

論文の内容の要旨

氏名：笠原 悠太

博士の専攻分野の名称：博士（歯学）

論文題名：組成が異なる接着システムのエッチ&リンスモードにおける象牙質接着疲労強さ

光重合型コンポジットレジン（以後、光重合型レジン）修復に用いられる接着システムは、歯質に対してリン酸エッチングを行うエッチ&リンス（ER）モードを採用した接着システムと、リン酸エッチングを行うことなくセルフエッチング（SE）モードを採用した接着システムとに分類される。エナメル質接着においては、リン酸エッチングを行うことでエッチングパターンを形成し、その部にレジン成分が浸透硬化することでマイクロメカニカルリテンションが獲得される。一方、象牙質に対するリン酸エッチングは、無機質が溶解除去されてコラーゲン線維が露出し、この脱灰露出コラーゲン線維網にアドヒーズが浸透硬化することで樹脂含浸層が形成される。しかし、脱灰露出コラーゲン線維網の全てにレジンモノマーが浸透することができず、接着界面における欠陥として残留する可能性が指摘されている。

ユニバーサルアドヒーズは、臨床における操作性を簡略化するとともに、汎用性を具備したことによって使用頻度が高くなっている。ユニバーサルアドヒーズは、ERあるいはSEモードいずれのエッチングモードにおいても使用が可能とされているが、その象牙質接着機構は選択されたエッチングモードによって異なる。とくに、ユニバーサルアドヒーズをERモードで用いた象牙質接着界面には、樹脂含浸層とともに、これに隣接するように機能性モノマーとハイドロキシアパタイト（以後、HAp）が結合することで形成される反応層、すなわち reaction layer が形成される。しかし、組成が異なる接着システムのERモードにおいて、reaction layer の形成を含めた象牙質接着性については不明な点が多い。

そこで著者は、組成とともにステップ数の異なる接着システムの象牙質接着性を検討することを目的として、剪断接着強さ（以後、接着強さ）および接着疲労強さ（以後、疲労強さ）の測定に加えて象牙質処理面および接着界面の走査電子顕微鏡（SEM）観察を行った。

供試した接着システムは、3ステップシステムの OptiBond FL（OL, Kerr）および Adper Scotchbond Multi-Purpose Plus（SM, 3M Oral Care）、2ステップシステムの Adper Single Bond Plus（SB, 3M Oral Care）およびユニバーサルアドヒーズシステムの Scotchbond Universal（SU, 3M Oral Care）である。リン酸エッチング剤として、Ultra-Etch（Ultradent Products）を、光重合型レジンとして Clearfil AP-X（Kuraray Noritake Dental）を使用した。可視光線照射器（Spectrum 800, Dentsply Sirona）は、その光強度が 600 mW/cm² 以上であることを確認して使用した。

ヒト抜去大白歯歯冠部を近遠心的に切断した後に、常温重合レジンを用いて直径 25 mm の真鍮製リングに包埋した。次いで、象牙質平坦面が得られるようにモデルトリマーを用いて唇側面中央部を研削した。さらに、この面を耐水性研磨紙の #4,000 まで順次研削して、被着象牙質面とした。なお、本研究の実施にあたっては、日本大学歯学部倫理委員会の承認を得ている（倫許 EP20D007）。

被着歯面に対し、リン酸エッチングを 15 秒間行った後、各接着システムを製造者指示条件に従って塗布、照射を行った。次いで、内径 2.36 mm、高さ 2.5 mm のステンレス製モールドをアドヒーズ塗布面に固定し、光重合型レジンを填塞して 30 秒間照射を行い、接着試験用試片とした。これらの接着試験用試片は、37°C 精製水中に 24 時間保管した。

所定の保管期間が終了した接着試片について、エレクトロダイナミック万能試験機（ElectroPuls E1000, Instron）を用いて、クロスヘッドスピード毎分 1.0 mm の条件で接着強さを測定した。また、接着強さ試験後の破断試片については、象牙質側およびレジン側破断面を観察し、界面破壊、象牙質あるいはコンポジットレジンの凝集破壊および混合破壊として分類した。

接着疲労試験は、接着試片に対して万能試験機を用いて staircase method を応用して繰返し負荷を行うことで測定した。すなわち、得られた接着強さの 50~60% の値の荷重を 20 Hz の正弦波で、波形最下点が最大負荷荷重とした条件で 50,000 回試片に負荷した。その際、規定回数に達する前に試験片が破断した場合と、破断することなく経過した場合で、段階的に荷重負荷を変動させた。最終的に、試

験片の破断個数および負荷荷重からその疲労強さを求めるとともに試験後の試片については、接着強さ試験と同様に破壊形式を分類評価した。

各接着システムにおける象牙質処理面の SEM 観察には、接着試験と同様に歯面処理した象牙質被着面を、アセトンおよび蒸留水で 15 秒間交互洗浄を 3 回繰り返し、象牙質処理面の SEM 観察用試片とした。また、リン酸エッチングを 15 秒間行った後、水洗した試片についても、同様に SEM 観察を行った。

象牙質接着界面の SEM 観察用試片の製作に際しては、接着試験と同様に製作した試片を 24 時間水中保管した後、エポキシ樹脂に包埋した。樹脂が硬化した後、自動精密切断機 (IsoMet 1000 Low Speed Saw, Buehler) を用いて縦断し、この面を耐水性研磨紙の #4,000 まで順次研削した。次いで、ダイヤモンドペーストの粒径 $0.25\ \mu\text{m}$ まで鏡面研磨して、20 分間超音波洗浄を行った。通法に従って、*tert*-ブタノール濃度上昇系列に順次浸漬した後、凍結乾燥 (Model ID-3, Elionix) を行った。次いで、切断した試片の半数は、塩酸および次亜塩素酸処理 (以後、酸-塩基処理) を行い、レジタグ観察用試片とし、残った試片については加速電圧 $1.0\ \text{kV}$ 、イオン流密度 $0.4\ \text{mA/cm}^2$ の条件でアルゴンイオンエッチング (EIS-200 ER, Elionix) を 40 秒間行った。全ての試片は、イオンコーター (Quick Coater Type SC-701, Sanyu Electric) を用いて金蒸着し、フィールドエミッション SEM (ERA-8800 FE, Elionix) を用いて加速電圧 $10\ \text{kV}$ の条件で観察を行った。

その結果、得られた接着強さは、OL で最も高い値を、SU で最も低い値を示した。また、3 ステップシステムの OL および SM は、SB および SU に比較して有意に高い値を示した。一方、疲労強さは SM で最も高い値を、SB で最も低い値を示した。また、SM は SB に比較して有意に高い値を示し、有意差が認められた。また、いずれの接着システムにおいても、接着試験法の違いにかかわらず試験終了後の破壊形式は、界面破壊が大勢を占めた。

リン酸エッチング処理面および供試した接着システムによる象牙質処理面の SEM 像では、リン酸エッチング処理面は、象牙細管の漏斗状の開口とともに脱灰露出コラーゲン線維網が観察された。リン酸エッチング後に接着システムを用いて処理した象牙質面は、いずれの接着システムにおいても象牙細管の漏斗状の開口が観察されたものの、管間象牙質におけるコラーゲン線維網は認められなかった。

酸-塩基処理を行った象牙質接着界面の SEM 像では、いずれの接着システムにおいても、 $1\sim 2\ \mu\text{m}$ の樹脂含浸層とともに、象牙細管に浸透した長さ $50\ \mu\text{m}$ 以上のレジタグが観察された。また、OL ではレジタグ内に不定形フィラーが分散している像が観察された。

アルゴンイオンエッチングを施した象牙質接着界面の SEM 像から、OL においては、無機質フィラーを含有する $20\ \mu\text{m}$ の、SB および SU では $10\sim 15\ \mu\text{m}$ のアドヒーズ層が観察された。一方、SM においては、無機質フィラーは認められず、厚さが $40\sim 50\ \mu\text{m}$ の一様なアドヒーズ層が観察された。また、いずれの接着システムにおいても $1\sim 2\ \mu\text{m}$ の樹脂含浸層の形成が認められ、OL および SU においては樹脂含浸層直下に高密度の reaction layer が認められ、とくに SU で明瞭に観察された。

SM および SB では、明瞭な reaction layer は観察されなかったが、これらの接着システムには機能性モノマーが含有されていないためと考えられる。一方、SM および SB は、ポリアクリル酸コポリマー (Vitrebond copolymer) を含有することで象牙質中の HAp と化学的相互作用をするとされている。しかし、SB および SU の ER モードにおいては、接着性が OL および SM に比較して劣るものとなったのは、アドヒーズ層の厚みの違いに起因した可能性が示唆された。

以上のように、本実験の結果から、組成の異なる接着システムを ER モードで用いた場合の象牙質接着機構は、樹脂含浸層およびレジタグ形成による機械的嵌合力のみならず、樹脂含浸層下に形成された reaction layer の存在が影響を及ぼしていることが示された。また、その接着性に関しては、アドヒーズ層の厚さも影響因子となる可能性が示された。