

平成 22 年 5 月 7 日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2008～2009
 課題番号：20791397
 研究課題名(和文) 超音波パルス法を応用した補修修復物の接着界面の判定に関する研究
 研究課題名(英文) A Study on Adhesive Interface of Repair Restoration Using an Ultrasonic Device
 研究代表者 吉田 武史 (YOSHIDA TAKESHI)
 日本大学・歯学部・専修医
 研究者番号：20434079

研究成果の概要(和文)：近年、光重合型レジンの歯質接着システムは、チェアタイムの短縮および煩雑な操作を少なくする目的などから、歯面処理操作を1回としたシングルステップシステムが開発、臨床応用されている。

そこで著者は、シングルステップシステムの歯質接着性を向上させる臨床技法として、アドヒーシブ塗布に先立ってリン酸エッチングを併用する、あるいはアドヒーシブの塗布法としてアクティブ処理に着目し、これが歯質接着性に及ぼす影響について検討した。

接着強さ試験においては、active 処理したものは inactive と比較して高い接着強さが認められた。また、製品間においても異なる結果が認められた。

研究成果の概要(英文)：Single-step self-etch adhesive systems have been developed to simplify and shorten bonding procedures. With the gain in popularity of these simplified systems, their reliability has become a focus of interest. The purpose of this study was to determine the effect of adhesive application method on enamel bond strength. The bond strengths for active application were higher than those for inactive application. Significant differences were found for both adhesive systems.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	900,000	270,000	1,170,000
2009 年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
年度			
総計	1,700,000	510,000	2,210,000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学・保存治療系歯学

キーワード：超音波, 象牙質, 弾性率

1. 研究開始当初の背景

近年、成形修復用光重合型レジン(光重合型レジン)の接着性が向上したところから、歯冠修復物辺縁に生じた齶蝕に対しても、こ

れを再治療することなく補修修復を行う頻度が増加している。このような症例では、光重合型レジン(光重合型レジン)の被着対象は歯質以外にも異なる被着体が考えられ、その接着性を向上さ

せるために各被着面に適した前処理を行う必要がある。しかし、補修修復物は歯質と異なり、その接着の不備が痛覚などによって認識することは不可能であるところから、これを客観的に評価する方法が必要であるものの、具体的な指標については国内外の報告を通覧する限りでは皆無である。そこで申請者は、非破壊的に物質の状態変化を測定できる超音波パルス法に着目し、補修修復物の接着界面の把握を超音波の音速によって定量化することを最終目的としている。

2. 研究の目的

光重合型レジンをはじめとする審美性修復材料は、それぞれ優れた材料ではあるが、臨床的な寿命は短く、10年以内に再修復処置という転帰をとっている。そこで、光重合型レジンあるいは光硬化型ガラスアイオノマーセメントなど審美性修復材料の表面摩耗、辺縁小破折あるいは変色などに対して、問題箇所を部分的に削除して補修することによって旧修復物本体をそのまま再利用する、補修修復が提案されている。

しかし、修復材料の表面摩耗および辺縁小破折においてはエナメル質が影響を及ぼす因子の一つと考えられる。また、シングルステップは最近数多く使用されているものの従来の接着システムと比較すると接着強さが低いとの報告もされている。そこで、今回歯面処理操作に着目しシングルステップシステムにおけるエナメル質の接着強さについて検討を行った。

3. 研究の方法

(1) 接着システムおよび光照射器

実験に供試したシングルステップシステムは、クリアフィルトライエスボンド（以後 tri-S Bond, クラレメディカル）および G-ボンド（以後 G-Bond, ジーシー）の 2 製品である。可視光照射器として Optilux 501 (sds Kerr) を選択し、実験期間を通じてその光強度を Curing Radiometer (Model 100, Demetron) を基準器として、 800 mW/cm^2 に保っていることを確認して使用した。

(2) 被着歯面の調製

接着試験に使用した歯は、ウシ（2～3 歳齢）の下顎前歯で、石灰化不全および破折の著しい歯などを除き、その歯根部を切除して歯冠部のみを用いた。これらを常温重合型アクリルレジン（トレレジン, 松風）に包埋し、直径 6～8 mm のエナメル質平坦面が得られるようにモデルトリマー（TC 251, アロー電子）で唇側中央部を研削した。さらに、この面を耐水性シリコンカーバイド（SiC）ペーパーの #600 まで研削し、超音波洗浄を 5 分間行った。次いで、被着面積を規定するため

に直径 4 mm の穴を開けた両面テープを貼付し、これを被着歯面とした。

(3) 接着試験用試片の製作

①リン酸エッチングの併用

エナメル質へのリン酸エッチングの併用が、エナメル質接着強さおよび接着耐久性に及ぼす影響を検討するために、製造者指示条件によって製作した試片をコントロール（以後 NT 群）とし、リン酸エッチングを併用した試片（以後 ET 群）と比較した。すなわち、研削したエナメル質面とともに、35%リン酸エッチング材（Etchant, 3M ESPE）を用いて 15 秒間エッチングした後に水洗、乾燥した面を被着歯面とした。それぞれの被着歯面にアドヒーシブを塗布し、エアブローおよび光照射を行った。次いで、両面テープの穴に合わせて内径 4 mm、高さ 2 mm の円筒形デュロン型を固定し、レジンペーストを型に填塞してポリエチレンストリップスを介して照射した。これらの試片は 37℃の精製水中に 24 時間保管、あるいはさらにサーマルサイクル試験機（サーマルショックテスター TTS-1, トーマス科学）を用いて 5℃～55℃を 1 サイクルとし、各係留時間を 30 秒間に設定した温熱負荷を 10,000 回付与し、これらを接着試片とした。

②アドヒーシブの塗布法

被着面に対するアドヒーシブの塗布にあたって、製造者指示時間マイクロブラシ（マイクロチップアプリケーション, ジーシー）を用いてアドヒーシブを歯面上で攪拌する操作を行うアクティブ処理を行った群（以後 Active 群）およびこれを行わずに製造者指示時間塗布したのみの群（以後 Inactive 群）の 2 条件とし、前項と同様に接着試片を製作した。これらの試片は、37℃の精製水中に 24 時間保管した。

なお、接着試片の数は各条件につきそれぞれ 10 個とし、その製作は室温 $25 \pm 1^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $50 \pm 5\%$ の恒温恒湿室で行った。

③接着強さの測定および破壊形式の判定

所定の保管期間が経過した接着試片について、万能試験機（Type 4204, Instron）を用い、クロスヘッドスピード 1.0 mm/min の条件で剪断接着強さを測定し、平均値を各条件におけるエナメル質に対する接着強さとして評価した。得られた接着強さの測定値については、それぞれの平均値および標準偏差を求め、分散分析および Tukey HSD test によって、有意水準 5% の条件で統計学的検定を行った。

接着試験終了後の破断試片については、その破壊形式を知るために実体顕微鏡を用いて、10 倍の倍率で破断面を観察した。破壊形式の判定は、界面の露出が 70% 以上を界面破壊、エナメル質の破壊が 70% 以上のものをエナメル質の凝集破壊、レジンを含むアドヒーシブの付着が 70% 以上のものをレジンの凝

集破壊とし、それ以外のものを混合破壊として分類、評価した。

④SEM 観察

エナメル質処理面の観察では、接着試片の製作と同様に、耐水性 SiC ペーパーの #600 まで研削した歯面を処理した後、照射することなくその面をアセトンおよび精製水で洗浄した。

これらの試片は、通法にしたがって *tert*-ブタノール希釈系列を用い順次、脱水した後、臨界点乾燥（凍結乾燥機、Model ID-3 型、エリオニクス）を行った。次いで、イオンコーター（クイックコーター Type SC-201, サンユー電子）で金蒸着を施した試片について SEM (ERA-8800FE, エリオニクス) を用いて加速電圧 15 kV, 倍率 3,000 および 10,000 倍の条件で観察を行った。

4. 研究成果

リン酸エッチングの併用が、シングルステップシステムのエナメル質接着耐久性に及ぼす影響について示した。供試したシングルステップ接着システムの 24 時間群の接着強さは、NT 群において tri-S Bond で 14.2 MPa および G-Bond で 13.0 MPa であったものが、ET 群においてはそれぞれ 17.5 MPa および 15.2 MPa と有意に高い値を示した。接着強さを製品間で比較すると、NT 群では差が認められなかったものの、ET 群では tri-S Bond が有意に高い値を示した。接着試験後の破壊形式は、いずれの製品においても NT 群と ET 群とで異なる傾向を示し、NT 群に比較して ET 群ではエナメル質あるいはレジンの凝集破壊例が多くなる傾向が認められた。

サーマルサイクル負荷後のエナメル質接着強さを示した。NT 群では tri-S Bond で 17.0 MPa であったのに対して、ET 群では 23.2 MPa と有意に接着強さが向上した。一方、G-Bond においては NT 群と ET 群では有意差が認められず、それぞれ 15.0 MPa および 15.6 MPa であった。接着強さを製品間で比較すると、24 時間群と同様の傾向であった。接着試験後の破壊形式は、いずれの製品においても NT 群と ET 群で違いが認められ、ET 群においてはエナメル質およびレジンの凝集破壊例が多くなる傾向を示した。

リン酸エッチング併用の有無によるエナメル質表面性状の SEM 像を以下に示した。

いずれの製品においても、NT 群では SiC ペーパーによる削状痕が残留していたものの、表層にスミヤクの残留は認められなかった。また、高倍率の観察からはエナメル質の微細な結晶構造が観察された。一方、ET 群ではリン酸エッチングによって表層が除去され、明瞭なエッチングパターンが観察された。

アドヒーズ塗布時のアクティブ処理が、

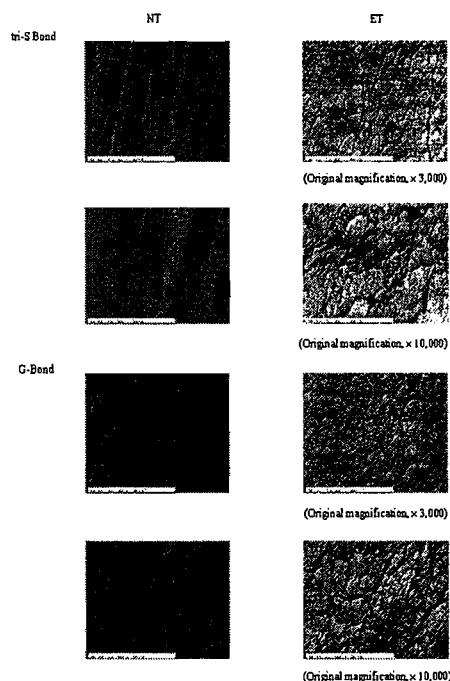


Fig. 1 SEM observation of treated enamel surface with and without prior phosphoric acid etching.

エナメル質接着性に及ぼす影響について示した。Inactive 群においては、tri-S Bond で 13.9 MPa および G-Bond で 10.8 MPa であったものが、Active 群ではそれぞれ 16.4 MPa および 13.7 MPa と有意な接着強さの向上を認めた。接着強さを製品間で比較すると、Inactive および Active 群のいずれにおいても、tri-S Bond で G-Bond に比較して有意に高い値を示した。接着試験後の破壊形式は Inactive 群では、いずれの製品においても界面破壊が大勢を占めたのに対して、Active 群の tri-S Bond では混合破壊が、G-Bond ではエナメル質の凝集破壊が多くなる傾向を示した。

アドヒーズ塗布法によるエナメル質処理面の違いを示す SEM 像について考察した。供試したいずれの試片においても、Inactive 群ではスミヤクは除去されてはいるものの、SiC ペーパーによる削状痕が認められた。一方、Active 群では SiC ペーパーの削状痕は不明瞭であり、とくに tri-S Bond では不明瞭なエッチングパターンとして観察された。

光重合レジンの歯質接着システムは、被着歯面のエッチングに引き続いてプライミング処理した歯質にボンディング材を塗布し、これを重合硬化させるという 3 つのステップを経ることによって接着を獲得してきた。最近では、これらを 1 回の歯面処理操作で行うシングルステップシステムの臨床応用が進められ、テクニクセンシティブ因子の減少あるいはチェアタイムの短縮がはかられている。しかし、エナメル質接着性に関しては、従来の 3 あるいは 2 ステップシステムと比較すると低いことが報告されている。

そこで著者は、シングルステップシステムのエナメル質接着性を向上させる臨床手技

として、リン酸エッチングの併用あるいは歯面に対する脱灰処理効果を向上させることが報告されているアドヒーズ塗布時のアクティブ処理が接着性に及ぼす影響について検討した。

まず、リン酸エッチングの併用効果について検討した結果、供試したいずれのシングルステップシステムにおいても、ET群でNT群と比較して接着強さが有意に向上した。また、接着試験後の破壊形式も各群で異なるとともに処理エナメル質のSEM観察からも明らかのように、リン酸エッチングを併用するとエナメル質が強く脱灰され、マイクロメカニカルリテンションが得られたために接着強さが有意に高くなったと考えられた。しかし、この接着強さの上昇は製品によって異なるものであり、tri-S Bondでは23.2%の、G-Bondでは16.9%の増加率であった。製品によって接着強さが上昇する傾向が異なった理由としては、硬化したアドヒーズの機械的強度の違いが影響したためと考えられた。さらに、製品による違いとして、含有されている機能性モノマーの種類も関与している可能性も考えられた。

歯質接着システムが長期接着耐久性を有することは、臨床的にも重要な性質と考えられる。サーマルサイクル負荷試験は、口腔内環境を模した耐久条件のひとつと考えられており、口腔内経過期間との関係については一日の口腔内温度変化を基準として算定されている。本研究では、サーマルサイクルの回数を10,000回としたが、これは約2年7ヶ月の口腔内における経過時間に相当するものとされている。また、接着試片にサーマルサイクルを負荷することに関しては、被着体である歯質に生体内とは異なる過度のストレスを加えることから、接着強さの適切な評価につながらない可能性も指摘されている。しかし、新しく開発された接着システムの接着耐久性を評価するためには、口腔内に適用する以前に何らかの加速耐久試験が必要であり、同一条件下のサーマルサイクル負荷試験によってシステムの相対的な評価を行うために本試験法を採用した。

サーマルサイクルを負荷した後のエナメル質接着強さは、tri-S Bondで有意に高い値を示したが、G-Bondでは有意差は認められなかった。tri-S Bondにおいて接着強さが向上した理由としては、温熱負荷によってアドヒーズの重合反応が進行し、機械的性質が向上したことによる可能性が考えられ、これまでの報告と一致するものであった。アドヒーズ塗布に先立って、リン酸エッチング処理を併用した試片のサーマルサイクル負荷後の接着強さは、これを併用しないNT群と同等あるいはそれ以上であった。したがって、アドヒーズ塗布に先立ってリン酸エッチン

グ処理を併用することは、エナメル質接着性およびその耐久性を向上させる可能性が示唆された。

次に、歯面処理方法としてのアクティブ処理が、エナメル質接着性に及ぼす影響について検討した。その結果、供試したいずれの製品においても、Active群で接着強さは有意に向上する傾向が認められた。また、破壊形式に関してはInactive群では界面破壊が大勢を占めたのに対して、Active群ではtri-S Bondにおいて混合破壊が、G-Bondではエナメル質の凝集破壊が認められた。エナメル質に対する接着システムの接着機構としては、酸によって表層を脱灰させ、その細部にレジジン成分が浸透して重合硬化することによって良好な接着界面を形成することと考えられている。エナメル質処理面のSEM像からは、Inactive群ではエナメル質のエッチングパターンは認められず、SiCペーパーの削状痕が認められた。一方、Active群ではSiCペーパーの削状痕は不明瞭になり、とくにtri-S Bondでは平坦ではあるがエッチングパターンも認められた。したがって、歯面塗布方法としてアクティブ処理を行うことによって、エナメル質表層の清掃効果が高くなるとともに、強固なマイクロメカニカルリテンションが獲得されて接着強さが有意に向上したものと考えられた。

以上のように、本実験の結果からシングルステップシステムの使用にあたって、リン酸エッチングを併用することによって、エナメル質接着性が向上することが判明した。しかし、リン酸エッチングの併用は臨床的には接着操作ステップ数を増加させることにもつながる。そこで、アドヒーズを塗布する際のアクティブ処理は、エナメル質の接着強さを向上させるための臨床技法としては有効となる可能性が示唆された。今後、アクティブ処理されたエナメル質に対する接着耐久性についても検討が必要であると考えられた。また、超音波パルス法を応用した補修復物の接着界面の判定に関する研究にあたって、臨床技法とともに、今後コンポジットレジジンにおける補修復として超音波を応用した弾性率の測定などを引き続き行っていきたいと考えている。

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1件)

- ① Ando S, Watanabe T, Tsubota K, Yoshida T, Irokawa A, Takamizawa T, Kurokawa H, Miyazaki M. :ウシのエナメル質の結合強度に対する接着剤適用法の効果 (Effect of adhesive application methods on

bond strength to bovine enamel)
;Journal of Oral Science 査読有 50, 2,
181-186, 2008.

[学会発表] (計 2 件)

- ① 安田源沢, 川本諒, 土屋博昭, 吉田武史,
高見澤俊樹, 黒川弘康, 安藤進, 宮崎真
至: 超音波透過法を用いたコア用レジ
ンの弾性率測定; 第 53 回日本歯科理工学
術講演会, 2009 年 4 月 12 日, タワーホ
ール船堀 (東京都江戸川区)
- ② 安田源沢, 吉田武史, 山口佳奈子, 大藤竜
樹, 大岡悟史, 黒川弘康, 宮崎真至: 超音波
透過法を用いたコア用レジンの重合挙動
観察; 第 52 回日本歯科理工学術講演会,
2008 年 9 月 20 日, 千里ライフサイエ
ンスセンター (大阪府豊中市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉田 武史 (YOSHIDA TAKESHI)
日本大学・歯学部・専修医
研究者番号: 20434079

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: