

スマヤー層が1ステップ接着システムの 短長期的象牙質接着性能に及ぼす影響

学位論文内容の要旨

歯科用接着システムは、エッチング、プライミング、ボンディング処理が必要な3ステップエッチ&リンスシステムから、簡略化された2ステップ接着システムが開発され、広く使用されるようになった。2ステップ接着システムは、エッチング後のプライミングとボンディングを一括して行うエッチ&リンスシステム、エッチングとプライミングをセルフエッチングプライマーで同時に行い、その後ボンディングを行うセルフエッチングシステムの2種類に分けられる。今日では、操作性がより簡便化したセルフエッチングシステムである1ステップ接着システムが、臨床応用されている。

1ステップ接着システムは簡便化したとはいえ、様々な問題が指摘されている。全ての成分を1ボトルに混合することによる液の層分離、硬化後透過膜様の働きをする、従来のシステムに比べ、脱灰能が低く、スマヤー層の影響を受け易い、などである。また、比較的最近に開発されたものであり、長期耐久性に関する研究は少ない。そこで本研究では、スマヤー層に焦点をあて、各種研削器具により生成されたスマヤー層を形態学的に検討し、1ステップ接着システムの象牙質への短長期的接着性能に対し、スマヤー層が与える影響を評価することを目的とした。

《材料および方法》

1. スマヤー層の形態学的観察

健全ヒト抜去大白歯歯冠部から、2種のダイヤモンドポイント(レギュラー、スーパーファイン)および、2種のSiCペーパー(#600, #2000)を用いて、研削象牙質面を得た。各研削器具の表面と形成した研削面をSEM観察し、各研削器具表面粒子の大きさおよびスマヤー層の厚さを測定した。また、各研削面のTEM観察を行った。

2. 1ステップ接着システムによる処理研削面のSEM観察

前述1の結果より、表面粒子の大きさ、スマヤー層の厚さの差異が最も大きかった2種の研削器具(レギュラー, #2000)を用い、研削面を作製した。それらの研削面に対し、1ステップ接着システム Clearfil S³Bond (S3) および Absolute (AB)を用いて、メーカーの指示通り処理し、光照射を行わずアセトン洗浄し、脱水乾燥を行った後、処理面のSEM観察を行った。

3. サーマルサイクリング(TC)負荷試験による長期耐久性の検討

前述 2.と同様に用意した 2 種の研削面に、それぞれ S3 および AB を用いてコンポジットレジン(Z-100)を築盛し、24 時間水中保存後、歯軸に平行に試料を切り出し、接着界面の面積が約 1mm^2 となるようダンベル型に調整した。それらの試料を TC 負荷を行うものを行わないものに分け、試料製作後ただちに、あるいは、100,000 回 TC 負荷 ($5^{\circ}\text{C}-55^{\circ}\text{C}$ 水中に各 60 秒間ずつの浸漬を 1 サイクルとする) 後、微小引張り接着試験を行った。また、すべての試料群に対し、接着界面の TEM 観察を行った。

《結果と考察》

1. スミヤー層の形態学的観察

研削器具の表面粒子は、すべての研削器具において大小異なる不定形な粒子として観察され、#2000、#600、スーパーファイン、レギュラーの順で大きくなり、#600 とスーパーファインの間以外に有意差が認められた。スミヤー層の厚さも同様の結果で、表面粒子が大きくなるとスミヤー層が厚くなり、両者の間に相関が認められた。TEM 像では、すべての研削面のスミヤー層において、無数の細かい削り屑様物のなかに粒状のハイドロキシアパタイト(HAp)が散在しており、形態学的な差異は認められなかった。

2. 1 ステップ接着システムによる処理研削面の SEM 観察

S3 では、レギュラー研削面へ処理した場合、表層は脱灰されてはいるが、未処理面と近似した像で、スミヤーが厚く残存していた。#2000 研削面では、未処理面で認められなかった象牙細管開口部が観察され、レギュラー研削面に比べ脱灰の程度が大きく、研削面の違いによりスミヤーの除去程度は異なった。AB では、研削面の違いによらず、スミヤーは除去され、明瞭に開口し、漏斗状に脱灰された象牙細管が観察された。脱灰の程度はいずれの研削面においても、S3 に比較し AB が大きかった。それぞれのシステムの pH は S3 が 2.7、AB が 1.1 で、脱灰の程度に一致していた。

3. TC 負荷試験による長期耐久性の検討

微小引張り接着強さでは、S3 は TC 無し #2000 研削面に対し 39.1MPa で、レギュラー研削面での 21.4MPa と比較し有意に低かった。この結果は、レギュラー研削面のスミヤーが除去しきれず多く残った為、接着力に影響したと考えられた。TC 後、いずれの研削面に対する接着強さも有意に低下し、レギュラー研削面では約 69%、#2000 研削面では約 56%の値となった。接着界面の TEM 観察では研削面の違い、TC の有無に拘らず、全ての試料で象牙質表層が 200-300nm 程脱灰された nano-interaction zone(NIZ)が観察され、NIZ 内には HAp が残存していた。TC 負荷後はいずれの研削面においてもボンディング層中のフィラーは消失しており、#2000 研削面では NIZ 下象牙質に空虚な部位が観察された。S3 の機能性モノマーである

MDP は、2ステップセルフエッチングシステムである Clearfil Mega Bond (MB) にも含まれる。Inoue らの実験で、MB は 100,000 回 TC 後も接着強さが低下しなかったことについて、残存する HAp の Ca^{2+} と MDP との化学的結合力が、長期的な接着強さの維持に関与していると報告したが、今回 S3 では 100,000 回 TC 後の接着強さは低下した。これは、S3 では MDP の化学的結合力よりも、1ステップ接着システムであるが故、成分に水分や HEMA を含み、親水性が高いことが大きく影響しているためと考えられた。

AB は TC 無しの接着強さがいずれの研削面に対しても 20MPa 程度であり、研削面の違いによる有意差は認められなかった。この結果は、研削面の違いによらず、スミヤーを除去できるため、その影響を受けなかったことによると考えられた。TC 後、いずれの研削面においても接着強さは有意に減少し、約 50% の値となった。接着界面の TEM 観察では研削面の違い、TC の有無に拘らず、すべての試料で象牙質が 1.5–3.0 μm 程脱灰された樹脂含浸層が観察され、樹脂含浸層底部には HAp が点在していた。TC 後、#2000 研削面では樹脂含浸層下部象牙質に空虚な部位が観察された。TC 後の接着強さが減少した理由として、AB の機能性モノマーである 4-MET は MDP と比較し Ca^{2+} との化学的結合に時間がかかり、その Ca 塩の水溶性は大きいこと、接着界面に 4-MET と反応できる HAp がほとんど残っておらず化学的接着が期待できないこと、被着面をオーバーウェットな状態にする必要があり、テクニックセンシティブティが高いこと、などが考えられた。

《結論》

以上の結果より、以下の結論を得た。

- 1) スミヤー層の厚さは研削器具に左右される。
- 2) スミヤー層の除去能が低い接着システムは、厚いスミヤー層の場合、スミヤーが残存し、接着性能に影響を及ぼす。
- 3) 接着システムによっては、厚さに拘らずスミヤー層を除去し、接着性能に影響しないものもある。
- 4) 1ステップ接着システムは長期的に接着性能が低下する。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 佐 野 英 彦

副 査 教 授 亘 理 文 夫

副 査 教 授 横 山 敦 郎

学 位 論 文 題 名

スマヤー層が1ステップ接着システムの 短長期的象牙質接着性能に及ぼす影響

審査は審査担当者が一同に会して約2時間かけて行った。まず申請者に本論文の概要の説明を求め、その後に口頭試問の形式で提出論文の内容及び関連分野について試問した。申請者は論文の概要を以下のように説明した。

【目的】 歯科用1ステップ接着システムは従来のシステムに比べ、脱灰能が低く、スマヤー層の影響を受けやすいことが指摘されている。また、比較的最近に開発されたものであり、長期耐久性に関する研究は少ない。本研究では、各種研削器具により産生されたスマヤー層を形態学的に検討するとともに、それらのスマヤー層が1ステップ接着システムの短長期的象牙質接着性能に及ぼす影響を検討した。

【材料と方法】 1. 各種スマヤー層の観察 健全ヒト抜去大白歯歯冠部から、2種のダイヤモンドポイント(レギュラー, スーパーファイン)および2種のSiCペーパー(#600, #2000)を用いて、可及的平坦な研削象牙質面を得た。各切削器具の表面、研削象牙質表面および切断面をSEM観察し、スマヤー層の厚さ、および各切削器具表面粒子の大きさを測定した。また、各研削象牙質面のTEM観察を行った。

2. 接着システム処理象牙質面のSEM観察 1と同様の方法で2種の研削象牙質面(レギュラー, #2000)を作製し、Clearfil S³Bond (S3) およびAbsolute (AB)を用いて、指示書通りに処理した後、光照射をせず、ただちにアセトン洗浄し、脱水乾燥を行った。それらの試料の処理面および切断面をSEM観察した。

3. サーマルサイクリング(TC)による長期耐久性の検討 1と同様の方法で得たレギュラーおよび#2000研削象牙質面に、S3およびABを用いてコンポジットレジンを築盛し、接着界面の面積が約1mm²となるようダンベル型に調整した試料を100,000回TCに供し、微小引張り接着強さの測定および接着界面のTEM観察を行った。TC負荷無しの試料にも同様の試験を行った。

【結果および考察】スミヤー層は表面粒子が大きくなると厚くなったが、形態学的な差異は認められなかった。S3ではスミヤー層の厚みが異なる研削面によって除去程度は異なったが、ABは研削面によらずスミヤー層を除去した。TC負荷の有無に拘らず、S3はレギュラー研削面への接着強さが有意に低かったが、ABでは研削面の違いによる接着強さに有意差はなかった。また、いずれの接着システムもTC負荷後に接着強さは有意に減少し、接着界面の劣化を示唆する像が観察された。以上より、スミヤー層の厚さは切削器具に左右されること、接着システムによっては厚いスミヤー層も除去できるので、スミヤー層は接着性能に必ずしも影響を及ぼさないこと、および1ステップ接着システムは長期的に接着性能が低下することが示唆された。臨床においては、使用するバーによりスミヤーが異なることを考慮し、用いるシステムの性質を十分理解した上で接着操作を行うことが重要である。

各審査委員が行った主な質問は、以下の通りである。

- 1) 試料の作製法について（特にスミヤーのTEM観察用試料）
- 2) サーマルサイクルの回数の設定について
- 3) 破断形態と接着強さについて
- 4) 熱疲労と機械疲労について
- 5) 統計学的データ解析法について
- 6) 接着システムのシェアの現状について

これらの質問に対して、論文申請者から明快な回答ならびに説明が得られ、さらに今後の研究の発展性についても明確な方向性を持っていると判定した。

審査委員は全員、本研究が学位論文として十分値し、申請者が博士（歯学）の学位を授与される資格を有するものと認めた。