



# HOKKAIDO UNIVERSITY

|                     |                                                                                                         |
|---------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Title               | 温度刺激で接着力が低下する新規歯科矯正用解体性接着材の開発 [論文内容及び審査の要旨]                                                             |
| Author(s)           | 春藤, 彩花                                                                                                  |
| Degree Grantor      | 北海道大学                                                                                                   |
| Degree Name         | 博士(歯学)                                                                                                  |
| Dissertation Number | 甲第15935号                                                                                                |
| Issue Date          | 2024-03-25                                                                                              |
| Doc URL             | <a href="https://hdl.handle.net/2115/92485">https://hdl.handle.net/2115/92485</a>                       |
| Rights(URL)         | <a href="https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/">https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/</a> |
| Type                | doctoral thesis                                                                                         |
| File Information    | Ayaka_Shundo_abstract.pdf, 論文内容の要旨                                                                      |



# 学位論文内容の要旨

博士の専攻分野の名称      博士（歯学）      氏 名   春   藤   彩   花

## 学 位 論 文 題 名

温度刺激で接着力が低下する新規歯科矯正用解体性接着材の開発

キーワード（5つ） 矯正歯科用接着材，解体性接着材，温度応答性ポリマー，ステアリルアクリレート，メチルアクリレート

矯正歯科治療では、矯正力をかけるための装置が接着材によって歯に接着され、治療終了時には撤去が必要となる。マルチブラケット装置を撤去する際には多くの患者が疼痛を訴え、エナメル質に亀裂が入ることもある。接着材の接着力を低下させることで、これらの問題は解決できるが、治療期間中に外れるリスクが高まるという問題が生じる。そのため、治療期間中は接着力を高く維持し、装置撤去時には接着力が低下する接着材が求められる。そこで、本研究では外部刺激により接着力が低下する歯科矯正用接着材の開発を行った。本研究の目的は、温度応答性ポリマーであるステアリルアクリレート（SA）/メチルアクリレート（MA）共重合ゲルを歯科用接着材に添加することで新規歯科用解体性接着材を開発することである。

SA:MA の共重合比 1:1 と 3:1 の共重合ゲル合成後、4META/MMA-TBB レジン（4META レジン）に 30wt% 添加し、示差走査熱量測定（DSC）を行った。その後、共重合比 3:1 の共重合ゲル添加 4META レジンと共重合比 3:1 の共重合ゲル単体に対して、走査電子顕微鏡観察、引張試験を行った。また、共重合比 3:1 の共重合ゲル添加 4META レジンにおいては実体顕微鏡観察と剪断試験も行った。引張試験と剪断試験は、室温と 50℃（昇温時）で検討した。コントロールとして 4META レジンを用いた。

DSC の結果から、4META レジン単体では、昇温時において大きな熱反応はみられなかった。一方、共重合ゲル添加 4META レジンは昇温によって吸熱反応を示した。共重合比 1:1 の SA/MA 共重合ゲル添加 4META レジンの転移温度は 37.9℃、3:1 の SA/MA 共重合ゲル添加 4META の転移温度は 41.6℃と上昇した。3:1 の SA/MA 共重合ゲル添加 4META レジン断面の実体顕微鏡像において、一部凝集している可能性はあったが、SA/MA 共重合ゲルが接着材内に十分に分散していた。SA/MA 共重合ゲル粒子と共重合ゲル添加 4META レジン断面の走査電子顕微鏡像にて、共重合ゲル粒子の大きさは約 20～200 μm で、レジン破壊面に共重合ゲル粒子が観察された。引張試験では、4META レジン単体、共重合比 3:1 の SA/MA 共重合ゲル添加 4META レジン、共重合比 3:1 の SA/MA 共重合ゲル単体のヤング率は、室温ではそれぞれ 312.1MPa、264.7MPa、116.1MPa で、50℃ではそれぞれ 224.3MPa、23.5MPa、0.1MPa と有意に低下した。引張強度は、4META レジン単体において、室温では 9.3MPa、50℃では 15.0MPa

と上昇したが、共重合比 3:1 の SA/MA 共重合ゲル添加 4META レジンでは室温では 12.6MPa、50℃では 4.2MPa と低下した。また、共重合比 3:1 の SA/MA 共重合ゲル単体においては室温では 8.9MPa、50℃では 0.1MPa と有意に低下した。剪断試験では、4META レジン単体において、室温での剪断強さは 8.0MPa、50℃では 6.0MPa、共重合比 3:1 の SA/MA 共重合ゲル添加 4META レジンでは室温で 8.4Mpa、50℃で 3.9MPa とともに有意に低下し、共重合ゲル添加 4META レジンの方がより大きく低下した。

DSC の結果より、共重合ゲル添加 4META レジンでは吸熱反応が認められた。これは、4META レジンの内部のゲルが転移したことを示している。SA/MA 共重合ゲルは、転移温度以下では、プラスチック状に固まっており、転移温度以上になると急激に軟化する。また、共重合比を変更することで転移温度を変えることができることが知られている。本研究では、1:1、3:1 の SA/MA 共重合ゲルを添加した 4META レジンの転移温度はそれぞれ 37.9℃、41.6℃であったが、口腔内温度を考慮すると 3:1 の SA/MA 共重合ゲルを添加した 4META レジンの方が臨床使用では適していると考えられる。そのため、接着強さを含む機械的特性については、3:1 の SA/MA 共重合ゲルのみを用いて検討を行った。

本研究での室温でのブラケットの接着強さは、4META レジン単体と 3:1 の SA/MA 共重合ゲル添加 4META レジンでは有意差はなかった。これは、実体顕微鏡像、SEM 像観察結果で確認されたように、接着材内で良好に分散したためと考えられる。一方 50℃に昇温した際には、共重合ゲルを添加した方が、接着強さは大きく低下した。これは、接着材内に分散したゲルが転移温度で急激に軟化したためと考えられる。一方、ヤング率、引張強さの測定では、4META レジン単体は、50℃に昇温すると、ヤング率は低下するが、引張強さは上昇する。これは、昇温すると軟化するが、粘り強さが上昇することを意味する。そのため、接着強さの低下が少なかったものと考えられ、引張強さが上昇したにもかかわらず接着強さが低下したことから、接着強さにはヤング率の方が大きく関与することが推察できる。一方で、共重合比 3:1 の SA/MA 共重合ゲル単体では、昇温によりヤング率、引張強さともに 4META レジンと比較して無視できる値まで低下した。この現象が昇温時に共重合ゲル添加 4META レジン内部で起こることで、共重合ゲル添加 4META レジンのヤング率、引張強さを 4META レジン単体と比較して大きく低下したと考えられ、その結果接着強さを 4META レジン単体と比較して有意に低下できたと考えられる。一方室温では、共重合ゲル単体の引張強さは 4META レジンと同等であるもののヤング率は低い。しかし、30wt%の添加量で 4META レジンに添加しても、ヤング率、引張強さともに 4META レジン単体と比較して有意差はない。そのため、接着強さについても有意な差は出なかったと考えられる。以上より、4META レジンに 30wt%の添加量で SA/MA 共重合ゲルを添加しても、十分良好な分散が得られれば、室温においては物性や接着強さに影響が出ないことが分かった。

矯正歯科臨床において咀嚼力と歯列矯正力に十分耐えるためには、最低 5.9～7.9MPa の接着強度が必要であること、また、接着強度が 13.5MPa でブラケットの撤去時にエナメル質の破折が起こりうるということが報告されている。本研究にて開発した新規接着材は室温にてこれらを満たしているため、エナメル質の破折を予防するだけでなく、撤去時に患者に生じる疼痛も大きく減少することが予測できる。本研究において SA の割合を増やすことによって、転移温度を高くできることが分かった。しかし、SA の割合を高くした際の室温、昇温時の共重合ゲルの物性については十分な知見が無く、4META レジンに添加した際に室温における十分な接着力の維持や昇温時の接着力の低下が望めない可能性がある。そのため、今後臨床上最適な共重合比や添加量を決定することが必要である。

SA/MA 共重合ゲルを 4META レジンに添加することにより、温度刺激によって接着強さを半分以下に低下できる新規接着材の開発に成功した。また SA/MA 共重合ゲルの共重合比を変化させることによって接着材の軟化温度を調整できることが分かった。新規歯科用解体性接着材の開発に SA/MA 共重合ゲルは有用であった。