

象牙質に関する色彩学的研究 — 含有金属元素による影響について —

遠藤 忠治

岩手医科大学歯学部歯科補綴学第二講座

(主任：石橋 寛二 教授)

(受付：2002年10月22日)

(受理：2002年11月20日)

Abstract : The color of natural teeth is semi-translucent enamel with a high transparency and chromatic dentin. The purpose of this study is to analyze the optical properties of human dentin and the relationship between the color spectrum and metal elements in the dentin.

120 specimens of human dentin sample with a thickness of 0.5 mm (± 0.05 mm) were made. Reflectance values were measured by a spectrophotometer CAS-ID 1 with a white backing and a black backing. Scattering coefficients, absorption coefficients, R-infinity, CIELAB color coordinates L^* , a^* , b^* and Color depth SQ were calculated based on each reflectance value.

Metal elements in dentin were analyzed by electron probe X-ray microanalyzer (EPMA) and Fe, Zn, Mg, Cu and Ni in 10 areas of each dentin specimen were quantified and averaged.

Mean L^* value of dentin was 11.6 ± 4.7 , 29.6 ± 27.3 for SQ, 70.1 ± 11.3 for a^* , 11.6 ± 4.3 for C^* and -0.1 ± 2.1 for b^* .

Ni indicated a positive correlation with a^* and b^* value, Zn showed a positive correlation with L^* value. On the other hand, Mg indicated a negative correlation with a^* value.

It was concluded that those three metal elements could create the dentin color defined in this study.

Key words : Human dentin, Color, Metal element

緒 言

クラウンの色調構築に際しては、天然歯の色調を正しく把握することが重要である。天然歯の色調は無彩色で透明性の高いエナメル質と、有彩色で透明性の低い象牙質との層構造によって作り出される。天然歯の唇側面に入光した光の大部分はエナメル質を透過して象牙質に達するので、天然歯の色調は象牙質の吸光特性の影

響を強く受ける^{1,2)}。したがって、天然歯の色調を理解するためには、象牙質の色調を正しく把握することが重要である。天然歯の色調に関しては種々の報告があるものの³⁻⁶⁾、象牙質単独の光学特性と象牙質に含まれる微量金属元素との関連について分析した報告はない。

本研究の目的は、象牙質切片を測色し、CIELAB表色系の L^* , a^* , b^* , C^* , 散乱係数, 吸収係数および色濃度により象牙質の色彩学的

Colorimetric Study of Human Dentin

-Relationship between Color Coordinates and Metal Elements in the Dentin-
Tadaharu ENDO

Department of Fixed Prosthodontics, School of Dentistry, Iwate Medical University
1-3-27 Chuo-dori, Morioka, Iwate 020-8505, Japan

特徴を明らかにすることと、これらの色彩学的指標と象牙質に含有される微量金属元素との関連を分析することである。

材 料 と 方 法

1. 象牙質の色彩学的特徴

1) 象牙質試料の作製

歯周疾患等で抜去された120歯を試料とした。歯種を限定せず、う蝕や変色が認められない、かつ歯冠部歯質が完全に保存されているものを頬舌方向から削合して、頬舌的中央部の厚さ0.5mm (±0.05mm)、縦3.0mm、横4.0mmの象牙質試料を作製した。その表面を試料研磨機(ドクターラップ, マルトー社製)を用いて耐水ペーパー#1200まで研磨した。作製した試料は超音波洗浄機(ULTRASONIC CLEANER UT-51N, SHARP社)にて30分間洗浄後、蒸留水中に保存した。

2) 測色装置ならびに測色方法

測色には当講座で開発した非接触型微小面積測色用分光光度計CAS-ID 1⁷⁾を用いた。光源には100Wのハロゲンタングステンランプを使用し、試料の法線に対し45°の角度をなす2方向からの照明、0°で受光する条件(JIS Z 8722の条件a)を採用した。標準白色板で校正を行った後、試料と白下地および黒下地の間に空気が介在しないようにグリセリンを介して両者を密着させた状態で測色を行った。測色部位は歯冠中央部の縦1.0mm×横2.0mmの範囲とし、可視波長400nmから700nmの範囲を20nm間隔の16波長において分光測色した。各試料を6回ずつ測色し、その平均値を測色値とした。

3) CIELAB表色系における色成分の分析

白下地および黒下地における分光反射率をもとに、下地の影響を受けない十分な厚みを持つ場合の分光反射率である固有反射率 R_{∞} を、以下の式(1)を用いて求めた⁸⁾。

$$R_{\infty} = [a - (a^2 - 1)]^{1/2} \quad \dots(1)$$

ただし、

$$a = 1/2 [R_2 + (R_0 - R + R_g) / R_0 \cdot R_g],$$

R_0 : 黒の下地の反射率,

R_2 : R_0 を下地とした場合の着色層の反射率,

R_g : 白の下地の反射率,

R : R_g を下地とした場合の着色層の反射率。

この固有反射率から、CIELAB表色系の L^* , a^* , b^* および C^* を算出し⁹⁾, 象牙質の色調を分析した。

4) 散乱係数, 吸収係数およびGarlandの色濃度の算出

白下地および黒下地における分光反射率をもとにKubelka-Munkの理論¹⁰⁾, (2), を応用し, 象牙質の光学特性として16波長における散乱係数(S)および吸収係数(K)を求めた。

$$R = [1 - R_g(a - b) \cdot \text{ctgh}(bSX)] / a - R_g + b \cdot \text{ctgh}(bSX) \quad \dots(2)$$

ただし、

$$a = (S + K) / S, \quad b = (a^2 - 1)^{1/2}$$

であり、

R : 反射率 R_g を下地とした場合の着色層の反射率,

R_g : 下地の反射率,

X : 厚さ, K : 吸収係数, S : 散乱係数。

この散乱係数および吸収係数を使用して, Garlandの式(3)により色濃度刺激値SQを算出した。

$$SQ = \sum_{\lambda=400}^{\lambda=700} S_{\lambda} (K/S)_{\lambda} (X_{\lambda} + Y_{\lambda} + Z_{\lambda}) = \Delta \lambda \dots(3)$$

すべての象牙質試料の色濃度刺激値SQについて、その分布を求め、SQの最大値、最小値および平均値を持つ試料における散乱係数および吸収係数を比較した。

2. 象牙質試料に含まれる金属元素と象牙質色との関係

1) 象牙質試料の元素分析

測色した象牙質試料に対して白金蒸着を施し、電子プローブマイクロアナライザー(JXA-8900L型, 日本電子社製)を用いて、試料中に含まれる金属元素の定性分析および定量分析を行った。標準試料、および象牙質試料から特性

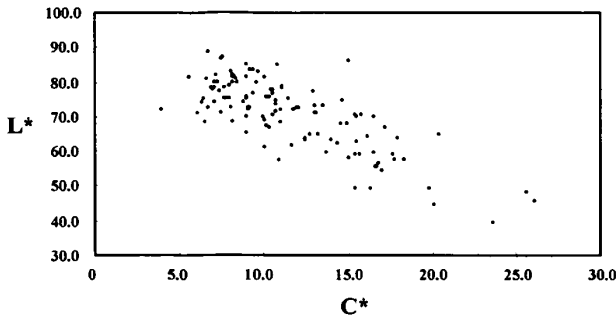


Fig. 1. L*-C* map for human dentin

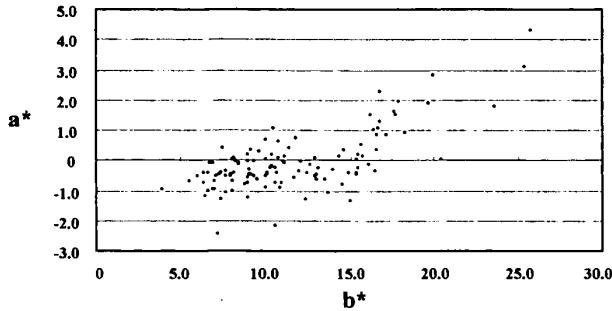


Fig. 2. a*-b* map for human dentin

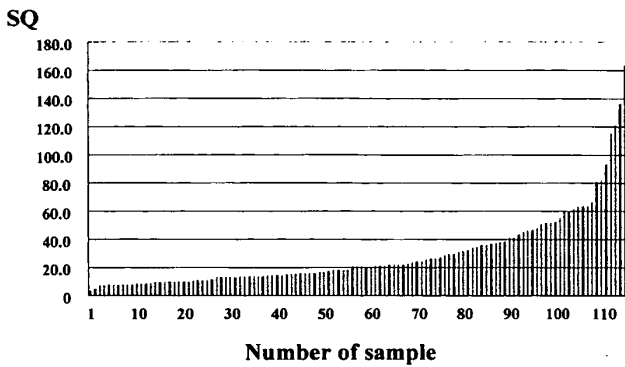


Fig. 3. Color depth SQ of Garland for human dentin

X線強度を測定し、相対強度を求め、補正を施し、指定元素（定性分析により検出された象牙質中の金属元素）の濃度（重量濃度）を求めた。それぞれの象牙質試料につき10ヶ所をプロットし、検出された金属元素の含有率の平均を金属含有率とした。

2) 金属元素と象牙質色との関係

象牙質の色成分としてCIELAB表色系のL*, a*, b*, C* および Garland の色濃度値 SQ と金属成分の含有率との関係を統計学的に分析した。それぞれのデータについてKolmogorov-Smirnovの正規性の検定を行った後、ノンパラメトリック分析のSpearman順位相関係数の検定を行った。

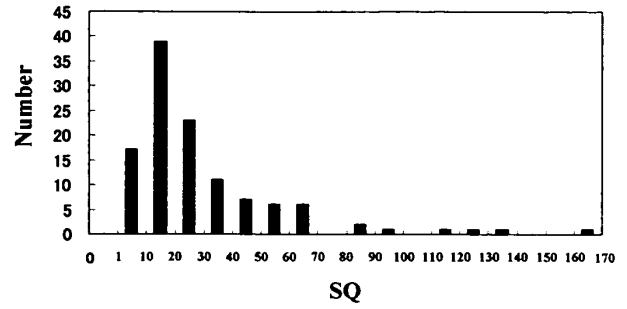


Fig. 4. Histogram of Color depth SQ of Garland

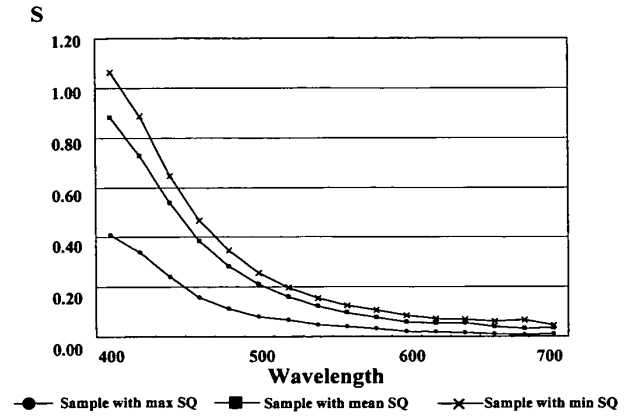


Fig. 5. Scattering coefficients of human dentin

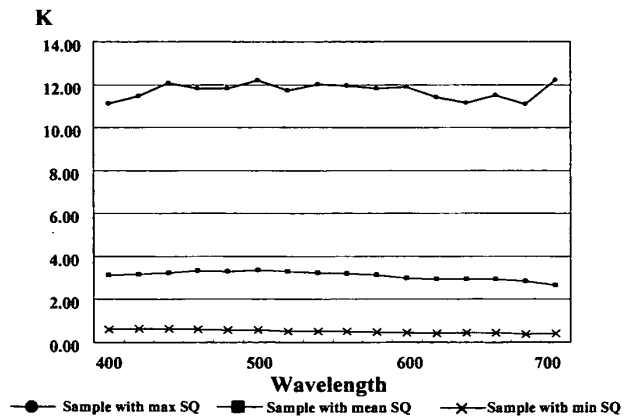


Fig. 6. Absorption coefficients of human dentin

結 果

1. 象牙質色の色彩学的特徴

CIELAB表色系のL*-C*座標における象牙質の色分布は、L*が39.2~88.5の範囲にあり、平均±SDは70.1±11.3であった。また、C*は4.0~26.1の範囲にあり、平均±SDは11.6±4.3であった (Fig. 1)。C*を赤色成分のa*と青色成分のb*で分析した結果 (Fig. 2), a*は-2.5~4.3の範囲にあり、平均±SDは-0.1±1.0であった。また、b*は3.9~25.8の範囲にあり、

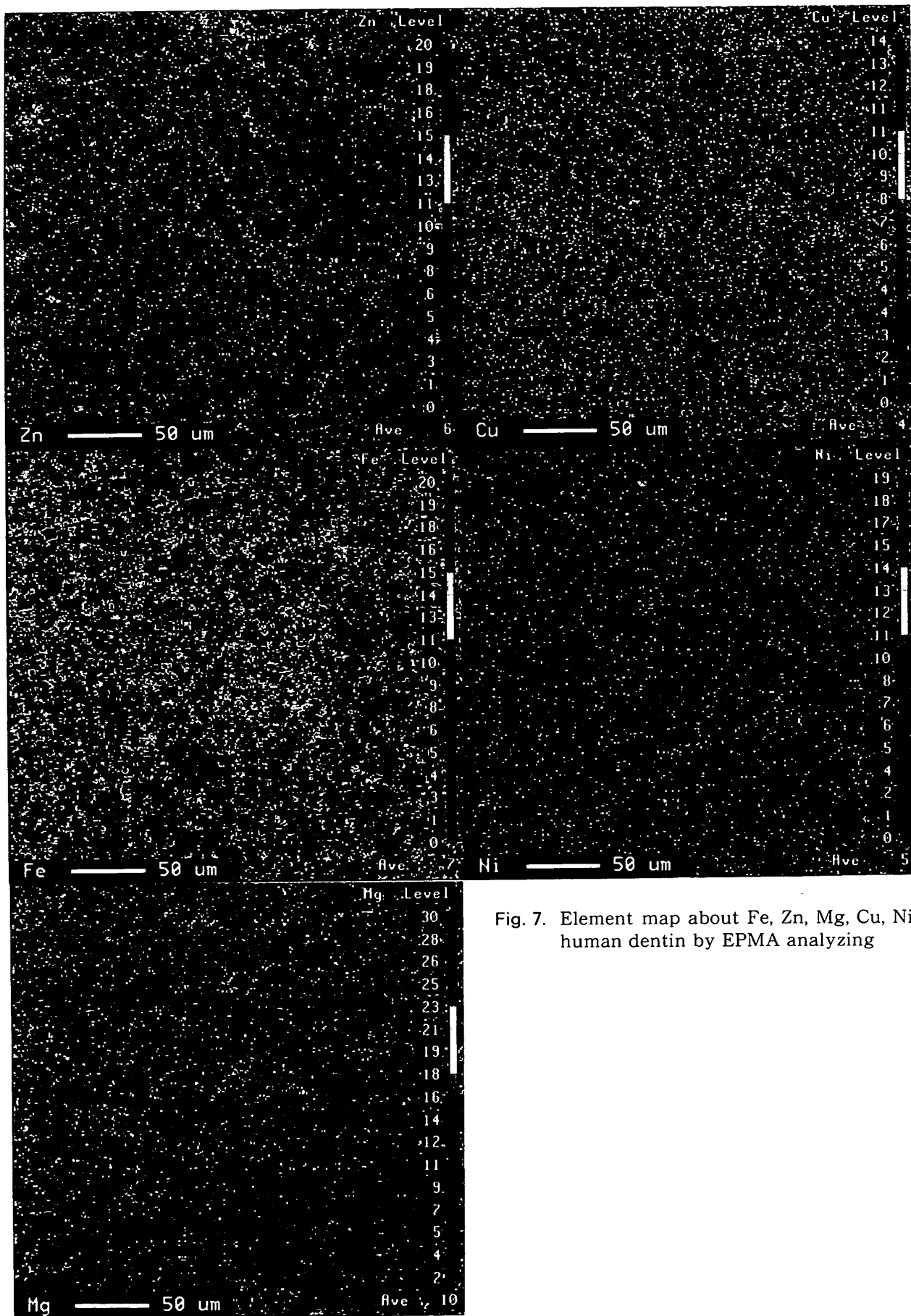


Fig. 7. Element map about Fe, Zn, Mg, Cu, Ni of human dentin by EPMA analyzing

Table 1. Spearman's correlation coefficient by rank test

	Zn	Mg	Ni
L*	-0.23*	NS	NS
a*	NS	-0.26**	0.24**
b*	NS	NS	0.26**

NS : Not Significant * : p<0.05
** : p<0.01

平均±SD は11.5±4.3であった。

Garland の色濃度 SQ は3.8～163.7の範囲にあり、平均±SD は29.6±27.3であった (Fig. 3)。SQ の分布は、全試料の33.6%が10.0～20.0の範囲にあり、19.8%が20.0～30.0、14.6%が1.0～10.0であった。また、SQ が90.0以上の階級値は1%以下であった (Fig. 4)。

散乱係数 S は、SQ によって異なるが、いずれも波長の増大とともに減少する傾向を示した (Fig. 5)。このうち、SQ が平均値に最も近い象牙質試料の散乱係数は、400nm で0.9であり、500nm では、0.2に低下した。しかし、500nm 以降はその低下傾向が緩やかであった。このように散乱係数は波長によって変化するが、全波長領域を通して色濃度が高くなるにつれて、大きく低下した (Fig. 5)。また吸収係数 K は SQ によって大きく異なるが、いずれも400nm から700nm の波長範囲で、ほぼ一定値であった (Fig. 6)。SQ による K 値を比較すると、SQ が最小値を示す試料、すなわち色調が最も薄い象牙質試料では0.5前後であり、SQ が平均値に近い試料では3.0前後、そして最大の SQ を示す試料、すなわち色調が最も濃い試料では約12であった。つまり、色濃度が高くなるにつれて吸収係数は急激に増大した (Fig. 6)。

2. 象牙質試料中の金属元素含有率

象牙質試料中に含まれる金属元素として、Fe, Zn, Mg, Cr, Au, Ni, Al, Cu が確認された。このうち、Fe, Zn, Mg, Cu, Ni は特に強い特性 X 線のピークが検出された。

Fig. 7 に代表的な象牙質試料の Fe, Zn, Mg, Cu, Ni マッピング像を示した。それぞれ

の元素マップにより、金属元素の分布状態が確認できた。120個の試料における元素の含有率 (平均±SD) は、Fe が0.02±0.04 (%), Zn が0.10±0.09 (%), Mg が0.22±0.05 (%), Cu が0.09±0.11 (%), Ni が0.02±0.01 (%) であった。

3. 金属元素と象牙質色との関連

象牙質色の色彩学的データとして L*, a*, b*, C* および SQ の値と、Fe, Zn, Mg, Cu および Ni の含有率について正規性の検定を行った結果、いずれにおいても正規性は認められなかった。そこで、色彩学的データと金属元素含有率との関連について、ノンパラメトリック検定である Spearman の順位相関係数を用いて分析した。

Zn の含有率と L* との間に危険率5%の有意な負の相関が認められ、Mg と a* との間に危険率1%の有意な負の相関が認められた。また Ni の含有率と a* および b* との間に危険率1%の有意な正の相関が認められた (Table. 1)。

考 察

1. 実験方法

半透明体、特に本実験で用いた象牙質試料のように薄く小さな試料の場合は光の吸収と散乱が複雑でエッジロスエラーの影響が大きい。本実験に用いた非接触型の測色装置は、1×2 mm の微小面積を測色することが可能であり、エッジロスエラーの影響を排除できるので、反射率を低下させることもなく半透明体である象牙質を正確に測色することができた。また照明光源に用いられているハロゲンタングステンランプは、昼光の分光分布より規定された標準光 D65 に近似しており、これを45度2方向から照射していることから、人間が色を評価する際の条件に最も近い状態での測色¹⁰⁾とされている。以上のことから、本実験により得られた色彩学的データは、象牙質の絶対色をとらえたものであると考える。

2. 色彩学のおよび光学的データの評価

象牙質の色彩学的データを L*-C* 座標で分

析した結果、象牙質の色調は彩度に比較して明度の広がりが大きかった。また、分布の中心から高彩度、低明度および高 a^* 、高 b^* の方向に向かって疎な分布が広がっていた。

当講座所有の、天然歯の色空間の色彩学的データ⁹⁾においては、 L^* が 69.6 ± 4.6 (平均 \pm SD)、 a^* は 2.9 ± 2.1 、 b^* は 14.3 ± 3.1 である。このデータと本実験における象牙質試料の色調分析結果を比較すると、 L^* で示される明度に差は認められず、色度である a^* と b^* がより小さな値を示していた。セラミッククラウンに天然歯の色調を構築する場合、象牙質陶材の上にエナメル陶材が重なる。透明性の高いエナメル陶材が重なることにより明度は低下するため、デンティン陶材は今回の実験結果での象牙質試料の L^* よりも高い明度を具備していることが望ましいと考えられる。また、本実験での象牙質試料には天然歯にみられる歯髄組織の影響がないことで a^* が小さな値を示したと考えられる。したがって、実験結果の a^* を補うような赤み成分を有するデンティン陶材が必要であると判断される。また象牙質試料単独の b^* 値が天然歯よりも小さいということは、黄色みが弱く青みが強いことを示す。天然歯ではエナメル質の光透過性や蛍光作用の影響などが複雑に関与すると思われるが、本実験の結果よりも高い b^* 値を示すデンティン陶材が望ましいものと推察される。

したがって、陶材を用いて天然歯の色調を的確に構築するためには、本実験で得られた結果よりも高い L^* 、 a^* および b^* を持つデンティン陶材が必要であると考えられる。

また今回の象牙質試料の散乱係数および吸収係数とIPS Empress[®]のシェードA1とB4のデンティンインゴットの分析値¹²⁾とを比較すると、シェードA1インゴットの散乱係数は本実験で最小のSQを示す象牙質試料の散乱係数と近似した値を示し、シェードB4のインゴットの散乱係数は本実験で最大のSQを示す象牙質試料の散乱係数と近似した値を示した。一方シェードA1の吸収係数は、最小のSQを示す

象牙質試料に近似していた。しかし、最大のSQを示す象牙質試料の吸収係数は、シェードB4の10倍以上の値を示し、平均のSQを示す象牙質試料においても2倍以上の値を示している。すなわち、象牙質の散乱性は歯科用セラミックに再現されているが、色調の濃い象牙質における吸収性が再現されていないことが示唆された。

3. 金属元素と象牙質色の関連

天然歯に含有される微量金属元素については、石灰化や公害などに関連した環境調査を目的とした多くの報告があり¹³⁻²⁰⁾、象牙質にはCu, Pb, Zn, Cd, Fe, Co, Niなどが含まれているとされている。また、う蝕歯中のFe, Zn, Coの含有量が完全埋伏歯中の含有量よりも多いとの報告もみられる²⁰⁾。しかし、健全な象牙質の色調と含有金属元素との関連についての研究報告はない。本実験の結果、象牙質のZn含有率と L^* には負の相関が認められたことから、Znの含有率が高いほど象牙質の明度が低いということが言える。Znにより不透明性が高まると同時に黄色系の着色が生じることにより、相対的に明度が低下するものと考えられる。また、Mgと a^* の間にも負の相関が認められ、Mgの含有率が高いほど象牙質の色調は赤みが弱いことを示している。MgOは白色を呈することから、象牙質の着色性が抑えられ a^* が低い値を示したと考えられる。一方、Niと a^* および b^* に正の相関が認められた。これはNiの含有率が高いほど赤みおよび青みが強いことを意味する。以上のように、120個の象牙質試料の色彩学データとZn, MgおよびNiの含有金属量との間にSpearmanの順位相関が有意に認められたことから、象牙質の着色性にZn, MgおよびNiが関与していることが示唆された。

結 論

120歯のヒト健全抜去歯の象牙質単独試料の色彩学的データを分析し、さらに含有金属量との関係について検討した結果、以下の結論を得

た。

1. ヒト天然歯における象牙質の L^* は 70.1 ± 11.3 , a^* は -0.1 ± 1.0 , b^* は 11.5 ± 4.3 であり, C^* は 11.6 ± 4.3 であった。また, Garland の色濃度 SQ は 29.6 ± 27.3 であった。

2. 平均値に最も近い SQ を持つ象牙質の散乱係数は, 400nm で 0.9 を示し, 500nm 付近で 0.2 まで波長とともに急下降し, その後 700nm までは緩やかに下降した。また吸収係数は 400nm から 700nm の波長範囲で, 3.0 前後のほぼ一定値であった。

3. 象牙質中に含まれる金属元素の含有率は Fe で 0.02 ± 0.04 (%), Zn で 0.10 ± 0.09 (%), Mg で 0.22 ± 0.05 (%), Cu で 0.09 ± 0.11 (%), Ni は 0.02 ± 0.01 (%) であった。

4. 象牙質の L^* と Zn の含有率との間に負の相関が認められ, a^* と Mg との間に負の相関が認められた。また a^* , b^* と Ni との間に正の相関が認められた。

謝辞: 稿を終えるにあたり, 終始ご懇篤なる指導と校閲を賜りました石橋寛二教授に深甚なる謝意を表します。また本研究を進めるにあたりご指導とご教示を頂きました永井成美博士に心よりお礼申し上げます。またご援助, ご協力を頂きました電子顕微鏡室ならびに当講座の諸先生の方々に深謝いたします。最後に本研究に対してご協力頂きました村田色彩エンジニアリング代表村田幸男氏に厚くお礼申し上げます。

本論文の要旨は岩手医科大学歯学会第28回総会(2002年2月, 盛岡)において発表した。

文 献

- 1) 羽賀通夫: 歯牙の色について(特にその色彩発現に関する基礎的研究), 補綴誌, 2: 35~40, 1958.
- 2) 羽賀通夫: 歯牙の色について(特に象牙質の色彩学的研究), 補綴誌, 2: 137~140, 1958.
- 3) 齋藤彰久: 歯の色彩学的研究—抜去歯歯根について—, 日大歯学68: 947-954, 1994.
- 4) 加藤愛子: 歯冠色の構成に関する色彩学的研究, 補綴誌20: 570-584, 1976.
- 5) 中川喜晴: 歯冠色分析に関する研究, 補綴誌19: 109-130, 1975.
- 6) Nagai S, Yamamoto H, Sakashita K, Ishibashi K, Nathanson. D: Tooth color statistics of north american population, *J Dent Res* 80 (IADR Abstracts): 599, 2001.
- 7) 石橋寛二, 石川成美, 白石 明: 非接触型微小面積測色用分光光度計の開発, 補綴誌37: 619-626, 1993.
- 8) 石川成美, 佐藤理一郎, 古川良俊, 石橋寛二: 歯科用陶材に関する色彩学的検討—散乱係数, 吸収係数の特性について—, 補綴誌34: 585-591, 1990.
- 9) 村田幸男: 色彩技術ハンドブック, 総合技術センター, 東京, 1990.
- 10) Kubelka P, Munk F: Ein Beitrag zur Optik der Farbanstriche. *Z tech Phys.* 12: 593-601, 1931.
- 11) Hardy, A. C.: Illuminating and viewing conditions for spectrophotometry and colorimetry, *J Opt Soc Am.* 35: 289-292, 1945.
- 12) 角江信彦: IPS Empress の光学特性に関する研究—加熱加圧成型による色調変化とその原因—, 補綴誌40: 1183-1193, 1996.
- 13) 浜田作光: ウシ永久歯歯胚の微量元素に関する研究, 神奈川歯学24-1: 24-37, 1989.
- 14) 井上一彦: 歯牙の加齢変化に関する研究 第3報放射化分析法による歯牙の微量元素の定量, 口腔衛生学会雑誌39: 494-495, 1989.
- 15) 市田一弘: 永久歯エナメル質および象牙質の微量元素について 第1報, 口腔衛生学会雑誌39: 598-599, 1989.
- 16) 市田一弘: 永久歯エナメル質および象牙質の微量元素について 第2報, 口腔衛生学会雑誌40: 538-539, 1990.
- 17) 市田一弘: 歯の微量元素濃度に関する衛生学的研究 特に第3大臼歯の珐瑯質, 象牙質における微量元素濃度を中心として, 歯科学報 Vol.92, No 1: 183-206, 1992.
- 18) 佐藤 勉: 歯と微量元素, 治療: Vol.75, No 3: 851-856, 1993.
- 19) 吉田昌弘: 乳歯の微量元素の測定法に関する研究—多元素(Cu, Pb, Zn, Cd)同時分析法について—, 神奈川歯学30-1, 67-80, 1995.
- 20) Moriwaki K: Determination of iron, cobalt and zinc in caries teeth by neutron activation analysis. *RADIOISOTOPES* 48: 172-176, 1999.