

## 論文審査の結果の要旨

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

審査委員：（主査）教授 西山 典宏

（副査）教授 會田 雅啓

教授 河野 善治

日常の歯科臨床において、歯冠補綴装置の脱離を主訴として来院する患者がいる。歯冠補綴治療は、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行われるが、この目的を達成するためには、多くの歯質の削除が必要であることから、一般にエナメル質の全てを除去することになり、象牙質が露出した状態で支台歯形成を行う。したがって、機能や審美性を長期間維持させるためには、象牙質と合着用セメントとの接着が重要となる。そこで、歯冠補綴装置を支台歯に合着する際には、象牙質と接着性を示す接着性レジンセメントが多く用いられている。しかし、象牙質に対する接着性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おり、歯冠補綴装置の脱離の原因の一つとされている。

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、象牙質に対する接着性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、本論文の著者は、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、その材料として、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することを考え、本実験を行った。

本研究の目的は、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である。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ものである。

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, 1, 10, 30分, 1, 3, 6, 12, 24時間37℃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、30分、24時間浸漬させたI型コラーゲンをを用い、40%リン酸溶液で15秒、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いようにみられた。

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2.6°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る様子はみられなかった。

以上の結果から、本論文の著者は、タンニン酸が、ウシアキレス腱由来のI型コラーゲンの熱変性温度

を上昇させたことから、強化したことを示した。また、その効果には、タンニン酸の適切な濃度と作用時間があり、今回の実験では、I型コラーゲンを効果的に強化するために、1%タンニン酸溶液に1時間以上浸漬、または、10%タンニン酸溶液に6時間以上浸漬する必要があるという結論を導いた。また、タンニン酸で強化されたI型コラーゲンは耐酸性を示すことも明らかにした。更に、象牙質コラーゲンがI型コラーゲンであることから、象牙質にタンニン酸を作用させることによって、象牙質コラーゲンが強化され、歯冠補綴物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面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あることを示唆した。

これらの結果は、歯冠補綴装置の脱離の原因とされている象牙質コラーゲンの加水分解を抑制し、歯冠補綴装置の長期間の維持に繋がることから、今後の歯科医療の発展に大いに貢献するものである。よって本論文は、博士（歯学）の学位を授与されるに値するものと認められる。

以 上

平成26年12月18日