



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	A new technique for analyzing trace element uptake by human enamel [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	船戸, 良基
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(歯学)
Dissertation Number	甲第11723号
Issue Date	2015-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/59174
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Yoshiki_Funato_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学位論文内容の要旨

博士課程の専攻分野の名称 博士（歯学） 氏名 船戸良基

学位論文題名

A new technique for analyzing trace element uptake by human enamel
(マイクロ PIGE/PIXE を用いたヒトエナメル質における微量元素取り込みの
測定)

【緒言】

ストロンチウム (Sr) はヒドロキシアパタイト結晶中のカルシウム (Ca) と置換すると考えられてきた。また多くの疫学的研究から、Sr の抗う蝕作用が示唆されてきた。フッ素 (F) および Sr を含有した充填材料 (Fluoride and Strontium Containing Materials: FSCM) に含まれる F および Sr は、一度溶出してからエナメル質表層へ取り込まれるか、隣接する窩壁へ直接的に取り込まれることでエナメル質の脱灰および再石灰化に影響を及ぼすと考えられているが、その移行および効果を検定する為には F および Sr のエナメル質中での分布を測定する必要がある。しかしながら、従来歯質中の微量元素を検出する為に行われてきた方法では歯質中の濃度は測定できても分布を検出することは困難であった。

Particle Induced Gamma-ray/X-ray Emission (PIGE/PIXE) は加速させた陽イオンをターゲットに衝突させた際に得られる特性 X 線および γ 線のエネルギーを計測する事によりターゲット表面の元素を定性・定量分析する事が可能である。本研究ではマイクロ PIGE/PIXE を用いたヒトエナメル質中の F, Sr 分布を測定する方法を確立するとともに、FSCM に含まれる F および Sr のう蝕抑制効果を判定することを目的とした。

【材料と方法】

1. 試料の作製と自動 pH サイクル

う蝕および充填のないヒト第 3 大臼歯 20 本を歯冠のみ実験に使用した。全ての歯冠部は表層を 2N 過塩素酸にて再表層部を取り除いた。歯冠のうち 10 本に FUJI IX GP Extra (GC), もう 10 本には PRG バリアコート (松風) を充填し、前者を EX 群, 後者を PRG 群とした。充填は頬側または舌側どちらかの面に行い、充填しなかった側の歯面をコントロール側と設定した。歯冠部は、頬側および舌側面に対して垂直に切断、研磨し、約 150 μm の厚さに調整した後、実験側とコントロール側に分離し試料を作製した。全ての切断面と咬合面はス

ティッキーワックスにて被覆した。

その後、口腔内で生じる連続的な脱灰と再石灰化を再現する目的で自動 pH サイクルを用いて、5 週間 pH サイクリングを行った。

2. 脱灰進行度と脱灰抑制の測定

pH サイクルによる脱灰進行を測定する為、両群の Transverse Micro Radiography (TMR) を撮影し、pH サイクル前後の Mineral content profile を算出した。Mineral loss (Δ IML)は pH サイクル前後の Mineral content profile から算出した。これらは過去の本教室の研究と同様の手法を用いて行った。脱灰抑制の評価は脱灰抑制率 (Rate of Dissolution Inhibition: RDI) を次のように定義した。

$$(\Delta\text{IMLc} - \Delta\text{IMLs}) / \Delta\text{IMLc}$$

ΔIMLc はコントロール側の、 ΔIMLs は充填側の Mineral loss をそれぞれ意味する。

3. マイクロ PIGE/PIXE 測定

試料中の Ca, Sr, F の分布をマイクロ PIGE/PIXE により検出した。Ca および F の定量は過去の本教室での研究と同様の手法で行った。本実験では新たに Sr の定量を行う為、標準試料として炭酸ストロンチウムとヒドロキシアパタイトの混合物を加圧、成型して作製した。標準試料中の Sr の重量%濃度を蛍光 X 線分析 (XRF) により算出した後、Sr 標準試料の PIXE 測定を行い、XRF で算出された Sr 重量%濃度と、PIXE での Sr カウント数を比較することにより Sr 検量線を作成した。

F と Sr の分布を検出した後、両群でエナメル質表層 (EXS, PRGS) と窩壁エナメル質 (EXW, PRGW) での累積 F, Sr 濃度を算出した。また充填材料中の F, Sr 含有量をマイクロ PIGE/PIXE により測定した。

4. 統計分析

Δ IML および RDI の比較は、それぞれ paired *t*-test および *t*-test を用いて行った ($p < 0.05$)。F および Sr の分布、累積濃度は Games-Howell 分析により比較検討した ($p < 0.05$)。充填材料中の含有 F, Sr 量は *t*-test を用いて比較検討を行った。

【結果】

1. 脱灰進行度と脱灰抑制度

EX 群、PRG 群ともに実験側はコントロール側より有意に低い Δ IML を示し

た．また RDI は EX 群が PRG 群よりも有意に高かった．

2. マイクロ PIGE/PIXE 測定

本研究で作製した Sr 標準試料は重量%濃度と PIXE での Sr シグナルカウント数の間に良好な相関を示した．

F および Sr の分布はエナメル質表層および窩壁エナメル質で界面に近いほど高い傾向にあった．両群において F は表層の方が窩壁よりも高い濃度を示す傾向があったのに対し，Sr は逆の傾向を示した．累積 F 濃度は EXS と EXW において PRGW より有意に高く，累積 Sr 濃度は EXS と EXW において PRGS より有意に高かった．

E 群は F，Sr 両分布で P 群よりも高い濃度を示す傾向にあった．充填材料中の F，Sr 含有量は EX が PRG より有意に高かった．

【考察】

両群において，充填された実験側はコントロール側と比較して有意に Mineral loss が低かったことから，FSCM 中の F および Sr がう蝕を抑制した可能性があり，脱灰抑制率は EX 群が有意に高かった．この結果は同様な pH サイクルを用いた実験で，材料から歯質へのフッ素取り込みが多いほど Mineral loss が減少したことから矛盾しない．

X 線蛍光分析により得られた Sr 重量%濃度とマイクロ PIXE による Sr カウント数は良好な相関を示したことから標準試料として使用可能であると判断した．

Sr 分布は約 40 μm 以降から一定に近い濃度を示し，材料間，表層・窩壁間の差がなくなる傾向にあった．このことから，歯質へと取り込まれた Sr は約 40 μm 程度浸透するものと考えられる．F 濃度の推移においては 160 μm 付近まで濃度の差が見られることから，F は Sr よりも歯質へ取り込まれてからより深く浸透したものである．

さらに，材料間で比較すると Sr，F とも E 群において P 群よりも濃度が高い傾向がみとめられた．この結果は充填材料中の各元素含有量の差によると考えられる．

また両元素間で比較すると，Sr は窩壁からの取り込みが表層からの取り込みより高い傾向にあるのに対し，F では窩壁よりも表層の取り込みが高い傾向を示した．この傾向はどちらの材料にも共通していたことから，元素そのものが持つ特徴である可能性があり，F は表層を通じて，Sr は窩壁を通じて，それぞれ歯質へと取り込まれやすい傾向があると考えられた．

本研究ではマイクロ PIGE/PIXE により Sr の歯質中の分布をマッピングでき

ただだけでなく、定量分析も可能であった。また 50ppm 未満の Sr も検出することが可能であり、これまで歯質中の元素マッピングに用いられてきた EPMA 等よりも検出限界が低かった。さらに、マイクロ PIGE/PIXE は多数の元素を同時に検出できることから、本研究で F と Sr の歯質中での局在を比較することも可能だった。

これらの特長から、今後マイクロ PIGE/PIXE がう蝕の抑制あるいは発生機序を研究する際に有効な測定方法になると考えられる。