

## 鶴見大学大学院歯学研究科博士学位論文

### 内容の要旨および審査の結果の要旨

氏名(本籍) 英 將 生(神奈川県)  
博士の専攻分野 博士(歯学)  
学位記番号 乙 第 253 号  
学位授与年月日 平成 26 年 4 月 17 日  
学位授与の要件 学位規則第 4 条第 2 項該当  
学位論文題目 Bonding Effectiveness of a New 'Multi-mode' Adhesive to Enamel and Dentine  
(エナメル質と象牙質に対する新規「マルチモード」接着材の接着効果)  
Journal of Dentistry 第 40 卷 第 6 号 475 頁～ 484 頁掲載 平成 24 年 6 月発行  
論文審査委員 主査 教授 早 川 徹  
副査 教授 朝 田 芳 信 副査 教授 桃 井 保 子

### 内容の要旨

#### 【目 的】

現在、セルフエッチアドヒーズは、簡便でチェアタイムの減少を図れることから臨床で広く使用されている。しかし、脱灰力の弱いセルフエッチアドヒーズのエナメル質に対する接着に関しては、今だ、懸念がある。このため、近年、セルフエッチアドヒーズ処理前にエナメル質のみを選択的にリン酸で処理する“selective enamel etch technique”が考えられている。

本研究の目的は、新規のマルチモード（ワンステップセルフエッチアドヒーズ：1-SEA）アドヒーズの最適な接着処理方法を検討することである。仮説は、「リン酸による前処理はエナメル質および象牙質に対する 1-SEA の接着に影響を及ぼさない。」また、「リン酸処理した象牙質に対し 'dry-bonding（乾燥後 1-SEA 処理）」、あるいは、「wet-bonding（湿潤状態で 1-SEA 処理）」を行った場合、両者の接着強さに差はない。」であった。

#### 【材料と方法】

##### 1. 微小引張接着試験

試験には、25 本の齶蝕の無いヒト抜去大白歯（K.U.Leuven 倫理審査委員会承認）を使用し、エナメル質と象牙質を被着面とした。以下に示す 5 条件に無作為に 5 本ずつ割り付けた。

エナメル質：(1a) 1-SEA のみの処理

(1b) リン酸処理後、1-SEA 処理

象牙質：(2a) 1-SEA のみの処理

(2b) リン酸処理、乾燥後、1-SEA 処理

(2c) リン酸処理、湿潤状態で、1-SEA 処理

エナメル質は、歯冠頬舌側面をレギュラーのダイヤモンドポイントで研削し、被着面とした。象牙質は、歯冠咬合面側 1/3 をダイヤモンドカッターで除去し露出した象牙質面をエナメル質と同様の方法で研削し、被着面とした。

接着材には 1-SEA の G-BOND PLUS（GC, Tokyo, Japan）を使用した。

1a：エナメル質を通常に従い 1-SEA で接着処理した。1b：エナメル質にリン酸（Gel Etchant, Kerr, Orange, CA, USA）を 15 秒塗布し、15 秒水洗、弱圧でエアードライ後、1-SEA で接着処理した。2a：象牙質を通常に従い 1-SEA で接着処理した。2b：象牙質にリン酸を 15 秒塗布し、15 秒水洗、その後、水分が除去されるまで 5 秒間エアードライし 1-SEA で接着処理した。2c：象牙質にリン酸を 15 秒塗布し、15 秒水洗、その後、綿球でプロットドライし 1-SEA で接着処理した。全ての試片に接着処理後、コンポジットレジン（クリアフィル AP-X, クラレノリタケデンタル）を積層充填し照射した。24 時間 37℃

水中浸漬後、接着界面と垂直に被着面が1 mm × 1 mm となるように精密切断機で短冊状に切断し接着試験の試片とした。その後、万能試験機 (LRX, Lloyd, Hampshire, UK) を使用し、クロスヘッドスピード1 mm/min にて微小引張接着試験を行った。得られたデータは、一元配置分散分析後、Scheffe's の多重比較 ( $\alpha = 0.05$ ) にて統計処理を行った。

接着試験後の破断面を実体顕微鏡で観察し、「エナメル質もしくは象牙質の凝集破壊」、「レジンの凝集破壊」、「エナメル質もしくは象牙質と接着材の界面破壊」および「混合破壊」に分類した。その代表例を走査電子顕微鏡 (JSM-5600, JEOL) で観察した。

## 2. 接着界面の TEM 観察

微小引張接着試験と同様に5条件の試片を作製した。

エナメル質試片は、未脱灰試片をエポキシ樹脂包埋し、ダイヤモンドナイフを使用して60-80 nm の超薄切片とした。象牙質試片は、未脱灰試片および脱灰試片を超薄切片とした。また、エナメル質および象牙質試片共に接着界面のナノリーケージを観察するため、50 wt% アンモニア硝酸銀に浸漬した試片をエポキシ樹脂包埋し、同様に超薄切片を作製した。これらの試片の接着界面を透過型電子顕微鏡 (JEM-1200EX II, JEOL) で観察した。

### 【結 果】

#### 1. 微小引張接着試験

微小引張接着試験の結果 Mean  $\pm$  SD を次に示す。エナメル質の接着強さは、1a : 23.1  $\pm$  9.8 MPa (n = 30), 1b : 34.5  $\pm$  13.8 MPa (n = 30), 象牙質 (n = 45) の接着強さは、2a : 30.5  $\pm$  7.6 MPa (n = 45), 2b : 34.0  $\pm$  8.6 MPa (n = 45), 2c : 29.4  $\pm$  8.2 MPa (n = 45) であった。

エナメル質では、1a と 1b で有意差が認められた。象牙質では、2a と 2b および 2c との間には有意差は認められなかったが、2b と 2c の間には有意差が認められた。

破断面の分類では、全ての実験群で混合破壊が多く観察されたが、2b および 2c では、エナメル質および象牙質内の凝集破壊が多く観察された。

#### 2. TEM 観察

エナメル質において、1a および 1b の接着界面では、緊密な接合状態が観察された。1a では、エナメル質表面にレジンマイクロタグの形成はほとんど観察されなかった。1b では、スミヤーの溶解と部分的なハイドロキシアパタイトの脱灰が観察され、レジンが均一に浸透している像が観察された。

象牙質において、2a では、ハイドロキシアパタイトを含有する数百 nm の樹脂含浸層が観察された。スミヤーが残存し、象牙細管を封鎖している像が観察された。硝酸銀は、薄い樹脂含浸層の底部に局限してわずかに観察された。2b では、約 3-4  $\mu$ m の樹脂含浸層が形成され、レジンタグが観察された。硝酸銀は樹脂含浸層の全体に点および塊状で散在し、2a と比較し、明らかに多量に観察された。2c では、約 5-6  $\mu$ m の樹脂含浸層が形成され、レジンタグが観察された。硝酸銀は樹脂含浸層の下部 1/2 に点および塊状で散在し、2a と比較し、明らかに多量の像が観察された。

### 【考 察】

エナメル質に対するリン酸の前処理は、接着強さを有意に向上させることが示された。これは、脱灰されたエナメル質表層に多数の微小なレジンタグが TEM 像で観察されたことから、微小な機械的嵌合が生じたことにあると考えられる。象牙質に対するリン酸の前処理は、接着強さに影響しなかった。しかし、TEM 観察から、リン酸処理群 (2b と 2c) の樹脂含浸層には、多量の硝酸銀が沈着し、質の悪い樹脂含浸層であることがわかった。また、破断面の SEM 観察から、リン酸処理群は、樹脂含浸層下部での破断が多くみられた。このことから、リン酸処理した象牙質の樹脂含浸層は、コラーゲンが露出した脆弱な層と考えられ、この層の長期接着耐久性に懸念が持たれた。

### 【結 論】

エナメル質は、リン酸で選択的に酸処理した後、1-SEA を使用することにより、接着効果が向上した。象牙質をリン酸で前処理すると、初期の接着強さは低下しないものの、接着界面に多孔性で明らかに質の悪い樹脂含浸層が観察され、長期安定性に懸念がもたれた。したがって、象牙質にはリン酸を用いずセルフエッチアドヒーシブ単独の使用が推奨される。

### 審査の結果の要旨

現在、エッチング、プライミング、ボンディングの機能を併せ持ったセルフエッチアドヒーシブシステムが臨床で広く使用されているが、エナメル質に対する接着性に関しては未だ懸念がある。そのため、セルフエッチアドヒーシブ処理前にエ

ナメル質のみを選択的にリン酸で処理する“selective enamel etch technique”が提案されている。

本研究では、エナメル質および象牙質にリン酸エッチングを行った時の新規マルチモードアドヒーズブ（1-SEA）の接着性について検討を行った。

接着試験にはヒト抜去大白歯（K.U.Leuven 倫理審査委員会承認）を使用し、エナメル質に対しては、(1a) 1-SEA 処理、(1b) リン酸エッチング処理後、1-SEA 処理、象牙質に対しては、(2a) 1-SEA 処理、(2b) リン酸エッチング後、乾燥状態で1-SEA 処理、(2c) リン酸エッチング後、湿潤状態で1-SEA 処理の各条件で処理をした。その後、光重合型コンポジットレジン積層充填し、光重合後、24時間37℃水中に浸漬後、微小引張試験を行い、引張り接着強さを測定した。微小引張試験後の破断面の走査電子顕微鏡（SEM）観察および接着界面の透過型電子顕微鏡（TEM）観察を行った。

その結果、エナメル質に対しては1bが1aよりも有意に高い接着強さを示した。象牙質に対しては、2a、2b、2c間で接着強さに有意な差は認められなかったが、2bと2cの間には有意差が認められた。破断面の分類では、全ての実験群で混合破壊が多く観察されたが、2bおよび2cでは象牙質内の凝集破壊が多く観察された。接着界面のTEM観察の結果、1bでは脱灰されたエナメル質表層に多数の微小なレジクタの生成が確認できたことから、微小な機械的嵌合力が生じ、接着強さが向上したと考えられる。象牙質においては、リン酸処理群（2b、2c）では、樹脂含浸層に多量の硝酸銀が沈着し、生成した樹脂含浸層が多孔性であることが判明した。接着強さに違いは見られなかったが、リン酸処理した象牙質の樹脂含浸層はコラーゲンが露出した脆弱な層が主体であると考えられ、長期接着耐久性に懸念が持たれた。

以上、本研究は、セルフエッチアドヒーズブシステムの前処理としてのリン酸エッチングについてエナメル質、象牙質で効果が異なることを見出し、今後の保存修復治療の発展に大いに貢献すると考えられる。

よって、本論文は博士（歯学）の学位請求論文として十分な価値を有すると判定した。