

氏名	伊 東 孝 介
授与した学位	博 士
専攻分野の名称	歯 学
学位授与番号	博甲第 1584号
学位授与の日付	平成9年3月25日
学位授与の要件	歯学研究科歯学専攻(学位規則第4条第1項該当)
学位論文題名	歯質と修復用レジンの接着におけるアスパラギン酸誘導体の被着面処理効果
論文審査委員	教授 山下 敦 教授 井上 清 教授 下野 勉

学位論文内容の要旨

【緒言】

生体に人工物を組み込むことは、保存修復学において重要であるが、その方法の一つである歯質と修復用レジンとの接着は極めて難しい。近年、機能性モノマーを用いた被着面処理法およびボンディング材の発達によってある程度の臨床成績が期待できる水準に達したが、適応症、接着耐久性および操作性などから判断してまだ十分ではなく、その接着機構についても明らかにされていない。

そこで申請者は、特に接着が困難とされている象牙質とレジンの接着の向上を計ることを目的としてアスパラギン酸誘導体を合成し、被着面処理材の一種であるセルフエッチングプライマーを試作した。次に、このプライマーの象牙質への接着性能の検討ならびに接着機構の解明を行った。

【材料および方法】

1. アスパラギン酸誘導体の合成および電離定数(pKa)の測定

1) アスパラギン酸誘導体の合成：DL-Aspartic acidにmethacryloyl chlorideもしくはacryloyl chlorideを付加し、N-methacryloyl aspartic acid(N-MAsp)およびN-acryloyl aspartic acid(N-AAsp)を合成した。合成物の構造確認は核磁気共鳴分析(NMR)および赤外分光分析(IR)によって行った。

2) アスパラギン酸誘導体の電離定数(pKa)の測定：pKaはNMRを用いてpH0.5～8.0に調整したアスパラギン酸誘導体のカルボキシル基の化学シフト変化から求めた。

2. 試作セルフエッチングプライマーの性能

1) プライマーの調製：1.で合成したアスパラギン酸誘導体を水への溶解度を考慮してN-MAspは1～6wt%、N-AAspは5～25wt%の濃度で蒸留水に溶解してプライマーとした。

2) 接着強さの測定：研削半切歯唇面象牙質をプライマーにて60秒間処理し、エアブロー後にボンディング材および充填用レジン(Clearfil Photo Bond, AP-X, クラレ)を用いて接着試験体を作製した。これを24時間水中浸漬後にクロスヘッドスピード2mm/minにて引張接着強さを測定した。

3. 試作プライマーと歯質との反応

N-AAspとハイドロキシアパタイトとの反応生成物の構造確認：N-AAsp水溶液にハイドロキシアパタイトを添加して反応生成物を抽出し、IRおよびエネルギー分散型X線マイクロアナリシス(EDX)による元素分析を行った。なお比較としてN-acryloyl glycine(N-AGly)を合成し、同様にIRスペクトルを測定した。

4. 試作プライマーによる象牙質被着面および樹脂含浸層の解析：N-AAsp存在下における樹脂含浸層の次亜塩素酸ナトリウム水溶液処理に対する溶解抵抗性および脱灰象牙質におけるボンディング材の拡散状態をSEM像およびEDXによる炭素元素の分析から調べた。

【結果および考察】

1) 象牙質とボンディング材の接着強さはアスパラギン酸誘導体の濃度の増加とともに高くなり、N-MAspは5wt%において10.4MPa、N-AAspは20wt%において16.0MPaの最大引張接着強さが得られた。また接着界面には樹脂含浸層が生成されることを確認した。この層はアスパラギン酸誘導体水溶液が象牙質を脱灰し、ボンディング材が拡散、浸透して生成された層と考えられる。

2) N-AAspとハイドロキシアパタイトの反応生成物はカルシウムおよびリンを含有するN-AAspの塩であった。この結果とpKaの値より、カルシウムおよびリン酸基がN-AAspの主鎖と反応して塩が生成され、脱灰象牙質層に沈着し、樹脂含浸層に取り込まれる可能性が示唆された。

3) N-AAspの存在下で生成された樹脂含浸層は次亜塩素酸ナトリウム水溶液処理後も緻密な構造を保っていた。この現象よりN-AAspが樹脂含浸層の改質能を有していることが明らかになった。

【結論】

N-AAspプライマーを用いた接着システムは、まずN-AAspのカルボキシル基が水溶液中で解離して酸性モノマーとしての機能を発揮し、スミヤ層の除去、基質象牙質の脱灰を行う。同時にN-AAspおよび脱灰過程において生成したN-AAsp塩が脱灰象牙質層中に沈着するとともに象牙質表層には未反応のN-AAsp分子が膜状になり吸着する。この脱灰象牙質層にボンディング材が浸透・拡散して重合し、樹脂含浸層が形成されたために高い接着強さを示したと考えられた。

論文審査結果の要旨

本研究は、セルフエッチングプライマーを導入した接着性レジンシステムの象牙質に対する接着機構を明らかにすることを目的とするもので、セルフエッチングプライマー中に使用するモノマーとして新規にアスパラギン酸誘導体を合成し、その被着面処理効果を検討した。すなわち、1)新規アスパラギン酸誘導体の合成、2)アスパラギン酸誘導体水溶液のセルフエッチングプライマーとしての被着面処理効果、3)N-acryloyl aspartic acid(N-AAsp)と歯質との脱灰反応およびその生成物、4)N-AAspが樹脂含浸層の生成に及ぼす影響について検討を行った。

その結果、1)象牙質に対する接着強さはアスパラギン酸誘導体の濃度の増加とともに高くなり、20wt%N-AAsp処理で16MPaの接着強さを示した。2)N-AAspとハイドロキシアパタイトとの反応からN-AAspとリン酸カルシウムの塩が生成することが分かった。3)N-AAspが存在することにより、接着界面に生成した樹脂含浸層の組織構造は改質されることが分かった。

以上の結果は、これからの歯科接着科学の新展開に寄与できる価値ある内容のものである。したがって本論文は博士(歯学)の学位の授与に値すると判定した。