

· 基础研究 ·

不同浓度单宁酸在不同酸蚀模式下对通用型粘接剂粘接强度的影响



扫码阅读电子版

卞雨晴¹ 马一丹¹ 代东跃¹ 苏平¹ 贾梦奇² 战德松³ 付佳乐³

¹中国医科大学口腔医学院口腔医学专业,沈阳 110002; ²北京欢乐英卓医院管理有限公司医务部 100020; ³中国医科大学口腔医学院口腔材料学教研室,中国医科大学附属口腔医院修复二科,沈阳 110002

通信作者:付佳乐,Email:fullers@126.com

【摘要】 目的 研究不同浓度单宁酸在全酸蚀与自酸蚀条件对通用型粘接剂在牙本质表面粘接强度的影响。**方法** 将60颗无龋离体人磨牙置于存储盒中随机盲取分成2组(全酸蚀A组与自酸蚀B组, $n=30$),再将每组随机分为5个亚组($n=6$)。在使用通用型粘接剂Single Bond Universal(SBU)前,在牙本质面分别涂抹浓度为0%(对照组)、25%、50%、75%和100%的单宁酸3 min并冲洗吹干。实验试件在37℃水中保存24 h后进行微拉伸强度测试(μ TBSI)。使用Two-Way ANOVA与Games-Howell对数据进行统计学分析。用体式显微镜观察断裂面模式并在扫描电镜(SEM)下观察微拉伸试件的牙本质断端。**结果** 在全酸蚀模式下,75%单宁酸组粘接强度 $[(34.51 \pm 8.43) \text{ MPa}]$ 与100%单宁酸组粘接强度 $[(36.16 \pm 5.20) \text{ MPa}]$ 显著高于其他各组($F=32.301, P<0.001$);在自酸蚀模式下,25%单宁酸 $[(31.06 \pm 3.41) \text{ MPa}]$ 可显著提升SBU与牙本质粘接强度($F=23.570, P<0.001$)。双因素分析结果证实,单宁酸浓度($F=23.134, P<0.001$)与酸蚀模式($F=4.465, P=0.036$)对粘接强度具有显著影响且两要素间显著相关($F=28.231, P<0.001$)。断裂模式分析与电镜观察结果表明,在牙本质表面不同酸蚀模式与不同浓度单宁酸所形成的界面形态差异显著。**结论** 在不同酸蚀模式下,不同浓度的单宁酸均可显著改善SBU与牙本质的粘接强度。

【关键词】 单宁类; 牙本质; 酸蚀; 拉伸强度; 通用型粘接剂; Single Bond Universal; 微拉强度伸测试

基金项目:2018年中国医科大学大学生创新创业项目资助项目基金(1111251703)

引用著录格式:卞雨晴,马一丹,代东跃,等.不同浓度单宁酸在不同酸蚀模式下对通用型粘接剂粘接强度的影响[J/CD].中华口腔医学研究杂志(电子版),2020,14(4):221-227.

DOI:10.3877/cma.j.issn.1674-1366.2020.04.004

Effect of tannic acid with different concentrations on bond strength under different etching modes

Bian Yuqing¹, Ma Yidan¹, Dai Dongyue¹, Su Ping¹, Jia Mengqi², Zhan Desong³, Fu Jiale³

¹School of Stomatology, China Medical University, Shenyang 110002, China; ²Enjoy Dental, Beijing 100020, China; ³Department of Dental Materials Science, The 2nd Department of Prosthodontics, School & Hospital of Stomatology, China Medical University, Shenyang 110002, China

Corresponding author: Fu Jiale, Email:fullers@126.com

【Abstract】 Objective To evaluate the effect of tannic acid with various concentrations on the bond strength between dentin and universal adhesive under the total and self-etching modes. **Methods** Sixty human molars without caries were randomly divided into two groups (group A: total-etching mode; group B: self-etching mode, $n=30$) with five subgroups ($n=6$) from the box blindly. After exposing its dentine, tannic acid with different concentrations of 0% (control group), 25%, 50%, 75% and 100% was applied on dentin surface for 3 minutes with rinsing and air-blowing before Single Bond Universal (SBU) was used. Micro-tensile Bond Strength test (μ TBSI) was carried out after 37℃ water-storage for 24 h. The data were analyzed by Two-Way ANOVA and Games-Howell test ($\alpha=0.05$). Failure mode analysis and

fracture surface observation on dentin side were done by stereomicroscope and electron scanning microscope (SEM), respectively. **Results** In the total-etching mode, the bond strength of 75% and 100% concentration groups was significantly higher than that of the other groups ($P < 0.05$). In the self-etching mode, significantly higher bond strength than the rest was achieved by 25% concentration ($P < 0.05$). Two-Way ANOVA revealed a significant effect of tannic acid concentration ($F = 23.134, P < 0.001$) and etching mode ($F = 4.465, P = 0.036$) on bond strength, while the interaction between two variables was also significant ($F = 28.231, P < 0.001$). The results of failure mode analysis and SEM observation indicated that the interfacial morphology on dentin created by both etching modes and different concentrations of tannic acid was significantly different. **Conclusion** The bond strength between dentin and SBU could be significantly improved by tannic acid with different concentrations in both total and self-etching modes.

【Key words】 Tannins; Dentin; Acid etching; Tensile Strength; Universal adhesive system; Single Bond Universal; Micro-tensile bond strength test

Fund program: Innovation and Entrepreneurship Training Program for College Students of Liaoning Province(1111251703)

DOI:10.3877/cma.j.issn.1674-1366.2020.04.004

牙本质粘接系统根据作用机制不同可分为全酸蚀粘接剂和自酸蚀粘接剂两大类。在临床操作,全酸蚀粘接系统分为三步法和二步法,自酸蚀分为二步法和一步法^[1]。全酸蚀粘接系统可通过磷酸实现较为理想的粘接强度,且粘接表现相对稳定,被认作牙体直接修复的“金标准”^[2]。一步法自酸蚀粘接剂的出现省略了“酸蚀-冲洗”步骤、节约了椅旁操作时间的同时有效减少了术后敏感现象发生^[3],备受临床医生青睐^[4]。鉴于临床中仍存在着树脂充填体脱落的情况^[5],长久以来如何改善复合树脂与牙体组织间的粘接表现一直是粘接领域的研究热点。

本课题组前期研究发现,单宁酸是一种极具研究价值的材料,取材广泛,富含于石榴等植物体内,其来源是丰富的自然资源。单宁酸在生物学和药理方面具有极强的活性,其特殊的多酚结构具有独特的生物学特性^[6],具有抑菌^[7]、抗氧化^[8]、抗炎^[9]、抗肿瘤抗癌变等^[10]诸多方面的作用。在口腔医学领域,已有文献证实单宁酸具有通过稳固脱矿后的牙本质纤维,增强其“蓬松度”,进而促进粘接剂的渗透进而增强树脂粘接强度的作用^[11]。这为进一步探讨单宁酸实际应用于牙本质粘接中提

供了可靠的理论依据。因此,本研究旨在通过比较在二步法全酸蚀与一步法自酸蚀模式下不同浓度的单宁酸对通用型粘接剂与牙本质粘接强度的影响,评估单宁酸作为底漆处理剂的实际作用,以期改善牙本质粘接强度提供新的思路与参考依据。

材料与方法

一、实验材料和仪器

食品级单宁酸(分子式 $C_{76}H_{52}O_{46}$, 相对分子量 1701.20),加水制成 250 g/L 的饱和溶液,并以此浓度作为 100% 浓度的单宁酸溶液,再使用蒸馏水按标准配制 25%、50%、75% 浓度的单宁酸溶液备用;磷酸酸蚀剂(批号:3346116;3M,美国);Filtek™ Z350 XT 通用型纳米树脂(批号:7018A2B;3M,美国);通用型粘接剂 Single Bond Universal (SBU;批号:669477;3M,美国);慢速切片器(SYJ-150;沈阳科晶自动化设备有限公司);LED 光固化灯(Kerr,美国);韦度试验机(WDS-200,1 mm/min;温州韦度电子有限公司);恒温水浴箱(Polystat;Colle-Parmer,美国);电子游标卡尺(500-151-30;Mitutoyo,日本)。实验流程示意图见图 1。

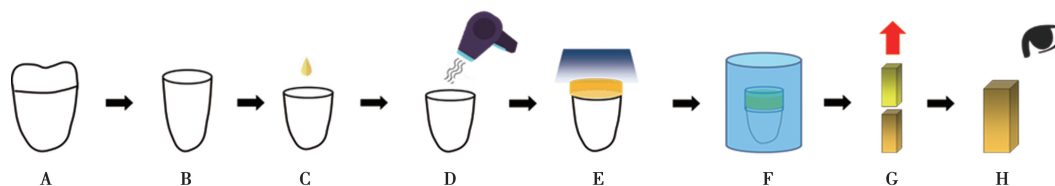


图1 实验流程图 A:准备离体牙;B:暴露牙本质;C:预备粘接面并涂布单宁酸;D:冲洗后风吹;E:堆砌树脂及分层光固化;F:37℃水存24h;G:微拉伸测试;H:观察断裂面

二、牙本质试件的制备

选择60颗无龋离体恒磨牙,在喷水条件下使用石膏打磨仪沿牙体长轴去除冠部牙釉质,完全暴露牙本质层,在流水下用600目碳化硅砂纸打磨牙本质粘接表面1 min,形成统一标准的粘接界面后备用。将60颗离体牙置于存储盒中随机盲取分为全酸蚀A组与自酸蚀B组($n=30$),组内各自随机分为5个亚组($n=6$),分别做以下处理:A组牙本质粘接面在相同气压下吹拂干燥,用磷酸酸蚀15 s,冲洗10 s,室温条件下风吹5 s,5个亚组分别依次用小毛刷蘸取浓度为0% (pH = 7.27)、25% (pH = 3.20)、50% (pH = 3.12)、75% (pH = 3.08)、100% (pH = 3.06)浓度的单宁酸作为底漆涂布3 min^[12],流水冲洗10 s并风吹5 s后备用;B组除不进行“磷酸酸蚀-冲洗”外,其余步骤与A组相同。完成上述操作后备用牙做以下处理:将SBU粘接剂垂直于牙本质粘接面平面滴1滴,使用小毛刷涂布20 s,吹拂15 s,光固化10 s,用复合树脂(Filtek™ Z350 XT)在牙本质粘接面分3次堆砌至6 mm,分层光固化20 s/层,最后一次四周光照共40 s。所有样本的粘接均由同一位熟悉上述粘接剂使用方法的主治医师完成。将10组粘接试件置于恒温水浴箱中37℃恒温保存24 h后进行微拉伸强度测试。

三、微拉伸强度测试

将样本保存于37℃恒温水浴箱24 h后取出,使用慢速切片机在水冷却的条件下垂直于粘接界面将粘接试件切割成横截面积约为1.0 mm×1.0 mm的条状样本。用游标卡尺测量其长与宽计算出粘接面积(S ,单位: mm²)。选取条状样本进行微拉伸测试($n=12$)。将微拉伸试件用阿隆发胶水固定在微拉伸仪正中,保证试件长轴与微拉伸仪分离面垂直,加载速度约为1.0 mm·min⁻¹直至试件发生断裂,记录微拉伸试件断裂时的拉力峰值(N ,单位: N)并保留牙本质断端用于界面观察。粘接强度的计算公式: $P=N/S$,单位: MPa。

四、体式显微镜观察

在体式显微镜下观察牙本质断裂面,将样本断裂模式分为3种类型:(1)树脂或牙本质内部断裂;(2)树脂-牙本质粘接面断裂;(3)混合断裂,即粘接面和树脂/牙本质内部均有断裂。

五、扫描电镜观察

观测样本干燥后经离子溅射器喷金涂层120 s,在扫描电镜(SEM)下对断裂试件牙本质端进行粘接界面形态观察。

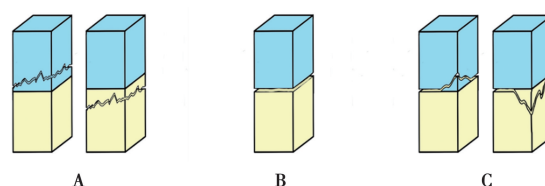


图2 体式显微镜下牙本质断裂模式示意图 A:树脂或牙本质内部断裂;B:树脂-牙本质粘接面断裂;C:混合断裂

六、统计学处理方法

使用SPSS 22.0统计软件对实验数据进行统计分析,采用Two-Way ANOVA双因素分析和Games-Howell检验评估酸蚀模式、单宁酸浓度对粘接强度的影响、二者内在关联以及比较不同酸蚀模式与浓度下单宁酸对粘接强度的影响。检验水准双侧 $\alpha=0.05$ 。

结 果

一、微拉伸强度测试结果

在全酸蚀组中,浓度为25%与50%的单宁酸的粘接强度与对照组(0%浓度)差异无统计学意义($P>0.05$),100%浓度条件下的粘接强度与75%浓度差异无统计学意义($P>0.05$),但显著高于其他组($F=32.301, P<0.001$)。

在自酸蚀组中,与对照组(0%浓度)相比不同浓度单宁酸的预处理均使粘接强度显著增高($F=23.570, P<0.001$),并且在浓度为25%条件下粘接强度达到峰值。

所有实验组的微拉伸强度结果见图3。

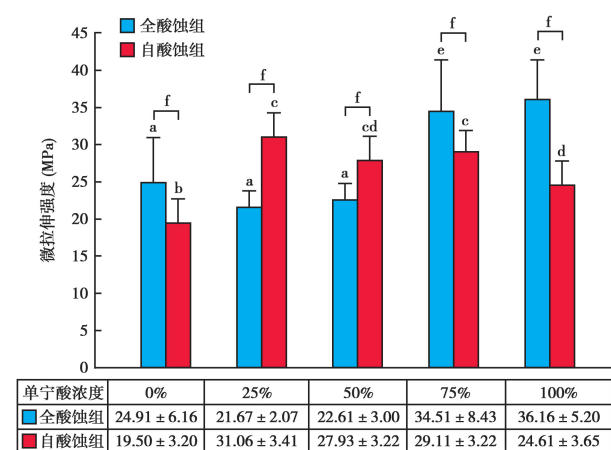


图3 微拉伸测试结果 相同颜色柱状图上方的相同字母表示差异无统计学意义($P>0.05$);同一单宁酸浓度条件下组间差异有统计学意义($P<0.05$)

SPSS 22.0的Two-Way ANOVA双因素分结果表明:单宁酸浓度($F=23.134, P<0.001$)与酸蚀模式

($F=4.465, P=0.036$)可显著影响SBU的牙本质粘接强度,两要素间具有显著相关性($F=28.231, P<0.001$)。

二、断裂模式分析

断裂模式分析结果显示:全酸蚀组中的单宁酸浓度为0%与50%的组粘接面断裂模式比例低于其他类型,而在其余组中均为内部断裂模式比例高于其他类型;自酸蚀组中粘接面断裂模式总计比例低于全酸蚀组粘接面断裂模式;两组中的混合断裂模式比例相近(表1)。

三、扫描电镜观察结果

在A组全酸蚀模式中,0%对照组的牙本质表面粗糙不平,可见成团的胶原纤维,而25%组的牙本质表面相对平坦。50%组与75%组牙本质表面管间牙本质与管周牙本质结构清晰,牙本质小管中可见树脂栓(图4箭头所示)。100%组的牙本质小管则

边缘规整。

在B组自酸蚀模式中,0%对照组牙本质表面未见明显胶原纤维形态。其他(25%、50%、75%与100%)各组牙本质表面可见胶原纤维形态(图5箭头所示),可见牙本质小管开口清晰,牙本质小管内可见有树脂突结构。牙本质表面的SEM观察结果见图5。

讨 论

本实验采用微拉伸实验方法,评价在全酸蚀与自酸蚀模式下在牙本质表面进行不同浓度单宁酸预处理对通用型粘接剂粘接强度的影响。实验结果证实:与对照组相比,不同浓度单宁酸在不同酸蚀模式下均可显著提高SBU对牙本质的粘接强度。微拉伸测试是目前用于评价口腔材料粘接强度最常用的方法之一,通过测定试件在承受负荷发

表1 全酸蚀组和自酸蚀组试件断裂模式结果统计[例(%)]

单宁酸浓度	全酸蚀组			自酸蚀组		
	内部断裂	粘接面断裂	混合断裂	内部断裂	粘接面断裂	混合断裂
0%	24(33.3)	36(50.0)	12(16.7)	56(77.8)	14(19.4)	2(2.8)
25%	48(66.7)	22(30.5)	2(2.8)	47(65.3)	18(25.0)	7(9.7)
50%	32(44.4)	39(54.2)	1(1.4)	54(75.0)	9(12.5)	9(12.5)
75%	35(48.6)	31(43.1)	6(8.3)	46(63.9)	23(31.9)	3(4.2)
100%	42(58.3)	22(30.6)	8(11.1)	41(56.9)	27(37.5)	4(5.6)
总计	181(50.3)	150(41.7)	29(8.0)	244(67.8)	91(25.3)	25(6.9)

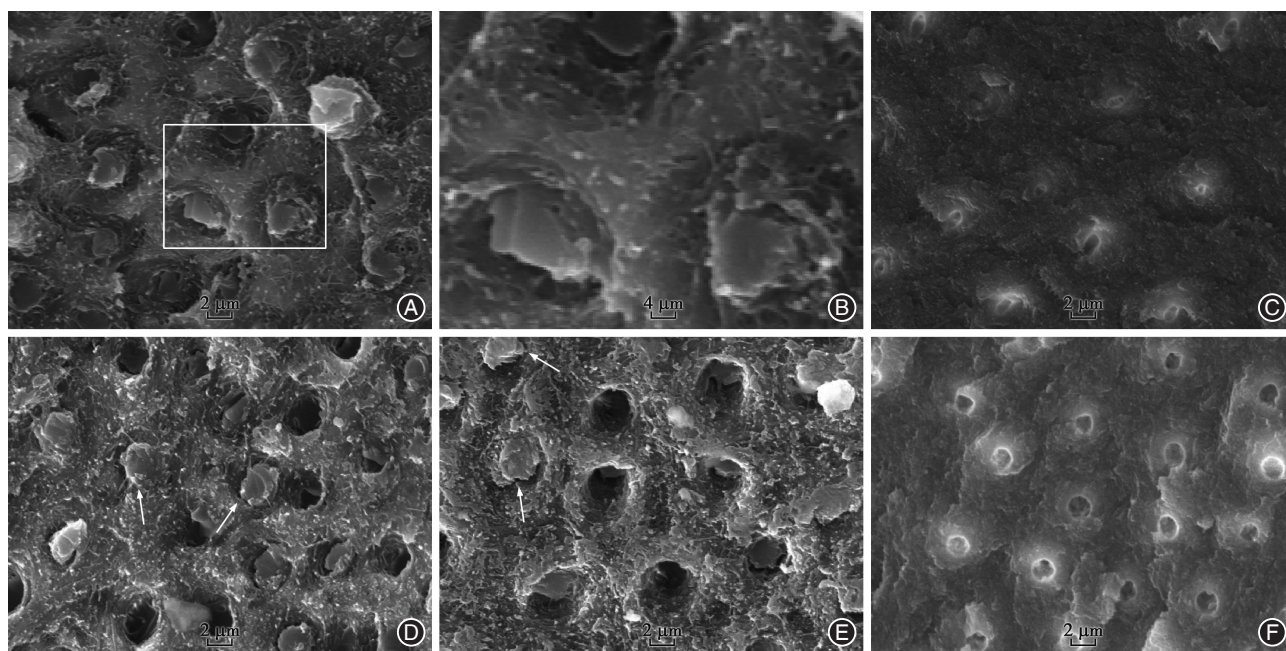


图4 全酸蚀模式中牙本质断端粘接面扫描电镜下观察 A:0%单宁酸组;B:A图中白线框放大图;C:25%单宁酸组;D:50%单宁酸组(箭头所指为树脂栓);E:75%单宁酸组(箭头所指为树脂栓);F:100%单宁酸组

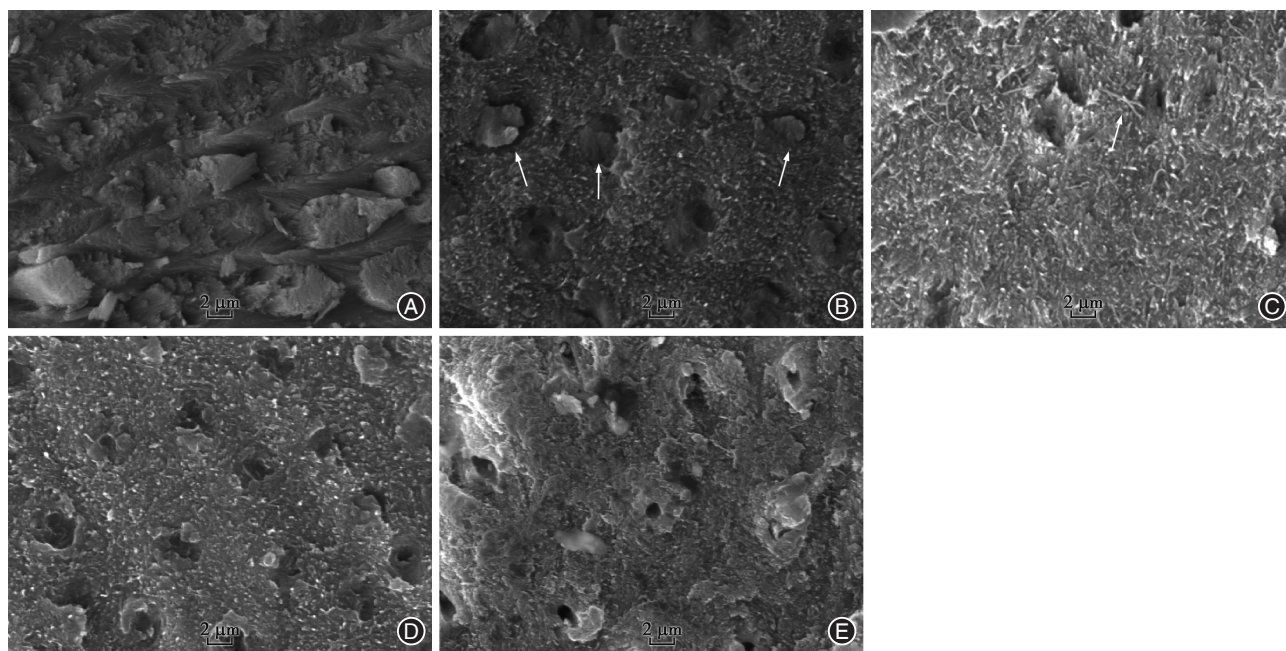


图5 自酸蚀模式中牙本质断端粘接面扫描电镜下观察 A:0%单宁酸组;B:25%单宁酸组(箭头所指为树脂突);C:50%单宁酸组(箭头所指为胶原纤维);D:75%单宁酸组;E:100%单宁酸组

生断裂时的拉伸强度来评价材料的粘接强度^[13]。本实验采用条形试件,并将粘接面积限定在 1 mm^2 以减少内聚力及应力分布对结果的影响^[14-15]。在树脂粘接剂与牙表面接触反应的过程中,牙本质的表面形成由牙本质胶原纤维与树脂互相渗透的混合层,同时树脂渗入牙本质小管、管周牙本质与管间牙本质形成树脂突,经光照固化聚合后,胶原纤维与树脂紧密结合所形成的机械嵌合力为牙本质粘接力的主要来源^[16-18]。

在本实验的A组全酸蚀模式下,0%、25%和50%浓度组的粘接强度结果差异无统计学意义,而75%及100%浓度单宁酸使粘接强度显著提高。全酸蚀粘接系统的要领在于酸蚀冲洗后的牙本质需要保持一定湿润防止胶原纤维网塌陷。本课题组推测,高浓度的单宁酸通过胶原交联和氢键与牙本质结合^[18],稳固了牙本质胶原纤维,增强了其“蓬松”度,有效地减缓其在水分挥发之后塌陷,从而显著提高了SBU的树脂-牙本质结合强度^[19]。

在本实验的B组自酸蚀模式下,与对照组相比不同浓度单宁酸均显著改善了SBU与牙本质的粘接强度,且除了对照组外,其余各组均能见牙本质断端有明显的胶原纤维。SBU的pH值为2.5~2.7,在对照组中,自酸蚀仅凭其酸度难以实现37%磷酸酸蚀的效果。单宁酸虽然 $\text{pH} > 3$,显然仍具有一定的酸蚀作用,可以起到一定的脱矿和清洁玷污层的

作用。浓度为25%的单宁酸组的粘接强度高于其他各组。SEM结果显示,25%组牙本质断端表面结构致密。浓度为25%的单宁酸通过胶原交联和氢键与牙本质结合^[18],使牙本质表面存在的胶原纤维得到适度硬化,从而显著提高了SBU的树脂-牙本质结合强度^[19]。另一方面,随着单宁酸浓度的不断升高,过高浓度的单宁酸在牙本质表面形成过量的单宁酸-牙本质复合物^[20],过量的沉淀物抑制了SBU中的酸性单体与钙离子的相互作用并封闭了牙本质小管阻碍了树脂粘接剂向内渗透^[21]。过高的浓度(100%组)在牙本质表面形成的沉淀物在受外力时较为薄弱易发生断裂,最终导致粘接强度降低。

口腔使用的磷酸酸蚀剂浓度为37%,pH值约为0.7,而单宁酸为相对较弱的酸,饱和溶液pH值为3.06,二者中 H^+ 的浓度相差悬殊,故施加单宁酸不会对酸蚀效果产生显著影响。两两比较结果显示,在单宁酸浓度为0%的对照组中全酸蚀处理的粘接强度显著高于自酸蚀组。这表明,尽管牙本质表面“湿粘接”尚存在技术敏感性,但磷酸酸蚀-冲洗操作仍可作为牙本质粘接的“金标准”^[2]。在浓度相同的条件下,其他各组两两比较的结果差异具有统计学意义且趋势不同,这表明单宁酸浓度与酸蚀模式对SBU的粘接强度具有显著影响,且二者存在显著关联性,这在双因素分析结果中同样得到证实。

无论使用磷酸与否,单宁酸的预处理都能改善

牙本质的粘接强度。单宁酸中的羟基可与牙本质 I 型胶原纤维的 NH 基团形成氢键结合,增加了牙本质的弹性模量^[22-23],进而提高了树脂-牙本质粘接强度。另外,牙本质酸蚀脱矿后暴露的胶原纤维被基质金属蛋白酶(matrix metalloproteinase,MMP)降解是导致牙本质粘接耐久性下降的主要因素之一^[24]。树脂粘接剂在牙本质表面发生反应的过程中,牙本质中的内源性蛋白酶均被激活^[25-26],经磷酸处理后的牙本质含有激活状态存在的 MMP-2、MMP-3、MMP-8、MMP-9 和 MMP-20 及组织蛋白酶^[27-28]。这些酶在激活态且有水的环境中可以降解混合层中的胶原纤维,使粘接强度在 12 ~ 14 个月显著降低 36% ~ 70%^[29-30]。单宁酸天然存在并具有生物活性的多酚结构,作为 MMP 抑制剂的一种可有效防止 MMP 对胶原纤维的破坏^[5,19,23]。单宁酸结构内的氢键可以与胶原酶竞争胶原纤维上的切割位点,形成稳定的单宁酸-牙本质复合物^[20],从而改善磷酸酸蚀处理后牙本质的粘接耐久性。原花青素作为与单宁酸性质相似的 MMP 抑制剂可被添加于磷酸中使用,其既不影响粘接效果又可在一定程度上减缓 6 个月的水储老化后树脂-牙本质的粘接强度的降低^[31]。以上报道与本实验结果为单宁酸作为复合树脂粘接修复前底漆处理剂使用的可行性提供了必要的理论与科学依据。

本实验的研究结果表明,不同浓度的单宁酸在不同酸蚀条件下均可显著提高 SBU 与牙本质间的粘接强度。单宁酸天然存在、来源丰富、具有多酚结构的生物学活性且对人体无毒无害等诸多特质使其具有应用于临床的可行性。

利益冲突 所有作者均声明不存在利益冲突

参 考 文 献

- [1] 付佳乐,陈丽薇,李斯文,等.六种自酸蚀粘接剂与牙本质粘接强度的研究[J].中国实用口腔科杂志,2017,10(3):163-167. DOI:10.19538/j.kq.2017.03.007.
- [2] Pashley DH, Tay FR, Breschi L, et al. State of the art etch-and-rinse adhesives [J]. Dent Mater, 2011, 27(1): 1-16. DOI: 10.1016/j.dental.2010.10.016.
- [3] Unemori M, Matsuya Y, Akashi A, et al. Self-etching adhesives and postoperative sensitivity [J]. Am J Dent, 2004, 17(3): 191-195. DOI: 10.1080/00016350410001504.
- [4] Van Landuyt KL, Mine A, De Munck J, et al. Are one-step adhesives easier to use and better performing? Multifactorial assessment of contemporary one-step self-etching adhesives [J]. J Adhes Dent, 2009, 11(3): 175-190. DOI: 10.0000/PMID19603581.
- [5] Yamauchi K, Tsujimoto A, Jurado CA, et al. Etch-and-rinse vs self-etch mode for dentin bonding effectiveness of universal adhesives [J]. J Oral Sci, 2019, 61(4): 549-553. DOI: 10.2334/josn.18-0433.
- [6] 卞雨晴,马一丹,代东跃,等.单宁酸的生物学特征及在医学和口腔医学领域的应用价值[J].中国组织工程研究,2019,23(2):284-290. DOI:10.3969/j.issn.2095-4344.1516.
- [7] Díaz Carrasco JM, Redondo EA, Pin Viso ND, et al. Tannins and Bacitracin Differentially Modulate Gut Microbiota of Broiler Chickens [J]. Biomed Res Int, 2018, 2018: 1879168. DOI: 10.1155/2018/1879168.
- [8] Marrasini C, Peralta I, Anesini C. Comparative study of the polyphenol content-related anti-inflammatory and antioxidant activities of two *Urera aurantiaca* specimens from different geographical areas [J]. Chin Med, 2018, 13: 22. DOI: 10.1186/s13020-018-0181-1.
- [9] Aguiar Galvão WR, Braz Filho R, Canuto KM, et al. Gastroprotective and anti-inflammatory activities integrated to chemical composition of *Myracrodruon urundeuva* Allemão - a conservationist proposal for the species [J]. J Ethnopharmacol, 2018, 222: 177-189. DOI: 10.1016/j.jep.2018.04.024.
- [10] Savelyev N, Baykuzina P, Dokudovskaya S, et al. Comprehensive analysis of telomerase inhibition by gallotannin [J]. Oncotarget, 2018, 9(27): 18712-18719. DOI: 10.18632/oncotarget.24642.
- [11] Bedran-Russo AK, Pashley DH, Agee K, et al. Changes in stiffness of demineralized dentin following application of collagen crosslinkers [J]. J Biomed Mater Res B Appl Biomater, 2008, 86(2): 330-334. DOI: 10.1002/jbm.b.31022.
- [12] Boruziniat A, Babazadeh M, Gifani M, et al. Effect of Tannic Acid Application on Durability of Bond of Etch and Rinse Adhesive Resins [J]. J Dent Mater Tech, 2017, 6(3): 125-130. DOI: 10.22038/jdmt.2017.9014.
- [13] Sano H, Chowdhury AFMA, Saikaew P, et al. The microtensile bond strength test: Its historical background and application to bond testing [J]. Jpn Dent Sci Rev, 2020, 56(1): 24-31. DOI: 10.1016/j.jdsr.2019.10.001.
- [14] Sano H, Shono T, Sonoda H, et al. Relationship between surface area for adhesion and tensile bond strength--evaluation of microtensile bond test [J]. Dent Mater, 1994, 10(4): 236-240. DOI: 10.1016/0109-5641(94)90067-1.
- [15] Goracci C, Sadek FT, Monticelli F, et al. Influence of substrate, shape, and thickness on microtensile specimens' structural integrity and their measured bond strengths [J]. Dent Mater, 2004, 20(7): 643-654. DOI: 10.1016/j.dental.2003.08.009.
- [16] Nakabayashi N, Kojima K, Masuhara E. The promotion of adhesion by the infiltration of monomers into tooth substrates [J]. J Biomed Mater Res, 1982, 16(3): 265-273. DOI: 10.1002/jbm.820160307.
- [17] Van Meerbeek B, Dhém A, Goret-Nicaise M, et al. Comparative SEM and TEM examination of the ultrastructure of the resin-

- dentin interdiffusion zone [J]. J Dent Res, 1993, 72 (2) : 495 - 501. DOI:10.1177/00220345930720020501.
- [18] Eiek JD, Miller RG, Robinson SJ, et al. Quantitative analysis of the dentine adhesive interface by auger spectroscopy [J]. J Dent Res, 1996, 75 (4) : 1027-1033. DOI:10.1177/00220345960750040501.
- [19] 朱晓鸣,齐璇,李德利,等. 不同温度新型大气压冷等离子体处理对牙本质粘接强度的影响[J]. 北大医学学报(医学版), 2019, 51 (1) : 43-48. DOI:10.19723/j.issn.1671-167X.2019.01.008.
- [20] Okamoto Y, Heeley JD, Dogon IL, et al. Effects of phosphoric acid and tannic acid on dentine collagen [J]. J Oral Rehabil, 1991, 18(6):507-512. DOI:10.1111/j.1365-2842.1991.tb00073.x.
- [21] Federlin M, Hiller KA, Schmalz G. Effect of selective enamel etching on clinical performance of CAD/CAM partial ceramic crowns luted with a self-adhesive resin cement [J]. Clin Oral Investig, 2014, 18 (8) : 1975-1984. DOI:10.1007/s00784-013-1173-2.
- [22] Bedran - Russo AK, Yoo KJ, Ema KC, et al. Mechanical properties of tannic-acid-treated dentin matrix [J]. J Dent Res, 2009, 88(9):807-811. DOI:10.1177/0022034509342556.
- [23] 鄢晓媛,陈玥,李轲,等. 交联剂在抑制基质金属蛋白酶与提高粘接耐久性领域的研究进展[J/CD]. 中华口腔医学研究杂志(电子版), 2019, 13(5):311-316. DOI:10.3877/cma.j.issn.1674-1366.2019.05.009.
- [24] 魏裕,王君. 牙本质半胱氨酸组织蛋白酶研究现状[J]. 口腔医学研究, 2020, 36(1):16-19. DOI:10.13701/j.cnki.kqxyj.2020.01.005.
- [25] Breschi L, Maravic T, Cunha SR, et al. Dentin bonding systems: From dentin collagen structure to bond preservation and clinical applications [J]. Dent Mater, 2018, 34 (1) : 78-96. DOI:10.1016/j.dental.2017.11.005.
- [26] Betancourt DE, Baldion PA, Castellanos JE. Resin - Dentin Bonding Interface: Mechanisms of Degradation and Strategies for Stabilization of the Hybrid Layer [J]. Int J Biomater, 2019, 2019: 5268342. DOI:10.1155/2019/5268342.
- [27] Nishitani Y, Yoshiyama M, Wadgaonkar B, et al. Activation of gelatinolytic/collagenolytic activity in dentin by self - etching adhesives [J]. Eur J Oral Sci, 2006, 114 (2) : 160-166. DOI:10.1111/j.1600-0722.2006.00342.x.
- [28] Mazzoni A, Pashley D, Nishitani Y, et al. Reactivation of inactivated endogenous proteolytic activities in phosphoric acid-etched dentine by etch - and - rinse adhesives [J]. Biomaterials, 2006, 27 (25) : 4470-4476. DOI:10.1016/j.biomaterials.2006.01.040.
- [29] Tersariol IL, Geraldini S, Minciotti CL, et al. Cysteine cathepsins in human dentin-pulp complex [J]. J Endod, 2010, 36 (3) : 475-481. DOI:10.1016/j.joen.2009.12.034.
- [30] Tekçe N, Tuncer S, Demirci M, et al. Do matrix metalloproteinase inhibitors improve the bond durability of universal dental adhesives? [J]. Scanning, 2016, 38 (6) : 535-544. DOI:10.1002/sca.21293.
- [31] Hass V, Luque - Martinez I, Muñoz MA, et al. The effect of proanthocyanidin - containing 10% phosphoric acid on bonding properties and MMP inhibition [J]. Dent Mater, 2016, 32 (3) : 468-475. DOI:10.1016/j.dental.2015.12.007.

(收稿日期:2020-04-21)

(本文编辑:王嫚)