

ボンディングのNext

1ステップの進化と、新しい2ステップと

修復治療のボンディング材において、現在国内では1ステップが大きなシェアを占めています。その一方で、2ステップを使用するユーザーも根強く、海外に目を向けるとその傾向はより顕著です。こうした情勢を鑑み、ジーシーではこのたび新たに2液性の2ステップセルフエッチングボンディングシステムの「G2-ボンド ユニバーサル」を開発しました。

今回座談にお招きしたのは、接着歯学の第一人者である東京医科歯科大学の田上順次教授と日本大学歯学部宮崎真至教授です。お二方には10年前にジーシー・サークルの特別号で、当時の1ステップの性能評価や解説をお願いしました。あれから10年が経ち、これからのボンディング材とは？

そして、1ステップの進化についてうかがうとともに、1ステップの技術を応用して開発した「G2-ボンド ユニバーサル」を評価いただき、ボンディング材について考えていきます。

•ゲスト

田上順次 先生

Junji TAGAMI

東京医科歯科大学大学院
う蝕制御学分野 教授

•ゲスト

宮崎真至 先生

Masashi MIYAZAKI

日本大学歯学部
保存学教室修復学講座 教授

•司会

熊谷知弘

Tomohiro KUMAGAI

株式会社ジーシー
常務取締役

田上順次 先生

Stepを目指して

1ステップボンディング材 10年間の進化

熊谷 MIコンセプトが広まり、コンポジットレジンによる修復治療は日々の臨床に欠かせないものとなっています。それに伴い、“接着”という重要な役割を果たすボンディング材の開発も日進月歩で進んできました。エッチング、プライミング、ボンディングの3ステップだったものが、1990年代にはセルフエッチングシステムを応用した2ステップになり、2004年には弊

社が国内初となる1液性1ステップの「G-ボンド」を開発したのを皮切りに1ステップのボンディング材が普及しました。現在国内の臨床現場では、1ステップが最も多く使われており、次に2ステップ、そして3ステップはほとんど使用されていないという状況にあります。

今回はこうした動向を踏まえ、田上順次教授と宮崎真至教授をお招きし、ボンディング材をテーマに座談を進めてまいります。両教授にご登場いただいた2010年の「ジーシー・サークル特別号」(図1)から約10年が経過しました。まずは、先生方の中で1ステップボンディング材の進歩はどういったイメージになっているかをお聞かせいただければと思います。



図1 2010年に制作した「ジーシー・サークル特別号」。



宮崎真至 先生

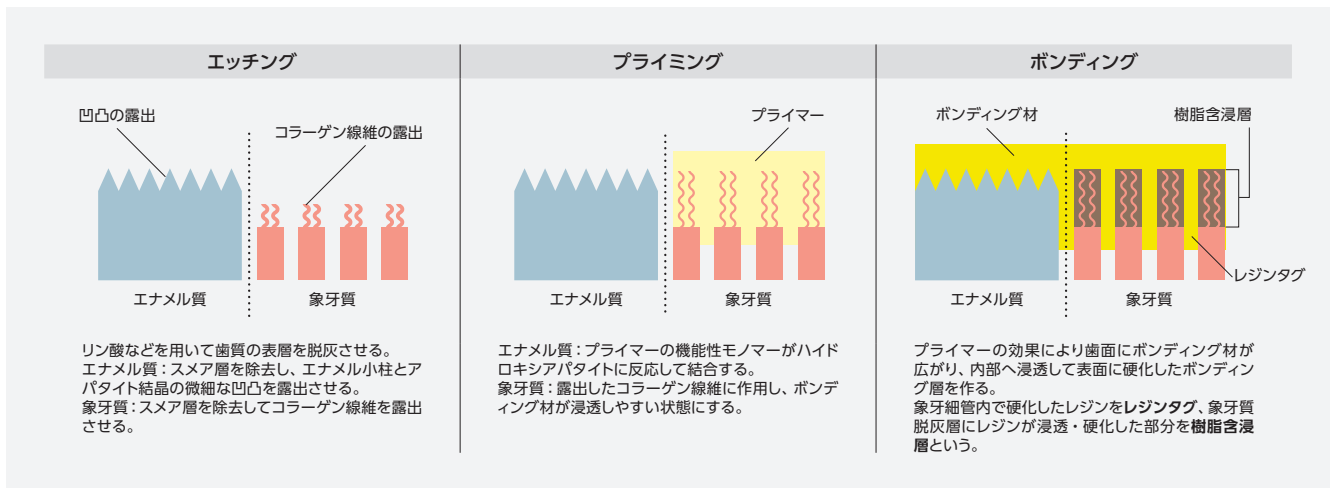


図2 歯質接着のための3つのステップの主な機序。

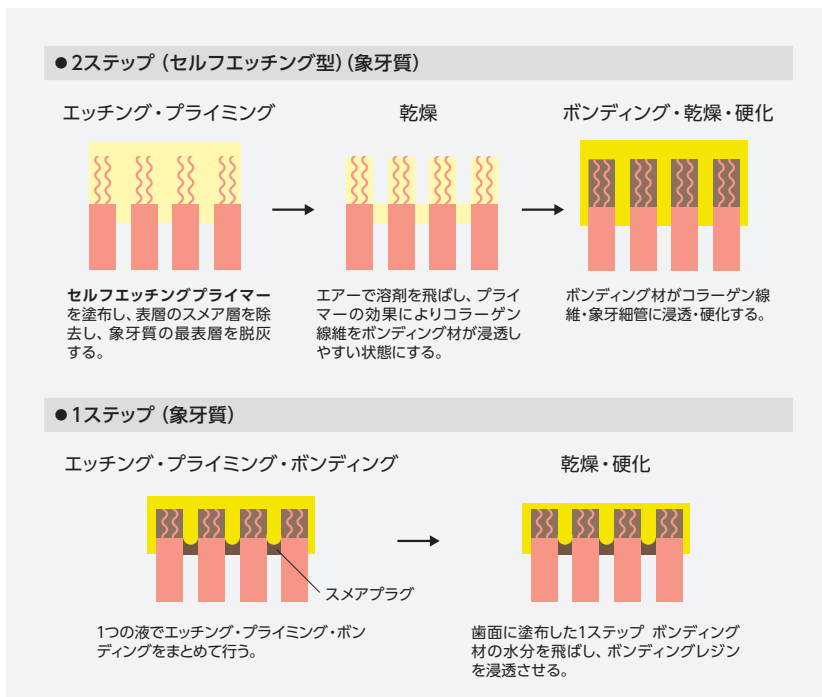


図4 2ステップに求められる親水性と疎水性。

図3 象牙質における2ステップと1ステップの接着手順と要点。

田上 1ステップが出た時、その簡便性から先生方には最初からかなり受け入れられていた印象がありますが、性能評価を行う立場からすると、やはり2ステップの接着性能には及ばないというのが明確だったように感じています。ただ、そこから各企業が開発を進めてどんどん優れたものになっていき、現行の1ステップはかなり信頼性の高いものに進化しました。

日本ではセルフエッチングプライマーとボンディング材を使用した2ステ

ップが広まり、さらなる簡略化を目指して1ステップへと発展したわけですが(図2、3)、2ステップのセルフエッチングプライマーは水分に富んだ象牙質に入り込むために非常に高い親水性を持ち、対してボンディング材は充填で用いるコンポジットレジンとの馴染みを良くするために疎水性が求められます(図4)。1ステップはいうなればその両方をあわせ持ったもので、そのどちらに振っていくかいろいろな試行錯誤があり、また成分の開発な

ども工夫を重ね、今に至っています。現在1ステップを臨床のほとんどの症例に使って、ほぼ問題ないものと理解しています。

熊谷 ありがとうございます。宮崎教授はいかがでしょう。

宮崎 田上教授もおっしゃったように、日本の2ステップボンディング材のセルフエッチングの技術が根幹にあったことが重要で、それが1ステップの土台となっています。そこから、機能性モノマーの取り扱い方や水の取り



図5 2ステップの「ユニフィルボンド」以降ジーシーが発売してきたボンディングシステムの変遷。

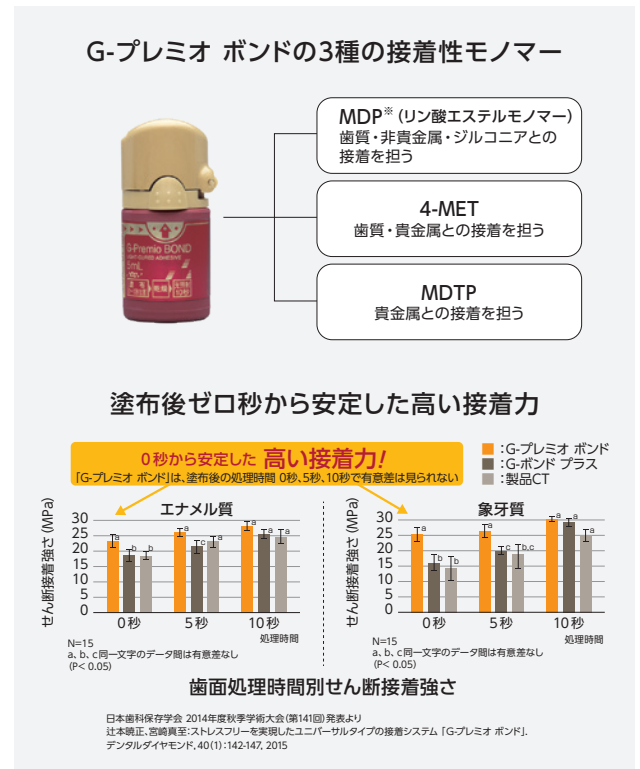


図6 1ステップの「G-プレミオ ボンド」は機能性モノマーの成分やバランスの調整により、塗布した後に待ち時間無しで乾燥を行えるようになっている。

扱い方、相溶性というものの捉え方など、いかにしてレジン成分を重合させるかなど、さまざまな難題を模索する苦難の道を各企業が乗り越えてきました。そして最近では「水分による劣化をいかにして防止するか」「いかに短時間で処理できるようにするか」といった視点からさらなる技術革新もし、結果としてこの10年多くの臨床家に重宝され続けてきたと思います。

熊谷 ありがとうございます。ジーシーでは1ステップのボンディングシステムとして、この10年の間に「G-ボンド プラス」から発展させた「G-プレミオ ボンド」を発売しました (図5)。

宮崎 「G-プレミオ ボンド」では接着性モノマーのMDPに4-METを加えることによって、ほかの製品にはない低いpHを実現させ、より短時間の処理時間0秒を可能にしました (図6)。これはジーシーの技術の1つの結晶なのではないかなと感じています。

1ステップボンディング材の これからの課題

熊谷 「G-プレミオ ボンド」では1ステップの魅力である利便性をさらに追求でき、臨床の場でご好評いただいていることを弊社としてもうれしく思っております。それでは、先生方が思う1ステップのこれからの課題や今後求める性能などについても、ご意見をお聞かせください。

田上 2ステップと比べてということになりますが、今の1ステップに求めたいのはエナメル質への接着性能ですね。いろいろな試験を行っていますが、2ステップと1ステップで違いが大きく出るのはエナメル質への接着です。教室では基本的に1ステップのセルフエッチングのときにはエナメル質にセレクトタイプエッチングをしたほうがいいでしょうという立場をとっています。

また、疎水性を高くできる2ステッ

プのボンディング層と比較すると、1ステップのボンディング層は機能性モノマーを多く含むという点も課題となるでしょう。機能性モノマーは一般的なモノマーに比べて重合性が悪く、それを多く含む1ステップのボンディング層では重合不足が生じることが考えられます。さらに、機能性モノマーの吸水により強度低下を招くおそれもあります。窩洞に充填するとボンディング層にコンポジットレジンの重合収縮応力がかかりますが、そこで1ステップの中には接着が壊れやすいものがあるのではないかとこの知見があります。

熊谷 わかりました。宮崎教授はいかがでしょう。

宮崎 1ステップの接着強さはかなり2ステップに近づいてはいるのですが、まだ耐久性の面で臨床家の先生方は若干不安を持っているというのが実情ではないでしょうか。この不安が特

※10- methacryloyloxydecyl dihydrogen phosphate



ゲスト・田上順次 先生

に浮き彫りになるのは、例えば今後増えてくるとされる高齢者の根面う蝕やくさび状欠損などの治療です。今はなんとか患者さんが来てくれていても、今後は高齢のため病気や介護施設への入所などによりリコールで管理するのは難しいかもしれない。そこで接着の確実性と耐久性を求められた時に、胸を張って1ステップで大丈夫と言えるかどうかだと思います。根面う蝕など防湿が難しい場合には、より確実に処理できる1ステップが臨床的に求められるのではと考えています。

熊谷 ボンディング材について弊社が行ったアンケート調査でも、国内の1ステップユーザーから「接着性に不安」「接着の耐久性に不安」「エナメル質へのエッチング性に不安」といった意見は確かにありました。



ジーシー・熊谷知弘

宮崎 さらに開発に期待したいところですが、もうひとつは研究の面ではあるのですが、例えば酸蝕歯のモデル実験を行うと1ステップの接着性が多少劣ることなどが明らかになっています。これまでの研究ではどちらかというと正常なエナメル質や象牙質に対する接着強さ試験で評価していましたが、今後は病的なモデルを作ってそれに対する接着の確証を得て、臨床家の方々の声に応えていきたいと考えています。

世界各地の多様な ボンディングシステム事情

熊谷 ボンディングシステムに関するユーザーアンケート調査を、ヨーロッパ、アメリカ、オーストラリアで行いました。ここで、各地域のボンディングシステムの使用の傾向を簡単にご紹介します(図7)。

まずヨーロッパでは、1ステップ、2ステップ、3ステップがいずれも使われる傾向にあります。またボンディング材の用途では、間接修復の割合が他地域より高いことがわかりました。

続いてオーストラリアでは、エッチングを併用した2ステップが最も多く、1ステップは他地域と比べて最も少ないという結果が得られました。

最後にアメリカでは、3ステップあるいはエッチング併用の2ステップが多く、1ステップの使用はヨーロッパのように多くはありませんでした。自費治療も含めて2ステップ、あるいは3ステップがメインとなっていることがわかりました。この傾向を見て、先生方はどのような印象を受けますか。

田上 ずいぶん日本と違うなという



ゲスト・宮崎真至 先生

印象です。ヨーロッパは間接法の修復が多いということですが、日本では少なくとも私の周りを見てみても、かなり大型の修復でも直接法でやるようになってきており、どのような症例が多いかで使用するボンディングシステムを選択しているのではないかと思います。

宮崎 やはり、自分が育った環境や自分を取り巻く歯科の環境によって、接着に関する考え方というのも違うのでしょう。また、エナメル質の厚さや水道水に添加したフッ化物の効果で再石灰化が進んでいることなども影響していると思います。

田上 そうですね。接着って目に見えないので、後になって治療部位に不具合が生じて、それが接着に問題があったかどうかはわからない。そういったボンディングに関する臨床上的特性が、地域間の差を形作っているような感があります。

熊谷 余談ですがコンポジットレジンの市場に目を向けますと、国内外問わずフロアブルタイプのレジンの市場が拡大しているという傾向があります。フロアブルというと以前はライニングなどがメインとされていましたが、開発によって咬合面に出しても問題のない強度や耐摩耗性が実現し、需要や信頼性が高まってきています。

日本	オーストラリア
<ul style="list-style-type: none"> ●1ステップが多い。一方、3ステップはほとんどない。 ●2ステップもある程度いるが、その割合は欧米の半分程度。 	<ul style="list-style-type: none"> ●エッチング併用の2ステップが最も多い。 ●1ステップは他地域と比べて最も少ない。
ヨーロッパ	アメリカ
<ul style="list-style-type: none"> ●3ステップ、あるいはエッチング併用の2ステップが多い。 ●1ステップ(ユニバーサル)が多い。 <ul style="list-style-type: none"> ➔エッチング併用、症例によって使い分けている。 ●用途では間接法修復の割合が他地域より多い。 <ul style="list-style-type: none"> ➔フロアブルレジンでレジンセメント的に使用している。 	<ul style="list-style-type: none"> ●3ステップ、あるいはエッチング併用の2ステップが多い。 ●1ステップは存在するものの、ヨーロッパのように多くはない。

図7 ジーシーが実施したアンケートによって導き出された、世界各地のボンディングシステムの使用傾向。

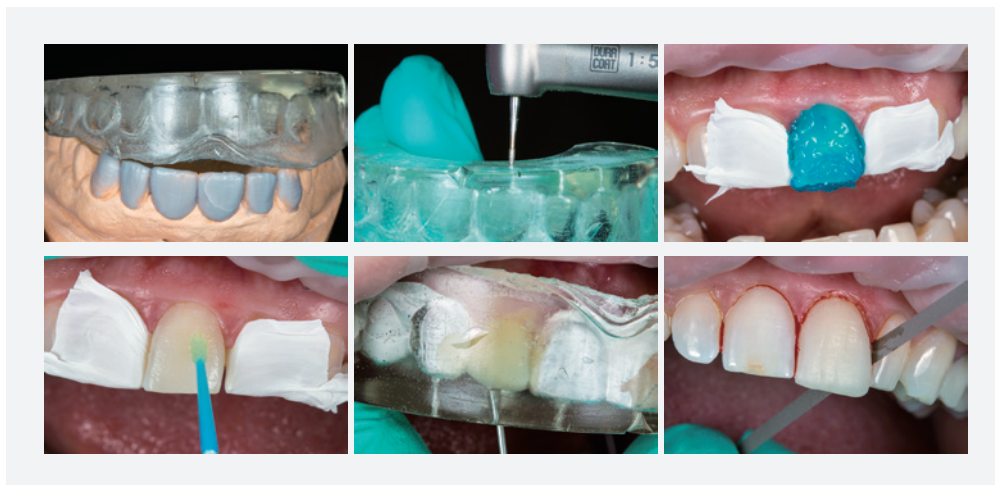


図8 フロアブルレジンとエクザクリアを併用した、インジェクションモールディング修復の症例(Dr. Ali Salehi による症例)。

海外では、弊社のフロアブルレジンと透明なシリコーン印象材(エクザクリア)を併用した、インジェクションモールディング修復を行うという症例も出てきました(図8)。これもひとえに、コンポジットレジンの性能強化とボンディング材の発展によるものと思います。

2ステップが 変わらず使用される理由

熊谷 1ステップが普及し評価が高まっても、国内外問わず2ステップのユーザーは一定数いらっしゃるようです。先生方も2ステップを使用されていますが、大学での研究や臨床的地域から、その理由をお聞かせいただけませんか。

田上 私の場合は、接着性能が高いため2ステップを使用しているという点に尽きます。毎年、教室に入った新人には接着試験と走査電子顕微鏡の観察を必須のプログラムとしてやってもらうのですが、その際に2ステップは誰がやっても高い接着が得られるということもあり、非常に評価しています。

やはり接着は目に見えず、どんなボンディングシステムでも臨床で本来のパフォーマンスが得られているという保証はありません。被着体が病的なものであったり、接着の難しい環境であったりすることもあります。だからこそ性能の優れたものを、基本的な操作方法を守って臨床で使うということを第一に考えています。

宮崎 研究で1ステップの接着性を評価するにあたっては、やはり2ステップのレベルをひとつの目標値にするという視点が外せません。そういった実験をやっていると、臨床でも2ステップのほうが間違いないというイメージが出てきてしまう感じがします。

熊谷 2ステップは試験で安定して良い結果が出ているので、臨床でも良い結果につながることを期待して2ステップを選ぶというわけですね。

ジーシーの新しい 2ステップボンディング材

熊谷 これまで弊社はボンディング材では「G-プレミオ ボンド」に代表される1ステップの製品を中心に開発を



G2-ボンド ユニバーサル

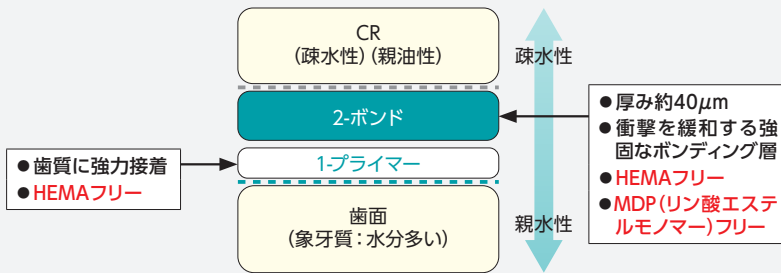
●2つのボトルの配合成分

1-プライマー
▼主な配合成分
4-MET
MDP
MDTP
ジメタクリレートモノマー
光重合開始剤
フィラー



2-ボンド
▼主な配合成分
ジメタクリレートモノマー
光重合開始剤
フィラー

●接着層の模式図



POINT HEMAフリー・ボンディング材のMDPフリーによるメリット

HEMAはコンタクトレンズの材料に使用されるなど水との親和性が高いため、ボンディング材でも広く使われているが、一方で吸水性がある。MDPには酸を発現するためのリン酸基が存在し、一定量の水分を引き寄せる性質がある。2-ボンドにこれらを入れないことによって低吸水性となり、物性の劣化が抑えられる。

図9 G2-ボンド ユニバーサルの特長や、各種試験の結果など。

進め、数多くの先生方にご使用いただいています。しかし、国内のユーザーのニーズや海外の情勢にも目を向けると、これからはもっと多様な選択肢をユーザーに提供する必要があるのではないかという考えに至りました。

そこで今回、新たな2ステップボンディング材「G2-ボンド ユニバーサル」を発売することとなりました。

弊社では1998年に「ユニフィルボンド」という2ステップのボンディング材を発売し、現在は1ステップの開発で培ってきた技術を2ステップに活かすことで、先生方に自信を持ってご提供できるクオリティの高い2ステップボンディング材をお届けできるようになったという技術的な背景もあります。

この弊社のボンディング材の新たな展開について、どういった印象を抱いたかなどをお聞かせください。

宮崎 ユーザーの先生方の中には、「これまで1ステップを薦めてきたジーシーがなぜ急に2ステップを？」と疑問に思われる方も少なくないと思

いますが、ジーシーは臨床家の立場から深く考えているメーカーだと思うのです。多くの臨床家の潜在的な要求事項をいくつか考えていくと、高い接着強さ、耐久性、テクニックセンシビティが少ないことなどが挙げられるでしょう。そういう要求事項に応えるものとして、2ステップも必要だという結論になったのだろうと推察します。

もちろん1ステップは1ステップで多くの需要はあるのでさらに開発を進めていくのだろうと思います。ただ、市場には2ステップユーザーもいることから、臨床的な要求事項に応えるには、今やはり2ステップも押さえる必要があるということで、今回の製品に踏み切ったのだと考えます。

熊谷 田上先生はいかがでしょうか。田上 先にも触れましたが、1ステップのボンディング材は2ステップのセルフエッチングプライマーとボンディング材の両方の特長をあわせ持った

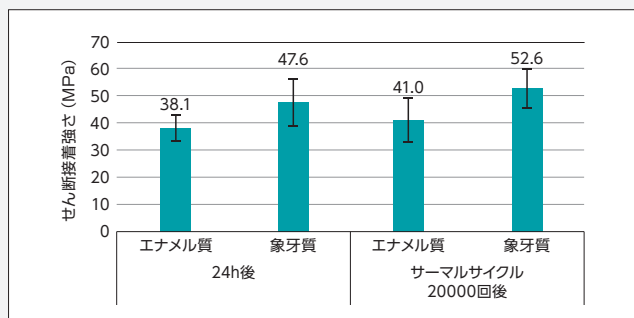
位置付けのもので、セルフエッチングプライマーやボンディング材をさらに良くする研究開発の中で技術は熟成されてきたのだと思っています。そういった状況から、従来の2ステップを超えるようなものを提案するという展開は理にかなっており、時宜を得たものだろうと思いました。

「G2-ボンド ユニバーサル」が備える特長

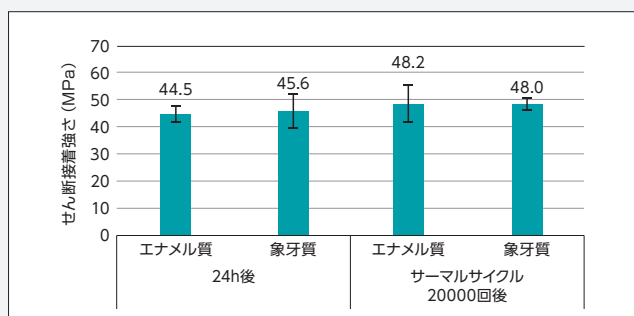
熊谷 「G2-ボンド ユニバーサル」の製品の特長をご説明します(図9)。

一番の強みとして挙げられるのが、非常に高い接着強さです。歯質への高い浸透性と接着性能のある1-プライマーと約40μmの2-ボンドの層で衝撃も緩和でき、しっかり固まり、サーマルサイクル試験を行っても接着強さが落ちません(図9a)。また、セレクトティブエッチングでエナメル質に塗布したエッチングが水洗・乾燥する際

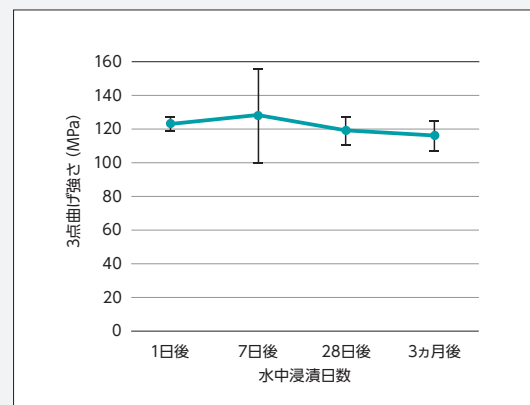
●G2-ボンド ユニバーサルの試験結果 (ジーシー研究所データ)



a せん断接着試験 (Ultradent法)



b リン酸エッチング併用でのせん断接着強度



c 水中浸漬後の曲げ強度の劣化が少ない

に象牙質に付着したとしても、接着強度が低下しないことを確認しています (図9b)。また、1-プライマーと2-ボンドのいずれにもHEMAを配合せず、さらに2-ボンドにはMDP (リン酸エステルモノマー) も配合していないというのも大きな特長です。これにより吸水を低く抑えることができ、重合性も高くなり、物性の劣化を抑えて長期接着耐久性を高めています (図9a~c)。また、吸水性が低いことでボンディング層に褐線が生じにくくなります。

加えて、1-プライマーのみで令和2年の保険改定で適用となりました「象牙質レジンコーティング (1歯につき)」 (46点) にも応用でき、これによって術後疼痛も緩和できるという特徴も備えております。

このように、「G-2ボンド ユニバーサル」には2ステップのユーザーに納得していただける性能を盛り込みました。先生方から見て、本製品について注目された点などをお聞かせくださ

い。田上教授いかがでしょうか。

田上 技術的な面で言うと、ボンディング材にMDPが入っていない点がポイントだと思います。従来の2ステップは、プライミング処理だけではプライミングが不十分で、ボンディング処理でもプライミングを補い、ボンディング材をしっかり浸透させる必要があるとされ、ボンディング材にもプライミング目的である程度の機能性モノマーを入れていました。界面をプライマーで化学的にしっかりと修飾できれば、ボンディング材に機能性モノマーは要らないのではという考えは誰でも思い付くところですが、それを実際に性能が出るようにするのは大変な苦労があったのではないのでしょうか。ちょっとした成分量の差によってもかなり違うでしょうし、そういうアプローチの中で良いものができたということは非常に評価できると思います。

熊谷 そこはまさに今回苦心したところです。宮崎教授はいかがでしょう。

宮崎 理論的にはボンディング層の機械的な強度が接着強度の向上に寄与するという事は既に言われていることで、それを考えると2つのボトルにきちんと役割分担させているところが優れていると思います。歯質との反応をプライマーが担って、その上のボンディング層がしっかりと接着界面を作る。そういう発想は、今までであったようではなかった気がします。ボンディング材に機能性モノマーを入れることによりボンディング層に重合不足が生じるおそれがあることは、先ほど田上教授がおっしゃったとおりです。この問題に対し、思い切ってそれを入れないことにより単純化したということが狙いで、その狙った部分が、吸水量が少なく水の影響を受けないという性能に如実に表れているのだと思います。熊谷 ありがとうございます。ひとつお尋ねしたいのですが、「G2-ボンド ユニバーサル」ではボンディング層の厚みが約40 μ mほどあります。1ステ

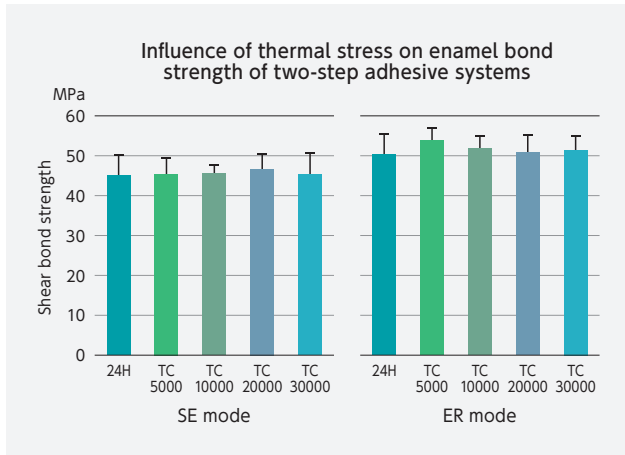


図10 G2-ボンド ユニバーサルのエナメル質接着耐久性を示す。5℃-55℃の温熱サイクルを付加しても、セルフエッチモード (SE) およびエッチ&リンス (ER) のいずれにおいても、接着強さに変化は認められず、安定した接着耐久性を示している。
データ提供: 日本大学歯学部 保存学教室修復学講座

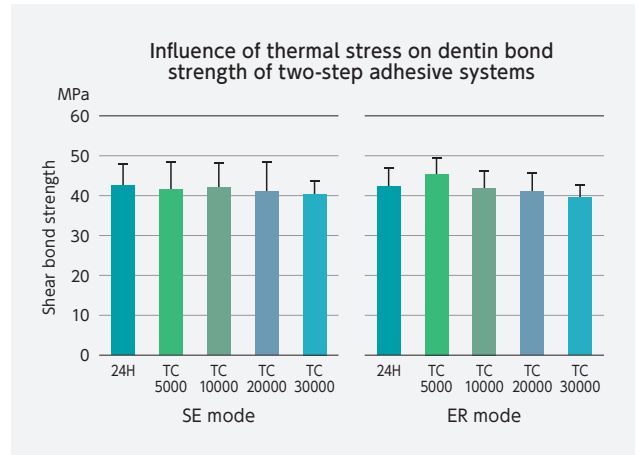


図11 G2-ボンド ユニバーサルの象牙質接着耐久性を示す。エナメル質接着耐久性とともに、象牙質においても優れた耐久性を示すことが示されている。特筆すべき点としては、いずれのエッチングモードにおいても、エナメル質接着強さとほぼ同等の値を示していることであり、このことは臨床的な接着安定性に寄与することとなるものである。
データ提供: 日本大学歯学部 保存学教室修復学講座

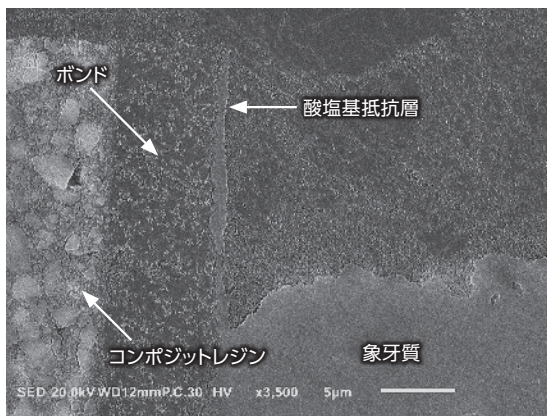


図12 G2-ボンド ユニバーサルと象牙質の接合界面の走査電子顕微鏡像: 接着界面を酸とアルカリで処理すると象牙質が溶解、消失するが、接着界面のボンド層の象牙質側には象牙質様の薄層(酸塩基抵抗層)が残っている。これは接着材成分が象牙質によく浸透した結果形成された、化学的耐久性の向上した象牙質である。
データ提供: 東京医科歯科大学大学院 う蝕制御学分野

材を吸着してマージンが目立つおそれがありますが、「G2-ボンド ユニバーサル」はより疎水性のボンディング層という特徴があるので、マージン部分の着色を気にせず使用できるものと考えています。

宮崎 もうひとつ、ボンディング層の厚みに関しては、臨床の視点では塗った感覚があるかどうかというのも重要だと思います。あまり薄すぎると塗れているのか不安になったりしますよね。臨床の場面では感覚的な部分も無視できず、そういった意味で厚みがあることは重要な要素かもしれません。

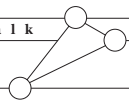
「G2-ボンド ユニバーサル」の展望とこれからのボンディング

熊谷 「G2-ボンド ユニバーサル」については、すでにお二方には研究を進めていただいております。その結果を少しお教えいただきたいと思います。

宮崎 先ほどお見せいただいたせん断接着試験データの延長のようなものですが、「G2-ボンド ユニバーサル」のサーマルサイクル試験を行った結果

ップは2ステップよりもボンディング層を薄くでき、それが審美性の面などから利点のひとつと考えられているのですが、実際のところ臨床的に許容できるボンディング層の厚みはどのくらいだとお考えでしょうか。また、臨床的にボンディング層にはショックアブソーバー的な機能を求めるべきかどうかといったところをお聞かせください。
宮崎 接着材としてはボンディング層がないというのが究極だとは思いますが、破壊力学的にある程度の厚みがあるべきだろうと考えています。これは接着の世界的権威であるルーヴェン・カトリック大学のBart Van Meerbeek教授もおっしゃっているこ

とです。
臨床的なひとつの基準としては、50μm以下程度でしょうか。大体50μmが咬合紙1枚の厚みですので、「G2-ボンド ユニバーサル」はそれ以下であるとイメージするとわかりやすいかもしれません。
田上 1ステップはマージン部分にボンディング層の厚みが出ないということが言われましたが、おそらく2ステップのボンディング層も窩洞のマージンのところは構造的にかなり薄くなっていると思います。すなわち、厚みによる審美性への影響はあまりないのかなと感じていました。親水性の高いボンディング層の場合、水溶性の着色



を回数ごとに比較しました(図10、11)。エナメル質と象牙質ともに、急激な温度変化を加えても接着強さが低下しないことが確認できました。エッチングを併用した場合でも同様です。総じて、長期的な安定を期待して使用できると思われま

田上 走査電子顕微鏡で見て興味深かったところをお示しします(図12)。象牙質の接着界面を見ると、通常は酸とアルカリで処理しても残るいわゆる酸塩基抵抗層とボンディング層の間に、樹脂含浸層のようなものが見えるのですが、「G2-ボンド ユニバーサル」ではそれがほとんど見え、すぐボンディング層に移行しているように見えます。また、ボンディング層とコンポジット層の界面がくっきりしています。ボンディング材の重合性が良いために表面がまじりにくかったのか、そのあたりに従来の製品との構造の違い

があるようで、詳しく分析していきたいと思っています。

熊谷 ありがとうございます。それでは最後になりますが、今回の新たなボンディング材についてや今後の展望など、メッセージをいただければと思います。田上教授お願いします。

田上 個人的には2ステップの利点をたくさん感じていますので、2ステップの優れた新製品が開発されたことをとてもうれしく思います。

先生方もぜひこれを活用して、大いに接着修復を楽しんでいただきたいと思います。

熊谷 宮崎教授お願いします。

宮崎 現在世界に求められている感染への対策などを考えると、切削時間を減らし、印象採得はしないようになり、コンタミネーションが起こりにくい診療環境にシフトしていく流れにあり、さらにコンポジットレジン修復に

向かうことは確かだと思えますね。そういう中で、今ここで2ステップのシステムが発売になるということは、これまで先生方が、もしかすると「1ステップが簡単だから」と漫然と行っていたかもしれない接着に、ご自身であらためて一歩踏み込む機会になるのではないかと考えています。

ジーシーが新たにリリースした2ステップは、1ステップから後ろに下がったのではなく、前に進むためのひとつの提案なんだということ、ぜひご理解いただければと思います。

熊谷 両教授にたくさんの貴重なご意見をいただきました。弊社としては今後とも新しい接着システムの開発をしてまいりますので、ご支援のほど、よろしくお願ひいたします。本日は、ありがとうございました。



Interview Prof. Bart Van Meerbeek

2-step bonding system

接着歯学の世界的権威であり、「G2-ボンド ユニバーサル」の開発においても多大なご貢献をいただいたルーヴェン・カトリック大学のBart Van Meerbeek教授に、ボンディングに関するインタビューにお答えいただき、また「G2-ボンド ユニバーサル」についてメッセージをいただきました。

KUルーベン大学口腔保健科学部生体材料研究グループ、UZルーベン (大学病院ルーベン) 歯学部
KU Leuven大学-BIOMAT (生体材料研究グループ) 教授
UZ Leuven主任

Bart Van Meerbeek



略歴・所属団体◎1988年 DDS取得。1993年 PhD取得。
1989～1993年 博士課程学生[FWO Aspirant]。1993-2000年 FWO 博士研究員。
2000年 BIOMAT (バイオマテリアル研究グループ) 創設者・会長。KUルーベン口腔衛生科学部 (OHS) 理事。UZルーベン歯科病院評議会 会員。KUルーベン、UZルーベンRESTO (保存修復スタッフ) 会員。KUルーベン学士試験委員会 会員
KUルーベン生物医学博士課程博士委員会 会員 OHS講座代表/7つの国際的な査読付きジャーナルの編集委員会 会員/Quintessence International, Journal of Adhesive Dentistry 編集長 (2004年～) /FWO専門家パネルMED8の元会員 (2010～2015年)/BIOMAT 会員・会長

原文

Q1 Despite the ongoing evolution of bonding agents still many dentists prefer to use either one or the other type of the older generation of multi-step adhesives. What do you think is the reason for that?

Bart Many dentists still prefer a certain type of bonding procedure, and feel familiar and are satisfied with a specific product; therefore, they do not see a clear need to change their bonding procedure and dental adhesive. In my opinion, what they were taught in their studies also contributes to their choice. Dentists tend to continue doing it that way if they believe the technique they have learned is efficient.

Q2 For a long time the scope of research was focused on the variety of adhesive monomers and the methodology of bond strength testing as well as the level of bond strengths itself. Nowadays the scope seems to be more on bond durability and long-term performance. How do you consider the different generations of bonding agents on that point?

Bart Most adhesives nowadays guarantee sufficient 'immediate' bonding effectiveness, which means they perform well when bonded to model dentin under ideal laboratory circumstances and tested relatively shortly after their application, usually after 24 hours or 1 week. Consequently, in most cases we cannot differentiate among today's adhesives based only on immediate bond-strength data.

For this reason, it is extremely important to challenge the products to learn their behavior in the long term. As editor of the *Journal of Adhesive Dentistry*, I must tell you that we do not accept papers reporting bond-strength data without aging. Of course, artificial aging in the lab cannot be directly translated to the clinical situation but, at least, it gives an idea on the stability of the bond.

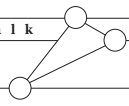
意訳

世界の多くのユーザーが従来からある2ステップや3ステップのボンディング材を使い続ける理由はなんだとお考えですか？

使い慣れていることと今使っている製品で満足していて別の製品に変える必要性を感じていないことだと考えます。私の感触では、大学で教わったものが信頼できるなら、それを使用し続ける傾向があります。

以前は初期接着強さと接着性モノマーの種類や接着試験方法が注目されていましたが、最近では長期の接着耐久性が注目されています。長期症例における異なる世代ごとのボンディング材についてどのようにお考えですか？

最近のボンディング材は初期の物性比較ではほとんどの製品で十分な接着強さを発揮するため、長期での比較が必要になります。私はJournal of Adhesive Dentistryの編集者として、エイジングデータのない論文は受け付けていません。もちろん、ラボでの人工的なエイジングの結果が臨床に直結するわけではありませんが、少なくとも接着の安定性を示す指標となります。



Though a scientifically documented product-dependency exists, the 3-step ER and 2-step SE adhesives are still considered the gold standards. This is mainly because sufficient and repeatedly consistent evidence of favorable long-term bonding performance was recorded for particular commercial adhesives in both laboratory and clinical research, the latter beyond ten years of clinical service. All other simplified adhesives should somewhat be regarded as 'trade-off' adhesives, which traded in some of their bonding performance for ease-of-use, hereby not yet reaching the proven level of the gold standards, while quite often also not having been tested clinically for a sufficiently long time.

Q3 There are perceptions about a potential weakness of simplified E&R adhesives in regard to collagen degradation and for both strategies, E&R and SE approaches, in regard to the hydrolysis of the polymer matrix itself. What is important for the general practitioner to know on these topics?

Bart Two main bond-degradation pathways have been documented in scientific literature. There is first the so-called enzymatic bio-degradation (1), involving MMPs along with cysteine cathepsins. A lot of attention in research is given to this pathway; however, the proportional contribution of such enzymatic activity to bond degradation is still unclear and in my personal opinion still much less relevant than the second bond-degradation pathway. Second, there is water sorption (2), or water uptake by the adhesive interface, inducing hydrolytic bond-degradation mechanisms.

I definitely consider water sorption as the most important degradation pathway. The oral environment and the dentin itself are the two water sources. The adhesive interface can absorb water from the underlying dentinal tissue through osmosis, and this may lead to hydrolytic degradation of the adhesive interface with dentin.

I believe that nowadays the importance of a good interfacial seal to prevent water sorption is underestimated, while this is besides the actual bonding performance another primary requirement an adhesive should meet. Too much attention goes nowadays to enzymatic bio-degradation, which I consider a kind of research 'trend' that will gradually pass with time.

Most important for bond durability is a stable and hydrophobic adhesive interface that ensures a good seal and prevents/limits water uptake. It must be clear for the general practitioners that adhesives should provide this hardly permeable seal.

Q4 Tooth erosions, bulk-fill techniques, shorter light-curing protocols, just to mention some trends, implicate new challenges for adhesive dentistry. What are your recommendations in order to achieve a high level of bond strength, durability and long-term performance in direct protocols?

3ステップエッチ&リンスシステムおよび2ステップセルフエッチシステムには多くの実験データと臨床報告があり、世界的には依然としてゴールドスタンダードと見なされています。他の多くの簡便化されたボンディング材は接着性能と使いやすさの両立が難しく、その接着性能は未だゴールドスタンダードのレベルには至っていません。

簡便化されたエッチ&リンスシステムはコラーゲンを分解する欠点があります。またエッチ&リンスとセルフエッチどちらのシステムにおいてもポリマーマトリックス自体を加水分解する欠点があります。開業医がこれらのトピックについて知っておくべき重要なことは何だとお考えですか？

接着の劣化メカニズムには主に2つの経路があります。ひとつは、MMPsによる酵素的生分解ですが、私は二次的な接着の劣化とはほとんど関連性はないと思っています。2つ目は、吸水や水の取り込みによる加水分解です。

私は吸水が最も重要な劣化の要素だと考えています。接着界面は、象牙質から（浸透によって）水を吸収し、これが加水分解につながります。

今日、吸水を防ぐための優れたシーリングの重要性は少し過小評価されていると思います。今日、酵素による生分解に多くの注目が集められていますが、私は一種の研究トレンドと考えています。

接着耐久性で最も重要なのは、良好なシール性と水の取り込みの防止・制限を確実なものにすることによって、安定で疎水性の高い接着界面を形成することであり、そのことを開業医は知る必要があります。

直接充填における高い接着強さ・耐久性には何が必要だとお考えですか？

Bart My preferred bonding protocol combines selective enamel etching with a SE approach based on 10-MDP. Among many functional monomers, 10-MDP is nowadays considered the most effective monomer. On top of micromechanical interlocking achieved by 10-MDP's etching capacity, this monomer provides additional chemical interaction potential. Chemical interaction is the innermost contact that molecules can have to each other and that's fundamental for bond durability. A common misunderstanding is the idea that chemical interaction will increase bond strength; it will not! Chemical interaction is responsible for maintaining bond strength at a stable level.

Also of high importance for bond-strength durability is the immediate seal of the interface. Postponing light curing creates osmotic effects with the consequence that water is absorbed from the underlying dentin. As mentioned earlier, this targeted interfacial seal must be, of course, highly hydrophobic.

I also strongly believe that in order to protect and stabilize the hybrid layer, the adhesive layer should have a certain thickness. A thick adhesive layer can act as a shock-absorbing layer or stress absorber, which for instance compensates for the shrinkage of the overlaid composite and so will impose tensile stress to the underlying adhesive interface.

In summary, I would like to state that selective enamel etching, a SE approach based on 10-MDP, a hydrophobic seal and an adhesive layer with a certain thickness are essential requirements to achieve long-term bond stability.

Q5 GC has a successful history in the development of HEMA-free bonding agents. Where do you see the specific benefits of this feature?

Bart Today, HEMA is still added to many commercial adhesives due to some positive features. It can act as a co-solvent for other monomers in preventing water/monomer phase separation. Thanks to its low molecular weight and thus small size, along with its high hydrophilicity, HEMA is an effective surface-wetting as well as interdiffusion/penetration agent, the latter to infiltrate into the wet, demineralized collagen-rich dentin relatively deeply exposed upon phosphoric-acid etching as part of an E&R bonding protocol.

However, HEMA has also major disadvantages. It is too hydrophilic and this leads to high water sorption. Many commercial adhesives contain water and HEMA in the same solution, and the fact that HEMA is too compatible with water makes it nearly impossible to remove water from the interface. Another negative point is HEMA's low polymerization ability, remaining soft as a kind of gel despite being cured. If it does not cure properly, the resin matrix will consequently not be strong; so, HEMA has a low contribution to the mechanical strength and stability of the polymer matrix, and actually weakens it. HEMA is also very sensitive to hydrolysis. Another negative aspect is that, as it is a small molecule, it can compete with other functional monomers, inhibiting chemical interaction; for example, our research has shown that HEMA can affect 10-MDP's nano-layering. Its unfavorable biocompatibility, particularly in terms of its documented allergic potential, is finally another disadvantage of HEMA that cannot be ignored.

私の好む接着手法は、セレクトティブエナメルエッチングと10-MDP[※]を応用したセルフエッチングシステムを組み合わせたものです。多くの機能性モノマーの中で、10-MDPはそのエッチング性能から今日最も効果的なモノマーと考えられています。よくある間違いは、10-MDPの化学的相互作用が接着強さを高めるという考えですが、それは違います。化学的相互作用は、安定した接着強さを維持するための重要な機能です。

また、接着耐久性にとって非常に重要なのは、界面の即時封鎖と、高い疎水性です。ボンドへの照射を遅らせると、象牙質から浸透圧効果によって水が吸収されます。

ハイブリッド層を保護・安定させるためには、ボンディング層に一定の厚みが必要だと強く信じています。厚いボンディング層は、コンポジットレジンとの重合収縮を緩和する衝撃吸収層として機能します。

したがって、セレクトティブエナメルエッチング、10-MDPを応用したセルフエッチングシステム、疎水性シーリング、ある一定の厚みのあるボンディング層は、長期的な接着安定性にとって不可欠なものであると言えます。

GCはHEMAフリーのボンディング材の開発に成功しましたが、HEMAフリーにした具体的なメリットはなんのでしょうか？

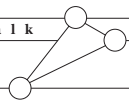
HEMAは現在市販されている多くの製品で水とモノマーの相分離を防ぐために使われています。HEMAは、分子サイズが小さく、親水性が高いため、コラーゲンリッチな湿潤脱灰象牙質に浸透するためには効果的に機能しますが、大きな欠点があります。それは、親水性が高すぎるため、吸水性が高くなることです。多くの市販のボンディング材は、ワンボトルに水とHEMAを含んでおり、水とHEMAとの相溶性が良すぎるため、界面から水を取り除くことができません。

もう一つの欠点は、重合性が低いということです。その結果、ポリマーマトリックスが弱くなります。また、HEMAは非常に加水分解されやすいです。

他のネガティブな側面としては、その小さい分子がゆえに化学的相互作用を阻害します。例えばHEMAは10-MDPのナノレイヤリングの形成に影響を与えるということです。

HEMAのもう一つの欠点としては、HEMAアレルギーにより生体親和性に問題があるということです。

※10- methacryloyloxydecyl dihydrogen phosphate



Due to all these limitations, dental manufacturers attempt to develop and produce HEMA-free/poor adhesives, by which there is definitely a need to find an effective replacement for HEMA.

Q6 What is your wishlist in regard to a most effective 2-step bonding agent in terms of composition, technological features and performance?

Bart A separate primer should serve as adhesion promoter. This primer has to be 10-MDP based, rendering chemical binding potential. This 10-MDP monomer must be of good quality and be present in the solution in a sufficiently high concentration. The primer has to contain also photo-initiators, not enabling the primer to be cured of course, but to make sure that all areas, even in the deeper parts of the hybrid layer, will receive photo-initiators, so the infiltrated resin can polymerize efficiently in situ after the adhesive resin in the third and final step is applied.

The final step involves indeed the copious application of a separate adhesive resin, the actual glue. This adhesive should provide a good seal of the interface, it has to polymerize well, must present good mechanical properties and must be of hydrophobic nature to reduce water uptake. And it must be applied in a sufficiently thick layer.

We believe, based on previous researches, that a thicker adhesive layer can serve as a stress/shock-absorbing layer. When the composite that is placed on top of this layer shrinks, the interface is subjected to tensile stress; with an elastic layer (buffer layer) we can prevent that this tensile stress will cause interface de-bonding.

Q7 In your opinion, the application of an HEMA-free hydrophobic layer following the application of an hydrophilic primer would optimize the adhesive performance to the tooth substrate ?

Bart Due to the water content, dentin must always be properly sealed to avoid that water is absorbed by the adhesive interface through osmosis, which causes interfacial porosities and consequently weakens the interface.

This sealing has to be realized immediately and the application of a HEMA-free hydrophobic layer, when correctly polymerized, can reduce water uptake and hydrolytic bond degradation.

組成、技術的特徴、性能の観点から、先生がお考えになる2ステップボンディング材の優れているところはなんですか。

接着促進材である独立したプライマーであること。このプライマーは、化学的相互作用のために10-MDPベースである必要があります。また、ハイブリッド層深部まで十分重合させるために光重合開始剤を含む必要があります。また、10-MDPは、高品質で十分な濃度である必要があります。

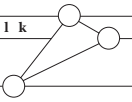
このボンディング材は、界面の良好な封鎖を実現するために、高い重合性、機械的特性、水の取り込みを減らすための疎水性でなければなりません。そしてそれは十分な厚い層でなければなりません。

より厚いボンディング層が応力/衝撃吸収層として機能し、界面剥離を防ぐことができると考えています。コンポジットレジンとその層の上に充填した際、界面に引っ張り応力が掛かりますが、この層が緩衝層となって界面の剥離を防ぎます。

親水性プライマーの塗布に続いてHEMAフリーの疎水性のボンディング材を塗布すると、歯質への接着性能が最適化されると考えますが、いかがでしょうか？

象牙質は水分を含んでいるため、浸透圧によって水分が吸収されて界面が多孔性となり、その結果界面が弱くなります。それを防ぐために、象牙質は常に適切に封鎖する必要があります。

この封鎖は即座に行う必要があります、HEMAフリーの疎水性ボンディング材を塗布してしっかり重合させることによって、水の取り込みを減らし、加水分解による接着の劣化を減らすことができます。



Message from Professor

G2-Bond Universal (GC), a universal adhesive in a new configuration for stable long-term bonding to tooth enamel and dentin

歯のエナメル質および象牙質への安定した長期接着のための新しい構成のユニバーサル接着剤「G2-ボンド ユニバーサル」

Bart Van Meerbeek

(BIOMAT – Biomaterials Research group, Department of Oral Health Science, KU Leuven)

To durably bond to tooth tissue, believed primary important is to achieve an interface of highly hydrophobic nature that keeps the adhesive interface sealed against water uptake. Water sorption and resultant hydrolytic effects constitute the main bond-degradation pathway. In this regard, the current generation of universal adhesives (UAs) should be regarded as 'trade-off' adhesives; they combine the primer and adhesive-resin function in a single solution that proportionally contains more solvent and less resin, as compared to when a separate primer and adhesive resin are employed by multi-step adhesives (Van Meerbeek et al., 2020). UAs typically present with a thin film thickness without stress-absorbing potential (Ahmed et al., 2020). Having traded in some bonding performance for ease-of-use, UAs in their current configuration have not yet approached the gold-standard multi-step adhesive benchmarks. A recent multi-parameter research project revealed that the experimental precursor of G2-Bond Universal, instructing to separately apply a 10-MDP-based primer prior to a highly hydrophobic particle-filled adhesive resin in both etch-and-rinse or self-etch mode, successfully combined high bonding potential with bond-degradation resistance thanks to limited water uptake of a significantly thick adhesive film (Yao et al., 2020). This new UA configuration promises durable clinical adhesive performance.

歯に長期的に接着させるために最も重要と考えられているのは、水の侵入を封鎖し続けることができる「疎水性の高い接着界面」を実現することです。接着は「吸水」と「吸水によって起こる加水分解」によって劣化します。この点で、現在のユニバーサルボンディング材(UA)は接着性能と使いやすさの「トレードオフ」のボンディング材と見なすべきです。UAはプライマーとボンディングレジン機能を一液で実現するために、プライマーとボンディングレジンが別々になっているマルチステップボンディング材と比べて溶媒の量が多く、レジンの量が少なくなっています (Van Meerbeek et al., 2020)。

UAは通常、応力吸収能のない薄いボンディング層を有しています (Ahmed et al., 2020)。現在のUAは、接着性能が使いやすさと引き換えになって、未だゴールドスタンダードのマルチステップボンディング材のレベルに至っていません。最近の多重パラメータ研究プロジェクトによると、G2-ボンド ユニバーサルのプロトタイプは、「10-MDPベースのプライマー」と「高い疎水性のフィラー含有ボンディングレジン」を別々に塗布することによって厚いボンディング層が水の取り込みを抑制し、エッチアンドリンスモードでもセルフエッチモードでも接着の劣化を抑えることのできる高い接着ポテンシャルが示唆されました (Yao et al., 2020)。この新しいG2-ボンド ユニバーサルは耐久性のある臨床接着パフォーマンスを発揮すると考えます。

●参考文献

Ahmed MH, Yao C, Van Landuyt K, Peumans M, Van Meerbeek B. Extra Bonding Layer Compensates Universal Adhesive's Thin Film Thickness. *J Adhes Dent.* 2020;22(5):483-501.

Van Meerbeek B, Yoshihara K, Van Landuyt K, Yoshida Y, Peumans M. From Buonocore's Pioneering Acid-Etch Technique to Self-Adhering Restoratives. A Status Perspective of Rapidly Advancing Dental Adhesive Technology. *J Adhes Dent.* 2020;22(1):7-34.

Yao C, Ahmed MH, Li X, Nedeljkovic I, Vandooren J, Mercelis B, Zhang F, Van Landuyt KL, Huang C, Van Meerbeek B. Zinc-Calcium-Fluoride Bioglass-Based Innovative Multifunctional Dental Adhesive with Thick Adhesive Resin Film Thickness. *ACS Appl Mater Interfaces.* 2020;12(27):30120-30135.