#### 研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 5 年 5 月 2 5 日現在

機関番号: 10101 研究種目: 若手研究 研究期間: 2019~2022

課題番号: 19K19281

研究課題名(和文)"はがせる"新規歯科矯正用接着材の開発

研究課題名(英文)Developement of dismantlable adhesive for orthodontic treatment

#### 研究代表者

中西 康 (Nakanishi, Ko)

北海道大学・歯学研究院・助教

研究者番号:00754863

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):矯正歯科治療において最も使用される装置であるマルチブラケット装置は、歯面に接着して用いられるが、治療終了時には撤去する必要がある。現在撤去には、機械的な力で撤去する以外方法はなく、撤去時にほぼすべての患者に痛みが伴う。また、歯面に亀裂が入ることも少なくない。そこで本研究では、温度応答性ポリマーであるイソプロピルアクリルアミドを用いて必要なときに簡便に撤去できる接着材の開発を

行った。 イソプロピルアクリルアミドを歯科矯正用接着材に添加することで、常温では接着強さは変化しないが、昇温時にイソプロピルアクリルアミドを添加していない接着と比較して接着強さが大きく低下する接着材の開発に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義解体性接着材は、建築、電子工学など様々な分野で関心を集めており、熱可塑性接着材、熱膨張性マイクロカプロル混入接着材、通電剥離接着材などはすでに実用化されている。しかし、歯科では口腔内という特殊な環境下で用いるためトリガーが大きく制限されいまだ、実用化されていない。歯科では、矯正歯科のみならず、再治療により、歯冠の修復物や補綴物を撤去することが多い。その際撤去には健全な歯質を削ることがあり、歯の寿命を縮める。解体性接着材は撤去時の不要な切削を防ぐ可能性を持っている。本研究は、歯科用解体性接着材開発の記念性を見出したものであり、党務的音差、社会的音差高いものと言える。 の可能性を見出したものであり、学術的意義、社会的意義高いものと言える。

研究成果の概要(英文): A multibracket appliance, which is most commonly used in orthodontic practice, is adhered to the surface of teeth for treatment and must be removed after treatment. Removal of the multibracket appliance causes pain to almost all patients because the only way to remove it is by mechanical force today. In some cases, the clack also occurs on the tooth surface by impact with removing it. Therefore, in this study, we developed a dismantlable orthodontic adhesive using a temperature-responsive polymer. Isopropylacrylamide was used as a temperature-responsive polymer. We succeeded in developing a new adhesive with normal adhesion strength at room temperature but decreasing the adhesion strength compared to commercial adhesion with increasing temperature.

研究分野: 矯正歯科

キーワード: 解体性接着材 温度応答性ポリマー イソプロピルアクリルアミド

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

矯正歯科治療において歯列を整え咬合を確立するために最も頻用されている装置であるマルチブラケット装置は、歯面に接着して用いられるが、治療期間中の脱落は、歯に矯正力がかからず歯が動かないだけではなく、後戻りにより数か月前の状態に治療が後退する可能性がある。そのため、マルチブラケット装置による数年間の動的治療期間中、脱落することなく歯面に接着させる強固な接着がこれまで接着材に求められてきた。代表的な接着材としてレジン系歯科矯正用接着材やグラスアイオノマー系歯科矯正用接着材があり、レジン系接着材は機械的嵌合力により、グラスアイオノマー系接着材は化学的結合力により接着する。接着強さが大きく、装置の脱落の可能性が低いことから、今日ではレジン系歯科矯正用接着材が多く用いられている。動的治療終了時には、マルチブラケット装置は機械的に歯面より撤去するが、この強固な接着のため撤去には強い力が必要となり、ほぼすべての患者に疼痛が伴い、中には歯面に亀裂が入り、冷水痛等の症状が現れることもある。しかし、現在、撤去には機械的に引きはがす以外の方法はなく、有効な解決手段がないのが現状である。そこで、必要な時に弱い力で"はがせる"接着材を開発することで、この問題を解決できると考えた。そのキーマテリアルとして、温度変化により膨潤・収縮という体積変化を示す温度応答性ポリマーに着目した。

温度応答性ポリマーとしては、ポリ(N-アルキルアクリルアミド) ポリ(N-ビニルアルキルアミド) ポリビニルアルキルエーテルなどが報告されており、これらは一定の温度以上で脱水による収縮が起こる下限臨界溶液温度(LCST)をもつ LCST 型材料である。中でもポリ(N-アルキルアクリルアミド)系のイソプロピルアクリルアミド(PNIPAM)は体温付近に LCST を持つことから、バイオマテリアルの分野で最も広く利用されている温度応答性ポリマーである。

# 2.研究の目的

本研究では、温度変化により膨潤 - 収縮変化を示す温度応答性ポリマーである PNIPAM を歯科 矯正用接着材に添加し、装置撤去時に LCST 以上の温度に熱することで、接着材内に PNIPAM の収 縮による空間を作り、接着材の破壊を容易にすることを試みる。 つまり、必要な時に "はがせる" 新規歯科矯正用接着材を開発し、装置撤去時における患者の疼痛や歯面の亀裂の発生を解決す ることである。

# 3.研究の方法

# (1)温度応答性ポリマーの歯科矯正用接着材への添加

本研究では、分子量 30000 の PNIPAM を用い、歯科矯正用接着材として methyl methacrylate (MMA)系歯科矯正用接着材を用いた。添加量は MMA 系歯科矯正用接着材のポリマー成分(粉末)に対し、走査型電子顕微鏡観察用試料、動的粘弾性評価試料では 30wt%、接着強さ評価用試料では 10wt%とした。

#### (2) 走杳型電子顕微鏡観察

MMA 系歯科矯正用接着材のポリマー成分に 30wt%の濃度で PNIPAM を添加した接着材をメーカー指定の方法で重合させた試験片を液体窒素にて凍結後粉砕し、断面の走査型電子顕微鏡(SEM) 観察を行った。

# (3)動的粘弾性の評価

接着材をメーカー指定の練和法で、直径 10.0mm、厚さ 2.0mm に成型し、試験片とした。PNIPAM は、水分を含有していなければ効果を発揮しないため、水中に保管し、水分を含ませておき、練和時に表面の水分のみ除去したものを添加した。得られた試験片を動的粘弾性測定装置(Ares-G2 TA Instruments Co., Ltd.)を用いて温度を 10 から 80 まで毎分 3 で昇温しながら粘弾性を測定した。コントロールには、PNIPAM を添加していない MMA 系歯科矯正用接着材を用いた。

#### (4)接着強さの評価

まず、牛歯をアクリル樹脂に包埋し、牛歯のエナメル質表面を露出させ、#400まで研磨した。露出したエナメル質をリン酸でエッチングし、水洗後 MMA 系歯科矯正用接着材のポリマー成分に 10 wt%の濃度で PNI PAM を添加した接着材を用いて、メーカー指定の方法でリンガルボタンを接着した。接着後、37 の水中に 24 時間静置し、万能試験機にて剪断試験を行い、接着強さの評価を行った。コントロールには、PNI PAM を添加していない MMA 系歯科矯正用接着材を用いた。

# (5)昇温時の接着強さの評価

(3)と同様に牛歯を包埋、研磨、エッチング、水洗後、10wt%の濃度で PNIPAM を添加した接着材を用いて、リンガルボタンを接着した。接着後、37 の水中に 24 時間静置し、万能試験機の治具に装着した。装着後、ヒートガンにて 45 まで昇温し、剪断試験を行った。コントロールには、PNIPAM を添加していない MMA 系歯科矯正用接着材を用いた。

# 4. 研究成果

# (1) PNIPAM 添加接着材の形態的特徴

PNIPAM 添加歯科矯正用接着材の断面の SEM 観察 像より、PNIPAM の粒子サイズは約4µmで、接着材 内部に良好に分散されていることがわかった(図

# (2)動的粘弾性の評価

動的粘弾性測定結果より、PNIPAM 添加歯科矯正 用接着材、添加していない歯科矯正用接着材とも に、温度の上昇とともに貯蔵弾性率は徐々に低下 し、45 ~50 付近で低下量が大きくなることがわ かった。両者を比較すると低下率は PNI PAM 添加歯 科矯正用接着材のほうがわずかに大きいことが確 認できた。

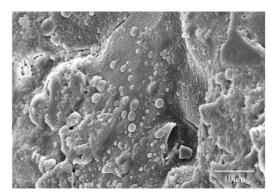
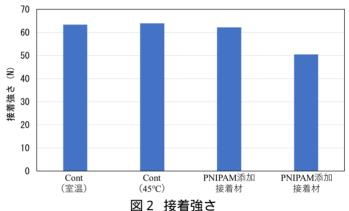


図1 PNIPAM添加接着材の断面のSEM像

#### (3)接着強さの評価

コントロール、10wt%PNIPAM添加 歯科矯正用接着材の室温での接着 強さはそれぞれ、63.4N、62.2N であ り、45 での昇温時の接着強さはそ れぞれ 64.0N、50.4N であった(図 2)。PNIPAMを添加していない接着 材では、昇温時にほぼ接着強さは変 わらないことに対し、10wt%PNIPAM を添加したものでは、昇温すること で接着強さが大きく低下すること が分かった。これは、接着材内の PNIPAM が昇温によって収縮し、接着 材内に空隙ができ、接着材が破壊さ れやすくなったためと考えられる。



また、10wt%の添加では、室温での接着強さには変化がないことが分かった。

# 5 . 主な発表論文等

4 . 発表年 2022年

〔雑誌論文〕 計3件(うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件)	
1 . 著者名	4 . 巻
Otsubo Shuhei, Nakanishi Ko, Fukukawa Kakufu, Endo Ryoshun, Yoshida Seiichiro, Matsumoto Aiko, Yoshihara Kumiko, Akasaka Tsukasa, Hasebe Akira, Yoshida Yasuhiro, Sato Yoshiaki	15
2 . 論文標題	5.発行年
Development of Autopolymerizing Resin Material with Antimicrobial Properties Using	2023年
Montmorillonite and Nanoporous Silica 3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Pharmaceutics	544 ~ 544
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	 査読の有無
10.3390/pharmaceutics15020544	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)	-
• ***/	4 244
1 . 著者名	4 . 巻
Endo Ryoshun、Nakanishi Ko、Bando Yosuke、Abe Shigeaki、Maruoka Haruhi、Nakamura Mariko、 Akasaka Tsukasa、Yoshida Yasuhiro、Sato Yoshiaki	14
2 . 論文標題	5 . 発行年
Ion Capture and Release Ability of Glass Ionomer Cement Containing Nanoporous Silica Particles with Different Pore and Particle Size	2021年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Materials	5742 ~ 5742
曷載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.3390/ma14195742	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)	-
1.著者名	4.巻
Oguma Hidetoshi, Seitoku Eri, Mutoh Mami, Yoshizawa Saori, Nakanishi Ko, Bando Yosuke, Era	4 · 글 20
Yuko, Kiba Takayuki, Saikaew Pipop, Tamai Miho, Akasaka Tsukasa, Nakamura Mariko, Kusaka Teruo,	20
Yoshida Yasuhiro, Sato Yoshiaki, Sano Hidehiko, Abe Shigeaki, Alireza Valanezhad, Watanabe	
Ikuya, Inoue Satoshi, Takada Tomoya	
·	5 38/- A
2 . 論文標題	5 . 発行年
Size- and Morphology-Controlled Preparation of Surface-Modified Water-Dispersible Fullerene Nanoparticles for Bioapplications.	2020年
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
Journal of Nanoscience and Nanotechnology	2668-2674
引載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1166/jnn.2020.17473	有
トープンアクセス	国際共著
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	-
学会発表〕 計6件(うち招待講演 0件/うち国際学会 3件)	
<ul><li>3 名表表名</li><li>1 . 発表者名</li></ul>	
春藤彩花、中西康、金子知生、黒川孝幸、松本愛子、遠藤諒俊、赤坂司、吉田靖弘、佐藤嘉晃	
2.発表標題	
温度応答性歯科矯正用解体性接着材の開発	
3.学会等名 第81回日本矯正歯科学会学術大会	

1. 発表者名 Ryoshun Endo, Ko Nakanishi, Yosuke Bando, Shigeaki Abe, Shuichi Yamagata ,Yasuhiro Yoshida, Yoshiaki Sato
2. 発表標題 Comparison of the ability of nanoporous silica to release antimicrobial agents depending on the pore size
3.学会等名 The 9th International Orthodontic Congress(国際学会)
4 . 発表年 2020年
1.発表者名 江良裕子、中西 康、阿部薫明、玉井美保、赤坂 司、吉田靖弘
2.発表標題 ナノーラス物質有による歯科用シーラント材料から薬剤徐放特性の検討
3.学会等名 第74回日本歯科理工学会学術講演会
4 . 発表年 2019年
1.発表者名 遠藤諒俊、中西 康、坂東洋祐、松本愛子、阿部薫明、山方秀一、吉田靖弘、佐藤嘉晃
2 . 発表標題 ナノ多孔質シリカの孔サイズがもたらすイオン放出能への影響
3.学会等名 第78回日本矯正歯科学会学桁大会
4.発表年 2019年
1 . 発表者名 Endo R, Nakanishi K, Bando Y, Abe S, Yamagata S, Yoshida Y, Sato Y,
2.発表標題 Effect of particle and pore size of nano porous silica on ion release ability
3.学会等名 The 19th Asian bioceramic symposium(国際学会)

4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 SEITOKU E, NAKANISHI K, BANDO Y, ERA Y, IWATA S, ABE S, NAKAMURA M, WATANABE I, SANO H
2 . 発表標題 Model drug-released behavior from medical materials using nanoporous silica
model drug foreaccu behavior from modelcar materials dering nanoporous sirried
3.学会等名 The 19th Asian bioceramic symposium(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

 _	• MIDENA		
	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
---------	---------