

**<論文要旨>貴金属合金に対する接着性加熱重合型レジンの接着強化法：内部酸化粒子とSnO<sub>2</sub>酸化皮膜の応用(北海道医療大学博士論文の内容および審査の結果要旨(平成12年度))**

著者名(日)	金子 寛
雑誌名	東日本歯学雑誌
巻	20
号	1
ページ	89-91
発行年	2001-06-30
URL	<a href="http://id.nii.ac.jp/1145/00008598/">http://id.nii.ac.jp/1145/00008598/</a>

る歯槽骨骨細胞に着目した研究は、皆無であった。この点は、本研究の独創性を示すものであり、本研究で確立した骨細胞の観察方法によって、歯の移動時の圧迫側歯槽骨骨細胞に細胞死が認められることを立証したことは、高く評価できる。

本研究では従来観察が困難であった骨細胞の観察方法として、Alexa 488標識 phalloidin と 4', 6-diamino-2-phenylindole, dihydrochloride (DAPI) による蛍光染色法を確立した。この方法は、従来のAlexa標識抗体と propidium iodide (PI) による染色法では困難であった細胞突起の染色性に非常に優れており、骨細胞の詳細な観察を容易にした。また、骨細胞の細胞死を証明するために、併せてTUNEL法、電子顕微鏡による観察を行って

おり、その所見は、細胞死が生じていることを裏付けしていると判断される。

以上のことより、本研究で確立した実験方法を用い、ラットの歯の移動時、歯槽骨骨細胞においてアポトーシスとネクローシスを介した細胞死が認められることを立証したことは、矯正学的歯の移動における生物学的メカニズムに大きく寄与するものと考えられる。また、今後の展開として、共焦点レーザー顕微鏡から得たデジタル情報を3次元解析ソフトにより画像処理することによって、骨細胞の短期的形態変化を3次的に詳細に観察することも可能になると考えられる。このことは、歯科医学・医療の発展に寄与するところ大であり、よって博士(歯学)の学位授与に値するものと考えられる。

氏名・(本籍)	金子 寛 (北海道)
学位の種類	博士(歯学)
学位記番号	乙 第46号
学位授与の日付	平成12年3月17日
学位授与の要件	学位規則第4条第2項該当(論文博士)
学位論文題目	<b>貴金属合金に対する接着性加熱重合型レジンの接着強化法</b> <b>—内部酸化粒子とSnO酸化皮膜の応用—</b>
論文審査委員	主査 教授 平井 敏 博 副査 教授 大野 弘 機 副査 教授 坂口 邦 彦

## 論文内容の要旨

### I. 緒 言

近年の著しい接着技法の進歩は歯科治療にも多くの変革をもたらしている。義歯補綴治療においては、各種金属表面処理材料や4-META系接着性レジンなどの開発によって、非貴金属合金に対しては十分な接着性が得られるようになった。このため、金属床義歯においては、金属とレジンの境界部での応力集中による破損や剝離、着色汚染による義歯臭の発生などの問題が改善された。さらに、非貴金属合金に比較して適合性および耐食性などに優れ、生体に対する為害性も少ない貴金属合金については、種々の貴金属合金の表面処理法が開発され、常

温重合型レジンに対しては、ほぼ十分な接着性が得られるようになった。しかし、義歯床用材料として広く用いられ、常温重合型レジンよりも理工学的性質に優れた加熱重合型レジンと床用貴金属合金との接着に関する報告は極めて少なく、その臨床応用も未だ十分にはなされていない。

本研究では、高温酸化現象を利用して、貴金属合金と4-META含有接着性加熱重合型レジンとの接着性を強化するための新しい接着法を確立することを目的とした。

## II. 方 法

試験用貴金属合金として、Au-Ag-Pd合金、14K合金、Type IV合金の3種類を用い、試験用加熱重合型レジンとして、4-META含有加熱重合型接着性レジン(以下、接着性加熱重合型レジンとする)を用いた。

試験用貴金属合金に対する表面処理として、①高温酸化の後に、酸洗いを施し、続いてスズ電析を施す高温酸化・酸洗い・スズ電析法、②高温酸化の後に、酸洗いを施す高温酸化・酸洗い法、③スズ電析のみを施すスズ電析法の3種類を用いた。

接着性の評価は、剪断試験と色素侵入試験にて行った。なお、サーマルサイクリング試験による接着界面の変化も、合わせて検討した。さらに、接着界面における金属側へのレジンの侵入状況をX線マイクロアナライザーにて観察した。また、高温酸化・酸洗い・スズ電析法を施した被着合金表面と、接着性加熱重合型レジンを接着後に金属部分を王水にて溶解させたレジンの接着界面側を走査電子顕微鏡にて観察した。

## III. 結 果

各種貴金属合金に表面処理を施し、接着性加熱重合型レジンを接着させた重合直後の剪断強さの平均値は、高温酸化・酸洗い・スズ電析法では $38 \pm 2$  MPa、スズ電析法では $35 \pm 1$  MPa、高温酸化・酸洗い法では $13 \pm 8$  MPaであった。また、サーマルサイクリング試験20,000回後のそれは、高温酸化・酸洗い・スズ電析法では $15 \pm 6$  MPa、スズ電析法では $8 \pm 4$  MPa、高温酸化・酸洗い法では $2 \pm 3$  MPaであった。

同様に、色素侵入試験による重合直後の剥離率の平均値は、高温酸化・酸洗い・スズ電析法では3.5%、スズ電析法では6.1%、高温酸化・酸洗い法では34.1%であった。また、サーマルサイクリング試験20,000回後のそれは、高温酸化・酸洗い・スズ電析法では42.6%、スズ電析法では69.8%、高温酸化・酸洗い法では99.5%であった。

X線マイクロアナライザーによる接着部の観察により、金属内にレジンが侵入していることが確認された。また、走査電子顕微鏡による接着界面の構造観察により、金属には外部と交通する微細なスポンジ様構造が、レジンにはこの構造に対応すると思われる突起部が観察された。

## IV. 考 察

本研究において接着性の強化に利用した高温酸化現象とは、貴金属合金を大気中で700~800°Cにて加熱することによって、合金表面内部の銅が酸化し、酸化被膜である外部酸化層と内部酸化粒子を有する内部酸化層が形成されることをいう。これらの酸化層を酸洗いすることによって除去すると、合金表面には微細なスポンジ様構造が形成され、この層にレジンが含浸することによって、機械的結合が強化されると考えられる。また、合金表面はCu濃度の低下により貴金属に富む組成に変化し、軟質な層になることによって、レジンの重合収縮に起因する界面応力を緩和することができると考えられる。さらに、スズ電析法を併用することによって、金属表面にSnO酸化皮膜を形成させ、4-META含有加熱重合型レジンとの化学的接着力を増強し、貴金属合金と接着性加熱重合型レジンとの接着構造を強化することが期待できる。すなわち、本研究においては、機械的結合の強化、レジンの重合収縮に起因する界面応力の緩和、SnO酸化皮膜による化学的接着力の向上の3点から、貴金属合金と接着性加熱重合型レジンとの接着構造を強化することを目的とした。

現在、臨床において広く応用され、十分な接着性が確認されている非貴金属合金(Ni-Cr合金)と接着性加熱重合型レジンとの剪断強さは22~28MPaと報告されているが、高温酸化・酸洗い・スズ電析法の応用により、貴金属合金と接着性加熱重合型レジンとの間においても、それを凌ぐ剪断強さが得られた。さらに、剪断試験および色素侵入試験結果から、高温酸化・酸洗い・スズ電析法とスズ電析法を比較すると、重合直後においては、両者はほぼ同程度の接着性を示したが、サーマルサイクリング試験後には、高温酸化・酸洗い・スズ電析法はスズ電析法に比して有意に高い接着性を示した。このことは、高温酸化・酸洗いにより形成されたスポンジ様構造にレジンが含浸して貴金属合金とレジンとの間にタグが形成され、接着耐久性が増加したためと考えられる。

以上の結果から、高温酸化・酸洗い・スズ電析法は貴金属合金と加熱重合型レジンとの接着性の改善に極めて有効であり、その接着性が口腔内環境においても保持できる耐久性を有する可能性が示唆された。

## 学 位 論 文 審 査 の 要 旨

近年以下の著しい接着技法の進歩は歯科治療にも多くの変革をもたらしている。義歯補綴治療においては、各

種金属表面処理材料や4-META系接着性レジンなどの開発によって、非貴金属合金に対しては十分な接着性が

得られるようになった。しかし、義歯床用材料として広く用いられ、常温重合型レジンよりも理工学的性質に優れた加熱重合型レジンと床用貴金属合金との接着に関しての報告は極めて少なく、また、その床応用も未だ十分にはなされていない。そこで、本研究では、貴金属合金の高温酸化現象とSnO酸化皮膜とを利用して、貴金属合金と4-META含有接着性加熱重合型レジンとの接着性の強化法を検討した。

本研究において、申請者は、被着合金として歯科用貴金属合金である金銀パラジウム合金、14カラット金合金、タイプIV金合金を用い、4-META含有接着性加熱重合型レジンとの接着性および接着機構を検討した。被着合金に対する表面処理として、高温酸化の後に、酸洗いを施し、続いてスズ電析を施す「高温酸化・酸洗い・スズ電析法」、高温酸化の後に、酸洗いを施す「高温酸化・酸洗い法」、スズ電析のみを施す「スズ電析法」を施した。接着性を評価するために、せん断試験と色素侵入試験を行った。さらに、接着機構を解析するために、走査型電子顕微鏡とX線マイクロアナライザーによる観察を行った。

本研究により、以下の結果が得られた。

1. 高温酸化現象を利用することによって、貴金属合金と接着性加熱重合型レジンとの機械的結合を強化できた。
2. 高温酸化によって生ずる貴金属に富む軟質な合金表面にレジンを侵入することによってタグが形成され、重合収縮に起因する界面応力が緩和されることが示唆された。
3. 高温酸化に加えて、SnO酸化皮膜による化学的接着表面処理を施すことによって、非貴金属合金（Ni-Cr合金）と接着性加熱重合型レジンとのせん断強さを凌ぐ値が示された。

以上の結果から、「高温酸化・酸洗い・スズ電析法」は貴金属合金と接着性加熱重合型レジンとの接着性の向上に極めて有効であり、口腔内環境においても保持できる耐久性を有する可能性が示唆された。なお、本表面処理法を用いることによって、従来からの金属床義歯の設計を大きく変更し得ることが可能であり、臨床応用が期待される。

本研究によって得られた結果は、歯科補綴学ならびに関連諸学科の進歩発展に寄与するところが大きく、審査の結果、学位授与に値すると判定した。

氏名・(本籍)	藤井茂仁(大阪府)
学位の種類	博士(歯学)
学位記番号	乙第47号
学位授与の日付	平成12年3月17日
学位授与の要件	学位規則第4条第2項該当(論文博士)
学位論文題目	歯周組織における弾性系線維形成とその加齢変化
論文審査委員	主査 教授 矢嶋俊彦 副査 教授 武田正子 副査 教授 小鷲悠典

## 論文内容の要旨

### I. 緒言

歯周組織は歯の支持組織で、セメント質、歯根膜、歯槽骨および歯肉の一部によって構成されている。特に、歯根膜(歯周靭帯)と歯肉固有層は高度に特殊化した線維性結合組織であり、歯の固定とともに強大な咀嚼力(咬

合圧)への緩衝作用も果たしている。これらの組織の主線維成分はコラーゲン線維であるが、それらとともに弾性系線維(elastic system fibers)が存在することが明らかにされている。この弾性系線維はエラスチン(elastin)と微細線維(elastin-associated microfibril)の2種類の構成要素からなり、それらの比率によりさらに分けられ