

学位論文題名

*In vivo* Degradation of Resin-Dentin Bonds  
in Humans Over 1 to 3 Years

(ヒト口腔内で1から3年経過したレジン・象牙質接着構造の劣化)

学位論文内容の要旨

【研究目的】

レジン・象牙質接着性に対する評価は、試験片作製後24時間など *in vitro* 短期間によるものが多く、*in vivo* 長期接着性についての報告は数少ない。そこで本研究では、ヒト口腔内で長期経過したレジン修復歯から、レジン・象牙質接着試験片を作製し、micro-tensile testを行った。また破断面をSEMで観察し微視的様相の経年変化を調べた。さらに、破断面における破断様式の面積率を計測し、接着強さとの関係を調べた。

【本研究の背景】

近年、接着性レジンシステムの象牙質に対する接着性能は新型機能性モノマーの開発により飛躍的に向上した。レジン・象牙質接着性に対する評価は、そのほとんどが試験片作製後24時間など短期間に得られた結果について考察されている。レジン・象牙質接着構造内には象牙質を酸処理後、露出したコラーゲン層にレジン成分が十分に浸透せずに形成された残留脱灰象牙質層の存在が指摘されている。そしてこの部分が長期的に加水分解を受けることにより接着強さの低下をもたらすと言う仮説から、いくつかの長期水中浸漬試験が行われている。GwinnetとYu (1995) により、All-bond 2 と Amalgambondの接着強さは6ヵ月間の水中浸漬により低下することが報告されている。またBurrow *et al.* (1996) も3年間の水中浸漬試験からPhoto Bondの接着強さが低下したことを報告している。佐野ら (1999) が行ったサルの口腔内で1年間経過したレジン・象牙質接着構造の劣化に関する研究では、接着強さの低下および残留脱灰象牙質層の劣化様相は見出されなかった。このように、レジン・象牙質接着構造の劣化機序は現段階では明らかにされていない。そこで申請者らは、レジン・象牙質接着構造における劣化機序を解明することを目的として本研究を行った。

【材料と方法】

齲蝕治療のため北海道大学附属病院小児歯科専門外来を受診した患児を被験者とした。齲蝕が象牙質に及ぶ乳臼歯に、浸潤麻酔およびラバーダム防湿下で窩洞形成を施し(齲蝕検知液をもちいて、軟化象牙質を全て除去)接着性レジンシステム(Scotchbond Multi-Purpose、3M Dental Products, St. Paul, MN, USA)を用いて、メーカーの指示通りに修復操作を行った。上記修復操作は全て同一術者によって行われた。1から3年経過後、後継永久歯萌出のためレジン修復を施した乳臼歯を抜去した。齲蝕およびマージン部分の着色が認められない修復歯から、被着面積が1.0mm<sup>2</sup>になるようにレジン・象牙質接着試験片(hourglass-shape)を作製した。試

験片作製後、直ちにcross-head speed: 1.0 mm/minでmicro-tensile test (EZ Test, Shimadzu Co., Kyoto, Japan) を行った。

引張試験後、破断面の象牙質側を走査型電子顕微鏡 (SEM/S-4000, Hitachi Ltd., Tokyo, Japan) で観察した。

ここで、破断様式を以下に示す4種類に分類した。(I) コンポジットレジンおよびボンディング材における凝集破壊、(II) 樹脂含浸層での破壊、(III) 残留脱灰象牙質層での破壊、(IV) 象牙質における凝集破壊

この分類をもとに、micro-tensile test 終了後、得られた全ての破断面象牙質側のSEM写真を撮り、そのSEM写真上からimage analyzer (KD4030B; Graphtec, Tokyo, Japan) を用いて破断様式の面積率を測定した。また、抜去乳臼歯にレジン修復を施し24時間水中浸漬後、同様に試験を行い、これをコントロール試料とした。

#### 【結果と考察】

接着強さの結果は、コントロール試料 ( $28.3 \pm 11.3 \text{MPa}$ ;  $n=26$ )、口腔内で1から2年経過した試料 ( $15.2 \pm 4.4 \text{MPa}$ ;  $n=11$ ) および口腔内で2から3年経過した試料 ( $9.1 \pm 5.1 \text{MPa}$ ;  $n=11$ ) の各群において接着強さの低下が統計学的に認められた (one-way ANOVA and Fisher's PLSD test:  $p < 0.05$ )。

長期口腔内で経過した試料の破断面観察においては、コンポジットレジンとボンディング材、ボンディング材と樹脂含浸層上層部、残留脱灰象牙質層と象牙質の異なる層状構造の境界で破壊する傾向が認められた。このことから、破断面上に膜状構造が特異的に観察された。

破断面上の残留脱灰象牙質層部分において象牙細管側枝の開口部が観察される場合があった。通常のせん断および引張試験後の破断面において象牙細管側枝の開口部が観察されることはない。参照として象牙質面を Scotchbond Multi-Purpose 付属の10%マレイン酸を用いて15秒間処理し、有機質除去のため10分間10%次亜鉛素酸ナトリウムを適用した面においては、多数の象牙細管側枝の開口部が観察された。また、象牙細管の管周象牙質は細管側枝と比較すると、石灰化に富むということを勘案すれば、レジン・象牙質接着構造内において、コラーゲン線維が加水分解を受けることによって細管側枝の開口部が開拡し、観察できると推測される。このことによりレジン・象牙質接着構造内でのコラーゲン線維の加水分解の事実が証明された。

また、コンポジットレジンの凝集破壊部分ではフィラーとマトリックス間のギャップ、フィラーの脱離などが観察され、シランカップリング材の加水分解による劣化が認められた。

破面解析の結果においては、長期口腔内で経過した試料において残留脱灰象牙質層の破断面上での面積率が増加した。さらにコントロール試料と長期口腔内で経過した試料における破断様式的面積率を各接着強さ別群に分類したグラフにおいて、コントロール試料において、接着強さが増加するにつれ、レジンおよび象牙質における凝集破壊の面積率が増加し、樹脂含浸層での破壊は減少した。このことから、接着強さの大きい試料においては、機械的強度の高い象牙質およびレジンの破断面上での面積率が増加することがわかり、破断様式と接着強さの間に相関性が認められた。接着強さ10-20MPa群において、コントロール試料と長期口腔内で経過した試料を比較すると、長期口腔内で経過した試料においてはレジンの凝集破壊の面積率が高くなった。これは、接着構造内で劣化した部分の機械的強度は低下し、破断面上での面積率が増加するためと考えられる。

また接着強さ長期口腔内で経過した試料の10MPa以下群において残留脱灰象牙質層の面積率

が最大となることから、この部分の物性が低下していることは明らかであり、SEM観察で確認されたコラーゲン線維層の加水分解の事実をさらに裏付ける結果となった。

このように、レジジン・象牙質接着構造は口腔内で長期経過することにより劣化し、接着強さの低下を引き起こしていることが示唆された。またレジジン・象牙質接着耐久性向上のため、更なる研究継続の必要性が認められた。

# 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 小 口 春 久  
副 査 教 授 佐 野 英 彦  
副 査 教 授 亘 理 文 夫

学 位 論 文 題 名

## *In vivo* Degradation of Resin-Dentin Bonds in Humans Over 1 to 3 Years

(ヒト口腔内で1から3年経過したレジン・象牙質接着構造の劣化)

審査は、主査・副査がそれぞれ個別に、口頭試問により行われた。提出論文の概要の説明を求めた後、本論文の内容とその関連事項について試問した。

審査論文の概要は以下のとおりである。

レジン・象牙質接着性に対する評価は、試験片作製後24時間など *in vitro* 短期間によるものが多く、*in vivo* 長期接着性についての報告は数少ない。そこで申請者らは、ヒト口腔内で長期経過したレジン修復歯から、レジン・象牙質接着構造における微視的様相の経年変化を調べた。

齲蝕治療のため北海道大学歯学部附属病院咬合系歯科小児専門外来を受診した患児を被験者とした。齲蝕が象牙質に及ぶ乳臼歯に、浸潤麻酔およびラバーダム防湿下で窩洞形成を施し、接着性レジンシステム (Scotchbond Multi-Purpose、3M) を用いて、メーカーの指示どおりに修復操作を行った。上記修復操作は全て同一術者によって行われた。1から3年経過後、後継永久歯萌出のためレジン修復を施した乳臼歯を抜去した。その修復歯から、被着面積が $1.0\text{mm}^2$ になるようにレジン・象牙質接着試験片を作製した。試験片作製後、直ちに cross-head speed :  $1.0\text{mm}/\text{min}$  で micro-tensile test を行った。引張試験後、破断面の象牙質側を走査型電子顕微鏡で観察し、破断様式を以下に示す4種類に分類した。(I) コンポジットレジンおよびボンディング材における凝集破壊、(II) 樹脂含浸層での破壊、(III) 残留脱灰象牙質層での破壊、(IV) 象牙質における凝集破壊。この分類をもとに、micro-tensile test 終了後得られた全ての破断面象牙質側のSEM写真を撮り、そのSEM写真上からimage analyzerを用いて破断様式の面積率を測定した。また、抜去乳臼歯にレジン修復を施し24時間水中浸漬後、同

様に試験を行い、これをコントロール試料とした。

接着強さの結果はコントロール試料 ( $28.3 \pm 11.3 \text{MPa}$  :  $n=26$ )、口腔内で1から2年経過した試料 ( $15.2 \pm 4.4 \text{MPa}$  :  $n=11$ ) および口腔内で2から3年経過した試料 ( $9.1 \pm 5.1 \text{MPa}$  :  $n=11$ ) の各群において接着強さの低下が統計学的に認められた。長期口腔内で経過した試料の破断面観察においては、異なる層状構造の境界で破壊する傾向が認められ、破断面上に膜状構造が特異的に観察された。破断面上の残留脱灰象牙質層部分において象牙細管側枝の開口部が観察される場合があった。象牙細管の管周象牙質は細管側枝と比較すると、石灰化に富むということを勘案すれば、レジン・象牙質接着構造内において、コラーゲン線維が加水分解を受けることによって細管側枝の開口部が開拡し、観察できると推測される。このことによりレジン・象牙質接着構造内でのコラーゲン線維の加水分解の事実が証明された。また、コンポジットレジンの凝集破壊部分ではフィラーとマトリックス間のギャップ、フィラーの脱離などが観察され、シランカップリング材の加水分解による劣化が認められた。破面解析の結果においては、長期口腔内で経過した試料において残留脱灰象牙質層の破断面上での面積率が増加した。また、接着強さの大きい試料においては、機械的強度の高い象牙質およびレジンの破断面上での面積率が増加することがわかり、破断様式と接着強さの間に相関性が認められた。接着強さ10–20MPa群において、コントロール試料と長期口腔内で経過した試料を比較すると、長期口腔内で経過した試料においてはレジンの凝集破壊の面積率が高くなった。これは、接着構造内で劣化した部分の機械的強度は低下し、破断面上での面積率が増加するためと考えられる。また長期口腔内で経過した試料の接着強さ10MPa以下群において残留脱灰象牙質層の面積率が最大となることから、この部分の物性が低下していることは明らかであり、SEM観察で確認されたコラーゲン線維層の加水分解の事実をさらに裏付ける結果となった。このように、レジン・象牙質接着構造は口腔内で長期経過することにより劣化し、接着強さの低下を引き起こしていることが示唆された。

論文の審査にあたっては、各審査委員と申請者の間で、本論文の内容とその関連事項について質疑応答がなされた。これらに対して、申請者らは本研究結果と他の文献を引用し適切な回答を行った。特に本研究は、交換期に脱落する乳臼歯を用いた点において長期の接着耐久性を調べるスクリーニングテストとしては、世界で初めての手法であり、今後、他研究機関においても同様な試験が行われると予想される。また、破断面の各面積率をイメージアナライザーにより測定した研究報告は過去にみられず、その実験方法の有用性が明らかに認められた。以上のことから本論文が歯質接着の研究領域に与える影響は極めて大きく、事実、世界の各研究機関から高く評価されている。よって、学位申請者は博士（歯学）の学位授与にふさわしいものと認められた。