

論文審査の結果の要旨

氏名：矢口 剛 宏

博士の専攻分野の名称：博士（歯学）

論文題名：Layering mechanism of MDP-Ca salt produced in demineralization of enamel and dentin apatite
(エナメル質および象牙質の脱灰により生成された MDP-Ca 塩のレイヤーリング機構)

審査委員：(主査) 日本大学教授 歯学博士 會田 雅啓
(副査) 日本大学教授 歯学博士 河野 善治
日本大学教授 歯学博士 西山 典宏

接着操作を簡略化し、操作エラーを減少させる目的で、ワンステップセルフエッチボンディング材（ワンステップボンディング材）が開発され、接着レジン修復に広く用いられている。

ワンステップボンディング材にエッチング効果を付与するため、ベースモノマーに 10-methacryloyloxydecyl dihydrogen phosphate (MDP) に代表される酸性モノマーが添加されている。MDP は歯質アパタイトを脱灰し、溶出したカルシウムイオンと反応して MDP のカルシウム塩 (MDP-Ca 塩) を生成すること、生成された MDP-Ca 塩はレイヤー構造を形成し、歯質接着性や接着耐久性に影響を及ぼすことが報告されている。

横田らは、MDP が酸性モノマーとして添加されているワンステップボンディング材をエナメル質、または象牙質粉末に作用させ、得られた反応残渣の核磁気共鳴 (NMR) スペクトルを波形分離することにより、脱灰過程で生成された MDP-Ca 塩の分子種を同定できることを報告している。そこで、横田らの方法に準じ、エナメル質および象牙質のワンステップボンディング材反応残渣の NMR スペクトルを測定した後、波形分離を行い、生成された MDP-Ca 塩分子種を同定し、その生成量を求め、エナメル質および象牙質脱灰過程で生成される MDP-Ca 塩のレイヤーリング機構を解明することとした。

本研究では、MDP の添加量が異なる 5 種のワンステップボンディング材（ワンステップボンディング材への MDP の添加量：25.6, 49.9, 80.5, 116.1 mg/g）を調整し、これをエナメル質または象牙質粉末と 30 秒間作用させ、得られたエナメル質または象牙質反応残渣の NMR スペクトルおよび XRD パターンを測定した。その後、NMR スペクトルを波形分離し、ワンステップボンディング材への MDP の添加量が MDP-Ca 塩の分子種および生成量に及ぼす影響を検討した。

その結果、以下の結論を得た。

1. エナメル質は脱灰過程を通して mono-calcium salt of the MDP monomer (MCS-MM) and dimer (MCS-MD) を生成するのに対し、象牙質は MCS-MM, MCS-MD 以外に di-calcium salt of the MDP monomer (DCS-MM) and dimer (DCS-MD) が生成することが明らかとなった。
2. エナメル質の場合、ワンステップボンディング材への MDP の添加量の増加とともに MCS-MM, MCS-MD の生成量は増加した。象牙質においても、エナメル質と同様に MDP の添加量の増加とともに MCS-MM, MCS-MD の生成量は増大し、DCS-MM, DCS-MD の生成量は減少することが明らかとなった。
3. エナメル質の場合、レイヤー構造を形成する MDP-Ca 塩分子種は MCS-MD、象牙質の場合は MCS-MD と DCS-MD であることが判明し、エナメル質と象牙質は異なるレイヤー構造を呈することが明らかになった。しかし、レイヤー構造を形成する DCS-MD, MCS-MD の生成量は MDP-Ca 塩総生成量の約 1/3 以下で、主生成物である MCS-MM はレイヤー構造形成に関与しないことが明らかとなった。
4. DCS-MD は MDP 分子内 10 個のメチレン鎖間での疎水結合でレイヤー構造を形成するのに対し、MCS-MD は MDP 分子内 10 個のメチレン鎖間での疎水結合とリン原子に結合している水酸基間での水素結合によりレイヤー構造を形成することが明らかになった。

以上、ワンステップボンディング材への MDP の添加量がエナメル質および象牙質アパタイトの脱灰過程を通して生成される MDP-Ca 塩の分子種および生成量に影響を及ぼした。MDP-Ca 塩の分子種が同定され、MCS-MD, DCS-MD がレイヤー構造を形成することが明らかになったことは、ワンステップボンディング材の接着機構および劣化機構解明の一助となり、ワンステップボンディング材の開発および発展に繋がり歯科医療に大きく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29年 1 月26日