

论著·临床研究 doi:10.3969/j.issn.1671-8348.2019.01.012

EDTA 对瓷贴面与牙本质粘接的剪切强度耐久性的影响^{*}

谢翠柳¹, 鄢国伟², 罗 莉²

(1. 西南医科大学附属口腔医院修复科, 四川泸州 646000; 2. 西南医科大学口腔颌面修复重建和再生实验室, 四川泸州 646000)

[摘要] **目的** 探讨乙二胺四乙酸(EDTA)预处理对瓷贴面与牙本质粘接的剪切强度耐久性的影响。**方法** 选取完整拔除的无龋坏人类第三恒磨牙 90 颗,按牙本质表面预处理方式及是否模拟老化分 18 组($n=5$)。粘接面分别采用 37%磷酸或(和)17% EDTA 预处理后,用 Variolink Veneer 粘接 IPS e. max Press 瓷贴面。冷热循环 6 000 次用于模拟老化实验。电子万能力学试验机测试即刻及老化实验后的试件剪切强度。扫描电镜下观察试件的破坏模式。**结果** 37%磷酸(15 s)+17% EDTA(30 s)预处理获得最高的即刻剪切强度 $[(15.41\pm2.83)\text{MPa}]$,且具有粘接耐久性($P=0.148$)。试件的破坏模式大部分呈现界面破坏。**结论** EDTA 在瓷贴面与牙本质粘接的剪切强度耐久性方面具有重要作用。

[关键词] 乙二胺四乙酸;瓷贴面;牙本质;剪切强度
[中图法分类号] R783.3 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1671-8348(2019)01-0048-04

Effects of EDTA on durability of shear bond strength of porcelain veneer to dentin^{*}

XIE Cuiliu¹, YAN Guowei², LUO Li²

(1. Department of Prosthodontics, the Affiliated Stomatology Hospital of Southwest Medical University, Luzhou, Sichuan 646000, China; 2. Laboratory of Orofacial Reconstruction and Regeneration, Southwest Medical University, Luzhou, Sichuan 646000, China)

[Abstract] **Objective** To study the effects of ethylene diamine tetraacetic acid (EDTA) pretreatment on durability of shear bond strength of porcelain veneer to dentin. **Methods** A total of 90 freshly extracted intact human third molars without caries were collected, and randomly divided into 18 groups ($n=5$) according to different pretreatment and either without or with aging test. All the adhesive interfaces were pretreated with 37% phosphoric acid or (and) 17% EDTA. Then Variolink Veneer cement was used to bond IPS e. max press porcelain veneer on the prepared adhesive interfaces. The mocycling test for 6 000 times was chosen to simulate aging. Immediate and aging shear bond strength were tested by electronic universal mechanical machine. The damage of specimens was observed under scanning electron microscope. **Results** Dentin pretreatment with 37% phosphoric acid (15 s)+17% EDTA (30 s) exhibited the highest shear bond strength of porcelain veneer to dentin $[(15.41\pm2.83)\text{MPa}]$ and bond durability ($P=0.148$). Most specimens showed interface damage. **Conclusion** EDTA plays an important role on the durability of shear bond strength of porcelain veneer to dentin.

[Key words] ethylene diamine tetraacetic acid; porcelain veneer; dentin; shear bond strength

随着人们对美学和微创修复要求的提高,瓷贴面的应用日益受到重视^[1]。瓷贴面-牙釉质粘接面是公认的良好粘接界面,研究显示 50%以上可以表现出较好及耐久的粘接力^[2-3]。而瓷贴面-牙本质粘接面的粘接可靠性较低^[4-5]。但在临床工作中,常见需要调整外形的牙齿、牙釉质剥脱性缺损或牙釉质过于薄弱导致的牙体预备后牙本质暴露。牙本质粘接界面的退变是影响粘接耐久性的一个决定性因素^[6-7]。牙本质中含有的基质金属蛋白酶(matrix metalloprotein-

ase, MMPs)能降解暴露的胶原纤维,导致混合层完整性被破坏^[8-9]。乙二胺四乙酸(ethylene diamine tetraacetic acid, EDTA)对牙本质脱矿后,使胶原纤维之间的氢键更完整,树脂单体更容易渗入并包裹胶原纤维网^[6,8]。此外,EDTA 的金属离子螯合性可以抑制 MMPs 介导的胶原纤维降解^[10]。本研究拟通过检测 EDTA 和 EDTA 联合临床常用的磷酸预处理牙本质后,瓷贴面与牙本质粘接面老化实验前后的剪切强度,探索 EDTA 对瓷贴面与牙本质粘接耐久性的影

^{*} 基金项目:西南医科大学校基金资助项目(201647)。 作者简介:谢翠柳(1987—),住院医师,硕士,主要从事牙本质粘接研究。

响,以期对临床瓷贴面的应用提供一定的指导作用,现报道如下。

1 资料与方法

1.1 一般资料 选取 2017 年 1—2 月完整拔除的无龋坏人类第三磨牙 90 颗,刮除牙根表面的牙周组织,保存于 4 ℃ 的 0.5% 氯胺-T 中,离体牙按牙本质表面处理方式的不同及是否模拟老化分为 18 组($n=5$),A、B1、B2、B3、B4、C1、C2、C3、C4 为即刻测试组,Aa、B1a、B2a、B3a、B4a、C1a、C2a、C3a、C4a 为老化实验组。即刻测试组均行牙本质表面处理,表面处理按方式不同分为 9 种,老化实验组则在表面处理的基础上额外行老化实验,见表 1。

表 1 实验分组与牙本质表面处理($n=5$)

组别	表面处理方式
A、Aa	37%磷酸,15 s
B1、B1a	17%EDTA,10 s
B2、B2a	17%EDTA,30 s
B3、B3a	17%EDTA,60 s
B4、B4a	17%EDTA,120 s
C1、C1a	37%磷酸,15 s+17%EDTA,10 s
C2、C2a	37%磷酸,15 s+17%EDTA,30 s
C3、C3a	37%磷酸,15 s+17%EDTA,60 s
C4、C4a	37%磷酸,15 s+17%EDTA,120 s

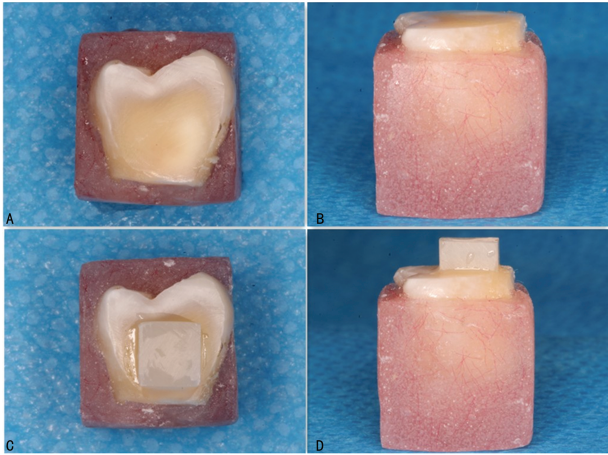
1.2 主要材料与仪器 Variolink Veneer(Ivoclar Vivadent,德国);IPS e. max Press(Ivoclar Vivadent,德国);铸造炉(EP500,Ivoclar Vivadent,德国);碳化硅砂纸(Leco Instrument GmbH,美国);17% EDTA 凝胶(Pulpdent,美国);37%磷酸(Gluma,德国);光固化灯(Densply,美国);冷热循环试验机(HJ,华骏,西安);扫描电子显微镜(Carl Zeiss,德国);电子万能力学试验机(WDW-10E,试金集团有限公司,济南)。

1.3 方法

1.3.1 离体牙的制备 去除牙根和颊侧釉质暴露浅层牙本质,形成大于 4 mm×4 mm 的粘接平面,在显微镜下观察确定完全去除牙釉质。用 400、600、1 200 目的砂纸湿性打磨抛光牙体表面,去离子水中超声清洗 1 min 后用自凝塑料包埋于同一规格(10 mm×10 mm×12 mm)模具中,粘接面与水平面平行,见图 1。

1.3.2 瓷贴面的制备 制备 9 个 4 mm×4 mm×12 mm 的瓷贴面蜡型。包埋蜡型的铸圈在 800 ℃ 保持 60 min,然后 600 ℃ 保持 30 min,最后 850 ℃ 保持 60 min 去蜡后用颜色为 A1 的 IPS e. max Press 瓷块熔融后在铸造炉铸造(930 ℃,60 min,程序 16)。制备 9 个 4 mm×4 mm×12 mm 的 IPS e. max Press 瓷块。采用低速锯切割瓷块,制备 45 个 4 mm×4 mm×2 mm 的 IPS e. max Press 瓷贴面,最后依次用 400、

600、1 200 目的碳化硅砂纸打磨抛光。制备好的瓷贴面置于生理盐水中常温保存。瓷贴面双面可用。



A、B:牙本质粘接面的正面观和侧面观;C、D:瓷贴面与牙本质粘接后的正面观和侧面观

图 1 牙本质粘接面制备和瓷贴面粘接

1.3.3 牙体与瓷贴面的粘接 按照 Variolink Veneer 粘接套装说明操作。瓷贴面粘接面用 5% 氢氟酸蚀 60 s,冲洗吹干,涂布 Monobond-S 60 s 后吹干,再涂布 Heliobond 10 s 后等待粘接。离体牙进行表面处理,处理后的牙体粘接面涂布 Syntac Primer 15 s 后吹干,再涂布 Syntac Adhesive 10 s 后吹干,最后涂布 Heliobond 10 s 后等待粘接。在瓷贴面粘接面涂布 Variolink Veneer 黏合剂,然后在牙体粘接面就位,光固化 2 s 去除边缘多余树脂水门汀,然后从各面光照 20 s。每组中 5 个试件储存于 37 ℃ 蒸馏水中 24 h 后测试即刻剪切强度。

1.3.4 老化实验 将 Aa、B1a、B2a、B3a、B4a、C1a、C2a、C3a、C4a 组的 45 个试件置于冷热循环试验机中进行模拟老化处理。5~55 ℃ 循环 6 000 次,各停留 30 s,循环间隔 40 s。在冷热循环期间,将试件置于 37 ℃ 蒸馏水中储存,每天换液 1 次。老化时间共 6 个月,结束后测试老化后剪切强度。

1.3.5 剪切强度的测试和断裂模式观察统计 将试件固定在电子万能力学试验机剪切夹具中,剪切头以 0.5 mm/min 的速度垂直加载,记录试件断裂时的最大载荷力。计算试件剪切强度(剪切强度=最大载荷力/粘接面积)。收集各组断裂后的试件,在扫描电镜下观察试件的破坏模式并进行归类和计数。粘接破坏模式分为 4 类:(1)牙本质内聚破坏,断裂发生于牙本质层内;(2)界面破坏,断裂发生于粘接剂与牙本质,或粘接剂与树脂水门汀的界面;(3)树脂内聚破坏,断裂发生于树脂水门汀层内;(4)混合破坏,断裂面包含了上述 3 种破坏等多种类型。

1.4 统计学处理 采用 SPSS18.0 软件进行数据分析,计量资料以 $\bar{x} \pm s$ 表示,比较采用配对 t 检验或单因素方差分析,以 $P<0.05$ 为差异有统计学意义。

2 结 果

2.1 剪切强度测试 A 组具有较高的即刻剪切强度,Aa 组剪切强度下降($P<0.05$)。17% EDTA 处理均获得较低的即刻剪切强度,随着处理时间延长,剪切强度有所增加,但差异无统计学意义($P>0.05$),而老化实验后剪切强度差异也无统计学意义($P>0.05$)。37%磷酸和 17% EDTA 共同处理牙本质后,C2 组获得瓷贴面与牙本质粘接最高的即刻剪切强度,其次是 C1 组,两组比较差异无统计学意义($P>0.05$)。C1 与 C1a 组、C2 与 C2a 组剪切强度比较,差异无统计学意义($P>0.05$),而随着 17% EDTA 处理时间延长至 60 s 和 120 s 后剪切强度下降,见表 2。

表 2 不同表面处理方式下各组的剪切强度测试结果($\bar{x}\pm s$,MPa)					
即刻测试		老化实验		<i>t</i>	<i>P</i>
组别	剪切强度	组别	剪切强度		
A	14.43±2.05	Aa	10.50±2.22	6.38	0.003
B1	5.74±2.13	B1a	2.64±1.90	5.49	0.005
B2	5.87±2.24	B2a	2.68±1.92	7.12	0.002
B3	6.87±2.31	B3a	3.56±2.10	4.35	0.012
B4	7.36±2.59	B4a	3.88±1.91	6.41	0.003
C1	14.67±2.15	C1a	13.51±2.37	2.37	0.077
C2	15.41±2.83	C2a	13.97±2.82	1.79	0.148
C3	12.09±2.90	C3a	9.21±2.52	3.16	0.034
C4	8.45±2.86	C4a	4.94±2.40	3.93	0.017

2.2 断裂模式观察和统计 瓷贴面与牙本质粘接面绝大部分呈现界面破坏,其次是混合破坏,见图 2。

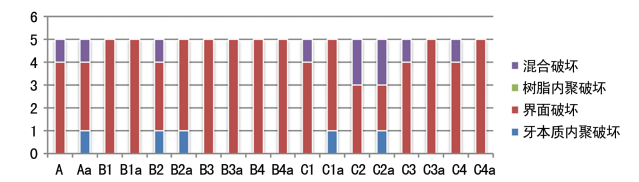


图 2 不同实验组的断裂模式

3 讨 论

瓷贴面与牙本质的粘接持久性是临床难题。牙本质粘接界面的退变是影响瓷贴面粘接持久性的直接原因^[6-7,11]。混合层底部因粘接过程或树脂老化而裸露的胶原纤维被牙本质内源性蛋白酶降解,导致断裂容易在这些薄弱区域发生,粘接强度也随之下降^[6-8]。MMPs 作为牙本质中的主要蛋白水解酶,在牙本质粘接退变的过程中发挥了重要作用^[8-10]。在粘接过程中使用 MMPs 抑制剂被认为是一种可提高牙本质粘接持久性的途径。EDTA 可以抑制 MMPs 介导的胶原纤维降解^[10,12]。

有研究证实 EDTA 单独处理牙本质对自酸蚀粘接剂的即刻粘接强度及持久性无显著影响^[13-15]。本

研究发现 17% EDTA 处理牙本质 10、30、60 和 120 s 均获得较低的即刻剪切强度,随着处理时间延长,剪切强度有所增加,但差异无统计学意义($P>0.05$)。而老化实验后剪切强度变化较实验前比较,差异有统计学意义($P<0.05$),不具有粘接持久性。EDTA 脱矿作用缓慢,17% EDTA 对牙本质脱矿的速度是 60 s 形成 0.4 μm 深度的脱矿层^[16],粘接后形成的树脂突短,则微机械固位作用弱。EDTA 单独短时应用无法获得足够的即刻剪切强度,那么获得粘接持久性则难以达到或意义不大,因此可通过在牙面适当酸蚀后使用。本研究发现 37%磷酸(15 s)+17% EDTA(30 s)处理牙本质获得最大的即刻剪切强度,且随 EDTA 处理时间延长至 60 s 和 120 s,即刻剪切强度降低。这可能与牙本质过度脱矿,胶原网塌陷,混合层质量不佳有关。MARTINI 等^[17]发现 17% EDTA 联合超声波处理牙本质 30 s 可以提高通用粘接剂的粘接强度。由此可见,任何牙本质表面处理方式都不能脱离微机械扣锁的物理固位在粘接中的核心地位。

冷热循环会加速树脂吸水后的水解和混合层底部裸露胶原的降解,并可激活 MMPs 的前体^[18]。本研究通过冷热循环 6 个月发现,试件采用临床常用的牙本质处理方式——37%磷酸(15 s)处理并经过老化实验后剪切强度变化差异有统计学意义($P<0.05$),不具有粘接持久性,而 37%磷酸(15 s)+17% EDTA(10、30 s)处理并经过老化实验后剪切强度的变化差异无统计学意义($P>0.05$),具有粘接持久性。EDTA 作为预处理剂可以改善混合层的质量,并且可余留较多的磷灰石保护胶原纤维,提高混合层的抗降解能力^[6]。此外,EDTA 可有效抑制牙本质中 MMP-2、MMP-9 的活性^[10],减少混合层的降解。在牙本质一定处理基础上应用 EDTA 可以提高瓷贴面的牙本质粘接持久性。SINGH 等^[15]发现乙基二甲胺丙基碳化二亚胺(EDC)和 EDTA 协同处理可以提高自酸蚀粘接剂的牙本质粘接持久性。而李婷婷等^[19]通过 6~12 个月的临床研究发现牙颈部楔状缺损表面的硬化牙本质经 EDTA 预处理后,能改善粘接强度,具有粘接持久性。总之,EDTA 对于瓷贴面的牙本质粘接持久性有积极意义。

断裂模式观察显示即刻和老化后的试件断裂大部分发生的是界面破坏。牙本质粘接的薄弱环节即是牙本质与树脂之间的界面。可以考虑从以下方面进一步研究来解决瓷贴面与牙本质粘接持久性的难题:(1)增加粘接剂充分渗入脱矿胶原纤维的方法;(2)具有再矿化潜力的牙本质粘接剂和复合树脂的研究;(3)牙本质内源性蛋白水解酶的抑制。

综上所述,本研究发现 37%磷酸(15 s)+17% EDTA(30 s)预处理可以获得最高的瓷贴面与牙本质

粘接即刻剪切强度,并具有粘接耐久性,EDTA 在瓷贴面与牙本质粘接耐久性方面具有重要作用,本研究将为后续的粘接耐久性研究及未来针对 EDTA 在牙本质粘接方面的临床应用提供依据。

参考文献

[1] GRESNIGT M, MAGNE M, MAGNE P. Porcelain veneer post-bonding crack repair by resin infiltration[J]. *Int J Esthet dent*, 2017, 12(2):156-170.

[2] OZTURK E, BOLAY S, HICKEL R, et al. Shear bond strength of porcelain laminate veneers to enamel, dentine and enamel-dentine complex bonded with different adhesive luting systems[J]. *J Dent*, 2013, 41(2):97-105.

[3] OZTÜRK E, BOLAY S. Survival of porcelain laminate veneers with different degrees of dentin exposure: 2-year clinical results[J]. *J Adhes Dent*, 2014, 16(5):481-489.

[4] 孟玉坤,宗弋. 瓷贴面修复的研究现状及临床应用[J]. *国际口腔医学杂志*, 2017, 44(1):1-10.

[5] AL-ANSARI A, AL-HARBI F, BABA N Z. In vitro evaluation of the bond strength of composite resin foundation materials to dentin[J]. *J Prosthet Dent*, 2015, 114(4):529-535.

[6] FRASSETTO A, BRESCHI L, TURCO G, et al. Mechanisms of degradation of the hybrid layer in adhesive dentistry and therapeutic agents to improve bond durability--a literature review[J]. *Dent Mater*, 2016, 32(2):e41-53.

[7] TJÄDERHANE L. Dentin bonding; can we make it last? [J]. *Oper Dent*, 2015, 40(1):4-18.

[8] 贾玲玲,万乾炳. 基质金属蛋白酶抑制剂的研究进展[J]. *华西口腔医学杂志*, 2017, 35(2):208-214.

[9] LONGHI M, CERRONI L, CONDÒ S G, et al. The effects of host derived metalloproteinases on dentin bond and the role of MMPs inhibitors on dentin matrix degradation[J]. *Oral Implantol (Rome)*, 2014, 7(3):71-79.

[10] THOMPSON J M, AGEE K, SIDOW S J, et al. Inhibition

of endogenous dentin matrix metalloproteinases by ethylenediaminetetraacetic acid[J]. *J Endod*, 2012, 38(1):62-65.

[11] PASHLEY D H, TAY F R, YIU C, et al. Collagen degradation by host-derived enzymes during aging[J]. *J Dent Res*, 2004, 83(3):216-221.

[12] TOLEDANO M, YAMAUTI M, OSORIO E, et al. Zinc-inhibited MMP-mediated collagen degradation after different dentine demineralization procedures [J]. *Caries Res*, 2012, 46(3):201-207.

[13] 田福聪,王晓燕,高学军. EDTA 表面处理对牙本质粘接强度的影响[J]. *实用口腔医学杂志*, 2013, 29(4):550-552.

[14] 焦纪兰,曾利伟,周灏,等. 不同牙本质清洁剂对牙本质与自粘接树脂水门汀粘接强度的影响[J]. *华西口腔医学杂志*, 2015, 33(3):306-310.

[15] SINGH S, NAGPAL R, TYAGI S P, et al. Effect of EDTA conditioning and carbodiimide pretreatment on the bonding performance of all-in-one self-etch adhesives[J]. *Int J Dent*, 2015:141890.

[16] KUSUNOKI M, ITOH K, OIKAWA M, et al. Measurement of shear bond strength to intact dentin[J]. *Dent Mater J*, 2010, 29(2):199-205.

[17] MARTINI E C, PARREIRAS S O, GUTIERREZ M F, et al. Effect of different protocols in preconditioning with EDTA in sclerotic dentin and enamel before universal adhesives applied in self-etch mode[J]. *Oper Dent*, 2017, 42(3):284-296.

[18] 周恬,朱梓园,张保卫. 牙本质内基质金属蛋白酶的测定及其对牙本质胶原降解作用的研究[J]. *口腔医学*, 2012, 32(1):25-28.

[19] 李婷婷,孙敏敏,康钧棠,等. EDTA 预处理法对树脂黏结强度的影响[J]. *上海口腔医学*, 2015, 24(5):594-597.

(收稿日期:2018-06-06 修回日期:2018-08-19)

(上接第 47 页)

A K, et al. Methionine synthase reductase deficiency results in adverse reproductive outcomes and congenital heart defects in mice[J]. *Mol Genet Metab*, 2008, 94(3):336-342.

[16] SU J, LI Z. Analysis of MTR and MTRR gene polymorphisms in Chinese patients with ventricular septal defect [J]. *Appl Immunohistochem Mol Morphol*, 2018, 26(10):769-774.

[17] GUO Q N, WANG H D, TIE L Z, et al. Parental genetic variants, MTHFR 677C>T and MTRR 66A>G, associ-

ated differently with fetal congenital heart defect[J]. *Biomed Res Int*, 2017, 2017:3043476.

[18] GARCIA-MINGUILLAN C J, FERNANDEZ-BALLART J D, CERUELO S, et al. Riboflavin status modifies the effects of methylenetetrahydrofolate reductase (MTHFR) and methionine synthase reductase (MTRR) polymorphisms on homocysteine[J]. *Genes Nutr*, 2014, 9(6):435.

(收稿日期:2018-05-22 修回日期:2018-08-05)