

論文の内容の要旨

氏名：會 田 悦 子

博士の専攻分野の名称：博士（歯学）

論文題名：I型コラーゲンに対するタンニン酸の影響

う蝕や外傷などによる実質欠損に対し、機能の回復と審美性の確保の目的で、人工物による歯冠補綴治療が頻繁に行われている。歯冠補綴装置は歯科用セメントにより支台歯に合着される。

一般に、エナメル質のほとんどを削除して支台歯形成を行うため、象牙質が露出した状態となる。そのため、歯冠補綴装置の合着には象牙質に接着性を有するレジンセメントが多用されている。しかし、象牙質に対するレジンセメントの接着強さは経時的に低下することが広く知られている。

接着性レジンセメントを用いて歯冠補綴装置を合着する際、象牙質面を酸処理する。象牙質に対する酸処理は、接着性レジンセメントを象牙質に接着させ、象牙質接着界面に樹脂含浸層を生成させるために必要不可欠な操作である。しかし、酸処理によって影響を受けた樹脂含浸層内または樹脂含浸層直下のコラーゲンは歯冠補綴装置合着後の長期にわたる水の浸入により加水分解し、象牙質に対するレジンセメントの接着強さを低下させる要因であると報告されている。

そこで、古くから皮なめしや整腸剤として使用されていたタンニン酸を利用して、象牙質コラーゲンを強化することができれば、酸処理により影響を受けた象牙質コラーゲンの加水分解を抑制し、その結果、接着耐久性を向上させることができると考えた。

本研究は、象牙質コラーゲンと同じI型コラーゲンであるウシアキレス腱由来のコラーゲン（以下I型コラーゲン）を用いて、それらをタンニン酸で処理した場合の影響、およびタンニン酸処理したI型コラーゲンを酸処理した場合の影響について、示差走査熱量分析装置（DSC8230, Rigaku：以下、DSC）を用いて調べることを目的とした。また、それらの結果を基に、酸処理がヒト象牙質コラーゲンに及ぼす影響、および接着性レジンセメントの象牙質接着耐久性について考察した。

0.1, 1, 10, 20wt%のタンニン酸溶液を調整し、その溶液5 ml中にI型コラーゲン0.05 gをそれぞれ30秒間、1, 10, 30分間、1, 3, 6, 12, 24時間37°C恒温槽中で浸漬し、タンニン酸処理を行った。これらのタンニン酸処理I型コラーゲンを、DSCを用いて熱分析し、タンニン酸処理がI型コラーゲンの変性温度に及ぼす影響について調べた。

また、タンニン酸処理の効果が高かった1%, 10%のタンニン酸溶液にI型コラーゲンを30秒間、30分間、24時間浸漬させたI型コラーゲンを扱い、40%リン酸溶液で15秒間、または10%クエン酸溶液で10秒間それぞれ処理した。得られたそれぞれの試料について、コラーゲンの形状および性状の変化を肉眼にて観察するとともに、DSCによる変性温度の測定を行った。

その結果、以下のことがわかった。

1. タンニン酸処理をしていない I 型コラーゲンの変性温度は 65.7°C であった。I 型コラーゲンをタンニン酸処理すると浸漬時間と濃度で差があるものの、ほとんどが 70°C 以上に上昇した。とくに、1% タンニン酸溶液で 1 時間以上、および 10% タンニン酸溶液で 6 時間以上処理すると変性温度は約 85°C まで上昇し、最も高い値を示した。

2. 40% リン酸を作用させた場合

1) タンニン酸処理なし、1% および 10% タンニン酸で 30 秒間処理した I 型コラーゲンの変性温度は、それぞれ 65.7°C、65.4°C、68.2°C を示したが、40% リン酸処理するとコラーゲンはゼラチン化し、変性に伴う吸熱ピークを検出できなかった。

2) 1% タンニン酸で 30 分間処理した I 型コラーゲンの変性温度は 66.0°C と 82.6°C にそれぞれ吸熱ピークが検出された。しかし、リン酸処理後は 66.0°C の吸熱ピークは消失し、82.6°C の吸熱ピークは 77.9°C まで約 5°C 低下した。また、10% タンニン酸で 30 分間処理した場合は、74.0°C のピークが 61.9°C まで約 2°C 低下した。

3) 1% タンニン酸で 24 時間処理した I 型コラーゲンの変性温度は 85.6°C であったが、リン酸処理すると変性温度は 78.7°C まで約 7°C 低下した。また、10% タンニン酸処理 I 型コラーゲンも同様に、84.0°C から 76.7°C まで約 7°C 低下した。リン酸処理後の I 型コラーゲンの形態や性状を肉眼で観察した場合にはゼラチン化していなかった。

3. 10% クエン酸を作用させた場合

1) タンニン酸処理なしの場合、65.7°C に検出されたピークは、59.6°C と約 6°C 低下した。1% タンニン酸で 30 秒間処理した I 型コラーゲンの変性温度は 65.4°C であり、クエン酸処理後には約 3°C 低下し、62.9°C を示した。また、10% タンニン酸で処理した場合は、68.2°C が 63.1°C まで約 5°C 変性温度を低下させた。

2) 1% タンニン酸で 30 分間処理した I 型コラーゲンの変性温度は 66.0°C、82.6°C の二つのピークを検出し、酸処理後は 66.0°C のピークは消失し、82.6°C のピークは約 3°C 低下し、80.0°C を示した。また、10% タンニン酸の場合、74.0°C のピークは 64.5°C まで約 10°C 低下した。

3) 1% タンニン酸で 24 時間処理した I 型コラーゲン（変性温度：85.6°C）をクエン酸処理した場合の変性温度は 81.4°C で約 4°C 低下した。しかし、10% タンニン酸処理 I 型コラーゲン（変性温度：84.0°C）はクエン酸処理後の変性温度は 72.6°C と約 11°C 低下した。肉眼ではほとんどゼラチン化していなかった。

以上の結果から、タンニン酸は、I 型コラーゲンの熱変性温度を上昇させ、コラーゲンを強化することが確認された。しかし、その効果はタンニン酸の濃度と作用時間によって異なり、本実験に用いたウシアキレス腱由来 I 型コラーゲンを効果的に強化するには、1% タンニン酸水溶液に 1 時間以上浸漬、または 10% タンニン酸水溶液に 6 時間以上浸漬する必要があることが明らかとなった。

また、I 型コラーゲンはタンニン酸処理により耐酸性を獲得し、歯冠補綴装置を接着性レジンセメントで装着する場合に行われる象牙質の酸処理の影響を軽減し、象牙質と接着性レジンセメントとの接着耐久

性の向上に寄与する可能性が示唆された。