

## 各種ボンディングシステムの接着性評価

### (2) エナメル質について

岡田 英俊      石田 喜紀      野口 博志

福井 和徳<sup>1</sup>      菊井 徹哉<sup>2</sup>      長山 克也

#### Evaluation of Adhesive Strength and Durability of Different Bonding Systems

##### (2) Enamel

Hidetoshi OKADA, Yoshinori ISHIDA, Hiroshi NOGUCHI  
Kazunori FUKUI<sup>1</sup>, Tetsuya KIKUI<sup>2</sup> and Katsuya NAGAYAMA

The purpose of this study was to examine and evaluate a possible influence of individual processes in the bonding systems on the adhesive durability of resin composite to enamel. The experiments were performed by 5 dentists. Bovine enamel was used as an adhered, while 6 kinds of bonding systems were used in the experiment. Adhesive specimens were prepared at  $23 \pm 2^\circ\text{C}$  room temperature and  $50 \pm 5\%$  relative humidity. The adhered area was standardized to be 6 mm in diameter by means of masking tape. The adhesive specimens were subjected to durability test by immersing in distilled water at  $37^\circ\text{C}$  for 24 hours (CO) and 30000 cycles of thermal stress at  $4-60^\circ\text{C}$  (TH). After completion of the durability test, shear bond strength test was performed by using an universal testing machine to determine the adhesive strength. The significant difference was then assessed by One way ANOVA and Tukey's HSD test.

The results obtained were as follows :

1. No significant difference was observed in bond strength in the bonding system which adopted acid processing of phosphoric acid among 5 dentists.
2. Significant difference was observed in bond strength in the bonding system which adopted acid processing of 10% citric acid- 3% ferrous chloride between 5 dentists.
3. Significant difference was observed in bond strength in the bonding system which adopted selfetching primer among 5 dentists.

Key words : bonding system, adhesive durability, enamel

受付：平成17年12月26日，受理：平成18年1月20日  
奥羽大学歯学部生体材料学講座  
奥羽大学歯学部成長発育歯学講座歯科矯正学分野<sup>1</sup>  
奥羽大学歯学部歯科保存学講座<sup>2</sup>

Department of Biomaterials Science, Ohu University  
School of Dentistry  
Division of Orthodontics and Dentofacial Orthopedics,  
Department of Oral Growth and Development,  
Ohu University School of Dentistry<sup>1</sup>  
Department of Conservative dentistry, Ohu University  
School of Dentistry<sup>2</sup>

## 緒 言

ボンディングシステムの歯質に対する接着強さは材料の組成によっても変わると考えられるが<sup>1-3)</sup>、酸処理の方式やシステム自体の各ステップ構成、あるいは操作する術者によっても左右されるものと考えられている<sup>4)</sup>。前報<sup>5)</sup>では5人の術者が6種類のボンディングシステムを用いて、牛歯象牙質に対する接着強さを検討した。その結果、同じボンディングシステムであっても術者間で接着強さの傾向が異なるものがいくつか認められた。また、同じ歯質であっても象牙質とエナメル質はその構造や成分構成が違うことから<sup>6)</sup>、同じ接着性材料を用いても、両者における接着傾向の相違が生じることは容易に推察される。近年においては象牙質に対する接着性能や操作性の向上を主眼に材料が研究、開発されてきた。しかし、コンポジットレジン修復において、危惧される二次カリエスの発症を考えると、象牙質よりも歯冠表層にあるエナメル質への接着性が重要と考えられ、また、術者の巧拙によって性能に差異の出にくいシステムが臨床的には有用と考えられた。

そこで今回は前報<sup>5)</sup>と同様に操作環境、被着体を標準化した条件下において、6種のボンディングシステムと牛歯エナメル質との接着耐久性に及ぼす影響について5人の術者により比較検討した。

## 材料と方法

## 1. 実験材料

実験に用いたボンディングシステムのコードと公表されている組成、組み合わせたコンポジットレジンの種類およびメーカーは表1に示す。また、接着試験における被着体は冷凍保存した牛歯を自然解凍後、樹脂包埋し自動回転研磨機にて#600まで研削したエナメル質を用いた。

## 2. 接着試料の作製

被着体に対するボンディング操作、コンポジットレジンの充填および重合操作は室温 $23\pm 2^{\circ}\text{C}$ 、湿度 $50\pm 5\%$ の恒温恒湿中で行った。今回術者として実験へ参加したのは臨床経験年数1~10年の5名(A~E)であり、被着体に対する接着、充填および重合といった一連の操作は各個人それぞれが一人で行った。接着操作に関してはストップウォッチを用意し、表2~7に示す操作過程を各材料ごとに術者に熟知させた。酸処理後の水洗はシリンジにより蒸留水を用いて行い、エア操作は調節弁のあるエアガンを用いた。なお、被着面はマスキングテープにて直径6mmに規定した。また、コンポジットレジンの築盛には内径6mm、高さ10mmのコア用の透明なプラスチックチューブを用いた。プラスチックチューブには被着面から2mmの部位に指標線を明示し、充填

表1 実験材料

コード	組 成		コンポジットレジン
OA	エッチング材 プライマー ボンディング材	リン酸ゲル カルボン酸系モノマー, HEMA, 光重合触媒 Bis-GMA, HEMA, 光重合触媒	Z100 (3M)
SB	エッチング材 ボンディング材	リン酸ゲル HEMA, Bis-GMA, エタノール, 水, 触媒, カルボン酸系モノマー	Z100 (3M)
DL	エッチング材 ボンディング材	クエン酸・塩化第二鉄 MMA, HEMA, EGDMA, 4-META, ポリマー, TBB	クリアフィルA P-X (クラレ)
LB	プライマー ボンディング材	(A)HEMA, MDP, 触媒, 水 (B)水, HEMA, 重合触媒 Bis-GMA, MDP, HEMA, マイクロフィラー, 光重合触媒	クリアフィルA P-X (クラレ)
FB	プライマー ボンディング材	(A)アセトン, 水, 重合触媒, その他 (B)HEMA, 4-AET, アセトン, その他 4-AET, UDMA, TEGDMA, HEMA, 重合触媒, フィラー	ライトフィルII (松風)
MB	プライマー ボンディング材	(A)(B)MAC-10, リン酸系モノマー, アルコール, 水 MAC-10, HEMA, Bis-GMA, TEGDMA, 光重合触媒	パルフィークエステライト (トクヤマ)

表2 OAの操作手順

1. 水洗乾燥
2. エッチングゲルを塗布し、15秒間放置
3. 15秒間水洗
4. エアードライ
5. プライマー塗布
6. 塗布後直ちに弱いエアードライ
7. アドヒーズを薄く均一に塗布
8. 塗布後10秒間照射
9. レジン (Z100, A2) を充填
10. 60秒間照射

表3 SBの操作手順

1. 水洗乾燥
2. エッチャント塗布し、15秒間放置
3. 10秒間水洗
4. 1秒以内の弱いエアードライで、余剰水分の除去
5. アドヒーズを2度塗布
6. マイルドエアードライで2~5秒間乾燥
7. 乾燥後10秒間照射
8. レジン (Z100, A2) を充填
9. 60秒間照射

表4 DLの操作手順

1. 水洗乾燥
2. 表面処理剤塗布し、45秒間放置
3. 十分に水洗乾燥
4. リキッド2滴、キャタリスト1滴で混合液の調整
5. 混合液の塗布
6. 塗布30秒後に軽くエアードライ
7. レジン (AP-X, A2) を充填
8. 60秒間照射

表5 LBの操作手順

1. 水洗乾燥
2. プライマーA, B混和液(等量)塗布し、30秒間放置
3. マイルドエアードライで十分に乾燥
4. ボンディング材を塗布し、エアードライでボンド層の均一化
5. 均一化後20秒間照射
6. レジン (AP-X, A2) を充填
7. 60秒間照射

表6 FBの操作手順

1. 水洗乾燥
2. FBプライマーA, B混和液(等量)塗布し、10秒間放置
3. マイルドエアードライで十分に乾燥
4. FBボンドを均一に塗布後、10秒間照射
5. レジン (ライトフィルⅡ, A2) を充填
6. 60秒間照射

表7 MBの操作手順

1. 水洗乾燥
2. プライマーA, B混和液(等量)塗布し、20秒間放置
3. マイルドエアードライで十分に乾燥
4. ボンディング材を薄く均一に塗布後10秒間照射
5. レジン (エステライト, A2) を充填
6. 60秒間照射

したコンポジットレジンの厚さが2mmとなるようにした。コンポジットレジンの重合はチューブの高さである10mmの高さから、タイマーにより60秒間の光照射により行った。なお、光照射はチューブの上面1方向のみとした。試料数は各実験条件につき10個とした。

### 3. 接着試験

接着試料は重合操作終了後、直ちに37度蒸留水中に24時間浸漬した。接着耐久性試験は下記の2条件とした。

CO：37度蒸留水中に24時間浸漬した条件

TH：4-60℃のサーマルサイクル30000回負荷した条件

以上の耐久性試験終了後、万能試験機にて圧縮剪断接着試験を行い、接着強さを測定した後、各個人およびボンディングシステムごとに集計した値についてOne way ANOVAおよびTukey's HSD test ( $p < 0.05$ )を用いて有意差を検定した。なお、全ての接着試験は試料作製に携わっていない、術者が一人で行った。

## 結 果

OAの接着強さ (MPa) は図1に示す。CO条件ではA, B, C, D, Eの順に21.7, 22.7, 20, 14.2, 23となり、また、TH条件では26.3, 19.4, 23.5, 18.5, 24.4となった。

SBの接着強さ (MPa) は図2に示す。CO条件ではA, B, C, D, Eの順に13.7, 19.9, 19.4, 10.2, 23.9となり、また、TH条件では19.3, 20.2, 15.5, 12.3, 21.3となった。

DLの接着強さ (MPa) は図3に示す。CO条件ではA, B, C, D, Eの順に21.8, 18.5, 18.5, 8.8, 15.3となり、また、TH条件では20.4, 14.9, 11.3, 9.3, 10.9となった。CO, TH条件ともにAに比較しDの値が有意に小さくなっていた。

LBの接着強さ (MPa) は図4に示す。CO条件ではA, B, C, D, Eの順に16.3, 14.2, 12.1, 8.5, 12.6となり、また、TH条件では16.1, 20.5, 13.3, 12.1, 14.3となった。CO条件においてDの値はAに比較して有意に小さくなっていた。

FBの接着強さ (MPa) は図5に示す。CO条件ではA, B, C, D, Eの順に19.7, 9.3, 11.3,

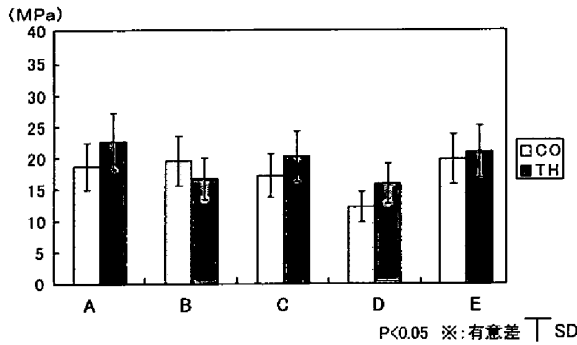


図1 OAの接着強さ

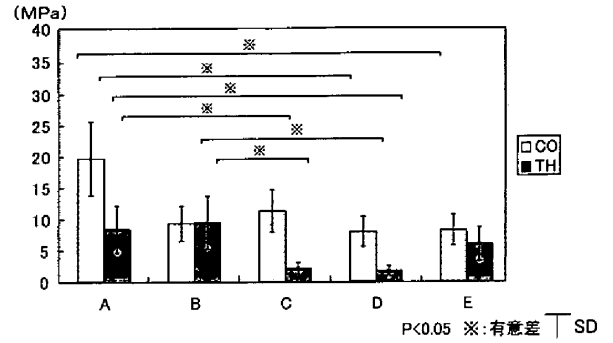


図5 FBの接着強さ

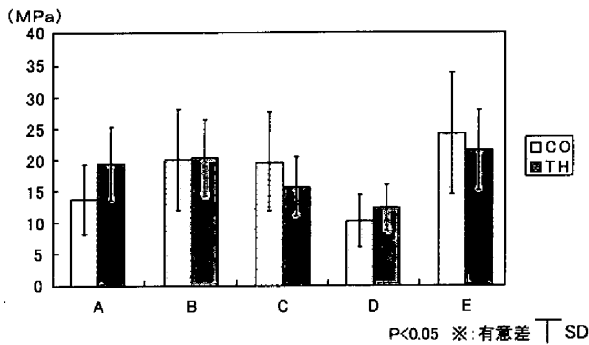


図2 SBの接着強さ

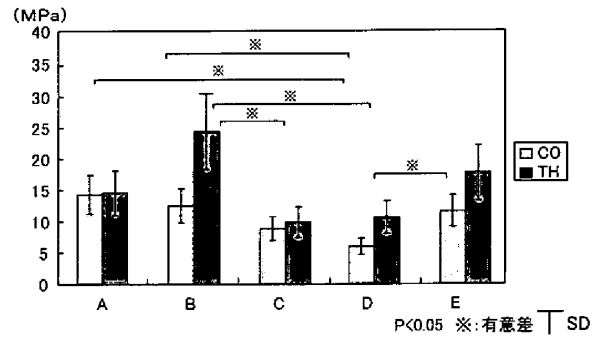


図6 MBの接着強さ

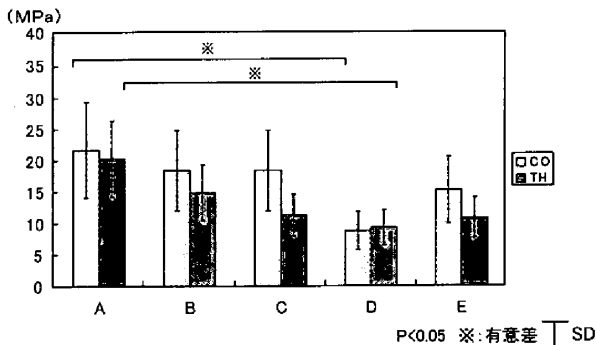


図3 DLの接着強さ

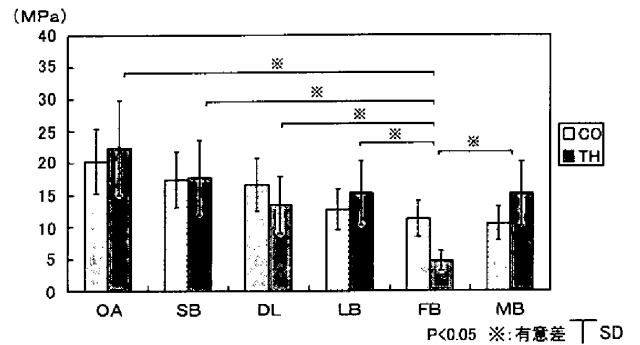


図7 各種ボンディングシステム接着強さの平均

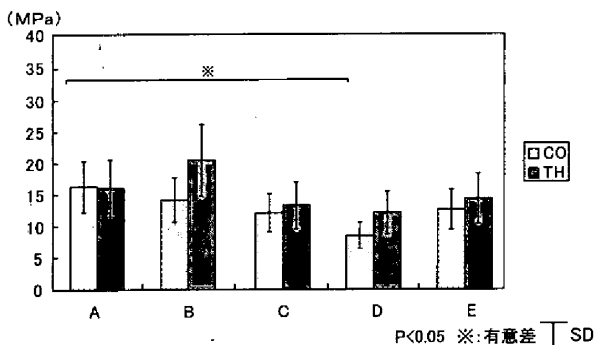


図4 LBの接着強さ

8, 8.2となり, また, TH条件では8.4, 9.4, 2.1, 1.7, 6となった。CO条件においてD, Eの値はAに比較して有意に小さくなっており, TH条件に

においてC, Dの値はA, Bに比較して有意に小さくなっていった。

MBの接着強さ (MPa) は図6に示す。CO条件ではA, B, C, D, Eの順に14.1, 12.3, 8.7, 5.8, 11.4となり, また, TH条件では14.3, 24, 9.7, 10.4, 17.5となった。CO条件においてDの値はA, B, Eに比較して有意に小さくなっており, TH条件においてC, Dの値はBに比較して有意に小さくなっていった。

術者ごとに分類していたデータを各種ボンディングシステムごとに集計し, 平均値化したグラフを図7に示す。CO条件ではOA, SB, DL, LB,

FBおよびMBの順に20.3, 17.4, 16.6, 12.7, 11.3および10.5となり、また、TH条件では22.4, 17.7, 13.4, 15.3, 4.7および15.2となった。FBはTH条件において他のボンディングシステムより有意に大きな値を示した。

## 考 察

コンポジットレジン修復におけるエナメル質との接着耐久性は二次カリエスの発生にも大きく関係する因子<sup>7)</sup>である。ボンディングシステムの接着強さはその構成や操作方法もさることながら操作する術者によっても相違が認められている<sup>4)</sup>。したがって、どの術者においても同様に接着性能を発揮するボンディングシステムが有用な材料と考えられる。そこで、今回は5人の実験者が6種のボンディングシステムを用いた時の、エナメル質とコンポジットレジンの接着強さについて比較検討した。

前報<sup>5)</sup>と同様に今回の研究においてもボンディングシステムの各操作が、歯質への接着強さに影響を及ぼす因子をより明確に検討するため、ボンディング操作以外の歯質接着強さに影響する因子の標準化を図り実験を行った。

各ボンディングシステムごとに実験者間で接着強さの値について有意差検定を行った結果、リン酸によるエッチング操作が採用されているOAとSB以外のシステム全てで有意差が認められた。このことから、エナメル質接着に関してはリン酸エッチングは有効な操作であり、水洗・乾燥といったステップが増加しても術者間における接着強さの相違を生じにくくする操作であることが明らかとなった。エナメル質接着におけるリン酸エッチングの有効性は以前からもいわれている事である<sup>8,9)</sup>。しかし、近年では新製品になる程、テクニカルセンシティブティの影 響からか、リン酸エッチング材の使用を推奨している製品はあるものの、標準ステップとして組み込まれているものは殆ど無い。また、リン酸エッチングは象牙質接着には不向きといった報告も認められるが<sup>10)</sup>、被着体を牛歯象牙質とした前報<sup>5)</sup>では、リン酸によるエッチングを行うOAやSBが他のボンディングシステムよりも接着強さが小さいという事はな

く、さらにOAにおいては術者間での有意差も認められなかった。今回と前報の結果からエナメル質と象牙質が混在する実際の窩洞を考えれば、たとえ操作ステップが増加してもリン酸のエッチング操作を取り入れた方が術者間における接着強さの差異が少なくなり、さらに同じ術者が行う違った症例間でも安定した接着強さが得られる可能性が高いと考えられた。また、今回の実験結果でOAとSBともに術者間での接着強さに有意差は認められなかったが、被着体に牛歯象牙質を用いた前報<sup>5)</sup>ではSBで有意差が認められた。このことからウエットボンディングを採用するシステムにおいては、術者の操作法が接着強さに及ぼす影響は象牙質よりもエナメル質の方が少ないことが明らかとなった。この理由としては組成と構造の違いから、エナメル質の方が象牙質よりも被着面における含水状態に差が生じにくくなっていること<sup>9)</sup>と、エナメル質接着に関してはリン酸による酸処理効果がより大きく生じるため<sup>9)</sup>このような結果になったと考えられた。一方、クエン酸・第二塩化鉄によるエッチングを取り入れているDLでは術者間における接着強さに有意差が認められた(図3)。このことからボンディング材の組成や重合方法に相違があるものの、エナメル質に対する安定した接着強さを得るにはマイルドな酸を使用するよりも、歯質脱灰能が高いリン酸を用いる方が良好ではないかと推察された。

各ボンディングシステム間での接着強さの比較(図7)においては、FBのTH条件で他のボンディングシステムよりも値が有意に小さくなっていった。酸処理を取り入れているOA, SB, DLに関してはFBとの操作手順が違うため一概に比較は出来ないが、システムの構成と操作手順が近似しているLB, MBから考察するとプライマーの作用時間と組成が関連している因子ではないかと考えられた<sup>11)</sup>。FBにおけるプライマーの作用時間は10秒であり、LBと比較して20秒、MBより10秒短い。また、プライマーの組成成分である接着性モノマーにおいてLB, MBはリン酸系が用いられているのに対し、FBではカルボン酸系が用いられている。このことからFBは酸処理を採用しているボンディングシステムはもとより、LB,

MBよりもエナメル質の脱灰性が小さいため<sup>9)</sup>この様な結果になったと考えられ、とくに実験条件としては過酷となるTH条件でその傾向が著明になったと推察された。しかしながら、FBにおいて同じTH条件であっても術者間で接着強さの傾向に差異が認められる事を考慮すると、組成だけの問題ではなく、また、他のシステムでも有意差が認められるのはC, Dに集中していることを併せ考慮すると、前報<sup>5)</sup>で指摘したように術者の認識が大きく影響を及ぼすプライマー、ボンディング材の塗布やエアなどの操作因子も関与しているのではないかと考えられた。

以上のことから、ボンディングシステムのリン酸エッチング処理はテクニカルセンシティブィティやチェアタイム延長といった短所を考慮しても、エナメル質接着に有利であり、象牙質での結果を加味しても臨床的には有効な操作ステップではないかと考えられた。3ステップであるOAにおいて術者間で接着強さの差異が少なかった事を考慮すれば、セルフエッチングを用いている2ステップのもの、あるいはワンステップのボンディングシステムにおいても前処理としてリン酸によるトータルエッチングを行えば、術者の巧拙に限らず比較的安定した接着耐久性を得られる可能性の高いことが示唆された。

## 結 論

1. 酸処理材としてリン酸を採用しているボンディングシステムでは術者間で接着強さに有意差が認められなかった。

2. 酸処理材としてクエン酸・第二塩化鉄を採用しているボンディングシステムでは術者間で接着強さに有意差が認められた。

3. セルフエッチングプライマーを採用しているボンディングシステムでは術者間で接着強さに有意差が認められた。

本論文の要旨は、第34回日本歯科理工学会学術講演会(1999年10月 札幌)および第22回日本接着歯学会学術大会(2004年1月 鹿児島)において発表した。

## 文 献

- 1) 早川 徹, 菊竹一代, 根本君也: セルフエッチングプライマー中の酸性モノマーが歯質接着性に与える影響について. 接着歯学 **17**; 91-99 1999.
- 2) 早川 徹, 菊竹一代, 横田一郎, 根本君也: セルフエッチングプライマーシステムの歯質接着性に関する研究—セルフエッチングプライマーとボンディング剤の組み合わせについて. 接着歯学 **18**; 22-29 2000.
- 3) 本淨 学, 宮崎真至, 山田満徳, 渡邊珠代ほか: 光重合型レジンに関する研究—とくにエッチングされた象牙質に対するNaOCl処理が象牙質接着性に及ぼす影響について—. 日歯保存誌 **44**; 481-491 2001.
- 4) 池田正臣, 二階堂徹, 田上順次: 術者の経験が象牙質接着システムの接着強さに及ぼす影響. 接着歯学 **21**; 68-73 2003.
- 5) 岡田英俊, 石田喜紀, 野口博志, 福井和徳ほか: 各種ボンディングシステムの接着性評価 (1) 象牙質について. 奥羽大歯学誌 **32**; 57-66 2005.
- 6) 見明 清, 車 昇平, 鈴木和夫, 山本茂久: 第2章エナメル質 第3章象牙質. 小口腔組織学; 21-80 学建書院 東京 1998.
- 7) 笹崎弘巳, 小松正志: セルフエッチング処理レジン修復例の短期臨床成績. 日歯保存誌 **45**; 310-321 2002.
- 8) Ibarra, G., Vargas, MA. Armstrong, SR. and Cobb, DS.: Microtensile bond strength of self-etching adhesives to ground and unground enamel. J Adhes Dent **4**; 115-124 2002.
- 9) 宮崎 隆, 藤島昭宏: 第9章成形修復材料. スタンダード歯科理工学 (西山 寛, 根本君也, 長山克也編); 193-225 学建書院 東京 2005.
- 10) 鈴江義彦: 表面処理剤の種類が, 長期水中浸漬によるコンポジットレジンと象牙質との接着強度に及ぼす影響について. 日歯保存誌 **39**; 601-613 1996.
- 11) 西山典宏: ワンボトルワンステップボンディングシステム. DE **152**; 17-18 2005.

著者への連絡先: 岡田英俊, (〒963-8611) 郡山市富田町字三角堂31-1 奥羽大学歯学部生体材料学講座

Reprint requests: Hidetoshi OKADA, Department of Biomaterials Science, Ohu University School of Dentistry

31-1 Misumido, Tomita, Koriyama, 963-8611, Japan