場で広く普及しているが、欠点として長期経過時の接着力低下を認めることが挙げられる。1ステップアドヒーシブの象牙質への長期接着耐久性の獲得は2次う蝕や新たな脱灰象牙質発生へのリスクを減少させるために重要である。

白金ナノコロイド(Colloidal Platinum Nanoparticles:CPN)は粒径 2nm のプラチナ粒子の全周をクエン酸ナトリウムでコーティングすることでコロイド化したもので、活性酸素種の強い除去能がある次世代の抗酸化物質である。最新の研究では抗菌タンパクの誘導能が認められている。現在白金ナノコロイドは健康食品や化粧品などに添加され一般に使用されている。さらに医療領域では脳梗塞の治療応用および肺の炎症抑制のための研究も進んでいる。しかし、歯科接着領域への応用に関しては未だ発展途中の段階であり、今後の研究が期待される分野である。白金ナノコロイドで前処理を行った健全象牙質に1ステップアドヒーシブを用いると短期的に象牙質接着強さの向上を認めるという結果が既に得られている。しかし、脱灰象牙質に対する効果、そして長期的な接着能についてのデータはない。白金ナノコロイドは抗菌タンパクの誘導能をその特徴として認めることから、健全象牙質と同様に脱灰象牙質への接着強さの向上にも一定の効果を得られることが期待される。以上より、1ステップアドヒーシブと脱灰象牙質に対する白金ナノコロイドの接着効果の検討および長期接着耐久性獲得への挑戦は、今後の臨床への研究意義が大いにあると言える。

#### 2.研究の目的

本研究は歯質接着分野へナノテクノロジーの応用として白金ナノコロイドを使用し、歯質接着性の改善と、最新の歯科材料への臨床運用を目標とし、脱灰象牙質への1ステップアドヒーシブと白金ナノコロイドの至適処理方法の検討と歯質長期接着耐久性の獲得に対する白金ナノコロイドの多面的評価を行った。

## 3.研究の方法

#### (1) 脱灰象牙質の作製

30 週齢未満の新鮮ウシ下顎前歯を用いた。ウシ前歯を歯冠部にて切断・エポキシ樹脂に包埋後、唇側面を#600 耐水研磨紙にて研削した象牙質面を被着面とした。1 mol/l KOH で pH 5.0 に調整した2.2 mmol/l CaCl2,2.2 mmol/l Na2HPO4,50 mmol/l CH3COOH 含有脱灰溶液に5日間浸漬し、脱灰象牙質として被着面に用いた。

## (2) 本研究で使用した材料

接着システムとして1ステップセルフエッチングシステムのクリアフィルユニバーサルボンド Quick ER (UB, Kuraray Noritake Dental)を、接着前の前処理に白金ナノコロイド (CPN, APt) とリン酸を、コンポジットレジン充填にクリアフィル AP-X (シェード A3、Kuraray Noritake Dental) を供した。

### (3)接着試料の作製および象牙質せん断接着強さの測定

脱灰溶液に浸漬しない上記作製方法の象牙質面を健全象牙質の被着面とした。歯面処理の方法により下記のように分類した。UBを指示書通りに用いた群、35%リン酸を 10 秒間塗布し水洗乾燥後に UBを用いた群、100%CPN 原液とリン酸を混和しリン酸濃度を 35%としたものを 10 秒間塗布し水洗後に UBを用いた群、100%CPN 原液の代わりに 10%、1%に希釈した CPN を用いた群。さらに CPN の塗布時間は 5 秒間と 1 秒間の条件に細分した。各歯面処理を行った後に、コンポジットレジンをボンディングモールドインサートに填入し、光照射を行った。脱灰象牙質についても健全象牙質群と同様に行った。37 水中で 24 時間保管後、せん断接着試験を行った。せん断接着試験は卓上万能試験機 EZ-SXを用いて、クロスヘッドスピード 1.0 mm/min の条件下で行った。

## (4) 形態観察

せん断接着試験後の試料は実体顕微鏡を用いて、拡大率30倍にて破断面形態の観察を行った。 接着界面は走査電子顕微鏡で観察し、その形態を比較した。

## (5)象牙質長期接着耐久性の検討

サーマルサイクル試験機を用い、コンポジットレジン充填した試料を 24 時間水中浸漬後に、5~55 を 1 サイクルとしたサーマルサイクルを 5000 回負荷後にせん断接着強さを測定した。健

全・脱灰象牙質いずれも白金ナノコロイド処理なし条件をコントロールとし、短期接着において高い接着強さを示した白金ナノコロイド処理時間 1 秒条件で濃度を 100%、10%、1%に分類し測定した。

## 4.研究成果

#### (1) せん断接着強さ

健全象牙質に対し白金ナノコロイドとリン酸の混和液の白金ナノコロイド濃度を 100%、10%、1%に分け処理時間を 10 秒、5 秒、1 秒としせん断接着強さを測定した。UB を指示書通りに用いた前処理なし群は、15.83 ± 2.61MPa、35%リン酸を 10 秒間塗布し水洗乾燥後に UB を用いたリン酸のみ群は、15.02 ± 1.67MPa となり、100%は 10 秒 15.67 ± 1.96Mpa、5 秒 19.77 ± 3.64Mpa、1 秒 24.71 ± 4.50Mpa、10%は 10 秒 13.05 ± 1.74Mpa、5 秒 17.30 ± 2.63Mpa、1 秒 23.03 ± 3.32Mpa、1%は 10 秒 17.59 ± 2.98Mpa、5 秒 21.05 ± 2.63Mpa、1 秒 31.26 ± 5.00Mpa となった。処理時間ごとに比較すると5 秒においては 100%、10%、1%すべてに有意差は認めなかったが、1 秒においては 1%が他と比較し有意に高い値を示した。

脱灰象牙質においては前処理なし 12.32±3.06Mpa、リン酸のみ 10.22±3.41Mpa、100%は 10 秒 13.12±3.66Mpa、5 秒 12.84±4.01Mpa、1 秒 15.15±1.16Mpa。10%は 10 秒 12.33±2.37Mpa、5 秒 12.10±2.98Mpa、1 秒 15.27±1.72Mpa。1%は 10 秒 14.94±2.14Mpa、5 秒 11.49±5.57Mpa、1 秒 19.58±3.27Mpa となった。処理時間の比較では 10 秒においてはリン酸のみと 1%間にのみ有意差を認めたが、5 秒においては 100%、10%、1%すべてに有意差は認めなかった。1 秒においては 1%が他と比較し有意に高い値を示した。

サーマルサイクル試験後のせん断接着強さについては健全・脱灰象牙質いずれもコントロールと比較し、3条件とも高い接着強さを示したが、短期データと比較し明らかな接着強さの低下を認めなかったので、今後サイクル回数を増やし更なる検討を行う必要がある。

## (2) 形態観察について

破断面形態の分類結果(短期)は下記のようになった。健全象牙質においては、CPNを使用していない UB 群と P 群、表面処理時間が10秒の3群において混合破壊を多く認め、表面処理時間が5秒の3群では混合破壊と象牙質凝集破壊が同程度認められた。表面処理時間が1秒の3群ではいずれも象牙質凝集破壊が最も多く認められた。脱灰象牙質においてはすべての群で混合破壊を最も多く認め、全体的に象牙質凝集破壊の占める割合が減少し象牙質-ボンディングレジン間の界面破壊の占める割合が増加した。また、代表的な条件をピックアップし接着界面の観察を行ったが、現時点では形態学的に著明な変化は認められなかった。今後更なるデータ取得と解析を行う必要がある。

	fracture modes(%)							
Sound Dentin				Demineralized Dentin				
group	Interface	Mixed	Cohesive(Dentin)		group	Interface	Mixed	Cohesive (Dentin)
UB	25	62.5	12.5		D-UB	37.5	62.5	0
P	25	75	0		D-P	37.5	62.5	0
100%10s	37.5	50	12.5		D-100%10s	50	50	0
10%10s	37.5	62.5	0	Г	D-10%10s	37.5	62.5	0
1%10 s	0	87.5	12.5	Г	D-1%10 s	12.5	75	12.5
100%5S	12.5	37.5	50		D-100%5 S	50	50	0
10%5 s	25	50	25		D-10%5s	37.5	62.5	0
1%5 s	25	37.5	37.5		D-1%5 s	37.5	62.5	0
100%1s	25	25	50	Г	D-100%1s	50	50	0
10%1 S	25	12.5	62.5		D-10%1s	25	75	0
1%1 s	12.5	12.5	75		D 1%1 s	25	37.5	37.5

以上のことから、更なる詳細な検討が必要ではあるものの白金ナノコロイドによる表面処理が、 臨床で使用頻度の高い1ステップアドヒーシブと脱灰象牙質の歯質接着性の改善に効果的であ ることが示唆された。本研究成果は今後の歯科医学へのナノテクノロジーの導入と、歯科治療の 発展に大きく貢献することが期待される。

### 5 . 主な発表論文等

「雑誌論文〕 計1件(うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件)

1.著者名	4 . 巻
勝俣愛一郎,星加知宏,西谷佳浩	20
2.論文標題	5 . 発行年
白金ナノコロイドが1ステップボンディング材と健全・脱灰象牙質せん断接着強さに及ぼす影響	2022年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
日本再生歯科医学会誌	1-8
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.11223/jard.20.1	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている(また、その予定である)	-

	〔学会発表〕	計1件(うち招待講演	1件/うち国際学会	1件)
--	--------	------------	-----------	-----

1	<b> </b>	Þ
ı		7

Aiichiro Katsumata

## 2 . 発表標題

Dentin bond strength of the universal adhesives using the colloidal platinum nanoparticles

### 3.学会等名

4th Meeting of the International Association for Dental Research Asia-Pacific Region 2019, Symposium: Restorative Dentistry/Dental Materials (招待講演) (国際学会)

4 . 発表年

2019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
---------	---------