

## 論文の内容の要旨

氏名：渡辺 新

博士の専攻分野の名称：博士（歯学）

論文題名：Analysis of Enamel Erosion Characteristics by Carbonated Soft Drink and Components of Heated Enamel Using micro-FTIR

(micro-FTIR を用いた炭酸飲料によるエナメル質浸食特性と加熱エナメル質構成要素の解析)

ヒト歯のエナメル質は約 97%の無機質、約 3%の有機質および水で構成される結晶性の高い硬組織として知られている。無機質を構成する生体アパタイトは、ハイドロキシアパタイト結晶の一種であるが、いくつかの点で理論的なハイドロキシアパタイトとは異なっている。生体アパタイトとは、化学量論組成である  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$  に置換元素として、 $\text{Ca}^{2+}$  の位置に  $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$  などが、 $\text{PO}_4^{3-}$  の位置に  $\text{HPO}_4^{2-}$ 、 $\text{CO}_3^{2-}$  などが、そして  $\text{OH}^-$  の位置に  $\text{CO}_3^{2-}$ 、 $\text{F}^-$  などが置換していることが知られている。そのなかでも、 $\text{CO}_3^{2-}$  の置換は  $\text{PO}_4^{3-}$  の位置に  $\text{CO}_3^{2-}$  が置換する B サイト置換 (B- $\text{CO}_3^{2-}$ ) と、 $\text{OH}^-$  の位置に  $\text{CO}_3^{2-}$  が置換する A サイト置換 (A- $\text{CO}_3^{2-}$ ) がある。この  $\text{CO}_3^{2-}$  の置換の種類と程度は、結晶の溶解度を高め、酸に溶けやすい不安定な相が生じさせることが分かっている。生体アパタイトは、合成・鈹物アパタイトと比較して、結晶学的特性に顕著な違いが認められ、その違いが齶蝕感受性に影響を与えることも注目されている。しかし、これまでに行われてきた研究では、主に動物の歯や複数の個体や歯種から採取してきたエナメル質を、合成アパタイトや脱灰後のエナメル質と比較したものがほとんどである。そこで本研究では、生体アパタイトが結晶格子内のイオン置換に富み、結晶格子不整が多く、低結晶性であることから、構成要素の違いが個体ごとにどのような影響を及ぼすのかを明らかにすることを目的とし、研究を行った。

本研究は日本大学松戸歯学部倫理委員会の承認を得て行った (承認番号 EC 17-015 号)。組成分析には顕微フーリエ変換赤外分光装置 (micro-Fourier Transform Infrared Spectroscopy, 以下 micro-FTIR) を使用した。すなわち、研究 1 では、炭酸飲料に浸漬したエナメル質に対する浸食力の違いについて、micro-FTIR を用いて簡易的な方法で解析を行い、研究 2 では、研究 1 から発覚したエナメル質の個体差に注目し、詳細な構成要素の違いを得るために資料を粉末化し、さらに熱処理を加えて解析を行った。

研究 1 では、歯を約 0.5 mm 間隔で縦断的に薄切し、その中から中央の 1 枚を実験に使用した。切片を炭酸飲料 (スプライト®) に 1 日および 7 日間浸漬した後、軽度に溶けた歯と重度に溶けた歯を各一枚選択し、その表層と深層を micro-FTIR を用いて解析した。その結果、micro-FTIR パターンでは、両試料の表層エナメル質の  $\text{PO}_4^{3-}$  における吸収バンドが大きく変化しているのに対し、深層はほとんど変化していなかった。また、micro-FTIR パターンの 2 次微分曲線は、重度に溶けた歯の 7 日間浸漬した試料を除くすべての分析点において、 $\text{PO}_4^{3-}$  のバンドピークの有意なシフトを示した。この結果は、炭酸飲料による浸食が、主に生体アパタイト結晶中の  $\text{PO}_4^{3-}$  の環境に変化を及ぼしたことを示している。また、試料によって  $\text{PO}_4^{3-}$  のバンドピークがシフトしていたことから、生体アパタイトは個体毎に違った物理化学的特性を有していることが示唆された。

研究 2 では、研究 1 と同様の方法で得た歯の切片のエナメル質のみを、めのう乳鉢を用いて粉末化した。粉末の一部を水に溶き、Low-E Glass スライドに添付した後、空気中で乾燥させ、micro-FTIR にて解析を行った。その後、残りの粉末で加熱処理を行い、再び micro-FTIR にて解析を行った。その結果、焼成前の解析パターンは多くの報告にある一般的なエナメル質のパターンを示したが、一部の吸収バンドのピーク値に違いが認められた。一方、焼成後の解析パターンは焼成前の吸収バンドにはないピークを複数認め、詳細なピーク値の違いが観察された。 $\text{PO}_4^{3-}$  における吸収バンドは焼成したことにより、ピークのずれや、細分化によるピークの変化が焼成前と比較し、明らかとなった。 $\text{PO}_4^{3-}$  の吸収バンドはハイドロキシアパタイトの結晶性の評価に使われるバンドであり、このバンドの変化はハイドロキシアパタイトの結晶性の変化を示している。また、 $\text{CO}_3^{2-}$  の吸収バンドは、焼成前のサンプルで B- $\text{CO}_3^{2-}$  によるピーク値、焼成後のサンプルで A- $\text{CO}_3^{2-}$  によるピーク値が多く認められ、 $\text{CO}_3^{2-}$  の置換が確認できた。

以上のことから、ヒト歯のエナメル質の生体アパタイト結晶は構成要素に個体差があり、その組成変動は加熱処理によって明らかとなった。また、 $\text{PO}_4^{3-}$ の環境や、 $\text{CO}_3^{2-}$ の置換の種類と程度の違いと、脱灰作用の強弱とが相関関係にある可能性が示唆された。さらに、micro-FTIRを使用することで、硬組織の組成分析を簡易的に行える事が本研究により証明された。