

ユニバーサルアドヒーシブの塗布時間の変更が
エナメル質接着性および表面性状に及ぼす影響

日本大学大学院歯学研究科歯学専攻

名倉 侑子

(指導：宮崎 真至 教授，辻本 暁正 助教)

概 要

歯質接着システムとして、ユニバーサルアドヒーシブの臨床使用頻度が増加している。このユニバーサルアドヒーシブは、異なるエッチングモードに対応できるという汎用性に加え、操作時間を短縮させることを可能としたものである。臨床使用術式としては、アドヒーシブを被着面に塗布し、エアブローを行った後に光照射するというものであり、操作時間を短縮しながらも良好な歯質接着性を獲得できるとされている。一方、ユニバーサルアドヒーシブの塗布時間を変更することがエナメル質接着性に及ぼす影響の詳細については不明な点が多い。そこで本論文の著者は、ユニバーサルアドヒーシブの塗布時間の変更がエナメル質接着性に及ぼす影響について、接着試験および接着耐久性試験を行うとともにアドヒーシブ処理面の原子間力顕微鏡 (AFM) 観察によって検討した。

実験に供試したユニバーサルアドヒーシブは、Adhese Universal (AU, Ivoclar Vivadent), All Bond Universal (AB, Bisco), Clearfil Universal Bond Quick (CU, Kuraray Noritake Dental), G-Premio Bond (GP, GC) および Scotchbond Universal (SU, 3M Oral Care) の 5 製品とした。また、コンポジットレジンとしては、Z100 Restorative (3M Oral Care) を用いた。

被着歯面は、ヒト抜去歯の歯冠部を近遠心的に切断し、常温重合型レジンを用いて真鍮リング内に包埋した。次いで、エナメル質平坦面が得られるようにモデルトリマーを用いて唇側中央部を研削した。さらに、耐水性シリコンカーバイドペーパー#4,000 まで順次研削し、エナメル質被着面とした。なお、本研究の実施にあたっては、Biomedical Institutional Review Board at Creighton University (No. 760765-1) の承認を得ている。

アドヒーシブをエナメル質被着面に塗布後、1) 直ちにエアブローを行って光照射を行う

(0 秒群), 2) 10 秒間塗布後, エアブローを行って光照射を行う (10 秒群) および 3) 20 秒間塗布後, エアブローを行って光照射を行う (20 秒群) の 3 条件とした。次いで, アドヒーズ塗布面に内径 2.36 mm, 高さ 2.5 mm のステンレス鋼製モールドをクランプで固定し, これにレジンペーストを填塞して 40 秒間照射を行い, 接着試験用試片とした。

静的荷重負荷後の剪断接着強さ (接着強さ) の測定は, 接着試片に対してエレクトロダイナミック万能試験機 (ElectroPuls E1000; Instron) を用いて, クロスヘッドスピード毎分 1.0 mm の条件で行った。動的荷重負荷後の接着強さ (接着疲労強さ) は, 接着強さ試験と同様に試片を製作し, 万能試験機を用いて staircase method を応用して行った。すなわち, それぞれの条件で得られた接着強さの 50~60% の値の荷重を 20 Hz の正弦波で, 波形最下点が最大負荷荷重の条件で 50,000 回負荷した。その際, 規定回数に達する以前に試片が破断した場合は, 初期荷重 10% を減じた荷重を次の試片に負荷し, 逆に破断することなく経過した場合は, 荷重を 10% 増すことで段階的に荷重負荷を変動させた。最終的に, 試片の脱落個数および負荷荷重から計算式に従って接着疲労強さを求めるとともに, 試験後の試片については接着強さ試験と同様に破壊形式を分類した。また, 接着試験用試片の製作と同様に処理した後, アセトンおよび蒸留水で洗浄し, AFM 観察および表面粗さの測定を行った。

その結果, ユニバーサルアドヒーズの接着強さおよび接着疲労強さは, CU および GP ではアドヒーズ塗布時間の影響は認められなかったものの, AU, AB および SU では 20 秒群で高くなる傾向が認められた。このように, アドヒーズの種類によって塗布時間がエナメル質接着強さおよび接着疲労強さに及ぼす影響が異なった理由として, ユニバーサ

ルアドヒーシブの歯質脱灰能および浸透性の違いが考えられた。ユニバーサルアドヒーシブの歯質脱灰能の違いに関しては、各アドヒーシブが有する pH が影響を及ぼす。本実験で使用したユニバーサルアドヒーシブの pH は 1.5~3.2 であり、GP は他のアドヒーシブと比較してその酸性度が最も高い。この pH の違いは、AFM 観察および表面粗さの結果からも確認され、GP を用いたエナメル質処理面の AFM 像では、アドヒーシブ塗布時間にかかわらずスミヤー層が除去され、表層のエナメル質が脱灰されたことによってエナメル小柱構造が観察された。

一方、CU においては、pH が 2.3 と比較的マイルドであるにもかかわらず、その接着強さおよび接着疲労強さが GP と同様に安定しており、アドヒーシブ塗布時間の影響を受けなかった。CU は、親水性多官能アミド系モノマーを含有しており、これは他の接着システムが親水性機能性モノマーとして HEMA を含有していることと異なる点である。このモノマーは、親水性が高いところから歯質に対する浸透性も高く、さらに重合後の硬化特性にも優れるとされている。また、AFM 観察から、0 秒および 10 秒群においてもスミヤー層は観察されず、表面粗さ値に関しても塗布時間の違いに影響を受けなかった。このように、親水性多官能アミド系モノマーを含有することによって、歯質に対する高い浸透性を示したところから良好な歯面処理効果が獲得され、安定した接着性の獲得に寄与したものと考えられた。

以上のように、本実験の結果から CU および GP においてはアドヒーシブの塗布時間はエナメル質接着性および表面性状に影響を及ぼさないことが明らかとなった。一方、他の

製品では塗布時間の影響を認めるところから、臨床において安定した接着性を得るためには使用する製品の特性を十分に考慮することが重要であることが示唆された。

本論文は、原著論文 Nagura Y, Tsujimoto A, Fischer NG, Baruth AG, Barkmeier WW, Takamizawa T, Latta MA, Miyazaki M. Effect of reduced universal adhesive application time on enamel bond fatigue and surface morphology. *Oper Dent* 2019; 44: 42-53. を基幹論文とし、これに新たな製品の実験データを加えることによって総括したものである。

緒 言

近年、歯冠修復処置に審美性を求める患者からの希望とともに、歯科用合金の価格高騰などを背景として、歯冠色を有するコンポジットレジンを用いた直接修復処置が選択される頻度が高くなっている¹⁾。さらに、コンポジットレジンの機械的性質が向上したことに加えて歯質接着システムの接着性と操作性が改善されたこともその理由として挙げられる^{2,3)}。とくに、歯質接着システムの改良方向としては、歯面処理に汎用性を有するとともに歯質のみならずセラミック、ジルコニアおよび歯科用合金などに対して接着を可能としたユニバーサル性を付与することである^{4,5)}。

ユニバーサルアドヒーズは、異なるエッチングモードに対応できるという汎用性に加え、操作時間を短縮することを可能とした製品が開発、臨床応用されている⁶⁾。この接着システムは、アドヒーズを塗布した直後にエアブローを行い、光照射するというものであり、操作時間を短縮しながらも良好な歯質接着性を獲得できるとされている⁷⁾。一方、操作時間を短縮させたユニバーサルアドヒーズに関しては、アドヒーズの塗布時間を変更することが歯質接着性にどのような影響を及ぼすかについての詳細については不明な点が多い。

そこで本論文の著者は、ユニバーサルアドヒーズの臨床使用術式を確立する研究の一環として、アドヒーズの塗布時間の変更がエナメル質接着性に及ぼす影響について、接着試験および接着耐久性試験を行うとともに、アドヒーズ処理面の原子間力顕微鏡 (AFM) 観察によって検討した。

材料および方法

1. 供試材料および可視光線照射器

供試したユニバーサルアドヒーシブは、Adhese Universal (AU, Ivoclar Vivadent), All Bond Universal (AB, Bisco), Clearfil Universal Bond Quick (CU, Kuraray Noritake Dental), G-Premio Bond (GP, GC) および Scotchbond Universal (SU, 3M Oral Care) の 5 製品とした (Table 1)。コンポジットレジンとしては、Z100 Restorative (3M Oral Care) を用いた。可視光線照射器 (Spectrum 800 Curing Unit; Dentsply Sirona) は、その光強度が 700 mW/cm^2 以上であることを試片製作前に確認して使用した。

2. 接着強さ

1) 被着歯面の調整

ヒト抜去大白歯の歯根部を除去した後、歯冠部を近遠方向で切断し、常温重合レジン (Bosworth Fastray; Keystone Industries) を用いて直径 25 mm の真鍮リングに包埋した。次いで、直径 4~5 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を用いて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 #4,000 まで注水下に順次研削し、これをエナメル質被着面とした。

なお、本研究の実施にあたっては、Biomedical Institutional Review Board at Creighton University (No. 760765-1) の承認を得ている。

2) 接着試片の製作

供試した各ユニバーサルアドヒーシブの製造者指示条件を Table 2 に示した。アドヒーシブをエナメル質被着面に塗布後、1) 直ちにエアブローを行って光照射を行う (0 秒群),

2) 10 秒間塗布後, エアブローを行って光照射を行う (10 秒群) および 3) 20 秒間塗布後, エアブローを行って光照射を行う (20 秒群) の 3 条件とした。次いで, アドヒーズブ塗布面に内径 2.36 mm, 高さ 2.5 mm のステンレス鋼製モールドをクランプで固定し, これにレジペーストを填塞して 40 秒間照射を行い接着試験用試片とした。製作された接着試片は, 照射直後から 37°C 精製水中に 24 時間保管した。

なお, 接着試片の製作は室温 $23 \pm 2^\circ\text{C}$, 相対湿度 $50 \pm 10\%$ の恒温恒湿室において赤色ランプ照明下で行った。

3) 接着強さの測定

接着試験用試片については, 24 時間の水中保管を行った後にエレクトロダイナミック万能試験機 (ElectroPuls E1000; Instron) を用いて, クロスヘッドスピード毎分 1.0 mm の条件で接着強さを測定した。また, 接着強さ試験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 (MZ16; Leica Microsystems) を用いて倍率 20 倍でエナメル質側およびレジ側破断面を観察し, 界面破壊, エナメル質あるいはコンポジットレジンの凝集破壊あるいは混合破壊として分類した。

なお, 試片の数は各条件についてそれぞれ 15 個とした。

4) 接着疲労強さの測定

接着疲労強さの測定に際しては, 24 時間の水中保管を行った試片について, 万能試験機を用いて staircase method を応用して繰り返し荷重負荷を行った。すなわち, それぞれの条件で得られた接着強さの 50~60% の値の荷重を 20 Hz の正弦波で, 波形最下点が最大負荷荷重の条件で 50,000 回負荷した。その際, 規定回数に達する以前に試片が破断した場合は,

初期荷重の 10% を減じた荷重を次の試片に負荷し、逆に破断することなく経過した場合は、荷重を 10% 増すことで段階的に荷重負荷を変動させた。最終的に、試片の脱落個数および負荷荷重から計算式に従って接着疲労強さを求めるとともに、試験後の試片については接着強さ試験と同様に破壊形式を分類した。

なお、試片の数は各条件についてそれぞれ 20 個とした。

3. AFM 観察

接着試験用試片の製作と同様に、異なる 3 条件でエナメル質研削面をアドヒーズで処理した後、アセトンおよび蒸留水で洗浄し、これらを AFM 観察用試片とした。AFM 観察には、原子力間顕微鏡 (Agilent 5420 SPM/AFM; Agilent Technologies) を用いて、コンタクトモードで行った。コンタクトモードでは、シリコン製カンチレバー (Budget Sensors; Sofia) を試片に近接させると、その先端の探針部が微小な力で試片に接触する。この際、カンチレバーのたわみ量が一定になるように制御しながら探針を試片表面にスキャンさせることによって微細構造の詳細について計測することができる。得られたスキャンデータから、装置に付属するソフトウェア (Gwyddion; Central European Institute of Technology) を用いて試片の表面粗さを求めた。

なお、試片の数は各条件についてそれぞれ 6 個とした。

4. 統計処理

得られた接着強さについて、等分散性を確認した後、分散分析および Tukey honestly significant difference (HSD) test を用いて有意水準 5% の条件で統計分析を行った。また、接着疲労強さに関しては、modified *t*-test および Bonferroni correction を用いて有意水準 5% の

条件で統計処理を行った。さらに、表面粗さについては、等分散性を確認した後、分散分析および Tukey HSD test を用いて有意水準 5% の条件で統計分析を行った。

成 績

1. 接着強さ

アドヒーシブの塗布時間がエナメル質接着強さに及ぼす影響の成績を Table 3 に示した。CU および GP における接着強さは 25.5~26.5 MPa であり、アドヒーシブ塗布時間による影響は認められなかった。一方、AU, AB および SU の接着強さは、19.1~27.2 MPa であり、20 秒群で高くなる傾向を示した。また、各塗布時間における製品間の測定値で比較すると、CU および GP の接着強さは 0 秒および 10 秒群において AU, AB および SU と比較して有意に高い値を示した。一方、20 秒群においては供試したいずれのアドヒーシブにおいても接着強さに有意差は認められなかった。

2. 接着疲労強さ

アドヒーシブの塗布時間が、接着疲労強さに及ぼす影響の成績を Table 4 に示した。CU および GP における接着疲労強さは 12.5~13.8 MPa であり、アドヒーシブ塗布時間による影響は認められなかった。一方、AU, AB および SU の接着疲労強さは 9.1~13.9 MPa であり、20 秒群で高くなる傾向を示した。また、各塗布時間における製品間で比較すると、CU および GP の接着疲労強さは 0 秒および 10 秒群において AU, AB および SU と比較して有意に高い値を示した。一方、20 秒群においては、供試したいずれのアドヒーシブにおいても接着疲労強さに有意差は認められなかった。

3. 破壊形式

接着強さ試験および接着疲労強さ試験終了後の破断面における破壊形式を Table 5 に示した。すなわち、その破壊形式は、試験法、アドヒーズブの種類あるいは塗布時間の違いにかかわらず、界面破壊が大勢を占める傾向を示した。

4. AFM 観察

ユニバーサルアドヒーズブの塗布時間が、エナメル質処理面における AFM 像に及ぼす影響を Fig. 1 に示した。AU および AB 処理面においては、塗布時間にかかわらず SiC ペーパーの研削によって生じた削条痕が認められ、さらに 0 秒および 10 秒群においてはスミヤー層が観察された。一方、CU 処理面においては、削条痕は観察されたものの、いずれの塗布時間においてもスミヤー層は認められなかった。また、GP においては、削条痕およびスミヤー層は認められず、エナメル小柱が観察された。SU においては、塗布時間の延長に伴って脱灰が進行し、20 秒群ではエナメル小柱が観察された。

5. 表面粗さ

ユニバーサルアドヒーズブの塗布時間が、エナメル質処理面の表面粗さに及ぼす影響の成績を Table 6 に示した。すなわち、CU および GP における表面粗さは 15.3~21.1 nm であり、アドヒーズブ塗布時間の違いによる影響は認められなかった。一方、AU、AB および SU の表面粗さは、10.2~21.2 nm であり、20 秒群でその値は大きくなる傾向を示した。

考 察

ユニバーサルアドヒーシブは、異なるエッチングモードで使用可能であるとともに、様々な被着体に対する接着性を有するところから、その臨床使用頻度は増加している^{8,9)}。このユニバーサルアドヒーシブが有する汎用性に加えて、アドヒーシブ塗布時間を短縮することを可能とした製品が開発された¹⁰⁾。これまで、アドヒーシブの塗布に関しては、被着歯面のスミヤ層を溶解、除去するとともに歯質との化学的接着性を獲得するために、一定の塗布時間が必要であると考えられていた^{11,12)}。すなわち、アドヒーシブ塗布時間の延長は、歯質接着性を向上させる臨床手技の一つとされ、とくに接着性の獲得が困難とされている楔状欠損などの歯頸部疾患へのコンポジットレジン修復に推奨されてきた¹³⁾。一方、臨床的な観点からは、アドヒーシブの塗布時間を短縮することによって操作性を簡便化することが望まれていた¹⁴⁾。しかし、アドヒーシブ塗布時間の短縮がエナメル質接着性に及ぼす影響の詳細については不明な点が多く、これに関する検討が待たれていた。そこで本論文の著者は、ユニバーサルアドヒーシブの塗布時間がエナメル質接着性および処理面の表面性状に及ぼす影響について検討した。

アドヒーシブ塗布時間がエナメル質接着強さに及ぼす影響の成績からは、CU および GP ではアドヒーシブ塗布時間の影響は認められなかったものの、AU, AB および SU では塗布時間の延長に伴って高くなる傾向が認められた。このように、アドヒーシブの種類によって塗布時間がエナメル質接着強さに及ぼす影響が異なった理由として、ユニバーサルアドヒーシブの歯質脱灰能および浸透性の違いが考えられた。すなわち、ユニバーサルアドヒーシブは、酸性を示す機能性モノマーの作用によってエナメル質表面が脱灰され、その

部にレジンモノマーが浸透することによって機械的嵌合力が発揮されるとともに歯質との化学的接着系が形成される^{15,16)}。とくに、ユニバーサルアドヒーズブの歯質脱灰能の違いに関しては、各アドヒーズブが有する pH が影響を及ぼす。

本実験で使用したユニバーサルアドヒーズブの pH は、1.5~3.2 であり (Table 1), GP は他のアドヒーズブと比較してその酸性度が最も高い。この pH の違いは、AFM 観察および表面粗さの結果からも確認され、GP を用いたエナメル質処理面の AFM 像では、アドヒーズブ塗布時間にかかわらずスミヤー層が除去され、表層のエナメル質が脱灰されたことによってエナメル小柱構造が観察された。また、アドヒーズブ塗布における 0 秒および 10 秒群における GP の表面粗さ値 (19.6~21.1 nm) は、他のユニバーサルアドヒーズブを用いた際の表面粗さ値 (10.2~16.8 nm) と比較して有意に大きかった。このように、GP の脱灰能が高いことが良好な機械的嵌合の形成につながり、エナメル質接着強さがアドヒーズブ塗布時間の影響を受なかったものと考えられた。

一方、CU においては、pH が 2.3 と比較的マイルドであるにもかかわらず、その接着強さが GP と同様にアドヒーズブ塗布時間の影響を受けなかった。CU は、親水性多官能アミド系モノマーを含有しており、これは他の接着システムが親水性機能性モノマーとして HEMA を含有していることと異なる点である¹⁷⁾。このモノマーは、親水性が高いところから歯質に対する浸透性が高く、さらに重合後の硬化特性にも優れるとされている¹⁸⁾。また、AFM 観察の結果から、0 秒および 10 秒群においてもスミヤー層は観察されず、表面粗さ値に関しても塗布時間の違いに影響を受けなかった。このように、親水性多官能アミド系

モノマーを含有することによって、歯質に対する高い浸透性を示したところから良好な歯面処理効果が獲得され、安定した接着性の獲得に寄与したものと考えられた。

アドヒーシブの塗布時間が、エナメル質に対する接着疲労強さに及ぼす影響の成績からは、接着強さ試験の結果と同様にアドヒーシブの種類によってその影響は異なるものであった。歯質接着システムの接着耐久性を考えるにあたり、アドヒーシブ層の機械的強度が高いことが良好な耐久性を示すことにつながる¹⁹⁾。すなわち、良好な接着耐久性を獲得するためには、アドヒーシブ層の機械的強度が高いことが必要であり、これによって機械的および化学的劣化に耐えることが可能であるものと考えられている²⁰⁾。この観点から、アドヒーシブの重合硬化性が良好であり、長期水中浸漬によっても加水分解を受けにくい組成として親水性多官能アミド系モノマーを含有することは、CUの優れた接着疲労強さの獲得に寄与しているものと考えられた。また、GPにおける安定した接着疲労性は、高い歯質脱灰能によって形成されたレジクタグによって良好な機械的嵌合が形成されたことによるものと考えられた。このように、エナメル質に対する接着疲労性にはアドヒーシブの高い重合硬化性ととも機械的嵌合の形成が重要であると考えられた。

以上のように、本実験の結果からCUおよびGPにおいてはアドヒーシブの塗布時間はエナメル質接着性および表面性状に影響を及ぼさないことが明らかとなった。一方、他のユニバーサルアドヒーシブでは塗布時間の影響を認めたところから、臨床において安定した接着性を得るためには使用する製品の特性を十分に考慮することが重要であることが示唆された。

結 論

ユニバーサルアドヒーズの塗布時間がエナメル質接着性および表面性状に及ぼす影響について、接着強さ、接着疲労強さおよびAFM観察を行うことによって検討した結果、以下の結論を得た。

1. CU および GP における接着強さおよび接着疲労強さは、アドヒーズ塗布時間による影響は認められなかったものの、AU, AB および SU の接着強さは、20 秒群で高くなる傾向を示した。
2. CU および GP における接着強さおよび接着疲労強さは 0 秒および 10 秒群において AU, AB および SU と比較して有意に高い値を示した。一方、20 秒群においては、供試したいずれのアドヒーズの接着強さおよび接着疲労強さに有意差は認められなかった。
3. AFM 観察から、AU, AB, CU および SU 処理面の表面性状はアドヒーズの種類および塗布時間の違いによって異なるものであった。一方、GP 処理面においては、アドヒーズ塗布時間の違いによる影響は認められず、いずれの条件においてもエナメル小柱が観察された。
4. CU および GP における表面粗さは、アドヒーズ塗布時間による影響は認められなかったものの、AU, AB および SU の表面粗さは、20 秒群において大きくなる傾向を示した。

文 献

- 1) Pfeifer CS. Polymer-based direct filling materials. *Dent Clin North Am* 2017; 61: 733-750.
- 2) Bedran-Russo A, Leme-Kraus AA, Vidal CMP, Teixeira EC. An overview of dental adhesive systems and the dynamic tooth-adhesive interface. *Dent Clin North Am* 2017; 61: 713-731.
- 3) Alzraikat H, Burrow MF, Maghaireh GA, Taha NA. Nanofilled resin composite properties and clinical performance: A review. *Oper Dent* 2018; 43: e173-e190.
- 4) Siqueira F, Cardenas AM, Gutierrez MF, Malaquias P, Hass V, Reis A, Loguercio AD, Perdigão J. Laboratory performance of universal adhesive systems for luting CAD/CAM restorative materials. *J Adhes Dent* 2016; 18: 331-340.
- 5) Tsujimoto A, Barkmeier WW, Takamizawa T, Wilwerding TM, Latta MA, Miyazaki M. Interfacial characteristics and bond durability of universal adhesive to various substrates. *Oper Dent* 2017; 42: e59-e70.
- 6) Huang XQ, Pucci CR, Luo T, Breschi L, Pashley DH, Niu LN, Tay FR. No-waiting dentine self-etch concept-Merit or hype. *J Dent* 2017; 62: 54-63.
- 7) Saikaew P, Matsumoto M, Chowdhury A, Carvalho RM, Sano H. Does shortened application time affect long-term bond strength of universal adhesives to dentin?. *Oper Dent* 2018; 43: 549-558.
- 8) Nagarkar S, Theis-Mahon N, Perdigão J. Universal dental adhesives: Current status, laboratory testing, and clinical performance. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater* 2019; 107: 2121-2131.
- 9) Cuevas-Suárez CE, de Oliveira da Rosa WL, Vitti RP, da Silva AF, Piva E. Bonding strength of universal adhesives to indirect substrates: A meta-analysis of in vitro studies. *J Prosthodont* 2020;

29: 298-308.

- 10) Saikaew P, Chowdhury AF, Fukuyama M, Kakuda S, Carvalho RM, Sano H. The effect of dentine surface preparation and reduced application time of adhesive on bonding strength. *J Dent* 2016; 47: 63-70.
- 11) Cardenas AM, Siqueira F, Rocha J, Szesz AL, Anwar M, El-Askary F, Reis A, Loguercio A. Influence of conditioning time of universal adhesives on adhesive properties and enamel-etching pattern. *Oper Dent* 2016; 41:481-490.
- 12) Saikaew P, Chowdhury AF, Fukuyama M, Kakuda S, Carvalho RM, Sano H. The effect of dentine surface preparation and reduced application time of adhesive on bonding strength. *J Dent* 2016; 47: 63-70.
- 13) Siqueira FSF, Armas-Vega A, Izquierdo-Bucheli A, Pinto TF, Hanzen TA, Bauer J, Cardenas AFM, Loguercio AD. Does the conditioning mode and duration of universal adhesives affect the bonding effectiveness to fluorotic enamel?. *J Adhes Dent* 2019; 21: 525-536.
- 14) Saito T, Takamizawa T, Ishii R, Tsujimoto A, Hirokane E, Barkmeier WW, Latta MA, Miyazaki M. Influence of application time on dentin bond performance in different etching modes of universal adhesives. *Oper Dent* 2020; 45: 183-195.
- 15) Chen C, Niu LN, Xie H, Zhang ZY, Zhou LQ, Jiao K, Chen JH, Pashley DH, Tay FR. Bonding of universal adhesives to dentine—Old wine in new bottles?. *J Dent* 2015; 43: 525-536.
- 16) Jacker-Guhr S, Sander J, Luehrs AK. How "universal" is adhesion? Shear bond strength of multi-mode adhesives to enamel and dentin. *J Adhes Dent* 2019; 21: 87-95.

- 17) Kuno Y, Hosaka K, Nakajima M, Ikeda M, Klein Junior CA, Foxton RM, Tagami J. Incorporation of a hydrophilic amide monomer into a one-step self-etch adhesive to increase dentin bond strength: Effect of application time. *Dent Mater J* 2019; 38: 892-899.
- 18) Sato T, Takagaki T, Ikeda M, Nikaido T, Burrow MF, Tagami J. Effects of selective phosphoric acid etching on enamel using "no-wait" self-etching adhesives. *J Adhes Dent* 2018; 20: 407-415.
- 19) Sato K, Hosaka K, Takahashi M, Ikeda M, Tian F, Komada W, Nakajima M, Foxton R, Nishitani Y, Pashley DH, Tagami J. Dentin bonding durability of two-step self-etch adhesives with improved of degree of conversion of adhesive resins. *J Adhes Dent* 2017; 19: 31-37.
- 20) El-Damanhoury HM, Gaintantzopoulou M. Effect of thermocycling, degree of conversion, and cavity configuration on the bonding effectiveness of all-in-one adhesives. *Oper Dent* 2015; 40: 480-491.

図および表

Table 1: Materials used in this study			
Adhesive (Lot No.)	Code (pH)	Main components	Manufacturer
Adhese Universal (164453)	AU (2.5)	Bis-GMA, HEMA, MDP, MCAP, Decandiol dimethacrylate, Dimethacrylate, Ethanol, Water, Initiators, Stabilizers, Silicon dioxide	Ivoclar Vivadent, Schaan, Lichtenstein
All Bond Universal (1300008503)	AB (3.2)	Bis-GMA, HEMA, MDP, Ethanol, Water, Initiators	Bisco, Schaumburg, IL, USA
Clearfil Universal Bond Quick (1L0003)	CU (2.3)	Bis-GMA, HEMA, MDP, Hydrophilic amide monomer, Ethanol, Water, Initiators, Silica, Silane coupling agent	Kuraray Noritake Dental, Tokyo, Japan
G-Premio Bond (1603091)	GP (1.5)	MDP, 4-MET, MEPS, Methacrylate monomer, Acetone, Water, Initiators, Silica	GC, Tokyo, Japan
Scotchbond Universal Adhesive (617265)	SU (2.7)	Bis-GMA, HEMA, MDP, Decamethylene dimethacrylate, Ethyl methacrylate, Propenoic acid, Copolymer of acrylic and itaconic acid, Dimethylaminobenzoate, Methyl ethyl ketone, Ethanol, Water, Silane treated silica, Initiators, Silane	3M Oral Care, St. Paul, MN, USA
Bis-GMA: bisphenol A glycidyl methacrylate, HEMA: 2-hydroxyethyl methacrylate, MDP: 10-methacryloyloxydecyl di-hydrogen phosphate, MCAP: methacrylated carboxylic acid polymer, 4-MET: 4-methacryloyloxyethyl trimellitate, MEPS: methacryloyloxyalkyl thiophosphate methylmethacrylate			

Adhesive	Adhesive application protocol
AU	Adhesive applied to air-dried enamel surface with rubbing motion for 20 sec and then medium air pressure applied to surface for 5 sec. Adhesive photo-cured for 10 sec.
AB	Adhesive applied to air-dried enamel surface with a rubbing motion for 10–15 sec and then medium air pressure applied to surface for 10 sec. Adhesive photo-cured for 10 sec.
CU	Adhesive applied to air-dried enamel surface with a rubbing motion and then medium air pressure applied to surface for 5 sec. <u>No waiting time is required.</u> Adhesive photo-cured for 10 sec.
GP	Adhesive applied to air-dried enamel surface for 10 sec and then maximum air pressure applied to surface for 5 sec. <u>Adhesive can provide sufficient bonding strength even when dried immediately after application without waiting time.</u> Adhesive photo-cured for 10 sec.
SU	Adhesive applied to air-dried enamel surface with rubbing motion for 20 sec and then medium air pressure applied to surface for 5 sec. Adhesive photo-cured for 10 sec.

Adhesive	0 sec	10 sec	20 sec
AU	20.4 (3.0) ^{a,A}	21.8 (3.0) ^{a,A}	26.2 (2.9) ^{a,B}
AB	19.1 (2.8) ^{a,A}	20.9 (3.1) ^{a,A}	24.9 (2.9) ^{a,B}
CU	25.6 (3.1) ^{b,A}	26.1 (3.2) ^{b,A}	26.5 (2.8) ^{a,A}
GP	25.5 (3.2) ^{b,A}	25.9 (3.6) ^{b,A}	26.1 (2.4) ^{a,A}
SU	20.9 (3.7) ^{a,A}	21.2 (4.0) ^{a,A}	27.2 (2.5) ^{a,B}

Unit: MPa. Values in parentheses are standard deviations. Same superscript lower case letter in same column indicates no significant difference ($p > 0.05$). Same superscript capital letter within individual rows indicates no significant difference ($p > 0.05$).

Table 4: Effect of reduced application times on shear fatigue strength of universal adhesives

Adhesive	0 sec	10 sec	20 sec
AU	9.7 (1.6) ^{a,A}	10.3 (1.8) ^{a,A}	13.2 (2.9) ^{a,B}
AB	9.1 (1.2) ^{a,A}	11.1 (1.4) ^{a,A}	12.9 (2.0) ^{a,B}
CU	12.6 (2.0) ^{b,A}	13.2 (1.6) ^{b,A}	13.6 (2.8) ^{a,A}
GP	12.5 (2.1) ^{b,A}	13.7 (2.0) ^{b,A}	13.8 (2.4) ^{a,A}
SU	10.2 (2.4) ^{a,A}	11.0 (1.8) ^{a,A}	13.9 (3.5) ^{a,B}

Unit: MPa. Values in parentheses are standard deviations. Same superscript lower case letter in same column indicates no significant difference ($p > 0.05$). Same superscript capital letter within individual rows indicates no significant difference ($p > 0.05$).

Table 5: Failure mode analysis of debonded specimens after initial shear bond strength and shear fatigue strength testing

Adhesive	Condition	Initial shear bond strength	Shear fatigue strength
AU	0 sec	[100/0/0/0]	[100/0/0/0]
	10 sec	[100/0/0/0]	[100/0/0/0]
	20 sec	[86/0/7/7]	[100/0/0/0]
AB	0 sec	[100/0/0/0]	[100/0/0/0]
	10 sec	[100/0/0/0]	[100/0/0/0]
	20 sec	[100/0/0/0]	[100/0/0/0]
CU	0 sec	[100/0/0/0]	[100/0/0/0]
	10 sec	[93/0/7/0]	[100/0/0/0]
	20 sec	[86/0/14/0]	[100/0/0/0]
GP	0 sec	[93/0/7/0]	[100/0/0/0]
	10 sec	[100/0/0/0]	[100/0/0/0]
	20 sec	[86/0/7/7]	[100/0/0/0]
SU	0 sec	[100/0/0/0]	[100/0/0/0]
	10 sec	[100/0/0/0]	[100/0/0/0]
	20 sec	[67/0/13/20]	[100/0/0/0]
Percentage of failure mode [adhesive failure/ cohesive failure in composite/ cohesive failure in enamel/ mixed failure].			

Table 6: Effect of reduced application times on surface roughness (Ra) of enamel surfaces

Adhesive	0 sec	10 sec	20 sec
AU	10.2 (1.1) ^{a,A}	12.9 (2.6) ^{a,A}	18.3 (3.4) ^{a,B}
AB	10.4 (1.0) ^{a,A}	12.5 (2.3) ^{a,A}	17.1 (3.0) ^{a,B}
CU	16.5 (3.9) ^{b,A}	16.8 (1.1) ^{b,A}	15.3 (2.8) ^{b,A}
GP	21.1 (2.2) ^{c,A}	21.1 (3.4) ^{c,A}	19.6 (3.6) ^{a,A}
SU	13.0 (1.8) ^{a,A}	13.6 (3.2) ^{a,A}	21.2 (4.3) ^{a,B}

Unit: nm. Values in parentheses are standard deviations. Same superscript lower case letter in same column indicates no significant difference ($p > 0.05$). Same superscript capital letter within individual rows indicates no significant difference ($p > 0.05$).

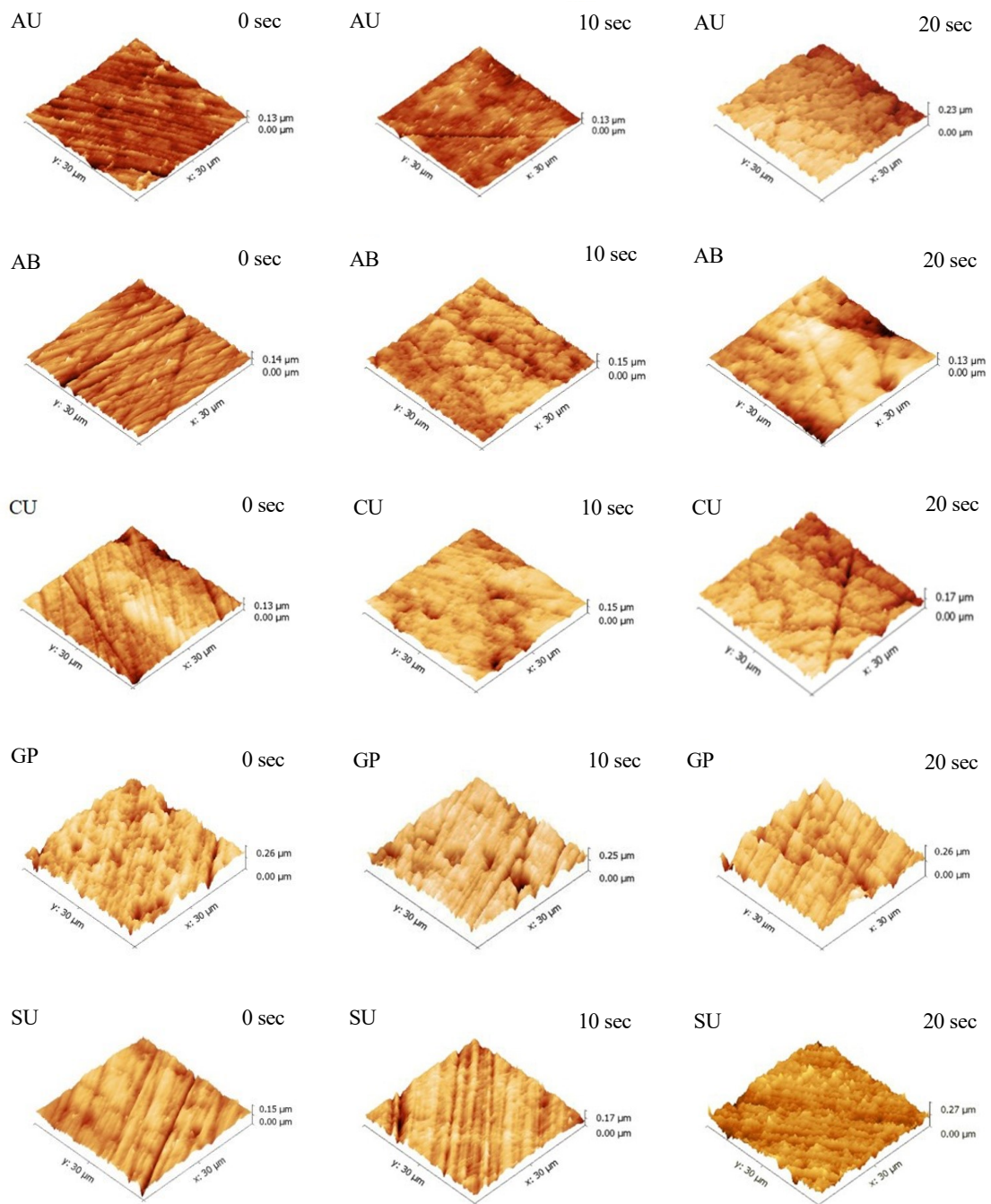


Fig. 1: False color three-dimensional topographic images (30 x 30 μm) of universal adhesive-treated enamel surfaces obtained by constant force atomic force microscopy.