

# 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

朱晓鸣<sup>1</sup> 齐璇<sup>2</sup> 李德利<sup>1</sup> 张玉玮<sup>3</sup> 李和平<sup>4</sup> 谭建国<sup>2, Δ</sup>

(1. 北京大学口腔医学院·口腔医院, 第二门诊部 国家口腔疾病临床医学研究中心 口腔数字化医疗技术和材料国家工程实验室 口腔数字医学北京市重点实验室, 北京 100101; 2. 北京大学口腔医学院·口腔医院修复科, 北京 100081; 3. 航天中心医院口腔科, 北京 100049; 4. 清华大学工程物理系, 北京 100084)

**[摘要]** 目的: 研究不同温度条件下新型大气压冷等离子体(radio-frequency atmospheric-pressure glow discharge, RF-APGD)处理对牙本质粘接强度的影响。方法: (1) 收集新鲜拔除的、无龋坏的、完整的第三磨牙 52 颗, 采用精密低速切割机制备平行于殆中层牙本质薄片, 每颗离体牙制备 1 片 [(900 ± 100) μm]。将 52 个中层牙本质薄片随机分为对照组和实验组, 其中对照组 4 片, 无处理; 实验组 48 片, 按新型 RF-APGD 等离子体不同处理温度(4 °C、10 °C、20 °C、30 °C) 平均分为 4 组, 每组 12 片。每组按照不同处理时间(10 s、20 s、30 s) 平均分为 3 个小组, 每组 4 片。采用扫描电镜观察脱矿牙本质表面形貌。(2) 收集 20 颗完整第三磨牙随机分为对照组和 4 个实验组, 每组 4 颗。对照组, 无处理; 4 °C、10 °C、20 °C 和 30 °C 4 个实验组, 每组采用新型 RF-APGD 等离子体处理 20 s。实验组及对照组采用低速水冷精密切割机垂直于牙长轴去除殆面牙釉质, 暴露中层牙本质; 采用 32% 磷酸酸蚀剂对牙本质表面进行酸蚀; 采用牙本质粘接剂和树脂进行牙本质-树脂粘接, 采用万能力学机进行牙本质-树脂粘接试件即刻微拉伸强度测定, 观察不同温度新型 RF-APGD 等离子体处理对牙本质-树脂即刻粘接性能的影响。结果: (1) 扫描电镜观察脱矿牙本质表面形貌显示, 30 °C 和 20 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理组, 脱矿牙本质胶原纤维表面经新型 RF-APGD 等离子体处理 10 s 即会出现微结构的破坏; 10 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质表面 20 s, 即会出现牙本质胶原纤维之间间隙变小、表面结构坍塌等现象; 4 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理 10 s、20 s 及 30 s, 脱矿牙本质表面胶原纤维网状结构均能维持蓬松结构。(2) 牙本质-树脂即刻微拉伸强度结果显示, 对照组为(47.4 ± 0.5) MPa, 4 °C、10 °C、20 °C 和 30 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理组分别为(57.8 ± 0.7) MPa、(51.9 ± 0.7) MPa、(29.7 ± 1.0) MPa 和(22.2 ± 1.5) MPa, 其中 4 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理组所获得的微拉伸强度最高, 与其他各组相比, 差异具有统计学意义( $P < 0.05$ ), 4 °C 和 10 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理组和对照组相比, 牙本质-树脂微拉伸粘接强度分别提高了 21.9% 和 9.5%。结论: 4 °C 新型 RF-APGD 等离子体对脱矿牙本质胶原纤维的处理, 较更高温度的新型 RF-APGD 等离子体更有利于提高牙本质-树脂的即刻粘接性能。

**[关键词]** 等离子体; 胶原纤维; 微拉伸粘接强度

**[中图分类号]** R783.4 **[文献标志码]** A **[文章编号]** 1671-167X(2019)01-0043-06

**doi:** 10.19723/j.issn.1671-167X.2019.01.008

## Effect of a novel cold atmospheric plasma jet treatment with different temperatures on resin-dentin bonding

ZHU Xiao-ming<sup>1</sup>, QI Xuan<sup>2</sup>, LI De-li<sup>1</sup>, ZHANG Yu-wei<sup>3</sup>, LI He-ping<sup>4</sup>, TAN Jian-guo<sup>2, Δ</sup>

(1. Second Clinical Division, Peking University School and Hospital of Stomatology & National Clinical Research Center for Oral Diseases & National Engineering Laboratory for Digital and Material Technology of Stomatology & Beijing Key Laboratory of Digital Stomatology, Beijing 100101, China; 2. Department of Prosthodontics, Peking University School and Hospital of Stomatology, Beijing 100081, China; 3. Department of Stomatology, Aerospace Center Hospital, Beijing 100049, China; 4. Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

**ABSTRACT Objective:** To investigate the effect of different treatment temperatures of a novel cold atmospheric plasma jet treatment on the resin-dentin bonding. **Methods:** (1) Fifty-two freshly extracted, non-carious and intact third molars were collected. The occlusal one-third of the crown was removed by means of a water-cooled low-speed Isomet saw. One dentin disc [(900 ± 100) μm] was prepared for

基金项目: 国家自然科学基金(812200805) Supported by the National Natural Science Foundation of China (812200805)

Δ Corresponding author's e-mail, kqtanjg@bjmu.edu.cn

网络出版时间: 2018-12-17 13:15:54 网络出版地址: <http://www.cnki.net/kcms/detail/11.4691.R.20181213.1613.009.html>

each tooth. The fifty-two dentin discs were randomly divided into control group and experimental groups, of which four were in control group, and forty-eight were divided into four experimental groups according to the different treatment temperatures (4 °C, 10 °C, 20 °C and 30 °C) of the novel radio-frequency atmospheric-pressure glow discharge (RF-APGD) plasma jet, twelve in each group. Each experimental group was divided into three subgroups according to different treatment time (10 s, 20 s and 30 s), with four in each subgroup. The occlusal one-third of the crown was removed by means of a water-cooled low-speed Isomet saw. The morphology of demineralized dentin surfaces was analyzed using field emission scanning electron microscopy. (2) Twenty unerupted, non-carious and intact third molars were randomly divided into five groups, four in each group: control group, untreated; 4 °C, 10 °C, 20 °C and 30 °C experimental groups, each group was treated with the RF-APGD plasma jet for 20 s. The micro-tensile resin dentin bond strength was tested after 20 s RF-APGD plasma jet treatment with different temperatures, using a universal mechanical machine. **Results:** (1) The field emission scanning electron microscopy results indicated that when compared with the control group, a 10 s RF-APGD plasma jet treatment with 30 °C and 20 °C collapsed the collagen scaffold. Collagen fibrils maintained an uncollapsed three-dimensional structure after the 4 °C RF-APGD plasma jet treatment for even 30 s treatment. (2) The microtensile resin dentin bond strength results of the 4 °C RF-APGD plasma jet treatment group ( $57.8 \pm 0.7$ ) MPa were significantly higher than that of the control group [ $47.4 \pm 0.5$ ] MPa and 10 s, 20 s and 30 s RF-APGD plasma treatment group [ $51.9 \pm 0.7$ ] MPa, [ $29.7 \pm 1.0$ ] MPa and [ $22.2 \pm 1.5$ ] MPa with statistically significant difference ( $P < 0.05$ ). Compared with the control group, the micro-tensile bond strength increased about 21.9% and 9.5% after 4 °C and 10 °C RF-APGD plasma jet treatment, respectively. **Conclusion:** Compared with other treatment temperatures, this novel RF-APGD plasma jet treatment with the temperature of 4 °C can preserve the three-dimensional morphology of demineralized dentin better, and can improve the resin-dentin bonding.

**KEY WORDS** Plasma; Dentin collagen; Micro-tensile bond strength

近年来,大气压冷等离子体处理作为一种新兴的物理处理方法,被研究人员引入到牙本质粘接研究领域。研究发现,大气压冷等离子体处理可以有效改变牙本质表面物理、化学和生物性能,如可以显著增强牙本质表面的湿润性、增加胶原纤维表面含氧官能团的嫁接及促进粘接树脂渗透性、形成更加有利于提高粘接耐久性的混合层结构等<sup>[1]</sup>,因此,大气压冷等离子体处理被认为是一种新型的、清洁的、高效的牙本质表面处理技术。

目前,应用于牙本质粘接领域的大气压冷等离子体多为射流温度控制在 30 °C 左右的传统等离子体,这种传统等离子体所应用的是介质阻挡放电模式,其在放电过程中有可能会形成局部温度和能量过高的丝状放电,对热敏感性较高的生物材料会产生结构和性能的破坏作用<sup>[2]</sup>,而脱矿牙本质中的胶原纤维恰巧是一种对温度敏感的生物材料,因此,随着等离子体处理技术在牙本质粘接领域研究的进展,研究者也逐渐注意到传统等离子体处理在发挥牙本质表面性能改善作用的同时,可能会对脱矿牙本质胶原纤维产生蚀刻效应<sup>[3-4]</sup>,所以选择适宜的大气压冷等离子体处理的放电模式和参数,是避免其对牙本质胶原纤维蚀刻产生效应和促进其对牙本质-树脂粘接性能改善的关键。本课题组先前的研究证明,新型大气压冷等离子体(radio-frequency atmospheric-pressure glow discharge, RF-APGD)较传统等离子体更有利于牙本质胶原纤维三维形貌的保

存和牙本质-树脂粘接耐久性的提高<sup>[5]</sup>,但是,关于不同新型 RF-APGD 等离子体放电温度对牙本质胶原纤维和牙本质-树脂粘接性能的影响目前还没有研究。

本研究旨在探讨不同温度新型大气压冷等离子体处理对脱矿牙本质胶原纤维表面形貌和牙本质-树脂粘接强度的影响,以期对大气压冷等离子体处理对改善牙本质-树脂粘接的临床应用创造良好的条件。

## 1 资料与方法

### 1.1 大气压冷等离子体发生装置

选用清华大学工程物理学院等离子与健康课题组的新建 RF-APGD 等离子体,采用辉光放电原理,发生装置由等离子体发生器、冷却装置、电特性测量装置、等离子体发射光谱特性采集装置以及图像的采集和处理装置组成,其中发生器包括固态射频电源频率为 13.56 MHz,放电源气体为氦气(He),放电气流量为 0.24 m<sup>3</sup>/h,放电功率为 15 W,所采用的实验射流温度为 4 °C、10 °C、20 °C 和 30 °C。

### 1.2 试验材料

于北京大学口腔医院颌面外科收集未萌出、无龋坏、完整的第三磨牙 72 颗,拔除的离体牙放置于 4 °C 含有 0.02% 叠氮化钠的生理盐水中,拔除 1 个月内使用。本研究由北京大学口腔医院伦理委员会审查通过,批准号为 PKUSSIRB-201522043,患者均签署知情同意书。

### 1.3 脱矿牙本质表面形貌观测

**1.3.1 试件制作** 选取离体牙 52 颗,采用精密低速切割机(Isomet, Buehler 公司,美国)垂直于牙长轴,去除殆面牙釉质,每颗离体牙制备平行于殆面的中层牙本质薄片 1 片 [ $900 \pm 100$   $\mu\text{m}$ ],获得 52 个中层牙本质薄片。采用体视显微镜(SMZ 1500, Nikon 公司,日本)下确认牙本质表层无残留釉质。使用 600 目碳化硅水砂纸在流动蒸馏水下打磨 60 s 制备玷污层。用 32% 磷酸酸蚀剂(Uni-etch BAC 32%, Bisco 公司,美国)酸蚀牙本质表面 15 s,采用三用枪大量水雾冲洗 1 min 备用。

**1.3.2 实验分组** 将 52 片备用的中层牙本质薄片随机分为对照组和实验组,其中对照组 4 片,无处理;试验组 48 片,按新型 RF-APGD 等离子体不同处理温度(4  $^{\circ}\text{C}$ 、10  $^{\circ}\text{C}$ 、20  $^{\circ}\text{C}$ 、30  $^{\circ}\text{C}$ )平均分为 4 大组,每大组 12 片。每大组按照不同处理时间(10 s、20 s、30 s)平均分为 3 个小组,每小组 4 片。

**1.3.3 扫描电镜观察** 乙醇梯度脱水(25% 乙醇 10 min、50% 乙醇 10 min、75% 乙醇 10 min、95% 乙醇 10 min、100% 乙醇 30 min 2 次),全自动临界点干燥仪(EM CPD300, Lecia 公司,德国)干燥、喷金,将样品放入场扫描电镜(Helios Nanolab 600i, FEI 公司,美国)进行观察。

### 1.4 牙本质-树脂粘接试件即刻微拉伸强度测定

**1.4.1 实验分组** 收集 20 颗完整第三磨牙随机分为 5 组,每组 4 颗。对照组,无处理;4  $^{\circ}\text{C}$ 、10  $^{\circ}\text{C}$ 、20  $^{\circ}\text{C}$  和 30  $^{\circ}\text{C}$  4 个实验组每组采用新型 RF-APGD 等离子体处理 20 s。

**1.4.2 试件制作** 精密低速切割机垂直于牙长轴,去除殆面牙釉质,暴露中层牙本质,金刚砂车针磨除周围牙釉质,600 目碳化硅水磨砂纸湿打磨牙本质表面 60 s 以制备玷污层。用 32% 磷酸酸蚀剂酸蚀牙本质表面 15 s,采用三用枪大量水雾冲洗 1 min。采用小毛刷充分蘸取粘接剂(Single Bond 2, 3M 公司,德国)涂布在酸蚀后牙本质表面,气枪轻吹使之形成一薄层,重复 2 次,LED 光固化灯(Elipar Free Light 2, 3M 公司,德国)固化 20 s;用树脂刀分层堆塑树脂(Clearfil AP-X A2, Kuraray 公司,日本),每层约 1.5 mm,共 3 层,并分层固化 20 s。

**1.4.3 微拉伸实验** 完成粘接后的牙齿储存于 37  $^{\circ}\text{C}$  去离子水中 1 d,使用精密切割机垂直于粘接界面将试件切成截面面积为 0.7 mm  $\times$  0.7 mm 的条形试件。每颗牙齿得到 20 ~ 28 个试件,随机选取 16 个试件用于即刻微拉伸粘接强度的测定。使用电子游

标卡尺(恒量公司,上海)测量粘接界面的长、宽值,测量精度为 0.01 mm。将条状微拉伸实验试件用氰基丙烯酸盐粘接剂(Zapit, Dental Venture 公司,美国)固定到微拉伸夹具上,置于万能力学机(EZ-L, Shimadzu 公司,日本)上,以 1.0 mm/min 的速度进行拉伸,直至试件断裂并记录断裂载荷。微拉伸粘接强度的计算公式为:微拉伸粘接强度(MPa) = 断裂拉力值(N) / 粘接面积( $\text{mm}^2$ )。

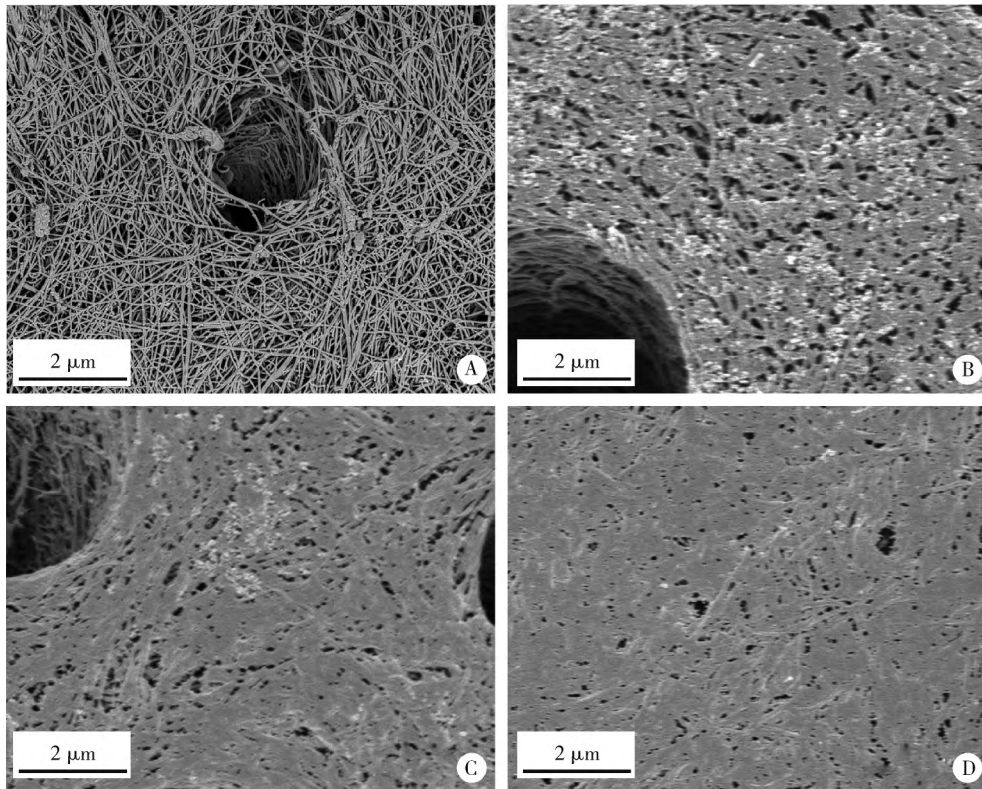
### 1.5 统计学分析

计量数据以均数  $\pm$  标准差表示,即刻微拉伸粘接强度结果采用统计软件 SPSS 20.0 (IBM 公司,美国)进行单因素方差分析(One-Way ANOVA),比较各组即刻微拉伸强度均值的差异,采用 Bonferroni 法进行多重比较,均采用双侧检验,以  $P < 0.05$  为差异有统计学意义。

## 2 结果

### 2.1 脱矿牙本质表面形貌

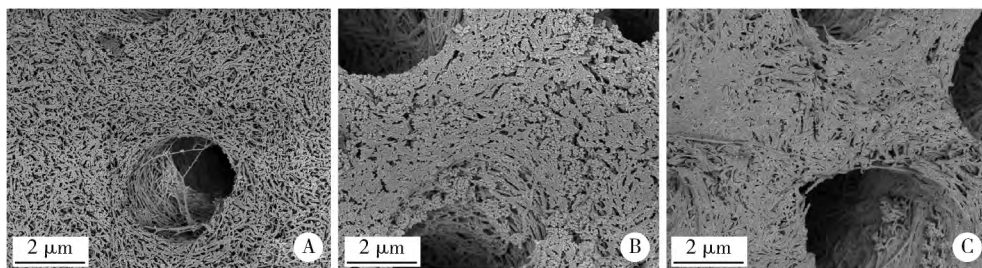
扫描电镜观察发现,对照组脱矿牙本质表面胶原纤维连续、舒展,三维结构完整(图 1A)。与对照组相比较,30  $^{\circ}\text{C}$  新型 RF-APGD 等离子体处理 10 s、20 s 和 30 s 后,扫描电镜结果均显示牙本质胶原纤维聚集呈现片状,胶原间隙丧失(图 1B、C、D)。20  $^{\circ}\text{C}$  新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质表面 10 s,管周胶原纤维断裂、不连续,胶原之间间隙变小(图 2A); 20  $^{\circ}\text{C}$  新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质表面 20 s 后,脱矿牙本质表面微结构部分坍塌,胶原纤维出现部分聚集现象,胶原纤维之间间隙明显变小(图 2B); 20  $^{\circ}\text{C}$  新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质表面 30 s,脱矿牙本质表面网状结构基本消失,无法辨认胶原形态(图 2C)。10  $^{\circ}\text{C}$  新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质表面 10 s 后,扫描电镜显示胶原纤维部分断裂,但仍能呈现蓬松网状结构(图 3A); 10  $^{\circ}\text{C}$  新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质表面 20 s 后,表层及表层下方胶原纤维大部分断裂、不连续,胶原纤维之间间隙变小(图 3B); 10  $^{\circ}\text{C}$  新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质表面 30 s 后,扫描电镜示部分胶原纤维呈现聚集现象,纤维之间间隙变小; 10  $^{\circ}\text{C}$  新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质表面 40 s 后,无法辨认胶原纤维形态,胶原间隙完全丧失,无多孔性结构(图 3C)。4  $^{\circ}\text{C}$  新型 RF-APGD 等离子体处理 10 s、20 s 及 30 s 后(图 4A、B、C),扫描电镜结果显示,脱矿牙本质表面维持蓬松结构,胶原间间隙,与对照组未见明显差异。



A , control; B , 10 s; C , 20 s; D , 30 s.

图 1 对照组及 30 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质扫描电镜结果

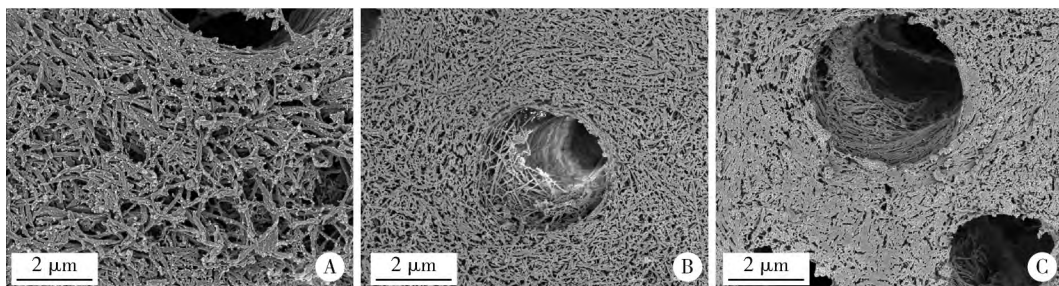
Figure 1 Typical field emission scanning electron microscopy micrographs of the untreated acid-etched dentin and the acid-etched dentin treated by the 30 °C RF-APGD plasma jet for different treatment times



A , 10 s; B , 20 s; C , 30 s.

图 2 20 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质扫描电镜结果

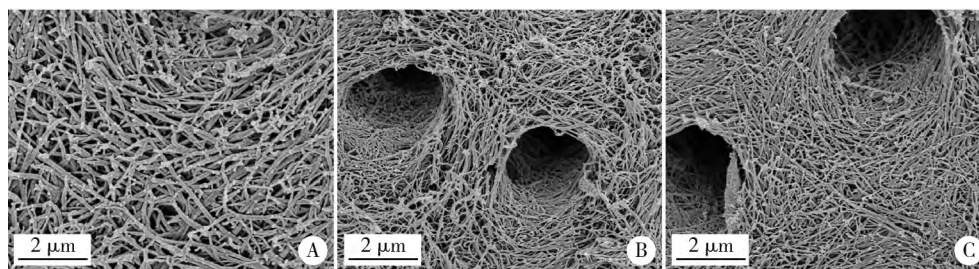
Figure 2 Typical field emission scanning electron microscopy micrographs of the acid-etched dentin treated by the 20 °C RF-APGD plasma jet for different treatment times



A , 10 s; B , 20 s; C , 30 s.

图 3 10 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质扫描电镜结果

Figure 3 Typical field emission scanning electron microscopy micrographs of the acid-etched dentin treated by the 10 °C RF-APGD plasma jet for different treatment times



A, 10 s; B, 20 s; C, 30 s.

图4 4 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质扫描电镜结果

Figure 4 Typical field emission scanning electron microscopy micrographs of the acid-etched dentin treated by the 4 °C RF-APGD plasma jet for different treatment times

## 2.2 牙本质-树脂即刻微拉伸粘接强度

4 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理组所获得的微拉伸强度最高为  $(57.8 \pm 0.7)$  MPa, 较对照组  $(47.4 \pm 0.5)$  MPa 提高了 21.9%, 与其他各处理组相比差异具有统计学意义 ( $P < 0.05$ )。10 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理组 [ $(51.9 \pm 0.7)$  MPa] 较对照组提高了 9.5%, 差异具有统计学意义 ( $P < 0.05$ )。30 °C 和 20 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理组的平均微拉伸强度最低, 分别为  $(22.2 \pm 1.5)$  MPa 和  $(29.7 \pm 1.0)$  MPa, 二者之间差异有统计学意义 ( $P < 0.05$ ), 与对照组比较有明显降低 ( $P < 0.05$ )。

## 3 讨论

在全酸蚀粘接系统中, 经过 30% ~ 40% 的磷酸处理牙本质表面后矿物质部分溶解, 经水雾冲洗后被水分子替代, 其中胶原纤维占 30%, 水占 70%。大量研究证明, 湿润状态下脱矿牙本质基质是一种纳米级别的生物多孔性结构, 其中胶原纤维的直径约 50 ~ 100 nm, 胶原纤维之间的间隙约为 10 ~ 30 nm<sup>[6]</sup>。这种胶原纤维网状结构对外界环境和处理条件十分敏感, 有可能会发生表面微结构的破坏, 直接影响牙本质粘接强度。

大气压冷等离子体中富含基态或激发态的原子、分子、自由基和光子等活性粒子, 这些活性成分可以对生物材料表面进行改性, 主要分为以下两种形式: 促进高分子材料表面发生功能化及交联的改性作用和对材料表面产生蚀刻作用, 其中蚀刻作用主要表现在等离子体射流中能量分子对生物材料的表面轰击和热蚀刻效应<sup>[4]</sup>。本研究中所采用的新型 RF-APGD 等离子体是一种新型研发的、简易的等离子体处理装置, 射流笔可移动且外接绝缘介质, 并且其射流温度是由电源功率以及冷却装置中冷却工质的流量共同调节, 因此不仅能够非常方便、安全地应用于生物医学中, 还可以准确、稳定的控制其射

流温度。对于口腔临床医学来说, 新型 RF-APGD 等离子体可以通过便携的射流笔输出装置, 实现临床上不同温度等离子体射流对天然牙的处理。再者, 相较之前研究中所采用的传统等离子体, 本研究中所采用的新型 RF-APGD 等离子体在射流粒子活性含量不变的情况下, 具有能量输出更加均匀的特性, 这一特性可以显著降低新型 RF-APGD 等离子体射流中活性粒子成分对脱矿牙本质表面胶原纤维的“轰击”蚀刻效应。然而, 30 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质胶原纤维表面 10 s 即会出现微结构的破坏(图 1B), 这可能与牙本质胶原纤维在 40 °C 左右时会发生胶原的永久变性有关<sup>[7-8]</sup>, 因为在等离子体放电过程中, 外部电路中会出现热量及能量的积存, 其射流温度的绝对值通常会超过室温约 5 ~ 15 °C。以新型 RF-APGD 等离子体 30 °C 的初始表面温度作为累计起点, 经过热量累积后, 与胶原纤维发生永久变性的温度相接近, 引起牙本质胶原纤维的变性。Chen 等<sup>[9]</sup>通过分析等离子体处理前后牙本质胶原纤维中的酰胺 A、B 和 C 的峰值位置变化, 证明了大气压冷等离子体处理会导致胶原纤维 II 级结构的改变。采用 10 °C 新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质胶原纤维时, 尽管处理 10 s 后脱矿牙本质仍有一定的网状结构, 但是其胶原纤维已经出现断裂、不连续的情况(图 3A), 这时胶原纤维表面结构的破坏, 是与新型 RF-APGD 等离子体射流中的大量高能活性粒子与脱矿牙本质表面碰撞所产生蚀刻效应有关, 因为以 10 °C 的初始表面温度作为累计起点, 与胶原纤维发生永久变性的温度有较大差距。有学者研究大气压冷等离子体处理天然皮革表面后, 显微镜观察皮革表面样貌, 原本清晰的毛孔变得模糊, 经长时间的等离子体处理后, 原本微凸出部分被破坏<sup>[10]</sup>, 说明等离子体射流温度为 10 °C 时, 新型 RF-APGD 等离子体仍不能长时间的作用于脱矿牙本质表面, 而将新型 RF-APGD 等离子

体的处理温度降低至 4 ℃ 后,处理前后胶原纤维始终能保持蓬松、立体的表面形貌(图 4C),说明 4 ℃ 的射流温度条件,能够同时解决大气压冷等离子体处理的温度和能量两种对脱矿牙本质胶原纤维的蚀刻效应。Zhu 等<sup>[11]</sup> 通过对比传统等离子体和新型 RF-APGD 等离子体处理脱矿牙本质发现,拥有更低温度的新型 RF-APGD 等离子体能量更为均匀,能够有效提高牙本质的粘接性能,并且在本研究中对照组及实验组脱矿牙本质片在经过等离子体处理后均用去离子水重新湿润,排除了胶原纤维塌陷是由于大气压冷等离子体射流压力和处理后失水等原因造成<sup>[12]</sup> 进一步说明牙本质胶原纤维表面微结构的破坏与不同温度新型 RF-APGD 等离子体的处理效果有关。

结合本研究中扫描电镜所观察到的表面形貌变化结果,除 30 ℃ 新型 RF-APGD 等离子体处理 10 s、20 s 和 30 s 后胶原纤维聚集呈现片状,胶原间隙丧失外,20 ℃ 和 10 ℃ 新型 RF-APGD 等离子体处理 20 s 后胶原纤维表面呈现部分塌陷现象。然而,牙本质胶原纤维表面的活性位点的出现,以及活性位点与官能团直接的结合,均需要一定时间的等离子体处理过程才能实现。基于本课题组之前的研究,新型大气压冷等离子体在保证良好牙本质-树脂粘接强度的前提下,对牙本质胶原纤维的化学改性时间为 30 s<sup>[11]</sup>,因此,本研究中我们选取了处理时间为 20 s 不同温度大气压冷等离子体处理组作为牙本质-树脂粘接强度的研究对象,在保证胶原纤维形貌部分完整的条件下,最大程度地发挥新型 RF-APGD 等离子体处理对脱矿牙本质的改性效果。即刻微拉伸研究结果显示,4 ℃ 和 10 ℃ 新型 RF-APGD 等离子体处理 20 s 组较对照组的即刻微拉伸强度分别提高了 21.9% 和 9.5%,这一研究结果说明新型 RF-APGD 等离子体处理可以增强脱矿牙本质表面的改性,有效提高牙本质-树脂的即刻粘接强度,并且 4 ℃ 新型 RF-APGD 等离子体处理后牙本质即刻微拉伸强度明显增高,与其余各实验组差异有统计学意义( $P < 0.05$ ),这一结果与扫描电镜结果相呼应。脱矿的牙本质胶原纤维与粘接树脂之间形成的混合层是牙本质粘接的基础,良好的脱矿牙本质表面形貌是形成均匀、完整的混合层的前提<sup>[13]</sup>。30 ℃ 及 20 ℃ 新型 RF-APGD 等离子体处理 20 s 后,脱矿牙本质表面胶原纤维形貌均发生了全部或部分的坍塌、破坏,降低了粘接树脂在脱矿牙本质表面的渗透性,从而影响了粘接混合层的形成,导致牙本

质-树脂粘接强度下降。10 ℃ 新型 RF-APGD 等离子体处理组即刻微拉伸粘接强度较对照组提高了 9.5%,但是其扫描电镜结果显示,10 ℃ 新型 RF-APGD 等离子体处理 20 s,脱矿牙本质表面部分胶原纤维坍塌、破坏,因此 10 ℃ 新型 RF-APGD 等离子体对脱矿牙本质的处理仍存在一定的限制,而 4 ℃ 新型 RF-APGD 等离子体处理牙本质表面 20 s 后,脱矿牙本质表面胶原纤维网仍能维持“蓬松”结构,有利于完整的混合层的形成,能够有效提高牙本质-树脂粘接的强度。

本研究提示在临床工作中,使用更低温度的 4 ℃ 新型 RF-APGD 等离子体对脱矿牙本质的处理,更有利于提高牙本质-树脂的即刻粘接性能,为大气压冷等离子体的临床应用奠定了基础。

#### 参考文献

- [1] Liu Y, Liu Q, Yu QS, et al. Nonthermal atmospheric plasmas in dental restoration [J]. *J Dent Res*, 2016, 95(5): 496-505.
- [2] 熊青. 大气压低温等离子体射流的研究[D]. 湖北: 华中科技大学, 2013.
- [3] Lehmann A, Rueppell André, Schindler A, et al. Modification of enamel and dentin surfaces by non-thermal atmospheric plasma [J]. *Plasma Processes Polymer*, 2013, 10(3): 262-270.
- [4] Zhu XM, Zhou JF, Guo H, et al. Effects of a modified cold atmospheric plasma jet treatment on resin-dentin bonding [J]. *Dent Mater J*, 2018, 37(5): 798-804.
- [5] Eick JD, Robinson SJ, Chappell RP, et al. The dentinal surface: its influence on dentinal adhesion. Part III [J]. *Quintessence Int*, 1993, 24(8): 571.
- [6] Pashley DH, Tay FR, Breschi L, et al. State of the art etch-and-rinse adhesives [J]. *Dent Mater*, 2011, 27(1): 1-16.
- [7] Hwang YJ, Lyubovitsky JG. The structural analysis of three-dimensional fibrous collagen hydrogels by raman microspectroscopy [J]. *Biopolymers*, 2013, 99(6): 349-356.
- [8] Steven R, Armstrong JL, Erik W, et al. Effects of polar solvents and adhesive resin on the denaturation temperatures of demineralised dentine matrices [J]. *J Dent*, 2008, 36(1): 8-14.
- [9] Chen M, Zhang Y, Dusevich V, et al. Non-thermal atmospheric plasma brush induces HEMA grafting onto dentin collagen [J]. *Dent Mater*, 2014, 30(12): 1369-1377.
- [10] Choi JH, Lee ES, Hong KB, et al. Surface modification of natural leather using low-pressure parallel plate plasma [J]. *Surf Coat Tech*, 2003, 171(1/2/3): 257-263.
- [11] Zhu XM, Guo H, Zhou JF, et al. Influences of the cold atmospheric plasma jet treatment on the properties of the demineralized dentin surfaces [J]. *Plasma Sci Technol*, 2018, 20(4): 044010.
- [12] Gwinnett AJ. Quantitative contribution of resin infiltration/hybridization to dentin bonding [J]. *Am J Dent*, 1993, 6(1): 7-9.
- [13] Pashley DH, Carvalho RM. Dentine permeability and dentine adhesion [J]. *J Dent*, 1997, 25(5): 355.

(2018-10-11 收稿)  
(本文编辑: 刘淑萍)