

学位論文題名

象牙細管内液想定下のレジン-象牙質接着における
界面の微細構造および接着強度

学位論文内容の要旨

[緒言]

象牙質接着システムが開発されて以来、象牙質との接着に関する多くの研究がなされている。その中で口腔内に近い環境で接着を評価するために歯髄内圧による象牙細管内液の滲出を想定した試験が行われ、乾燥状態と比べ接着力が低下することが報告されている。しかし、接着界面の微細構造に関する検討は少なく、象牙細管内液が接着に及ぼす影響については不明な点が多い。

近年、象牙質表面に水分が存在しても乾燥状態と同等あるいはより強固に接着する象牙質接着システムが市販されるようになった。しかし象牙細管から持続的に水分が滲出してくる条件は単に象牙質表面に水分が存在する状態とは異なるため、水分の影響が少ない象牙質接着システムに対しても象牙細管内液の影響を検討する必要がある。

本研究では象牙細管内液がレジンと象牙質の接着に与える影響を明らかにするために象牙質に歯髄内圧を加え象牙細管内液の滲出想定下で接着を行い、界面の微細構造および接着強度を乾燥状態での接着と比較検討した。

[材料および方法]

象牙質接着システムとして水分の影響が少ないScotchbond™ Multi-Purpose (3M:以下SMP)を用いた。同材料はエッチャント(10%マレイン酸)、プライマー(HEMA水溶液およびポリアクリル酸共重合体)、アドヒーシブ(HEMA、Bis-GMAおよび光重合開始剤)よりなる。被着歯としては、齲蝕のないヒト第三大臼歯を抜去後2ヶ月以内に用いた。

1. 試料の作製

被着歯の咬合面エナメル質部分および歯根を切断し、歯冠側を注水下にて平坦に髄角から1 mmの距離になるところまで研削し被着体とした。被着体の歯髄側面に加圧装置を装着、リン酸緩衝液を介して歯髄内圧に相当するとされる25 mmHgの圧を加えながら被着面にSMPを使

用し、接着試料を作製した（以下細管液群）。使用手順はエッチャント塗布15秒、水洗15秒、乾燥10秒、プライマー塗布後光沢がでるまで乾燥、アドヒーズ塗布後10秒間の光重合である。対照として同被着体を加圧装置に装着しないで上記と同様の手順で接着試料を作製した（以下乾燥群）。

2. 接着界面の観察

1) SEMによる接着界面の観察

接着試料を接着面に垂直に髓角付近を通るように切断し、1 N HClで15秒、0.5 N NaOClで30秒処理した後、水洗、乾燥、金蒸着を行い、接着界面の断面をSEM観察した。

2) SEMによる象牙質溶解後の接着界面の観察

接着試料を1 N HClおよび5 % KOHにて象牙質を溶解し、水洗後乾燥、金蒸着を行い、接着界面をSEM観察した。

3) TEMによる象牙質溶解後の接着界面の観察

象牙質を溶解した接着試料をEpon樹脂に包埋し、髓角近接部の接着界面をTEM観察した。

3. 接着強度の測定

接着界面の観察に用いたと同様に作成した20個の被着体のうち10個は25 mmHg加圧下でRestorative Z100 (3M) を髓角近接部にSMPを使用して接着、細管液群の接着試料とした。他の10個については加圧装置に装着せず細管液群と同様の手順で試料を作製し、乾燥群とした。試料は37 °C水中に24時間保存した後、剪断接着力試験を行った。統計学的有意差の有無はt検定を用いた。破断面の観察はSEMにより行った。

[成績]

1. 接着界面の観察

1) SEMによる接着界面の観察

乾燥群では多くのレジントグが観察され、レジンと象牙質の界面に空隙は認められなかった。細管液群では髓角近接部の接着界面に空隙が観察され、空隙下の象牙質では象牙細管の開口が観察された。髓角近接部以外では乾燥群と同様空隙のない断面とレジントグを認めた。

2) SEMによる象牙質溶解後の接着界面の観察

乾燥群においては界面全体にレジントグが観察された。細管液群でも乾燥群同様レジントグを認めたが、界面の一部に様々な大きさの凹みが観察された。

3) TEMによる象牙質溶解後の接着界面の観察

乾燥群においては多くのレジントグが観察され、管間象牙質の表層に相当する部位に樹脂含浸層が見られた。樹脂含浸層は上下二つの層からなり、上部は内部に様々な大きさの電子

透過性の小球を含む電子密度の高い層として、下部は内部にコラーゲン繊維を含み、上部よりも電子密度が低い層として観察された。コラーゲン繊維はレジクタグの外側断面内にも認められた。

細管液群では上部の樹脂含浸層内に電子透過性の領域が観察された。他の部分の界面では乾燥群と同様に二つの層よりなる樹脂含浸層とレジクタグを認めた。

2. 接着強度

1) 接着強度

乾燥群の平均(SD)は18.47 MPa(2.07)であり、すべて混合破壊であった。細管液群ではすべて界面破壊で平均(SD)は8.05 MPa(3.70)で有意に低かった($p < 0.05$)。

2) SEMによる接着破断面の観察

乾燥群の接着破断面では混合破壊が見られた。

細管液群ではレジン側破断面の一部に様々な大きさの凹みが、対応する象牙質側破断面では象牙細管の開口が観察された。

[考察]

1. SEMによる接着界面の観察

細管液群で認められた空隙は象牙細管より滲出してきたリン酸緩衝液が貯留して生じたものと思われる。本研究の被着体の水分透過性は髄角近接部において最も高く、空隙が生じたのが同部位のみであったことより水分透過量の多小が界面に生ずる変化に関する主な要因であると考えられる。

空隙下の象牙質表面に見られた象牙細管の開口は液圧によってレジン成分が細管内に侵入しえなかったか、あるいは一度侵入した後に細管外に排出されたものと推測される。

2. SEMによる象牙質溶解後の接着界面の観察

細管液群で観察された凹みは滲出してきたリン酸緩衝液にアドヒージブが接して生じたものと思われる。凹みが界面に局在しているのは象牙質表面の水分透過性が部位において異なるためと思われる。

3. TEMによる象牙質溶解後の接着界面の観察

乾燥群においてはレジンが管間象牙質の表層のみならず細管壁にも浸透、樹脂含浸層を形成し強固な接着が達成されているものと考えられる。上部の樹脂含浸層は電子密度の高い層として観察され、その内部には電子透過性の小球が認められた。Meerbeekも同様の層を観察しており、SMPプライマーに含まれるポリアクリル酸のカルボキシル基が象牙質由来のCaと反応したものであり、層内部の小球は気泡かあるいは象牙質の水分がとりこまれ、後にア

ドヒーシブにより置換されたものと説明している。

細管液群においてもレジンタグおよび樹脂含浸層が観察されているが、上部の樹脂含浸層内に電子透過性の領域が観察されている。この領域は滲出したリン酸緩衝液がポリアクリル酸の層に取り込まれて生じたものと考えられる。領域の内部に存在したリン酸緩衝液がアドヒーシブによって置換されたものか包埋剤により置換されたものかは不明である。しかしリン酸緩衝液の滲出量が多い場合にはアドヒーシブによる置換は容易に起こり得ないと推察され、SEM観察で見られたような空隙を形成したものと思われる。

4. 接着強度

乾燥群の破壊様式はすべて混合破壊であり良好な接着を示した。

細管液群では接着力の低下が認められた。接着破断面にみられた凹みおよび象牙細管の開口はSEMによる接着界面の観察結果と類似している。接着力試験における細管液群の接着界面にも空隙が生じていたものと考えられ、有効な接着面積の減少につながり接着力が低下したと考えられる。

本研究は水分の影響が少ないSMPについて行われたが接着力の低下が認められた。歯髄内圧を想定していない実験ではエッチャント水洗後に水分が残存してもプライマーの乾燥後は水分の影響を受けないのに対し、本研究ではプライマーの乾燥後も象牙細管から水分が滲出したため接着力が低下したと考えられる。水分の影響が少ない象牙質接着システムに対しても象牙細管内液の滲出は考慮すべき因子と思われる。

[結論]

水分に安定とされる象牙質接着システムにおいても象牙細管内液は接着に影響する因子となりうることが示唆された。接着力低下の理由の一つは接着界面に生じた空隙による有効な接着面積の減少と考えられる。また水分透過量の多少が接着界面の構造に影響する主な因子であることが明らかになった。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 下河邊 宏 功

副 査 教 授 内 山 洋 一

副 査 教 授 亘 理 文 夫

学位論文題名

象牙細管内液想定下のレジン-象牙質接着における 界面の微細構造および接着強度

審査の始めに申請者による学位論文内容に関する説明があった。概要を以下に示す。

象牙質接着システムが開発されて以来象牙質との接着に関する多くの研究がなされている。その中で口腔内に近い環境で接着を評価するために歯髄内圧による象牙細管内液の滲出を想定した試験が行われ、乾燥状態と比べ接着力が低下することが報告されている。しかし、接着界面の微細構造に関する検討は少なく、象牙細管内液が接着に及ぼす影響については不明な点が多い。本研究では象牙細管内液がレジンと象牙質の接着に及ぼす影響を明らかにするために象牙細管内液想定下で接着を行い、接着界面の微細構造と剪断接着力について検討を加えた。

[材料と方法] 象牙質接着システムは水分の影響が少ないScotchbond™ Multi-Purpose、被着歯は新鮮抜去ヒト第三大臼歯を用いた。被着歯の咬合面エナメル質部分および歯根を切断し、歯冠側を注水下にて平坦に髄角から1 mmの距離になるところまで研削し被着体とした。象牙細管内液を想定するために被着体の歯髄側より歯髄内圧に相当するとされる25 mmHgの圧をリン酸緩衝液を介して加えて接着操作を行ったものを細管液群、乾燥状態で行ったものを乾燥群とした。両群についてSEMおよびTEMによる接着界面の微細構造の観察と剪断接着力試験を行った。

1) SEMによる接着界面の観察

接着試料を接着面に垂直に髄角付近を通るように切断し、1 N HClで15秒、0.5 N NaOClで30秒処理した後、接着界面の断面をSEM観察した。さらに接着試料の象牙質を1 N HClおよび5 % KOHにて溶解し、SEM観察した。

2) TEMによる象牙質溶解後の接着界面の観察

象牙質を溶解した接着試料をEpon樹脂に包埋し、髄角近接部の接着界面をTEM観察した。

3) 接着強度の測定

接着界面の観察に用いたと同様に作成した20個の接着試料の髄角近接部にRestorative Z100 (3M) を接着した。接着試料のうち10個は25 mmHg加圧下で接着、細管液群の接着試料とした。他の10個については加圧装置に装着せずに接着し乾燥群とした。試料は37 °C

水中に24時間保存した後剪断接着力試験を行った。統計学的有意差の有無はt検定を用いた。破断面の観察はSEMにより行った。

[成績および考察] SEM観察：乾燥群では接着界面に空隙は認めず、多くのレジントグが観察された。細管液群では髄角近接部の接着界面に空隙が見られ、空隙下の象牙質には細管の開口が観察された。空隙上のレジン面には様々な大きさの凹みが認められ、凹みの周辺には乾燥群で観察されたものより短い円柱状のレジントグが見られた。髄角近接部以外では乾燥群と同様空隙は認めず、多くのレジントグが観察された。細管液群で認められた空隙および凹みは象牙細管より滲出してきたリン酸緩衝液が貯留して生じたものと思われる。本研究の被着体の水分透過性は髄角近接部において最も高く、空隙が生じたのが同部位のみであったことより水分透過量の多小が界面に生ずる変化に関する主な要因であると考えられる。

TEM観察：乾燥群では管間象牙質表層からレジントグの外側面におよぶ樹脂含浸層が観察された。細管液群でも樹脂含浸層が認められたが、樹脂含浸層内のアドヒーズ層側に電子透過性の領域が見られた部分もあった。この領域は滲出したリン酸緩衝液がポリアクリル酸の層に取り込まれて生じたものと考えられる。領域内部に存在したリン酸緩衝液はアドヒーズあるいは包埋剤によって置換されたと思われる。リン酸緩衝液の滲出量が多い場合にはアドヒーズによる置換は容易に起こり得ないと推察され、SEM観察で見られたような空隙を形成したものと思われる。

剪断接着力試験：乾燥群の18.47MPa(SD:2.07)に対し細管液群は8.05MPa(3.70)で有意に低下した($p < 0.05$)。破壊様式は乾燥群では混合破壊であったが細管液群では界面破壊であった。

細管液群の破断面には様々な大きさの凹みと象牙細管の開口が観察され、SEMによる接着界面の観察結果と類似していた。細管液群の接着界面に生じた空隙が有効な接着面積の減少につながり接着力が低下したと考えられる。

本研究は水分の影響が少ないScotchbond™ Multi-Purposeについて行われたが接着力の低下が認められ、水分の影響が少ない象牙質接着システムに対しても象牙細管内液の滲出は考慮すべき因子と思われる。

[結論]

水分に安定とされる象牙質接着システムにおいても象牙細管内液は接着に影響する因子となりうることを示唆された。接着力低下の理由の一つは接着界面に生じた空隙による有効な接着面積の減少と考えられる。また水分透過量の多少が接着界面の構造に影響する主な因子であることが明らかになった。

以上、論文の内容説明の後審査員全員による口頭による試験が行われた。まず研究方法の細部に関する質疑応答において本論文の研究手法が適切なものであったことが評価された。さらに象牙細管内液と接着界面の微細構造および接着強度の関係について質疑応答がなされ、申請者は適切かつ明快に答弁した。その結果本論文における研究成果が象牙質接着システムの応用において新知見を提供する独創的なものであり歯科における臨床の場においても高い価値を有するものであることが審査員全員により評価された。

以上の結果、本論文は学位論文に値し、論文申請者は専門および関連領域について十分な学識と理解があり、博士(歯学)の授与に値するものと認定された。