

低粘性コンポジットレジンの 歯科理工学的性質と接着耐久性

金丸 充徳

Mechanical and Physical Properties and Adhesion Durability of Flowable Resin Composite

Mitsunori KANAMARU

The purpose of this study was to examine the mechanical and physical properties and adhesion durability to bovine dentin of the flowable resin composites in comparison with those of conventional resin composites and glass ionomers. In this experiment, four flowable resin composites, two conventional resin composites and two glass ionomers were used. The consistency, thermal expansion coefficient, compressive strength, diametral tensile strength, brittleness, Vickers hardness, elastic modulus and adhesion durability were examined. SEM observation on the adhesion interface was also performed. The results obtained were as follows :

1. Flowable resin composites had greater consistency and thermal expansion coefficient as compared with those of conventional resin composites and glass ionomers.
2. Flowable resin composites had lower brittleness, hardness and elastic modulus as compared with those of conventional resin composites.
3. Adhesion durability of flowable resin composite was significantly lower as compared with those of conventional resin composites probably due to thermal cycle stress and cyclic impacted loading.
4. Adhesion durability of two-layered specimen of flowable + conventional resin composites to bovine dentin showed a similar behavior to that of one-bulk specimen of a conventional resin composite.
5. In the SEM observation on the adhesion interface, flowable resin composite looked more closely adhered to the dentin surface as compared with conventional resin composites.

Consequently, it is recommended that flowable resin composite should be used at a site where masticatory force is not directly applied or be laminated with conventional resin composite.

Key words : flowable resin composite, adhesion durability, mechanical properties, physical properties

受付：平成16年5月10日，受理：平成16年7月12日
奥羽大学歯学部生体材料学講座
(指導：長山克也教授)

Department of Dental Materials Science, Ohu
University School of Dentistry
(Director : Prof. Katsuya NAGAYAMA)

緒 言

歯科臨床において歯の実質欠損処置に対する成形修復材の使用頻度は非常に高く、とくにコンポジットレジンはその主流となっている。中でも近年製品化された低粘性コンポジットレジン¹⁾は歯質とコンポジットレジン間へ裏層的に用いることで、咬合によって接着界面へ生じる応力の集中を緩和させ、接着強さを向上^{1,2)}させるべく開発された材料である。低粘性コンポジットレジン¹⁾は従来のペーストタイプと違い、流動性を高くすることで施術部位へ直接シリンジにより充填することができ、操作性が向上した³⁾こと、さらに従来の製品にない使用方法も考案^{4,5)}されていることから臨床でも多く使われるようになってきた。成形修復材の中でコンポジットレジンが主に用いられる要因としては審美性に優れることや歯質との接着強さが大きいこと⁶⁻⁸⁾、そしてワンペーストであることや光重合方式を取り入れ操作性に優れることなどが挙げられる。さらには当初問題とされていた機械的性質や、耐摩耗性が改善⁹⁾されてきていることもその要因の一つと考えられる。一方、コンポジットレジン¹⁾の問題点の一つに微少漏洩が挙げられる。これは歯質との熱膨張率および弾性係数の差異や重合収縮応力の残存によって、口腔内環境での温度変化や咬合圧などが影響を及ぼし、界

面に応力が集中することで接着が破壊されて生じると考えられている¹⁰⁻¹⁸⁾。したがって、より臨床的にコンポジットレジンの接着耐久性を評価する場合には単純な歯質との接着強さだけを検討するだけでは不十分であり、口腔内環境をシミュレートした条件下で材料自体の歯科理工学的性質も加味して検討すべきである¹⁹⁾と考える。低粘性コンポジットレジンに関する研究はいくつか報告されているが¹⁹⁻²⁴⁾、修復材料としての歯科理工学的性質や温度変化、咬合力など物理的、機械的応力を想定した条件下での接着耐久性、さらには接着界面のSEM観察も含めた報告はない。そこで今回は低粘性コンポジットレジンと従来のペーストタイプコンポジットレジンおよびガラスアイオノマー系材料の歯科理工学的諸性質と歯質との接着耐久性およびこれら相互の関連性について、既存の報告ではみられない総合的な見地から比較検討を行ったので報告する。

材料および方法

1. 実験材料

実験に用いた材料の成分、メーカー、ペーストのタイプとコードは表1に（以後、材料名はコードにて表記する）、また、接着試験で用いる各材料のボンディングシステムの組み合わせを表2に示す。今回の実験ではガラスアイオノマー系材料

表1 実験材料

分類	材料	メーカー	コード	成分
低粘性型 コンポジットレジン	ユニフィルフロー	GC	・UNF	フルオロアルミノシリケートガラス UDMA
	パルフィークエステライト ローフロー ミディアムフロー ハイフロー	トクソー	・PAL ・PAM ・PAH	シリカジルコニアフィラー、シリカチタニアフィラー Bis-MEPP, Bis-GMA, TEGDMA, CQ
	ユニフィルS	GC	・UNS	フルオロアルミノシリケートガラス UDMA
従来型 コンポジットレジン	パルフィークエステライト ペースト	トクソー	・PAP	シリカジルコニアフィラー、有機複合フィラー Bis-GMA, TEGDMA, CQ
	フジII LC EM	GC	・II LC	粉：フルオロアルミノシリケートガラス 液：メタクリル酸エステル、ポリアクリル酸
ガラスアイオノマー系	リアクトマー	松風	・REA	ガラスアイオノマーセメント硬化体フィラー UDMA, TEGDMA, 2-HEMA

表2 実験材料に組み合わせるボンディングシステム

材 料	ボンディングシステム	メーカー
・ II LC	キャビティーコンディショナー	G. C
・ REA	リアクトマーボンドセット	松風
・ UNF ・ UNS ・ UNF+S	ユニフィルボンド (セルフエッチングプライマー +ボンディング材)	G. C
・ PAL ・ PAM ・ PAH ・ PAP ・ PAH+P	マックボンドII (セルフエッチングプライマー +ボンディング材)	トクソー

2種、従来型のコンポジットレジン2種、低粘性型コンポジットレジン4種を用いた。なお、本研究においてコンポジットレジンには裏層への応用可能と考えられる材料を低粘性型、主な使用が成形修復と限られるものを従来型と便宜的に分類した。

2. 実験方法

実験試料の作製は温度 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ 、湿度 $50 \pm 5\%$ の恒温恒湿中を行い、材料の硬化はハロゲンタイプの光照射器 (JETLITE1000, モリタ) によって行った。また、試料は各実験条件につき10個作製した。

1) 物理的性質

(1) 稠度

各実験材料をガラス板上に0.5ml採取し、3分後に120gのガラス板を7分間負荷した後の広がり直径を6点で測定し、平均値を算出して稠度とした。

(2) 熱膨張率

各材料を直径6mm、高さ10mmのプラスチックチューブへ充填した後、所定時間の光照射を行い硬化させ試料を作製した。試料は熱分析装置 (TMA4000S, マックサイエンス) に装着して $20-50^\circ\text{C}$ 間の熱膨張率を測定した。

2) 機械的性質

(1) 圧縮強さ、間接引張強さおよび脆性度

各試料は直径2mm、高さ4mmのテフロン型に充填し作製した。作製した試料は① 37°C 蒸留水中に30日間浸漬した条件 (COとする)、②低温槽 4°C 、高温槽 60°C 、各槽浸漬時間30秒間の蒸留水中浸漬

による20000回のサーマルサイクル条件 (THとする) による耐久性試験を行った後、小型万能試験機 (1310W, アイコーエンジニアリング) に装着した。圧縮強さ試験は試料に対し長軸方向から、間接引張強さは試料に対し直径方向から圧縮荷重を負荷して行った。脆性度は圧縮強さの値を間接引張強さの値で除して算出した。

(2) ビッカース硬さ

実験試料の作製および耐久性試験は(1)と同様に行った。試料はビッカース硬さ試験機 (島津製作所) に装着し、荷重300g、荷重保持時間30秒でビッカース硬さを測定した。

(3) 弾性係数

各材料を幅径2mm、厚径2mm、長径30mmのテフロン型に充填し試料を作製した。弾性係数は2支点間距離が20mmの3点曲げ試験により測定した。

3) 接着耐久性試験

各材料の被着体としては牛歯象牙質とした。牛歯をエポキシ樹脂で包埋し、樹脂を硬化させた後、被着面を自動回転研磨機 (PHOENIX4000, ビューラー) とSiCペーパーを用いて#120~600まで順次研削し、蒸留水にて超音波洗浄を行った。各材料の被着体に対する接着は表2に示す処理剤により歯面処理をし、マスキングテープにて接着面を直径6mmに規定した後、内径6mmのコア用のプラスチックチューブを用いて、厚さが2mmとなるように材料を充填し、40秒間の光照射を行った。なお、今回の接着試験においては各材料単層で行う条件の他に、UNFとUNS (UNF+S)、PAHとPAP (PAH+P) を組み合わせた条件を付加した。充填はUNFおよびPAHを1mm充填、硬化させた後、UNSおよびPAPを1mm充填、硬化させたものを接着試料とした。接着耐久性試験は次の3条件とした。

①CO： 37°C 蒸留水中に30日間浸漬した条件

②TH：低温槽 4°C 、高温槽 60°C 、各槽浸漬時間30秒間の蒸留水中浸漬によるサーマルサイクルを20000回負荷した条件

③TL：THによる試験終了後、荷重300gの繰り返し衝撃荷重60000回負荷した条件

以上の耐久性試験終了後、万能試験機にて各条件における圧縮剪断接着試験を行い、接着強さを

算出した後、Two way ANOVAおよびTukey's HSD test ($p < 0.05$) で有意差を検定した。

4) 接着界面のSEM観察

樹脂包埋した牛歯面を自動回転研磨機 (PHOENIX4000, ビューラー) で平滑にした後、ダイヤモンドポイント (5105, エデンタ) を用いて直径 3 mm, 深さ 2 mm の窩洞を形成してから超音波洗浄と乾燥を行った。各材料の操作は、表 2 に示す表面処理剤を用いた後、充填、硬化させた。試料は歯軸に対して矢状断し、窩底部の材料と歯面の接着界面の状態を走査型電子顕微鏡 (SEMEDX, 日立) にて観察した。

結 果

1) 材料の物理的性質

(1) 稠度

各材料の広がり直径 (mm) は II LC が 28.9, REA が 17.9, UNF が 57.4, UNS が 22.4, PAL が 34.8, PAM が 48.5, PAH が 59.3, PAP が 26 となった (図 1)。低粘性型コンポジットレジンは従来型に比較し全て稠度が大きくなっていった。また、PA 群では PAL < PAM < PAH の順に稠度が大きくなっていった。ガラスアイオノマー系材料では REA よりも II LC で大きくなっていった。

(2) 熱膨張率

各材料の熱膨張率 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$) は II LC が 13.6, REA が 28.3, UNF が 40.9, UNS が 25.6, PAL が 32.1, PAM が 32.7, PAH が 45.5, PAP が 27 となり (表 3), 稠度と同様に従来型よりも低粘性型コンポジットレジンで大きくなっていった。また、PAL, PAM, PAH の比較でも稠度の大きい材料は熱膨張率も大きくなる傾向がみられた。REA は II LC よりも大きくなり、従来型コンポジットレジンと近似した値となっていた。

2) 材料の機械的性質

(1) 圧縮強さ

CO における圧縮強さ (MPa) は II LC が 415.8, REA が 501.3, UNF が 562.3, UNS が 575.2, PAL が 558.2, PAM が 553.2, PAH が 538, PAP が 567.8 となり, TH においては II LC が 371.5, REA が 451.5, UNF が 510.3, UNS が 557.2, PAL が 519.5, PAM が 501.3, PAH が 490.3,

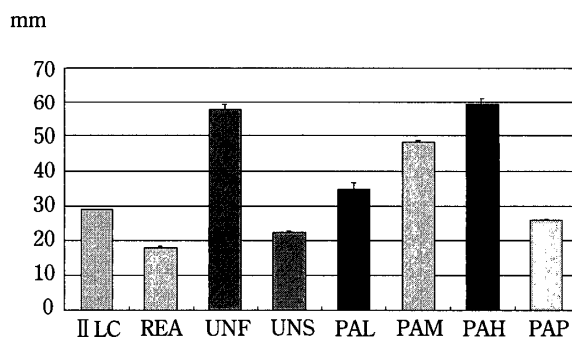


図 1 稠度

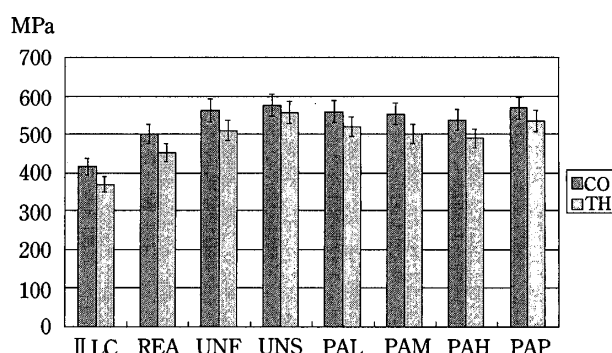


図 2 圧縮強さ

表 3 熱膨張率 (20~50°C)

II LC	13.6 (1.6)
REA	28.3 (4.2)
UNF	40.9 (5.3)
UNS	25.6 (2.3)
PAL	32.1 (4.5)
PAM	32.7 (4.7)
PAH	45.5 (5.8)
PAP	27.0 (3.9)

(S.D.)
($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)

PAP が 535.2 となった (図 2)。各材料ともに CO よりも TH の条件で値が低下していた。ガラスアイオノマー系材料では REA よりも II LC で小さな値となっていたが、コンポジットレジンでは各材料間で大きな差異は認められなかった。

(2) 間接引張強さ

CO における間接引張強さ (MPa) は II LC が 62.6, REA が 88.8, UNF が 109.2, UNS が 99.9, PAL が 103.7, PAM が 102.8, PAH が 103.7,

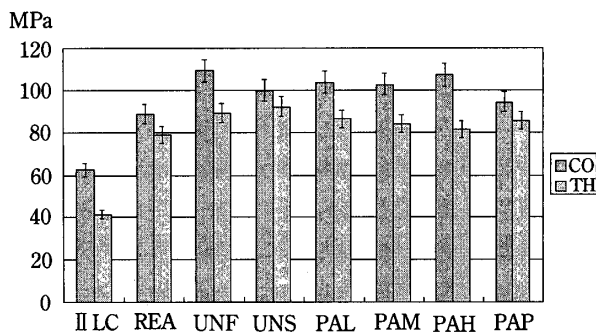


図3 間接引張強さ

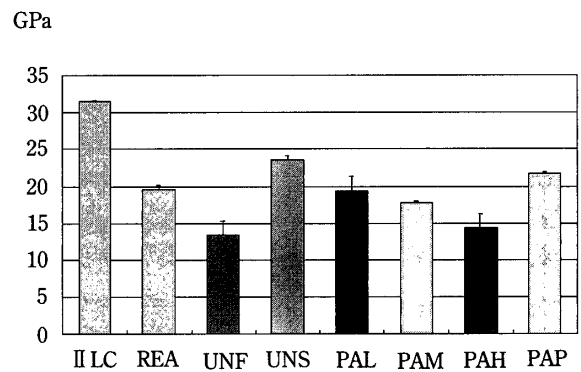


図5 弾性係数

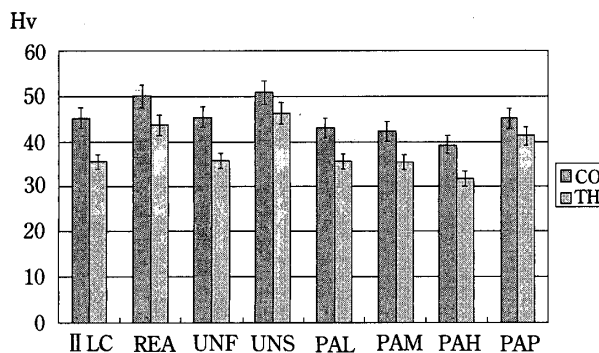


図4 ビッカース硬さ

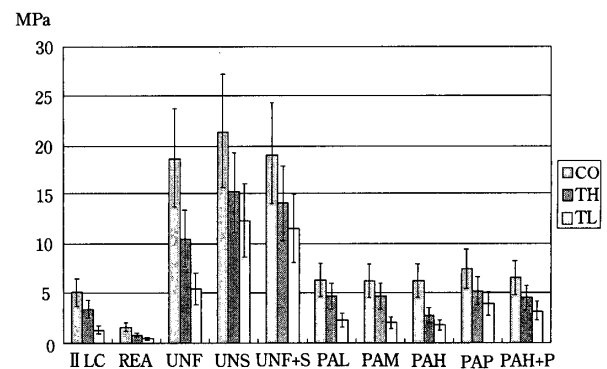


図6 接着強さ

表4 脆性度

	CO	TH
II LC	6.6(0.5)	8.9(0.7)
REA	5.6(0.5)	5.7(0.6)
UNF	5.1(0.3)	5.7(0.7)
UNS	5.8(0.3)	6.2(0.8)
PAL	5.4(0.3)	6.0(0.6)
PAM	5.4(0.3)	6.0(0.6)
PAH	5.0(0.3)	6.0(0.7)
PAP	6.0(0.4)	6.3(0.5)

(S.D)

PAPが94.5となり、THにおいてはII LCが41.5、REAが78.9、UNFが89.2、UNSが92.3、PALが86.3、PAMが84.2、PAHが81.3、PAPが85.5となった(図3)。圧縮強さに比較し各材料ともにCOよりもTHの条件で値の低下が大きくなっており、その傾向は低粘性型で大きくなっていった。また、COでは従来型より低粘性型コンポジットレジンの大きくなる傾向を示していたが、THでは

差がみられなかった。

(3) 脆性度

COにおける脆性度はII LCが6.6、REAが5.6、UNFが5.1、UNSが5.8、PALが5.4、PAMが5.4、PAHが5.0、PAPが6.0となり、THにおいてはII LCが8.9、REAが5.7、UNFが5.7、UNSが6.2、PALが6.0、PAMが6.0、PAHが6.0、PAPが6.3となった(表4)。各材料ともにCOよりもTHで値が大きくなっていったが、その傾向は低粘性型コンポジットレジンのII LCで大きくなっていった。

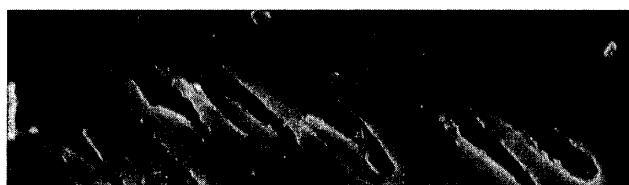
(4) ビッカース硬さ

COにおけるビッカース硬さ(Hv)はII LCが45.4、REAが50.1、UNFが45.6、UNSが50.9、PALが43.1、PAMが42.3、PAHが39.3、PAPが45.2となり、THにおいてはII LCが35.4、REAが43.8、UNFが35.6、UNSが46.4、PALが35.5、PAMが35.3、PAHが31.5、PAPが41.3となった(図4)。各材料ともにCOよりもTHで値が小さくなっていったが、その傾向は低粘性型コンポジット

表5 接着試験の有意差検定

		II LC			REA			UNF			UNS			UNF+S			PAL			PAM			PAH			PAP			PAH+P		
		CO	TH	TL	CO	TH	TL	CO	TH	TL	CO	TH	TL	CO	TH	TL	CO	TH	TL	CO	TH	TL	CO	TH	TL	CO	TH	TL	CO	TH	TL
II LC	CO		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TH		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TL		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
REA	CO		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TH		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TL		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
UNF	CO		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TH		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TL		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
UNS	CO		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TH		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TL		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
UNF+S	CO		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TH		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TL		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
PAL	CO		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TH		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TL		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
PAM	CO		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TH		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TL		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
PAH	CO		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TH		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TL		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
PAP	CO		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TH		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TL		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
PAH+P	CO		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TH		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	
	TL		*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	

(*:有意差あり p<0.05)



UNF

10 μm



UNS

10 μm



PAH

10 μm



PAP

10 μm

図7 接着界面のSEM像

図8 接着界面のSEM像

トレジジンとII LCで大きくなっていた。

(5) 弾性係数

各材料の弾性係数 (GPa) はII LCが31.5, REAが19.5, UNFが13.3, UNSが23.6, PALが19.4, PAMが17.8, PAHが14.4, PAPが21.8となった (図5)。II LCは最も大きな値となり、コ

ンポジットレジジンでは低粘性型よりも従来型で大きくなっていた。

3) 接着耐久性試験

接着試験の結果は図6に、有意差検定の結果は表4に示す。COにおける接着強さ (MPa) はII LCが5.1, REAが1.6, UNFが18.7, UNSが21.4,

UNF+Sが19.1, PALが6.3, PAMが6.2, PAHが6.2, PAPが7.4, PAH+Pが6.5となり, THにおいてはⅡLCが3.4, REAが0.8, UNFが10.5, UNSが15.2, UNF+Sが14.1, PALが4.7, PAMが4.7, PAHが2.8, PAPが5.2, PAH+Pが4.5となった。また, TLにおいてはⅡLCが1.3, REAが0.4, UNFが5.4, UNSが12.3, UNF+Sが11.5, PALが2.3, PAMが2.0, PAHが1.8, PAPが3.9, PAH+Pが3.2となった。低粘性型の単層となるUNFはCO>TH>TLと有意に接着強さが低下する傾向がみられたが, 従来型単層であるUNSおよび低粘性型と従来型の二層からなるUNF+Sは各耐久試験条件の比較で有意差は認められなかった。PALおよびPAMはCO, THで有意差が認められず, TLで有意に接着強さが減少していた。PAHはCOに比較し, THおよびTLで有意に接着強さが減少していたが, TH, TLの比較では有意差が認められなかった。また, PAPは各耐久試験条件で有意差が認められなかった。PAH+PはCOとTH間, THとTL間では有意差が認められなかったものの, COとTL間では有意差が認められた。材料間での各耐久性試験における比較では, UNSおよびUNF+Sが他の材料より有意に接着強さが大きくなっていった。また, REAにおいては他の材料より接着強さが有意に小さくなっていった。

4) 接着界面のSEM観察

接着界面のSEM観察においては従来型よりも低粘性型コンポジットレジンの方が接着界面が判別できないほど, 緊密に接着しており, また歯質表面の凹凸に, より嵌入了した接着界面像を呈していた(図7, 8)。

考 察

低粘性型のコンポジットレジンとは従来型のコンポジットレジンに比較し, 流動性が大きく^{20,21)}充填操作に優れていることから, 咬合面1級窩洞, 5級窩洞, 楔状欠損, 裂溝充填などの症例に有効^{19,22,23)}とされ, 接着強さについては従来型と同様かそれ以上²⁴⁾といった報告もある。しかしながら, 一方では従来型コンポジットレジンに比較し機械的強さが小さいという報告^{20,21)}もある。これらのこと

から低粘性コンポジットレジン²⁵⁾の歯科理工学的性質と歯質に対する接着耐久性への関連性は十分に解明されていないと考えられる。そこで今回は低粘性コンポジットレジン²⁶⁾の物理的, 機械的性質および口腔内環境の想定下における歯質との接着耐久性について, 従来型のコンポジットレジンおよびレジン添加型ガラスアイオノマーセメントで比較検討した。

1. 物理的性質

口腔内は水分, 熱応力, 機械的応力が混在し, 用いられる材料には非常に厳しい環境といえる。さらに臨床を考えると操作性の優劣は材料として重要な因子である。したがって, 成形修復材を評価する場合には材料の機械的強さだけではなく流動性や熱的性質についての検討も必要と考えられる。そこで今回は材料の物理的性質を稠度と熱膨張率の実験から検討を行った。稠度においてはすでに報告^{20,21)}されている傾向と同様な結果となり, 低粘性型コンポジットレジンとは従来型, グラスアイオノマー系材料よりも大きくなっていった。組成成分が同様とされる(表1) UNF, UNSでは低粘性型であるUNFが2倍以上大きな値となり, また, 同じ(表1)低粘性型のPAH, PAM, PALでも順に大きな値となっていた。これらのことから流動性の調整は成分の比率を変えることで行っていることが推察され, ベースモノマーの配合率を下げ, 粘性が低いトリエチレングリコールジメタクリレート(TEGDMA)など希釈剤の添加割合を大きくしていることが要因の一つと考えられる^{21,24)}。熱膨張率においては低粘性型コンポジットレジンが従来型よりも大きな値となり, 粉液タイプのガラスアイオノマーであるⅡLCが最も小さな値となった。低粘性型コンポジットレジンおよび従来型の熱膨張率の大小の結果は稠度の結果と同様な傾向を示し, 稠度の大きな材料は熱膨張率も大きくなっていった。一般的に複合材料は基材となる材料の性質を向上させるために多種の強化材を添加する。コンポジットレジンの場合, 硬く, 熱膨張率の小さい無機フィラーあるいは複合化した有機フィラーを添加することで機械的性質の向上, 重合収縮の減少, そして熱膨張率を低下させている。低粘性型のフィラー充填率は従来

型に比較し重量%で約20%程度少ないと報告²¹⁾されている。このことと今回の稠度および熱膨張率の実験結果から低粘性型コンポジットレジンは希釈剤の添加量とフィラーの充填率により稠度を調整し、その結果、熱膨張率も従来型と差異がみられることが示唆された。

2. 機械的性質

成形修復材の所要性質の中で材料の機械的強さは非常に重要で、辺縁破折や歯質との接着強さと密接に関連する因子である。今回はCO, TH条件における圧縮強さ、間接引張強さ、脆性度、ビッカース硬さおよび弾性係数により検討した。成分が同様か近似している材料間における低粘性型と従来型コンポジットレジンの比較では、圧縮強さはほぼ同様で、間接引張強さは低粘性型が大きくなり、また、ビッカース硬さは従来型の方がやや大きくなる傾向がみられ、脆性度と弾性係数は低粘性型が小さくなっていった。したがって、低粘性型は弾性係数が小さく、引張強さが大きくなっていったことから、咬合力などによって生じる応力に対し、変形はしやすいが応力吸収能が大きく、また、脆性度が小さくなっていったことから応力によって生じる破壊が生じにくくなったと考えられる。これはペーストの流動性を向上させるためフィラー充填率を減少させた効果^{21,24)}と考えられる。今回の実験で従来型と分類したコンポジットレジンはハイブリッドフィラー型であり、フィラー充填率が高く、充填率の低いマイクロフィラー型よりも弾性係数、硬さなど機械的性質が大きいとされている²⁵⁾。友田²⁰⁾や高橋ら²¹⁾の報告にみられるようにフィラー充填率からすれば低粘性型はマイクロフィラー型と近似しているといえる。したがって、従来型に比較した機械的性質の傾向の違いはフィラー充填率が大きく影響を及ぼしていると考えられる。一方、弾性係数と硬さが小さくなっていることは咀嚼やブラッシングなどによる摩耗が生じやすくなることも推察される。しかしながら、耐摩耗性の低下はフィラー充填率による影響もさることながら、レジンマトリックスからのフィラーの脱落やフィラー形状が大きな影響を及ぼす²⁵⁾。さらに杉崎ら²⁶⁾が行った摩耗試験による報告からすると臨床的には十分な耐摩耗性があるとされて

いることから、弾性係数と硬さが耐摩耗性に及ぼす影響は少ないものと考えられる。

CO, TH条件による比較では全ての材料において圧縮強さ、間接引張強さ、硬さはCOよりもTHで低下し、脆性度は逆にTHで大きくなっており、この傾向は低粘性型コンポジットレジンとII LCで大きくなっていった。II LCについてはコンポジットレジンに比較し、長期的な水中浸漬による吸水と成分の溶出で機械的性質の劣化が生じやすく²⁶⁾、さらに冷温熱による硬化体の膨縮で助長されるためこのような結果になったと考えられている。サーマルサイクル試験で生じるコンポジットレジンの機械的性質の低下は吸水によるマトリックスレジン自体の劣化や、マトリックスレジンとフィラーの接着が加水分解によって破壊されること、さらに熱膨張率の差異によって生じる両者の界面での結合破壊が要因として考えられる²⁵⁾。コンポジットレジンのベースモノマーとして用いられるBis-GMAの硬化体は剛性が高い反面、-OH基も存在するため吸水性も高い。一方、Bis-MEPPは-OH基が存在しないため吸水性は少ないとされ、また、UDMAもウレタン結合を分子内に持ち反応基が両端に存在するため吸水性は少ない²⁷⁾。今回用いた材料をベースモノマーで分類するとUDMAを用いているのがUNF, UNS, REAで、Bis-GMAを用いているのがPAP, Bis-GMAとBis-MEPPを用いているのがPAL, PAM, PAHである。これらのことからすると機械的性質の傾向とベースモノマーの分類に相関性は認められない。熱膨張率の結果とベースモノマーの分類から、サーマルサイクル試験による機械的性質の低下はマトリックスレジンの劣化よりも、フィラーとマトリックスレジンの結合破壊が大きな影響を及ぼしていると推察される。したがって、従来型よりも熱膨張率の大きい低粘性型コンポジットレジンは温度変化による膨縮も大きく、THで大きく機械的性質が低下したのと考えられる。しかしながら、THにおいても脆性度に関しては従来型よりも低粘性型で小さい値を示しており、応力に対する破折が従来型よりも生じにくい傾向を示していた。以上のように低粘性型コンポジットレジンの機械的性質は従来型コンポジットレジンのそれ

と比較して、必ずしも優れた性質を有しているとはいえないことが明らかになったことから、コンポジットレジン修復でも症例により材料や修復法を選択することが重要であることが示唆された。

3. 歯質に対する接着耐久性

口腔内は唾液が存在する中で飲食物摂取により大きな温度変化が生じるとともに、咬合による機械的応力も生じ、材料にとっては非常に厳しい環境である。材料の吸水は成分の溶出や加水分解および体積変化を招くものであり、材料の劣化や接着強さの低下に影響を及ぼす^{26,28)}。また、温度変化が歯科材料へ及ぼす影響も大きく、材料自体の劣化、材料間あるいは歯質との膨縮量の相違が問題となり、接着強さの低下に繋がるとする報告^{9,10,18,29,30)}が多数みられる。そして咀嚼運動によって発生する咬合圧による機械的応力も接着強さに影響を及ぼす因子である^{11~17,31)}。そこで今回は多数の報告^{9~18)}を参考に、実験材料の歯質に対する接着耐久性の評価を①30日間の水中浸漬(静的条件)、②低温槽4℃、高温槽60℃による、20000回のサーマルサイクル(動的条件)、③②実験後に荷重300g、60000回の繰り返し衝撃荷重を負荷した後の接着強さを測定し、接着界面のSEM像観察も付加して比較検討した。また、低粘性型コンポジットレジン様々は様々な使用方法^{1~5)}が試みられているが、低粘性型の開発経緯や従来型と比較した物理的、機械的性質などの歯科理工学的性質の相違点がこれまでの実験結果から明らかになったことを考慮し、臨床における有効な使用方法を検討する目的でこれまでの報告にはない実験方法として、今回の接着試験では低粘性型+従来型の二層(UNF+S, PAH+P)で作製した試料についても実験を行った。

a) 静的条件下での接着強さ

37℃、30日間水中浸漬条件であるCOにおける結果ではユニフィルボンドを用いたUNF, UNS, UNF+Sが他の材料よりも有意に接着強さが大きくなっていったが(図6)、UNF, UNS, UNF+S間で有意差は認められなかった(表5)。また、マックボンドⅡを用いたPAL, PAM, PAH, PAPおよびPAH+P群間でも接着強さの有意差は認められなかった(表5)。ボンディングシステ

ムはコンポジットレジンの歯質に対する接着強さに大きく影響を及ぼす因子^{7,8,29,30)}であり、今回の実験結果ではユニフィルボンドシステムとマックボンドⅡシステムを用いた群で接着強さに差異がみられた。しかし、実験材料とボンディングシステムをそれぞれの組み合わせを変えた条件での評価を行っていないため、今回の結果から一概に実験材料間での比較はできないと考える。これらのことから、同じボンディングシステム間で比較すると、静的条件下での接着耐久性にコンポジットレジンのタイプ(低粘性型と従来型)の違いが及ぼす影響は少ないことが明らかとなった(表5)。CO条件下で接着強さに影響を及ぼす因子の一つとして吸水により接着界面で生じる加水分解が考えられる。同じボンディングシステムを用いた後、成分比率は違うものの、構成成分が同じか、近似している材料を充填した試料では、一様な接着耐久性の傾向を示す^{7,29,30)}ことが推察され、そのため本実験結果でも低粘性型と従来型の接着強さに差が認められなかったと考えられる。また、静的条件下で接着強さを低下させる因子としてはコンポジットレジンの重合収縮も挙げられる。硬化体の重合収縮についてはフィラー充填率が少なく、また重合収縮率が大きいTEGDMAが希釈剤としてより多く添加されている低粘性型の方が大きい³²⁾と報告されている。硬化体の重合収縮量が大きいほど接着界面には収縮応力が集中し、接着強さを低下させるとされているが、一方で低粘性型よりも従来型の方が重合収縮応力は大きいという報告^{33~35)}もある。本実験においては各実験材料の重合収縮量や重合収縮応力は測定していないため、これらが接着に及ぼす影響についての詳細は不明であるが、実験結果からは接着耐久性に及ぼす低粘性型と従来型の重合収縮挙動の違いによる影響は少ないものと考えられる。しかし、低粘性型コンポジットレジンの重合収縮と歯質との接着耐久性に関する相関性は今後さらに検討が必要である。これらのことから37℃、30日間の水中浸漬がコンポジットレジンの接着耐久性へ及ぼす影響はレジンのタイプの違いによる影響の少ないことが示唆された。

b) 動的条件下での接着強さ

低温槽4℃、高温槽60℃、20000回のサーマルサイクル試験を行ったTH条件の結果はCO条件と比較し、全ての材料で接着強さの低下する傾向がみられたものの、有意差が認められたのはUNFおよびPAHであった。サーマルサイクル試験による接着強さの低下は材料の熱膨張率が大きく影響を及ぼしていると考えられる。UNFの熱膨張率は40.9、PAHは45.5であり他の材料と比較して、とくに熱膨張率が大きい材料である。一方、被着体である牛歯象牙質の熱膨張率はヒト象牙質のそれを目安としても(8.3) UNFとPAHとの差がとくに大きい。したがって、温度変化時の歯質との膨縮量の差が大きくなり、接着界面に他の材料よりも大きな応力が集中したため、CO条件よりも接着強さが有意に低下したものと考えられる。これは試験体として被着面側が低粘性型となっているUNF+SおよびPAH+Pの接着強さがUNF、PAHよりも大きくなった結果からも推察されるものである。また、UNFとPAHはCO条件と比較してTH条件で圧縮強さでは有意差がなく、間接引張強さが大きく減少した材料でもある。本研究は圧縮剪断接着試験で評価したが、接着界面に生じる応力から考えると、接着強さは硬化体の圧縮強さよりも間接引張強さとの相関性が高く²⁶⁾、したがって、このような結果になった要因の一つと推察される。しかしながら、TH条件でボンディングシステムごとに低粘性型と従来型および低粘性型+従来型であるUNF、UNSおよびUNF+S群あるいはPAL、PAM、PAH、PAPおよびPAH+P群中で比較すると有意差は認められなかった。この結果から、口腔内の温度変化の範囲においては、コンポジットレジンと歯質との熱膨張率の差が約15~20程度であれば、歯質との接着耐久性へ及ぼす影響は小さいことが示唆された。

TLはサーマルサイクル試験後さらに60000回の繰り返し衝撃荷重を負荷した試験条件である。接着耐久性試験を行う上で繰り返し荷重試験は多数の報告^{11~17)}で用いられているが、本研究においてはより口腔内環境に近い負荷を与えるためサーマルサイクル試験後に行った。その結果、TH条件と比較し全ての材料で接着強さが低い値を示し、II LC、UNF、PALおよびPAMでは有意に低下

していた。繰り返し荷重による接着強さの低下は荷重によって生じる圧縮応力が、歯質と材料界面へ集中して接着が破壊されるためと考えられる^{16,31)}。とくに繰り返し荷重のような機械的応力で生じる接着耐久性の低下は材料の機械的性質が大きく影響を及ぼすとされている^{14,17)}。UNF、PAL、PAMの機械的性質の傾向をみると、従来型であるUNSやPAPと比較し弾性係数が小さくなっている。これは同等の応力が負荷された場合のひずみ量がUNF、PAL、PAMは従来型よりも大きく、さらに被着面である象牙質の弾性係数が84.1GPa²⁷⁾であることからみてもひずみ量の差が従来型より大きく生じるためと考えられる。したがって、UNF、PAL、PAMは従来型と比較して、応力に対する緩衝能は大きい²⁰⁾ものの、ひずみ量も大きくなっており、さらに歯質とのひずみ量の差が大きくなるため、接着界面に応力が集中し、接着破壊も生じやすくなりこのような傾向がみられたと考察される。また、UNF+SおよびPAH+PはUNF、PAHよりも従来型のUNSおよびPAPの接着耐久性の傾向と近似していることを考慮すると、機械的応力に抵抗する材料の接着耐久性は、被着面だけではなく硬化体全体の機械的性質、とくに弾性係数が重要であることが示唆される。また、II LCにおいては弾性係数こそ大きかったが、脆性度が大きく、圧縮強さ、間接引張強さが小さいためこのような結果になったと考察される。これらのことから機械的応力に対するコンポジットレジンの接着耐久性には硬化体の弾性係数が大きいことが重要であることが明らかとなった。

c) 接着界面のSEM観察

図7、8に示すように、従来型よりも低粘性型の方が歯質表面の小さな凹凸にまで嵌入し、また、従来型よりも接着界面が判然としないくらい緊密に接着している界面像が観察された。これは材料の稠度と相関していることが主要な要因であると考えられる。歯科材料の接着強さに影響を及ぼす大きな因子としては被着体との機械的結合があり、硬化体の機械的性質に大きな差が無ければ歯質表面への嵌入やヌレの大きい材料ほど接着強さは良好とされる^{36,37)}。また、低粘性型コンポジットレジン

はフィラー充填率が減少し、マトリックスレジンが多くなるため、ボンディング材との親和性が向上し接着強さが向上するという考え方²³⁾もある。しかし、本研究の結果からは接着界面の状態と接着耐久性に相関性は認められなかった。これは、本研究において低粘性型と従来型の機械的性質を比較した場合、圧縮強さに有意差はなく、引張強さは低粘性型が、弾性係数は従来型が大きいこと、また、接着の根本をなす、ヌレ、親和性は低粘性型の方が良好である(図7)ことなど、接着に関与する多数の因子が、熱膨張率も含め複雑に影響を及ぼしているためと考えられる。

4. 総括

以上のことから、低粘性型コンポジットレジンを臨床応用する場合には、とくに直接咬合力がかからない部位への使用が良いと考えられるが、咬合面修復に用いる場合には裏層となるような使用方法²⁾や低粘性型で単層充填後さらに従来型で充填する方法が望ましいと考えられる。しかしながら、コンポジットレジンを修復した歯の対合歯における摩耗が問題となる³⁸⁾小児への応用は、硬さや弾性係数の小さい、低粘性型コンポジットレジンを単層による修復でも有効と考えられる。また、流動性が大きく、応力緩衝能があり接着界面の状態が良好であることを考慮すると辺縁漏洩による歯髄刺激も起こりにくく、咬合時の歯のひずみによって生じる辺縁破折や象牙細管の封鎖性による知覚過敏が問題となる楔状欠損⁵⁾あるいは根面う触⁹⁾への修復には有効と考えられる。したがって、臨床においては同じコンポジットレジンであっても、低粘性型と従来型では異なる材料であるという認識が必要であり、症例ごとに使い分ける必要のあることが示唆された。

結 論

臨床で使用頻度の高い低粘性型コンポジットレジンの歯理工学的性質および歯質に対する接着耐久性について、従来型コンポジットレジンおよびガラスイオノマー系材料と比較検討した結果、以下の結論が得られた。

1. 低粘性型コンポジットレジンは従来型、ガラスイオノマー系材料よりも稠度と熱膨張率が

大きくなっていった。

2. 低粘性型コンポジットレジンは従来型よりも脆性度、硬さおよび弾性係数が小さくなっていった。

3. 低粘性型コンポジットレジンの接着耐久性は同一のボンディングシステムを応用した場合、サーマルサイクル、さらに繰り返し荷重が負荷されることで従来型よりも有意に低下した。

4. 低粘性型+従来型の二層とした試料の接着耐久性は従来型と近似した傾向を示し、有意差は認められなかった。

5. 接着界面のSEM観察において低粘性型コンポジットレジンは従来型よりも歯質表面との接着界面が判然としない程緊密に接着し、また、小さな凹凸へ嵌入した像がみられた。

謝 辞

稿を終えるにあたり、終始御懇篤なる御指導、御校閲を賜りました本学生体材料学講座主任長山克也教授に謹んで感謝の意を表します。また、本研究の遂行に際し直接の御指導を賜りました本学生体材料学講座岡田英俊講師に厚く御礼申し上げます。さらに、数々のご協力を戴いた講座員各位に感謝いたします。

本論文の要旨は、第41回日本歯理工学会(2003年4月東京)および第35回奥羽大学歯学会(2003年6月郡山)において発表した。

文 献

- 1) 細田裕康, 富士谷盛興, 根岸 正, 平澤 聖: 新しい歯面処理剤による接着性コンポジットレジンの接着強さおよび窩壁適合性. 日歯保誌 **32**; 656-665 1989.
- 2) 富士谷盛興, 森上 誠, 細田裕康: 新接着システムKB-100の接着強さと窩壁適合性. 日歯保誌 **35**; 1428-1435 1992.
- 3) 大槻昌幸, 山田敏元, 猪越重久, 高津寿夫ほか: コンポジットレジニンレー修復法の確立に関する研究(第7報)低粘性レジンの応用. 日歯保誌 **36**; 1324-1330 1993.
- 4) 二階堂 徹, 高田恒彦, 中野 恵, 田上順次: 窩洞形成後のレジンコーティング法. DE **130**; 33-36 1999.
- 5) 千頭佳奈, 土居潤一, 山田登美子, 西谷佳浩ほか: フロアブルレジンの根面う触象牙質への接着性. 接着歯学 **19**; 110-116 2001.
- 6) 堀田邦孝, 斉藤康雄, 田代幸一, 山本隆司: 光

- 重合型低粘性レジンの矯正用接着材としての検討. 接着歯学 **21**; 24-30 2003.
- 7) 緒方美和子, 原田直子, 中島正俊, 田上順次: フロアブルレジンがくさび状欠損窩洞への接着強さに及ぼす影響. 接着歯学 **21**; 55-61 2003.
 - 8) 高橋世紀, 宮本弘平, 安倍 敏, 遠藤達雄ほか: 新鮮抜去非包埋牛歯象牙質面とレジン系修復材の剪断接着強さ一引張接着強さとの比較一. 日歯保誌 **43**; 1281-1289 2000.
 - 9) 川村俊行: 光重合型レジンに関する研究一とくにワンステップ接着システム用アドヒーズの混和後の放置時間が象牙質接着強さにおよぼす影響について一. 日歯保誌 **44**; 473-480 2001.
 - 10) 本浄 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一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一. 日歯保誌 **44**; 481-491 2001.
 - 11) 新海航一, 加藤喜郎: 白歯用コンポジットレジンの長期予後成績に及ぼす諸因子の影響に関する臨床的検討. 日歯保誌 **43**; 121-133 2000.
 - 12) 野口八九重, 中村かおり, 赤間ゆかり, 菊地敬成: 歯質接着性セメントの接着強さの経時的変化 第1報 サーマルサイクル試験条件の設定. 歯材器 **5**; 660-665 1986.
 - 13) 中村勝文: 接着性レジンセメントのインレー保持効果とその耐久性に関する研究 第2報 繰り返し荷重ならびにサーマルサイクルがインレーの保持力と窩壁適合性に及ぼす影響について. 日歯保誌 **31**; 463-489 1988.
 - 14) 小澤正明: 繰り返し荷重による内側性小型鑄造修復物保持力の変化に関する研究一動的試験による検討一. 鶴見歯学 **14**; 127-139 1988.
 - 15) 柿川 宏, 田島清司, 林 一郎, 小園凱夫: カルボキシレートセメントの合着力におよぼす繰り返し荷重の影響. 九州歯会誌 **43**; 365-370 1989.
 - 16) 柿川 宏, 横山有紀, 田島清司, 林 一郎ほか: 繰り返し荷重によるセメント合着強さの変化. 歯材器 **8**; 783-789 1989.
 - 17) 遠藤達雄, 奥田礼一: 合着用セメントの疲労耐性. 日歯保誌 **32**; 273-278 1989.
 - 18) B, Fissore, I, Nicholls. and A, Yuodelis: Load fatigue of teeth restored by a dentin bonding agent and a posterior composite resin. The Journal of prosthetic dentistry **65**; 80-85 1991.
 - 19) 長井 隆, 新海航一, 加藤貴郎: 繰り返し衝撃荷重がコンポジットレジンインレーに及ぼす影響について. 日歯保誌 **36**; 25-38 1993.
 - 20) 田中卓男, 鎌田幸治, 松村英雄, 熱田 充: 熱サイクル試験における高温浸漬温度が接着耐久性に及ぼす影響. 補綴誌 **38**; 149-154 1994.
 - 21) 久保至誠, 渡邊太平, 大澤雅博, 松元 仁: 歯頸部窩洞 (cervical erosive lesion) の辺縁封鎖性に関する研究 (第1報) 欠損形態の影響ならびに低粘性レジンの効果について. 日歯保誌 **36**; 1115-1122 1993.
 - 22) 友田篤臣: 低粘性レジンに関する研究. 愛院大歯誌 **38**; 19-36 2000.
 - 23) 高橋英和, 岩崎直彦, 馬場園健一, 西村文夫: 低粘性型コンポジットレジンの物性について. DE **138**; 21-24 2001.
 - 24) 佐藤かおり, 古森有里子, 柳原 保, 千田 彰: 低粘性レジンで修復した噴射切削窩洞の微少漏洩の比較. 接着歯学 **20**; 78-84 2002.
 - 25) Hofmann, N., Siebrecht, C., Hugo, B. and Klaiber, B.: Influence of curing methods and materials on the marginal seal of class V composite restorations in vitro. Operative Dentistry **28**; 160-167 2003.
 - 26) 近藤正也, 森上 誠, 杉崎順平, 荻谷憲明ほか: 各種フロアブルレジン硬化物のSEM観察. 接着歯学 **21**; 1-6 2003.
 - 27) W, O'Brien: Chapter 8 Polymeric Restorative Materials. Dental Materials and Their Selection; 113-131 Quintessence Publishing Canada 2002.
 - 28) 杉崎順平, 細田裕康: 露出根面塗布材に関する基礎的研究 (第1報) 接着性と耐磨耗性について. 日歯保誌 **32**; 666-676 1989.
 - 29) 岡田英俊: グラスアイオノマーセメントの接着耐久性に関する研究. 奥羽大歯学誌 **28**; 14-26 2001.
 - 30) 岩久正明, 河野 篤, 千田 彰, 田上順次: 第8章コンポジットレジン修復. 保存修復学21 (岩久正明, 河野 篤, 千田 彰, 田上順次編); 115-173 永末書店 東京 1998.
 - 31) Kanchanasavita, W., Anstice, H. and Pearson, G.: Water sorption characteristics of resin-modified glass-ionomer cements. Biomaterials **18**; 343-349 1997.
 - 32) Reeves, G., Fitchie, J., Hembre, J. and Puckett, A.: Microleakage of new dentin bonding systems using human and bovine teeth. Operative Dentistry **20**; 230-235 1995.
 - 33) Park, S. and Kim, K.: The anticariogenic effect of flouride in primer, bonding agent, and composite resin in the cavosurface enamel area. Operative Dentistry **22**; 115-120 1997.
 - 34) 池島 巖, 松澤紀彦, 桃井保子: 新しい光重合型コンポジットレジンの重合線収縮測定法について. 日歯保誌 **46**; 273-281 2003.
 - 35) 神谷直孝, 本谷俊樹, 塩 秀明, 渡邊康夫ほか: 低粘度レジンの重合収縮応力に関する研究. 日歯保誌 **45**; 178-183 2002.
 - 36) Ikemura, K., Kouro, Y. and Endo, T.: Effects of a new pre-reacted glass-polyalkenoate filler in a dental adhesive on bonding durability to teeth under fatigue load cycling. 日本接着学会誌 **34**; 47-56 1998.

- 37) 岸川隆蔵, 岩本奈々子, 稲井紀通, 田上順次：
エアーアブレイシブシステムがコンポジットレ
ジンの象牙質接着性に及ぼす影響. 接着歯学
18 ; 142-147 2000.
- 38) 小野博志：乳歯の咬耗. 歯界展望 **62** ; 659-668
1983.

著者への連絡先：金丸充徳, (〒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 : Mitsunori KANAMARU, Department
of Biomaterials Science, Ohu University School of Den-
tistry

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