原 著 論 文

硬質レジン歯への光重合型コンポジットレジン 添加時における効果的な表面処理について

十河 基文   岡田 政俊   瀬谷 直也   前田 芳信
野首 孝祠   奥野 善彦   堤   定美*

Effective Treatment Method for Repairing Damaged Surfaces of Hard Type Acrylic Denture Teeth with Light Curing Composite Resin

Motofumi Sogo, Masatoshi Okada, Naoya Seya, Yoshinobu Maeda,
Takashi Nokubi, Yoshihiko Okuno and Sadami Tsutsumi*

Abstract : Damaged or worn down acrylic denture teeth are often repaired using a self-curing acrylic resin or a composite resin. Recently hard type acrylic (HA) artificial teeth have been used clinically because of higher wear resistance.

In some cases, however reconstruction of the HA denture teeth are still needed. In this study, we tried to find an effective treatment method for repairing damaged surfaces of HA denture teeth with a light curing composite resin which has good wear resistance and better chance of manipulation. The shear bond strength of a light curing composite resin to HA denture teeth, was evaluated after applying to bonding surface, four different agent and their combinations. They were an etching (E), an organic solution (Rebase Aid; RA), a silane-coupling agent (Porcelain Liner M; PL), and a bonding agent (B), combinations were E+B, E+RA+B, E+PL+B and E+RA+PL+B.

As the result, maximum strength was obtained E+RA+PL+B, about 130 kgf/cm². According to our results, clinically damaged or worn down HA denture teeth should be repaired with a light curing composite resin after occlusal surface treatment with an etching, an organic solution (RA), a silanecoupling (PL) and a bonding agent.

Key words : hard type acrylic denture tooth, adhesive agent, bonding strength

---

大阪大学歯学部歯科補綴学第二講座（主任：奥野善彦教授）
* 京都大学生体医療工学研究センター医用システム工学領域
The Second Department of Prosthetic Dentistry, Osaka
University Faculty of Dentistry (Chief : Prof. Yoshihiko

Okuno)
* Research Center for Biomedical Engineering, Kyoto Uni-
versity
平成2年5月31日受付

I. 緒 言

アクリリックレジン歯は陶歯に比べて床用レジンとの結合力が強いため脱落しにくく、破折も生じにくい、また咬合調整（削合、研磨）が簡便であるため、日常臨床で広く使用される。

しかしながら、短所として耐摩耗性において著しく劣るため、咀嚼能率の低下、咬合の不調和、ひいては支持組織、支台歯への咬合力の伝達・分散の変化による障害または顎位の変位などを起こしやすい。

近年この短所を改善する目的で、従来のアクリリックレジン歯と比較して耐摩耗性、強度に優れた硬質レジン歯が開発された。しかしアクリリックレジン歯に比べて量的には顕著に少ないものの、長期間使用時には摩耗が生じる¹⁾と思われるので、その際の対応が必要である。また、硬質レジン歯についてはこれまで破折²⁾、床用レジンとの結合力³⁻⁵⁾に関する研究はされてきているが、摩耗時の対応における添加調整に関する研究⁶⁾はみられない。

そこで今回、著者らは硬質レジン歯への添加調整の場合、現在臨床に頻繁に使用され、耐摩耗性に優れており、操作が容易で口腔内においては生体に調和した咬合面再構成が可能である可視光線重合型コンポジットレジン⁷⁾を利用し、その効果的な人工歯の表面処理条件を検討する目的で両者の接着強さを指標として以下の実験を行った。

II. 実験材料

実験に使用した硬質レジン人工歯として ENDURA POSTERIO（松風社製、以下 Endura と略す）を、また可視光線重合型コンポジットレジンとしてセミハイブリッド型⁷⁾ LITE-FIL P（松風社製）を使用した。なおエッチング剤とボンディング剤は、LITE-FIL P 附属の LITE-FIL BOND（松風社製：以下 E 剤、B 剤と略す）を使用した。

人工歯表面処理剤として、塩素系有機溶剤 REBASE AID（徳山曹達社製、以下 RA と略す）と、4-META 含有 MMA 系シランカップリング剤 Porcelain Liner M（Sun-Medical 社製、以下 PL と略す）を使用した。

図 1 実験に用いた試片の模式図

III. 実験方法

1. 被着試片の製作

試料は硬質レジン歯の摩耗を想定して Endura の咬合面側のデンチン部硬質レジンが露出するまで平坦に削除して、20×15×10 mm の長方形のシリコン製モールドの底に正置し、流し込みレジン（ポアーレジン、松風社製）にて包埋した（図 1-a）。

流し込みレジン重合完了後、臨床において汚染面を除去し新生面を出すことを想定して、試験研磨機（L-1000、ウインゴー精機社製）にてシリコンカーパイドペーパー 120 番で研磨した。

2. 人工歯の被着面処理

被着面は E 剤で処理した後、以下 4 種の条件の試片を準備した。

1. B 剤を塗布したもの（以下、E+B と略す）
2. RA を塗布処理し B 剤を塗布したもの
（以下、E+RA+B と略す）
3. PL を塗布処理し B 剤を塗布したもの
（以下、E+PL+B と略す）
4. RA を塗布処理した後 PL で塗布処理し、続いて B 剤を塗布したもの
（以下、E+RA+PL+B と略す）

なお各々の処理剤の使用方法は主に指示書に従い行った。E 剤による処理効果においては論議はあるものの反応阻害因子を除去する目的⁸⁾で塗布し、60 秒後十分水洗（15 秒）してゲルを完全に洗い流し、油分のないエアーで十分乾燥（15 秒）した。ボンディングでは、B 剤を薄く塗布し（2 液性の B 剤の攪拌は 15 秒とした）、再び油分のないエアーを十分吹きつけて（15 秒間）揮発成分を

図 2 剪断試験装置

蒸発させ、残ったレジン液ををできるだけ薄い均一層に拡げた。その後、光重合器(トランスルックス CL, Kulzer 社製)にて光を照射(10 秒)して B 剤を硬化させた。

表面処理剤については RA は筆で一層均一に塗布しエアースリンジで軽く乾燥させ、また PL は 2 液性であるため等量混和後塗布し、エアースリンジで軽く乾燥させた。

3. レジン添加填入

準備した各試片の人工歯被着面の上に内径 3 mm (面積; 7.165 mm^2), 高さ 2 mm の透明アクリル環を正置しコンボジットレジン填入する窩洞とした。窩洞に無圧で LITE-FIL P を填入した後、光重合器によりアクリル環の 4 方向から 10 秒ずつ照射し室温中で重合し、その後アクリル環を除去した(図 1-b)。

レジン填入 10 分後に試片を 37 度蒸留水中に浸漬し 24 時間保管した。なお試片は各群 10 個とした。

また、参考として従来のアクリリックレジン歯(ウェアレス、而至社製)に、即時重合レジン(ユニファスト、而至社製)を筆積み法により填入した試片(以下、レ歯+即重と略す)を作製した。

4. 剪断試験法

接着強さの測定には各試片を装着した剪断試験装置(図 2)を、万能試験機(オートグラフ S-2000, 島津製作所社製)に取り付けクロスヘッドスピード 1 mm/min にて行い、剪断破折荷重を単位面積あたりの接着強さとした。

図 3 表面処理条件の違いによる剪断接着強さ

A: E+B, B: E+RA+B, C: E+PL+B,
D: E+RA+PL+8, E: レ歯+即重
★: $p < 0.05$, ★★: $p < 0.01$ (t-test)

IV. 実験結果

各々の表面処理をした試片の接着強さと標準偏差を図 3 に示す。試片はすべて界面破壊であり、E+B の接着強さは $52.6 \pm 58.8 \text{ kgf/cm}^2$ 、E+RA+B、E+PL+B は各々 $75.9 \pm 38.4 \text{ kgf/cm}^2$ 、 $85.0 \pm 38.2 \text{ kgf/cm}^2$ の値であった。E+PL+B の場合においては t-検定の結果、危険率 5% で E+B の場合と比べ有意差が認められた。また E+RA+PL+B の接着強さは $127.7 \pm 37.7 \text{ kgf/cm}^2$ であり t-検定の結果、危険率 5% で E+PL+B と、危険率 1% で E+B、E+RA+B と比べ有意差が認められた。

また、レ歯+即重は $386.0 \pm 9.4 \text{ kgf/cm}^2$ であった。

V. 考 察

接着強さを評価する方法として種々の試験法⁹⁻¹¹⁾があるが、口腔内で人工歯の、摩耗時に作用する力としては咬合力の側方剪断成分が最も重要と考えられる。また一般に材料の接着強度は垂直力に対する破壊強度よりも剪断強度は低いために¹²⁾本実験では剪断試験法により評価

図 4 酸エッチング後無処理 (a) と有機溶剤 (RA) 処理 (b) の SEM 像, $\times 3,000$

することとした。

硬質レジンの被着面の処理は通常のコンポジットレジンの酸エッチング後、ボンディング処理したもの (E+B) と、その操作の間に塩素系有機溶剤により処理をしたもの (E+RA+B) とシランカップリング剤により処理をしたもの (E+PL+B)、またそれらの組合せ処理をしたもの (E+RA+PL+B) の 4 種の条件において検討した。

その結果、硬質レジンの歯へのコンポジットレジンの添加調整の際には、酸エッチング後有機溶剤による処理を行い、続いてシランカップリング剤による処理を行った後ボンディング剤を塗布したもの (E+RA+PL+B) が、最も強く結合することがわかった。

このことはその効果における論議はあるものの、反応阻害因子を除去する目的⁸⁾で酸エッチング処理を行い、続いて塩素系有機溶剤 (RA) にてさらに化学的清掃を行うと同時に、ポリマー鎖を拡大して硬質レジンの表面に凹凸の形成を行う。この凹凸により、コンポジットレジンとの間に機械的結合力が働くものと考えられる。その効果の確認のため人工歯処理面のうち、酸エッチング後無処理のものと、RA 処理のものについて SEM 像による観察を行った。通法に従い金蒸着を施した後に走査型電子顕微鏡 (JSM-50 A, 日本電子社製) にて、3,000 倍で写真撮影を行った。図 4 に示すように酸エッチング後無処理のものに比べ、RA 処理を行うと硬質レジンの表面に凹凸が形成されることが観察された。

また次の処理として、シランカップリング剤 (PL) を

塗布した場合には化学的結合力が働くものと考えられる。シランカップリング剤は元来、有機相と無機相の両方に反応し化学結合するケイ素原子を 1 つ有する化合物⁹⁾である。今回の使用に際しては、硬質レジン人工歯 (Endura) の硬質レジン部のデンチン部は、超微粒子フィラー配合のウレタン系レジンである¹³⁾が、その有機相であるレジン部、無機相である超微粒子フィラー部と添加したコンポジットレジンとの間にシランカップリング剤による化学的結合力が働いたもの¹⁴⁾と思われる。

したがって酸エッチング処理後、塩素系有機溶媒 (RA) による処理を行い続いてシランカップリング剤 (PL) による処理後ボンディング剤を塗布した場合 (E+RA+PL+B) には、RA 処理による機械的結合力と PL 処理による化学的結合力により最も強い結合力が得られたものと思われる。

本実験における接着強さは、参考実験に示される従来頻繁に行われているアクリリックレジン歯に即時重合レジンで筆積み法にて行った際 (レ歯+即重) の値ほど大きな接着強さは示さなかった。しかし、その値ほど人工歯へ添加されたものが強く接着する必要があるかは疑問が残る。剪断試験ではなく抗張破折試験ではあるが、奥野ら¹⁵⁾は人工歯と床用レジンとの結合強さにおいて、人工歯の剝離または破折時の総荷重量が 15.6~18.1 kg 程度の強さであれば十分な接着力であると報告している。また硬質レジン歯と床用レジンとの接着強さにおいて山内ら⁴⁾は総荷重量 10.2~25.2 kg、山本ら⁵⁾は総荷重量 9.7~14.7 kgf (単位面積に換算すると 29~47 kgf/

cm²)であると報告している。一般に材料の接着強度は垂直力に対する破壊強度よりも剪断強度は低い¹²⁾ため、今回の結果の 100 kgf/cm² を越える値は上記の引張り接着強度と同等もしくはそれよりも高いことが推定されるので、臨床上使用に耐えられるのではないであろうか。

また本実験では ENDURA POSTERIO のデンチン部を使用した¹⁶⁾が、ENDURA ANTERIO のエナメル部、ENDURA POSTERIO のエナメル部も使用目的の違いにより多少成分の調整はしてあるものの主成分には差がない^{16,17)}ため、これらの部位にも応用できると考えられる。

今後、口腔内では長時間唾液にさらされ飲食物によりくり返し温度変化を受けることにより接着面は吸水による材質劣化が考えられる。さらに咬合力等の外力がくり返し複雑に加わるので疲労現象も加わるため、熱サイクル試験¹⁸⁾また反復衝撃試験⁵⁾にて接着強さを検討する必要があると思われる。またシランカップリング剤の種類により接着力は異なる¹⁹⁾ため材料間による接着強さも検討する必要があると思われる。

VI. 結 論

硬質レジン歯への可視光線重合型コンポジットレジンの添加修正の際においては、人工歯の新生面を出した後、酸エッチング処理、塩素系有機溶剤 REBASE AID による処理を続いてシランカップリング剤 Porcelain Liner M による処理をした後ボンディング剤を塗布したものが強く結合することがわかった。

稿を終るにあたりにご教示頂いた京都市大学生体医療工学センター 都賀谷紀宏助手、大阪大学歯学部中央研究所 佐藤良夫技官に感謝の意を表します。

また資料などの提供に対し松風社、Sun-Medical 社、徳山曹達社にもお礼申し上げます。

文 献

- 1) 横山政高：白歯レジン歯の使用を考える臨床例の咬耗の観察から、補綴臨床，19：163～171，1986。
- 2) 鈴木司郎，酒匂充夫，芝 燦彦：硬質レジン人工歯の破折に関する研究，補綴誌，32：780～786，1988。
- 3) 鈴木司郎，久根下斉，芝 燦彦ほか：硬質レジン人工歯と床用レジンの結合性について，補綴誌，32：37～42，1988。
- 4) 山内六男，奥村清和，堺 誠ほか：硬質レジン歯と床用レジンとの結合性について，補綴誌，32：1275～1282，1988。
- 5) 山本 滋，竹内貴康，清水洋一ほか：人工歯と床用レジンの接着強さ—市販硬質レジン歯について—，歯科技工，18：197～203，1980。
- 6) IM, S. and Williams, P.T.: Shear bond strength of composite resin repaired polymeric denture teeth, J Dent Res, 68：271，1989。
- 7) 細田裕康，山田敏元，巽哲二郎ほか：コンポジットレジンの分類とフィラー組成に関する研究（第3報）日歯用可視光線重合型レジンの分類，日歯保誌，30：443～456，1987。
- 8) 高橋英登：シランカップリング剤の臨床応用，歯科ジャーナル，25：26～36，1987。
- 9) Fusayama, T., Nakamura, M., Kurosaki, N. et al: Non-pressure adhesion of a new adhesive restorative resin, J Dent Res, 58：1364～1370，1979。
- 10) 千葉一雄，奥谷謙一郎，山田敏元ほか：白歯修復用コンポジットレジンの追加充填に関する研究—充填後比較的短期の場合について—，日歯保誌，28：630～641，1985。
- 11) Diaz-Arnold, A.M., Schneider, R.L. and Aquilino, S. A.: Bond strength of intraoral porcelain repair materials, J Prosthet Dent, 61：305～309，1989。
- 12) 接着研究会 編：接着便覧，高分子刊行会，京都，1966。
- 13) 溝上隆男，森 博史：新しい硬質レジン歯の理論的背景と効果的使用，歯科技工，16：771～790，1988。
- 14) 稲井紀通，大道博文，細田裕康：白歯修復用コンポジットレジンの追加充填曲げ接着強さに関する研究（第1報）充填後短時間の追加充填及びシラン処理剤を使用した場合の効果について，日歯保誌，31：22～139，1988。
- 15) 奥野善彦，野首孝祠，佐野敬一：注入型レジンとレジン歯との接着に関する研究，補綴誌，17：445～453，1973。
- 16) (株) 松風編：硬化レジン歯（エンデュラ）の技術資料，1988。
- 17) 松尾悦郎，豊田 實：新しいタイプの硬質レジン歯とパーシャルデンチャー，デンタルエコー Vol. 80，1988。
- 18) 増原英一：「接着強さ」と「接着力」，DE. 62：38～40，1982。
- 19) Williams, V.D. and Svare, C.W.: The effect of five-year storage prior to bonding on enamel/composite bond strength. J Dent Res. 64：151～154，1985。