原 著 論 文

市販臼歯部用硬質レジン機械的性質と光沢度に関する研究

砂田 徳保 新谷 明喜 横塚 繁雄

Study on Mechanical Properties and Glossiness of Marketed Hard Resin for Posterior Restorations

Noriyasu Sunada, Akiyoshi Shinya and Shigeo Yokozuka

歯科補綴学的意義

臼歯部用硬質レジンでは硬質レジンでみられるような経時的変化、劣化に関する研究はまだ報告されておらず、これら臼歯部用硬質レジンの劣化に伴う機械的性質の変化を検討することは口腔内で用いるうえで重要と考える。本研究は、臼歯部用硬質レジンの劣化に伴う機械的性質の変化と、光沢度に関する変化について比較、検討を行ったものである。

抄 録

目的：臼歯部用硬質レジン機械的性質が高いこと、色調再現性が容易であるなどの特徴を有している。しかし、硬質レジンにみられるような経時的変化、すなわち劣化に関する研究はまだ報告されていない。本研究の目的は、臼歯部用硬質レジンの機械的性質に及ぼす浸漬条件の影響と光沢度に及ぼす表面仕上げの影響を明らかにすることである。

方法：エステニア（以下ESと略す）、コンクエストサーモクリスタル（以下TCと略す）、アートグラス（以下AGと略す）を用い、実験1では機械的性質に及ぼす浸漬条件の影響を37℃の水中に24時間浸漬した場合と、70℃の水中に1週間浸漬した場合の2条件として実験を行った。また、実験2では表面を#150, 600, 1,200, 2,000, 4,000, 8,000, 0.06 μmで仕上げたときの光沢度を測定した。

結果：機械的性質で最も高い測定値を示したのはESであり、水中浸漬による影響は、37℃に比較し70℃のほうがすべてにおいて機械的性質が低下した。各表面仕上げにおける光沢度は表面仕上げが細かくなるに従い上昇し、#150から#2,000ではES, TC, AG, #4,000から0.06 μmではAG, TC, ESの順に高い値を示した。

結論：本研究では、硬質レジンに比較し影響は少ないが臼歯部用硬質レジンでも劣化が認められた。また表面仕上げが細かくなれば、高い光沢度が得られることが示唆された。

和文キーワード

臼歯部用硬質レジン, 機械的性質, 光沢度

日本歯科大学歯学部歯科補綴学教室第2講座（主任：渡辺嘉一教授）

Department of Crown and Bridge, The Nippon Dental University School of Dentistry at Tokyo (Chief : Prof. Yoshikazu Watanabe)

受付：2000年7月27日/受理：2000年10月23日

Received on July 27, 2000/Accepted on October 23, 2000

I. 緒 言

硬質レジン¹⁻⁵⁾はポーセレンに比較し操作が簡便であること、色調再現が容易であることから現在多くの製品が市販され、広く臨床応用されている。その応用範囲は、審美性を重視した前歯部や小臼歯部に限定されているが、口腔内の環境下で長期経過すると劣化し、摩耗、変色、破折などの臨床的不快事項を引き起こすことがこれまでの課題として残されていた。これら硬質レジンの問題点を改善するためこれまで種々の研究がなされ^{6,7)}、最近では小臼歯部のみならず咬合力の大きい大臼歯咬合面に、応用可能となった新しいタイプの硬質レジン⁸⁻¹¹⁾ (以下臼歯部レジンと略す)が開発され、数種類の製品が市販されている。この臼歯部レジン、硬質レジンに比較し機械的性質が高いこと、硬質レジンと同等の色調再現性が得られることなどの特徴を有している。これまでに硬質レジンや臼歯部レジン^{5,6,12,13)}の機械的性質に関する検討は行われているが、硬質レジンにみられるような経時的変化、すなわち劣化に関する研究は臼歯部レジンではまだ報告されておらず、これら臼歯部レジン^{5,6,12,13)}の劣化に伴う機械的性質の変化を検討することは口腔内で用いるうえで重要と考える。また硬質レジン、硬いフィラーと軟らかいマトリックスから構成されることから、研磨面を均一にすることが困難な材料で、フィラー含有量が高いと研磨が困難となり¹⁴⁾光沢を得ることが難しく、天然歯に近似した透明感や色調を得るには表面を滑沢に仕上げるのが重要であると考えられる。

本研究は、市販臼歯部用硬質レジン^{5,6,12,13)}の機械的性質に及ぼす浸漬条件の影響と光沢度に及ぼす表面仕上げの影響を明らかにする目的で、実験 1 では機械的性質 (圧縮強さ、引張強さ、曲げ強さ、ビッカース硬さ) に及ぼす浸漬条件の影響を 37°C の水中に 24 時間浸漬

した場合と、試験片の劣化を加速する目的で、70°C の水中に 1 週間浸漬した場合の 2 条件として実験を行った。

実験 2 では、臼歯部用硬質レジン^{5,6,12,13)}の表面仕上げを変化させたときの光沢度を測定した。

II. 研究方法

1. 実験材料

本実験に使用した材料を表 1 に示す。

2. 実験計画

1) 実験 1 では、表 2 に示す因子と水準について二元配置による要因配置実験法を採用した。すなわち、臼歯部レジン^{5,6,12,13)}の種類 (因子 A) を ES, TC, AG の 3 水準、浸漬条件 (因子 B) を 37°C の水中に 24 時間浸漬した場合 (以下 37°C と略す) と、70°C の水中に 1 週間水中浸漬した場合 (以下 70°C と略す) の 2 水準とした組合せ 6 条件を設定し、圧縮強さ、引張強さ、曲げ強さ、ビッカース硬さのそれぞれについて繰り返し 5 回、計 120 回の実験をランダム化して行った。

2) 実験 2 では、表 3 に示す因子と水準について二元配置による要因配置実験法を採用した。すなわち、臼歯部レジン^{5,6,12,13)}の種類 (因子 A) を ES, TC, AG の 3 水準、表面仕上げ (因子 C) を耐水研磨紙 # 150, 600, 1,200, 2,000, 4,000, 8,000 による研磨、および粒度 0.06 μm シリカ粉によるバフ研磨仕上げ (以下 # 150, 600, 1,200, 2,000, 4,000, 8,000, 0.06 μm と略す) の 7 水準とした組合せ 21 条件を設定し、繰り返し 3 回、計 63 回の実験をランダム化して行った。

3. 試験片の作製

圧縮試験片は内径 5.0 mm、高さ 10.0 mm の円柱

表 1 Materials
実験材料

製品名	メーカー	フィラー含有量 (wt%)	モノマー	重合方法	Lot. No.	略号
エステニア	クラレ	92	UTMA	光-加熱	00013 A	ES
コンクエストサーモクリスタル	ジェネリックペントロン	68	PCDMA	光-加熱	7010731	TC
アートグラス	クルツァー	70	UDMA	光	001231105	AG

シェード DA 1 を使用

型アクリル製モールドにレジンを填塞し、両面をガラス板で圧接後、光重合および加熱重合を行った。重合後、両面を耐水研磨紙# 600 にて研磨した。引張試験片は厚さ 4.0 mm、最小狭窄部 3.0 mm のミハエリス型、曲げ試験片は 3.0×4.0×50.0 mm の板状、ビッカース硬さ試験片は 10.0×20.0×1.5 mm のステンレス鋼製モールドにレジンを填塞し、圧縮試験片と同様に重合硬化させた。重合後、引張試験片と曲げ試験片は耐水研磨紙# 600 にて研磨し、ビッカース硬さ試験片は# 600 から# 1,500 まで流水下で研磨した後、さらにその表面を粒度 0.06 μm シリカ粉で研磨し鏡面光沢状とした。各試験項目の試験片は、光重合器 (Dentacolor XS, Kulzer) にて両面 90 秒ずつ光照射し、さらに ES では加熱重合器 (KL-100, クラレ) にて 100°C 15 分間加熱重合し、TC では専用真空加熱重合器にて 120°C 15 分間加熱重合を行った。AG については加熱重合を行わないため光重合のみを行った。各試験項目の試験片は 37°C と 70°C の 2 条件で水中浸漬した後、測定を行った。

光沢度試験片は、直径 10.0 mm、厚さ 3.0 mm のモールドを作製しメーカー指定の条件にて光-加熱重合を行い作製し重合後、耐水研磨紙を用い# 150, 600, 1,200, 2,000, 4,000, 8,000 の順に流水下で手指により一定方向に研磨を行った。さらに 0.06 μm については# 8,000 まで研磨後、自動研磨機 (ECOMET 3, BUEHLER) を用いて粒度 0.06 μm シリカ粉にてバフ研磨を行い、最終的に 2.0±0.1 mm の厚さになるように調整し、37°C の水中に 24 時

間浸漬後、測定を行った。

4. 測定方法

1) 機械的性質の測定

圧縮強さ、引張強さ、曲げ強さ、ビッカース硬さの測定は五味ら⁶⁾の方法に準拠し測定を行った。

2) 光沢度の測定

光沢度の測定は、金子ら¹⁵⁾の方法に準拠して測定を行った。

5. 走査型電子顕微鏡による組織観察

曲げ試験後の試験片と光沢度測定後の試験片のうち# 150, # 2,000, 0.06 μm を走査型電子顕微鏡 (S-4000, 日立, 以下 SEM と略す) を用い、曲げ試験片は加速電圧 5 kV, 倍率 50 倍, フィラーの観察では加速電圧 12 kV, 倍率 5,000 倍, 研磨面の観察では加速電圧 5 kV, 倍率 1,000 倍で観察した。

III. 結 果

1. 実験 1 の測定結果

表 4 に、実験 1 の測定結果の平均値と標準偏差を示す。各測定値について $\bar{X}$ -R 管理限界を求めて等分散していることを確認したのち分散分析を行った。

1) 圧縮強さ

表 5 に、圧縮強さの二元配置分散分析表を示す。臼歯部用硬質レジンの種類 (因子 A), 浸漬条件 (因子 B) および交互作用効果 A×B のすべてにおいて信頼率 99% で有意となった。図 1 に、圧縮強さに及ぼす臼歯部用硬質レジン種類と浸漬条件の影響をグラフ化したものを示す。この結果、37°C において ES が最も大きい圧縮強さを示し、最も小さいのは AG だった。また浸漬条件が 37°C から 70°C に変化すると、圧縮強さは ES で約 13%, TC で約 14%, AG では差が認められなかった。

表 2 Experimental table of test 1
実験 1 の因子と水準

因 子	水 準		
	1	2	3
A: 臼歯部用硬質レジンの種類	ES	TC	AG
B: 浸漬温度	37°C 24 時間	70°C 1 週間	

表 3 Experimental table of test 2
実験 2 の因子と水準

因 子	水 準						
	1	2	3	4	5	6	7
A: 臼歯部用硬質レジンの種類	ES	TC	AG				
C: 表面仕上げ	# 150	# 600	# 1,200	# 2,000	# 4,000	# 8,000	0.06 μm

表 4 Result of test 1

実験 1 の測定結果

臼歯部用硬質レジンの種類		圧縮強さ (MPa)		引張強さ (MPa)		曲げ強さ (MPa)		ビッカース硬さ	
		37°C	70°C	37°C	70°C	37°C	70°C	37°C	70°C
ES	平均値	542.87	473.82	87.14	66.78	154.35	142.92	160	141
	標準偏差	6.35	58.13	7.89	8.58	11.26	4.24	4	9
TC	平均値	370.17	319.08	74.53	38.18	84.73	75.60	94	60
	標準偏差	38.37	18.97	8.63	4.90	12.17	1.87	8	1
AG	平均値	303.26	302.80	70.27	39.84	82.76	79.50	60	59
	標準偏差	12.88	6.97	10.27	5.00	9.82	0.54	4	0.5

表 5 2-way ANOVA of compressive strength
圧縮強さの二元配置分散分析表

因 子	ss	df	ms	F ₀
A : 硬質レジンの種類	235,653	2	117,826.5	129.34**
B : 浸漬条件	11,948	1	11,948.0	13.12**
A × B	6,516	2	3,258.0	3.58**
e	21,865	24	911.0	
T	275,982	29		

** : 信頼率 95% で有意

Q_{ij} = ±50.87表 6 2-way ANOVA of tensile strength
引張強さの二元配置分散分析表

因 子	ss	df	ms	F ₀
A : 硬質レジンの種類	3,025	2	1,512.3	24.96**
B : 浸漬条件	6,319	1	6,319.1	104.28**
A × B	325	2	162.7	2.68
e	1,454	24	60.6	
T	11,124	29		

** : 信頼率 99% で有意

Q_i = ±11.36 図 1 Influence of posterior hard resin and dipping conditions on compressive strength
圧縮強さに及ぼす臼歯部用硬質レジンの種類と浸漬条件の影響 図 2 Influence of posterior hard resin on tensile strength
引張強さに及ぼす臼歯部用硬質レジンの種類の影響

2) 引張強さ

表 6 に、引張強さの二元配置分散分析表を示す。臼歯部用硬質レジンの種類 (因子 A) および浸漬条件 (因子 B) は信頼率 99% で有意となったが、交互作用効果 A×B は有意ではなかった。図 2 に、引張強さ

に及ぼす臼歯部用硬質レジンの種類の影響と、図 3 に浸漬条件の影響をグラフ化したものを示す。この結果、ES が最も大きい引張強さを示し、最も小さいのは AG だった。また浸漬条件が 37°C から 70°C に変化すると、引張強さはいずれの場合も低下した。

図 3 Influence of dipping conditions on tensile strength
引張強さに及ぼす浸漬条件の影響

表 7 2-way ANOVA of bending strength
曲げ強さの二元配置分散分析表

因子	ss	df	ms	F ₀
A : 硬質レジンの種類	30,827	2	15,413.5	234.96**
B : 浸漬条件	473	1	473	7.21*
A × B	89	2	44.5	0.68
e	1,575	24	65.6	
T	32,964	29		

* : 信頼率 95% で有意

** : 信頼率 99% で有意

Q_i = ± 11.82

3) 曲げ強さ

表 7 に、曲げ強さの二元配置分散分析表を示す。臼歯部用硬質レジンの種類 (因子 A) では信頼率 99% で、浸漬条件 (因子 B) では信頼率 95% で有意となったが、交互作用効果 A × B は有意ではなかった。図 4 に、曲げ強さに及ぼす臼歯部用硬質レジンの種類の影響と、図 5 に浸漬条件の影響をグラフ化したものを示す。この結果、37°C で ES が最も大きい曲げ強さを示し、最も小さいのは AG だった。また浸漬条件が 37°C から 70°C に変化すると曲げ強さはいずれの場合も低下した。

4) ビッカース硬さ

表 8 に、ビッカース硬さの二元配置分散分析表を示す。臼歯部用硬質レジンの種類 (因子 A)、浸漬条件 (因子 B) および交互作用効果 A × B のすべてにおい

図 4 Influence of posterior hard resin on bending strength
曲げ強さに及ぼす臼歯部用硬質レジンの種類の影響

図 5 Influence of dipping conditions on bending strength
曲げ強さに及ぼす浸漬条件の影響

て信頼率 99% で有意となった。図 6 に、ビッカース硬さに及ぼす臼歯部用硬質レジンの種類と浸漬条件の影響をグラフ化したものを示す。この結果、ES が 37°C で最も大きいビッカース硬さを示し、最も小さいのは AG で 60 だった。また浸漬条件が 37°C から 70°C に変化すると、ビッカース硬さは ES で約 12%、TC で約 36%、AG では約 1.6%、硬さが減少した。

2. 実験 2 の測定結果

表 9 に、実験 2 の測定結果を示す。各測定値について $\bar{X}$ -R 管理限界を求めて等分散していることを確認したのち、二元配置分散分析を行った。表 10 に二元

配置分散分析の結果の表を示す。試験片の種類 (因子 A)、表面仕上げ (因子 C) および交互作用効果 A×C のすべてにおいて信頼率 99% で有意となった。図 7 に、各臼歯部用硬質レジンの光沢度に及ぼす臼歯部

表 8 2-way ANOVA of Vickers hardness
ビッカース硬さの二元配置分散分析表

因 子	ss	df	ms	F ₀
A: 硬質レジンの種類	46,099	2	23,049.5	792.62**
B: 浸漬条件	2,426	1	2,426.0	83.43**
A × B	1,376	2	688.0	23.66**
e	698	24	29.1	
T	50,599	29		

** : 信頼率 99% で有意
Qij = ±9.09

表 10 2-way ANOVA of glossiness
光沢度の二元配置分散分析表

因 子	ss	df	ms	F ₀
A: 硬質レジンの種類	181	2	90.5	14.24**
C: 表面仕上げ	93,642	6	15,607.0	2,455.03*
A × C	2,923	12	243.6	38.32**
e	267	42	6.4	
T	97,013	62		

** : 信頼率 99% で有意
Qij = ±3.61

表 9 Result of test 2
実験 2 の測定結果

臼歯部用硬質レジンの種類		表面仕上げ						
		# 150	# 600	# 1,200	# 2,000	# 4,000	# 8,000	0.06 μm
ES	平均値	1.32	3.65	16.31	18.76	96.32	105.61	105.28
	標準偏差	0.01	0.88	2.05	2.47	1.55	0.73	6.40
TC	平均値	1.29	11.32	24.65	28.16	84.99	93.87	93.87
	標準偏差	0.00	1.38	2.21	3.60	1.74	4.51	2.86
AG	平均値	1.28	13.15	26.62	36.98	69.65	84.99	86.13
	標準偏差	0.01	0.18	2.10	3.52	0.75	3.02	0.90

図 6 Influence of posterior hard resin and dipping conditions on Vickers hardness
ビッカース硬さに及ぼす臼歯部用硬質レジンの種類と浸漬条件の影響

図 7 Influence of posterior hard resin and surface texture on glossiness
光沢度に及ぼす表面仕上げの影響

用硬質レジンの種類と表面仕上げの影響をグラフ化したものを示す。各表面仕上げによる臼歯部レジンの光沢度は#150, 600, 1,200 および 2,000 ではAG, TC, ESの順に、また#4,000, 8,000 および 0.06 μm ではES, TC, AGの順に上昇した。またES, TC, AGの光沢度はいずれにおいても表面仕上げが細くなるに従い上昇した。

3. 走査型電子顕微鏡組織像

図8～10に、ES, TC, AGの曲げ試験片破断面(37°C)、図11～13に、フィラー性状を観察するために光沢度試験片の0.06 μm を用い撮影したSEM像、また図14～22に#150, #2,000, 0.06 μm のSEM像を示す。

図8の曲げ試験の破断面では、ESにおいて破断面にフィラーの突出や脱落が認められるほかに、亀裂の進行を示す放射状の破壊像が観察されることから、最大荷重が加わった際に一気に破断したと考えられ脆性破壊像が観察された。

TC, AG(図9, 10)では、ほぼ同様のSEM像を示し、破断面にフィラーの突出や脱落が認められるほかに微小な亀裂が認められることから、フィラーが亀裂の進行を抑制しながら比較的延性メカニズムにより徐々に破壊に至ったものと考えられる。図11のSEM像から、ESには大小のさまざまなフィラーが存在し、細田ら¹⁶⁾、高田ら¹⁷⁾の分類のフィラー密度の高い高密度充填型やセミハイブリッド型に近似した像を示した。図12のTCでは、粒径の小さいフィラーが混在しているのが観察され、ハイブリッド型^{16,17)}の像を示した。

図13のAGでは、ガラスフィラーと有機質複合フィラーが混在しているのが観察され、ハイブリッド型^{16,17)}の像を示した。

光沢度試験片の#150(図14～16)では、どの試験片も研磨面にフィラーが突出し一部ではフィラーが脱落している部位もあり研磨痕が深く、表面が粗糙となっているのが観察される。#2,000(図17～19)では、ESにおいて研磨痕がほぼ平坦となり、さらに深い研磨痕のみが残存しているのが観察され、表面には気泡やフィラーが脱落した部位も認められた。TC, AGでは#150に比較し研磨痕が細かくなっているものの、マトリックスとフィラーが平坦になっている部

位は認められなかった。最終仕上げの0.06 μm (図20～22)では、フィラーとマトリックスが均一に研磨され、表面の研磨痕は観察されず、表層のフィラー粒子が観察できる。また図11～13のSEM像から、ESが表面の研磨痕が小さいのに対しTC, AGでは研磨痕は小さいものの、マトリックスとフィラーの間にステップが形成されており粒径の小さいフィラーが脱落した部位も認められた。

IV. 考 察

1. 機械的性質に及ぼす臼歯部用硬質レジンの種類と浸漬条件の影響について

試験片の劣化を加速する目的で、70°Cの水中に1週間の浸漬条件を選択した。この方法は、臼歯部レジンの劣化速度を加速することにより、きわめて短時間で機械的性質に及ぼす劣化の影響を調べることができる¹⁸⁾からである。従来型硬質レジン は口腔内で長期経過すると変色、強度の低下などさまざまな臨床的不快事項を引き起こすことが問題とされており、これは主にマトリックス相の吸水によりフィラーとマトリックスの結合が弱くなることにより劣化が生じているため¹³⁾であるといわれている。

図11のSEM像から、ESには大小さまざまなフィラーが存在し、硬質レジンの欠点であったマトリックス相にも粒径の小さいフィラーが散在し、フィラー密度が高い高密度充填型やセミハイブリッド型^{16,17)}に近似した像を示している。これは、大小のフィラーを散在させることによりマトリックスの強化を図り、材料の機械的性質を向上させるためである。その結果、圧縮試験などではフィラーとマトリックスがより緊密となり圧縮応力などが加わった際、その応力に耐えうる能力が高くなったもの^{11,12)}と考えられる。またフィラー密度が高いため、フィラーが引張応力や曲げ応力に対して抵抗し37°Cにおいて圧縮強さ、引張強さで表11に示す硬質レジンに比較し約30～40%、曲げ強さで約47%、ビッカース硬さでは約3倍と、いずれにおいても高い機械的性質を示した。これに対し70°Cでは圧縮強さで約13%、引張強さで約23%、曲げ強さで約7%、ビッカース硬さで約12%と、いずれにおいても37°Cに比較し、機械的性質の低下が認められた。これは、マトリックスの吸水によりフィ

図 8 SEM photograph of ES after bending test
ES の曲げ試験片破断面の SEM 像

図 11 SEM photograph of ES
ES の SEM 像

図 9 SEM photograph of TC after bending test
TC の曲げ試験片破断面の SEM 像

図 12 SEM photograph of TC
TC の SEM 像

図 10 SEM photograph of AG after bending test
AG の曲げ試験片破断面の SEM 像

図 13 SEM photograph of AG
AG の SEM 像

図 14 SEM photograph of ES # 150
ES の# 150 の SEM 像

図 17 SEM photograph of ES # 2,000
ES の# 2,000 の SEM 像

図 15 SEM photograph of TC # 150
TC の# 150 の SEM 像

図 18 SEM photograph of TC # 2,000
TC の# 2,000 の SEM 像

図 16 SEM photograph of AG # 150
AG の# 150 の SEM 像

図 19 SEM photograph of AG # 2,000
AG の# 2,000 の SEM 像

図 20 SEM photograph of ES 0.06 μm
ES の 0.06 μm の SEM 像

図 22 SEM photograph of AG 0.06 μm
AG の 0.06 μm の SEM 像

図 21 SEM photograph of TC 0.06 μm
TC の 0.06 μm の SEM 像

ラーとマトリックスの結合が低下した結果と考える。また、フィラー中にバリウム成分が含まれていることもフィラーとマトリックスの結合が低下した因子となっているものと思われる。フィラー中にバリウム成分が含まれていると侵入してきた水分と反応し pH が上昇し^{19,20)}、これによりフィラーとマトリックス間のシロキサン結合が分解され劣化が促進する²¹⁾ことから、本研究でも同様の反応が 70°C の条件で生じ、これが ES の劣化を促進した因子であると思われる。

TC はフィラー含有量 68 wt%，フィラー粒径が 0.007～2.0 μm と非常に小さく^{8,9)}、フィラーには ES 同様、X線造影性を有するバリウムガラスが用いられている。図 12 の SEM 像からは、粒径の小さいフィラーが混在しているのが観察され、ハイブリッド

表 11 Mechanical properties of hard resin

従来型硬質レジンの機械的性質 (文献 9 より改変)

	圧縮強さ (MPa)	引張強さ (MPa)	曲げ強さ (MPa)	ビッカース 硬度
デントカラー	310	27	62	24
ニューメタカラー	328	44	84	32
セシード II	401	51	82	65
ソリデックス	332	52	74	55
アクシス	330	35	63	48
アイサイト	323	53	103	51

型^{16,17)}の像を呈している。本研究で用いた臼歯部レジンのなかでは、37°C における測定値が 3 種のなかで中間の測定値を示し、特に引張強さが約 40%、曲げ強さでは約 10% 表 11 に示す従来型に比較して高い測定値を示した。図 9 の SEM 像から、ES に比較し破断面にフィラーの突出や脱落が認められるほかに、微小な亀裂が認められることから、フィラーが亀裂の進行を抑制しながら比較的延性メカニズムにより徐々に破壊に至ったものと考えられ、比較的延性材料であることが予測される。引張強さは、材料に咬合圧などで引張応力が加わった際にそれに耐える力であるため当然高いほうが有利となる。また曲げ強さはロングスパンのブリッジなどで、たわみが生じるようなケースには重要な要素となってくる。

TC は ES と同様に光重合を行った後、加熱重合を行うことにより未重合部分を解消しているものと思われるが、70°C では ES 同様に機械的性質が低下した。TC には ES 同様、X線造影性を付与するためバリウ

ムガラスフィラーが使用されている^{8,9)}。このため、ESと同様に劣化が生じたものと思われる。またモノマー成分として、ポリカーボネート系のモノマーを使用している^{8,9)}ことから、ポリカーボネートの特徴である水温や、アルカリ下で加水分解しやすい性質¹⁴⁾をもっていることも考えられ、フィラーとの結合を阻害する因子となっていたものと考えられる。

AGは図13に示すように、ガラスフィラーと有機質複合フィラーからなる臼歯部レジンのフィラー粒径が平均 $0.07\mu\text{m}$ 、最大 $2.0\mu\text{m}$ でフィラー含有量70%¹¹⁾と、従来型とほぼ同等でハイブリッド型^{16,17)}の像を呈している。表11の従来型と比較すると圧縮強さ、曲げ強さ、ビッカース硬さで同等の測定値を示しているが、特に 37°C において、引張強さで約26%従来型に比較し高い測定値を示した。このことから、AGは咬合力により材料に生じた引張応力に耐える性質が高く、たわみに対する力が高いものと推察される。またTCと同様、図8のSEM像から破断面にフィラーの突出や脱落が認められるほかに微小な亀裂が認められることから、比較的延性材料であることが予測される。 70°C ではES、TCに比較し圧縮強さ、曲げ強さ、ビッカース硬さでの劣化が著明ではなく圧縮強さで約0.15%、曲げ強さで約4%、ビッカース硬さで約1.6%となった。これは、AGの重合方法が光重合のみであることが原因と考えられ、試験片が 70°C で浸漬中に加熱され試験片内部に残留した未反応モノマーの重合が促進された結果、圧縮強さ、曲げ強さ、ビッカース硬さでの劣化が著明でなかったものと思われる。しかし引張強さで 37°C に比較し、 70°C で約43%劣化が著明に認められた。AGのモノマー成分であるUDMAは親水性モノマーであること¹⁴⁾から、 70°C の環境下ではマトリックスの吸水により、フィラーとマトリックスの結合が低下し、劣化が生じたものと思われる。

一般に光重合型コンポジットレジンは、硬化後の硬さが低い部分に残留モノマー量が多く含まれていることがあり²²⁾、これを解決し機械的性質を向上させるうえで加熱重合は一つの有効手段と思われる。しかし、過度の加熱重合は硬質レジンの劣化を招くことから、最適加熱条件はモノマー組成やフィラーにより変化させる必要がある¹²⁾。特に大臼歯部のジャケットクラウンを製作する際、支台歯形成量が $1.5\sim 2.0\text{mm}$

とかなりの形成量を必要とし、これに伴いクラウンの厚さも厚くなることから、光重合のみでは未重合モノマーが残留しやすいことが予測される。このため最終重合で加熱重合することは、光重合では未反応となつて残留したモノマーを減少させ強度を高めるうえで重要であると思われる。

口腔内でこれら硬質レジンに応用する際、修復物には種々の刺激や応力などさまざまな劣化因子が加わる事となる。また温度変化もレジンの劣化に影響を与える^{5,23)}。 37°C の浸漬条件ではマトリックス部分の吸水、フィラーとマトリックス間の結合力の低下が著明でなく、浸漬温度による影響が現れず、吸水することにより材料自体の弾性係数が高くなる¹³⁾。これに対し、 70°C で機械的性質が低下したのは、マトリックス部分の過度の吸水や熱刺激によるシロキサン結合の分解が生じ、これに伴いフィラーとマトリックス間の結合の低下が起こり強度が低下し、この両者の熱膨張差による歪みが蓄積された結果、界面部分が脆弱となって微小間隙が形成され^{24,25)}、機械的性質が低下したものと考えられる。このため、材料に加わった応力をマトリックスを介してフィラー粒子に伝達することができず、応力の増加に伴いマトリックス部分の塑性変形が進み、 37°C での強さより低い応力で破壊に至ったもの²⁶⁾と思われる。一般にこれら硬質レジンの引張強さ、曲げ強さなどの引張応力による破壊抵抗性を調べる試験方法では、マトリックスおよびフィラーとマトリックス界面など、マトリックスの抵抗性が結果に大きく影響を与える。したがって、低分子化合物の蒸発や酸分解などによるマトリックスが劣化した条件では、引張強さ、曲げ強さが低下したものと思われ、この影響はすべての臼歯部レジンにおいて認められた。

2. 光沢度に及ぼす臼歯部用硬質レジンの種類と表面仕上げの影響について

臼歯部レジンの表面仕上げを#150, 600, 1,200, 2,000, 4,000, 8,000, $0.06\mu\text{m}$ に変化させたときの光沢度の変化について比較、検討した。その結果、図7からも明らかなようにES、TC、AG、いずれにおいても、これまでの報告^{15,27~29)}と同様、表面仕上げが細くなるに従い光沢度は上昇した。しかし、各表面仕上げにおける光沢度は製品により異なっており、

#150 から #2,000 までは AG が光沢度が高く、#4,000 以降は ES が高い光沢度を示した。

図 14~16 の SEM 像から、#150 ではどの試験片も研磨痕が深く表面にフィラーが突出し、一部ではフィラーが脱落した部位も観察される。この段階での光沢度は研磨痕による影響が大きく¹⁵⁾、入射光のほとんどが散乱光として反射するため、すべての試験片で 1% 程度の低い光沢度となっている。#2,000 (図 17~19) では、ES において研磨痕がほぼ平坦となっているのが観察されるが、表面には気泡やフィラーが脱落した部位が多く観察される。TC、AG では #150 に比較し研磨痕が細かくなっているものの、マトリックスとフィラーが平坦になっている部位は観察されない。このことから予測すると、光沢度は $ES > TC$ 、AG となることが考えられるが、実際の測定値は $ES < TC < AG$ の順となった。一般に硬質レジンでは無機フィラー成分が多いと研磨性が低下し、フィラー粒径が小さいと研磨性が向上する¹⁴⁾といわれている。本研究に用いた 3 種の臼歯部用硬質レジンでは、ES で平均フィラー粒径が $0.02 \sim 2.0 \mu\text{m}$ 、TC のフィラー粒径が $0.007 \sim 2.0 \mu\text{m}$ 、AG の平均フィラー粒径が $0.07 \mu\text{m}$ 、最大 $2.0 \mu\text{m}$ である^{8~11)}とされており、いずれのレジンもそのフィラー粒径は小さい。#2,000 において ES がこれら 3 種のなかで光沢度が低かったのは、粒径の大きいフィラーはある程度研磨され表面は均一になるが、一部では研磨中に粒径の小さいマイクロフィラーが脱落し、そのほかの部位では粒径の小さいマイクロフィラーが突出しているものと考えられる。その結果、表面から入射した光が小さいフィラーの影響を受け散乱、吸収し正反射成分が減少することにより光沢度が低下したものと思われる。

最終仕上げの $0.06 \mu\text{m}$ (図 20~22) では、フィラーとマトリックスが均一に研磨され、表面の研磨痕は観察されず表層のフィラー粒子を観察することができる。また図 11~13 の SEM 像から、ES では表面の研磨痕が小さいのに対し TC、AG ではマトリックスとフィラーの間にステップが形成されており、粒径の小さいフィラーが脱落した部位も認められる。これは、研磨時にマトリックスとフィラーが剝離しステップが形成されたものと考えられ、AG がほかの 2 種に比較し低い光沢度を示した結果と考える。

光沢度は物体の表面の性状が平滑であれば照射角度

が大きいほど、また屈折率が高いほど正反射束が増加し、高くなる^{30,31)}といわれている。しかし、物体表面に凹凸があると正反射束は減少し光沢度は低下するため、表面の性状は光沢度に直接影響を及ぼしている^{30,31)}。すなわち、本研究において低光沢度を示した #150~#2,000 における試験片の表面性状は研磨材の影響を受け、研磨面のフィラーとマトリックスが剝離し、先の SEM 像からも明らかなように深い凹凸が形成され、表面にフィラーが露出することにより屈折率が増加するため、低い光沢度を示す結果になったものと思われる。また屈折率については、その物質に含まれる顔料に関係している^{32,33)}といわれており、硬質レジンやポーセレンのような歯冠色材料には、顔料が着色材やマイクロフィラーとして添加されている。これには主に金属酸化物である Al_2O_3 、 TiO_2 、 ZrO_2 が用いられている。本研究ではこれらが低光沢のとき、すなわち #150~#2,000 の表面仕上げのときに金属酸化物を含むマイクロフィラーが表面に露出し微小な凹凸が形成されるため、屈折率が増加し光沢度に影響を及ぼしたものと考えられる。またシリンジから採取したレジンペースト中のフィラーが均一に配合され、均等に分散した状態では高い光沢が得られるが、表面に残存した気泡や不均一に配合されたフィラーが存在すると部分的に屈折率が低くなり光沢度は低下する³³⁾と考えられる。さらに、フィラーの含有量や粒径も光沢度に影響を及ぼすと考えられ、ES、TC のように無機フィラーを用いた硬質レジンでは口腔内で表面滑沢性が低下することが予測されるが、フィラー粒径を小さくし研磨性を向上させるための配慮がなされ、TC でも ES 同様にフィラー粒径を小さくすることにより研磨性を向上させているものと思われる。AG では、粒径の小さいガラスフィラーを用いることに加え、有機質複合フィラーを用いることにより研磨性を向上させているものと考えられる。光沢度は色調や明度にも関係する³¹⁾ことから、これらの歯冠色材料では研磨面を滑沢に仕上げるのが天然歯のような透明性、色調を再現するうえで重要な要素となってくるものと考えられる。しかし研磨時にレジン内部のフィラー粒径が小さいと、フィラー粒子が表面に突出し、咬合力によりフィラーの脱落や、対合歯の咬耗を促進する原因となるだけでなくレジンの劣化を促進する原因となることも考えられることから、今後臨床に沿った形式での検

討も必要と思われる。

V. 結 論

本研究は、市販臼歯部用硬質レジン機械的性質に及ぼす浸漬条件の影響と光沢度に及ぼす表面仕上げの影響を明らかにする目的で、実験1ではエステニア(以下ESと略す)、コンクエストサーモクリスタル(以下TCと略す)、アートグラス(以下AGと略す)を用い機械的性質(圧縮強さ、引張強さ、曲げ強さ、ビッカース硬さ)に及ぼす浸漬条件の影響を37°Cの水中に24時間浸漬した場合(以下37°Cと略す)と70°Cの水中に1週間浸漬した場合(以下70°Cと略す)の2条件として実験を行った。

実験2では実験1に使用したES、TC、AGの表面仕上げを#150, 600, 1,200, 2,000, 4,000, 8,000, 0.06 μm としたときの光沢度を測定した。

結果を要約すると以下ようになる。

1. 圧縮強さ、ビッカース硬さではES-TC-AG間、引張強さではES-TC間、曲げ強さではES-TC間、ES-AG間に有意差が認められ、最も高い測定値を示したのはESだった。

2. 水中浸漬による影響では、37°Cに比較し70°Cのほうが機械的性質が低下し、ES、TC、AGすべてにおいて圧縮強さ、引張強さ、曲げ強さ、ビッカース硬さで浸漬条件の因子と水準が有意となった。

3. 各表面仕上げにおける光沢度はレジンの種類により異なり、表面仕上げが細くなるに従い上昇し、#150から#2,000ではES<TC<AG、#4,000から0.06 μm ではES>TC>AGの順に高い値を示した。

4. 試験片表面の研磨痕は表面仕上げが細くなるに従い減少し、#150で最も研磨痕が深くフィラーが脱落した部位も認められたが、最終仕上げの0.06 μm ではマトリックスとフィラーが均一に研磨され研磨痕はほとんど認められなかった。

稿を終えるに臨み、終始ご懇篤なるご指導、ご校閲を賜りました日本歯科大学歯学部歯科補綴学教室第2講座医局員諸兄に感謝の意を表します。

なお、本研究の要旨は第453回日本歯科大学歯学会例会(平成8年11月14日、東京)および平成8年度日本補綴歯科学会関東支部学術大会(平成9年2月15日、東京)において発表した。

文 献

- 1) Leinfelder KF. Clinical evaluation of crown and bridge composite resin veneering materials. J Dent Res 65:166, Abstr. S 31, 1986.
- 2) 横塚繁雄. 現代の審美歯冠修復 195-221, 東京:クインテッセンス出版, 1989.
- 3) 平澤 忠, 永野清司, 友田浩三編. 歯科技工別冊/接着・適合・審美にポイントをおいた歯科用レジンと歯科技工 6-25, 東京:医歯薬出版, 1993.
- 4) 五味治徳, 新谷明喜. 最近の硬質レジン. DE 122:29-34, 1997.
- 5) 宮崎 隆, 鈴木 暎, 宮地俊幸. サーマルサイクルが臼歯用コンポジットレジン機械的性質に及ぼす影響. 歯材器 5:187-195, 1986.
- 6) 五味治徳, 新谷明喜, 横塚繁雄. 臼歯部歯冠用硬質レジン機械的性質に関する研究. 歯学 80:87-101, 1992.
- 7) 古屋尚子, 新谷明喜, 横塚繁雄. 歯冠用光・加熱重合型コンポジットレジン色調再現性に関する研究. 歯学 81:639-680, 1993.
- 8) 鈴木司郎. 新しい歯冠修復用レジン「コンクエスト・サーモクリスタル」の臨床応用. QDT 19:1655-1671, 1994.
- 9) 石上恵一, 千葉 淳, 大木研一ほか. 歯冠用硬質レジンコンクエストの基礎的物性. 補綴誌 40:24-28, 1996.
- 10) 新谷明喜, 五味治徳, 砂田徳保ほか. 各種ハイブリッド型歯冠修復材料の材料評価と技工術式. 歯科技工 25:693-712, 1997.
- 11) 中村隆志, 山田和伸, 細見洋泰ほか. QDT 別冊/新世代歯冠修復材料エステニア アートグラス タルギス/ベクトリス ベルグラス シンフォニーの技工操作 10-73, 東京:クインテッセンス出版, 1997.
- 12) 中村宣男, 友田浩三. 歯科用硬質レジンにおけるフィラーと理工学的性質の関係. 歯材器 6:713-718, 1987.
- 13) 伴 清治, 鶴田昌三, 石樽一博ほか. 光重合型歯科用硬質レジン歯科理工学的性質. 愛院大歯誌 26:353-360, 1988.
- 14) 長谷川二郎. 明解歯科理工学 99-128, 東京:学建書院, 1993.
- 15) 金子泰雄, 新谷明喜, 横塚繁雄. ポーセレンの光沢度と色調に及ぼす表面仕上げの影響. 補綴誌 42:102-114, 1998.
- 16) 細田裕康, 山田敏元, 木本 徹. コンポジットレジン分類とフィラー組成に関する研究(第4報)歯冠前装用及びその他のレジン分類. 日歯保存誌 3:760-774, 1988.
- 17) 高田恒彦, 山田敏元, 佐藤暢昭ほか. コンポジットレジン分類とフィラー組成に関する研究(第5報)最近のレジン分類. 歯材器 13:388-396, 1994.
- 18) 小村育男, 山内淳一. パナビア EX の歯科用合金に対す

- る接着強度の耐久性. 接着歯学 3 : 141, 1986.
- 19) Bowen RL, Reed LE. Semiporous reinforcing fillers for composite resins : I Preparation of provisional glass formulations. J Dent Res 55 : 738-747, 1976.
- 20) Bowen RL, Reed LE. Semiporous reinforcing fillers for composite resins : II Heat treatment and etching characteristics. J Dent Res 55 : 748-756, 1976.
- 21) 藤島昭宏, 宮崎 隆, 高玉真理子ほか. 沸騰水加速試験によるコンポジットレジン of の耐久性に関する研究. 歯材器 7 : 807-816, 1988.
- 22) 平林 茂. 可視光線重合型コンポジットレジン of の光透過性と重合性に及ぼすモノマー組成とフィラーの影響. 歯材器 6 : 481-495, 1987.
- 23) 丸山四郎, 小林弘二, 小西法文ほか. コンポジットレジン of の X 線不透過性に関する研究 第 5 報 バリウムガラスフィラー含有試作コンポジットレジン of の機械的性質および表面性状に及ぼすサーマルサイクリングの影響. 日歯保存誌 33 : 124-131, 1990.
- 24) 細田裕康, 山田敏元, 堀江恭一. コンポジットレジン of の劣化に関する研究 第 1 報 アルカリ環境下における表面性状の変化. 日歯保存誌 30 : 863-882, 1987.
- 25) 細田裕康, 山田敏元, 猪越重久. コンポジットレジン of の劣化に関する研究 第 2 報 アルカリ環境下における内部構造の変化. 日歯保存誌 30 : 1251-1265, 1987.
- 26) 川口 稔, 福島忠男, 宮崎光治. 歯科用コンポジットレジン of の劣化関与因子 2 劣化コンポジットレジン of の SEM 観察. 歯材器 13 : 116-121, 1994.
- 27) 宮川行男, 中村健吾, 赫田 清ほか. 表面仕上げの異なる Au-Ag-Cu 合金 of の各種光沢度. 歯材器 8 : 688-700, 1989.
- 28) 童 平, 猪越重久, 山田敏元ほか. 歯刷子摩耗試験 of のコンポジットレジン of の表面粗さおよび光沢度変化に関する研究. 歯材器 10 : 831-838, 1991.
- 29) 大内秀明, 新谷明喜, 横塚繁雄. リン酸カルシウム系結晶化ガラス of の光沢度および色調に関する研究. 歯学 81 : 106-124, 1993.
- 30) 蓮沼 宏. 光沢. 東京 : コロナ出版, 1960.
- 31) 日本色彩学会編. 新編色彩科学ハンドブック 625-643, 東京 : 東京大学出版会, 1989.
- 32) 坂 清子. Q & A セラモメタルサイエンス, 東京 : 医歯薬出版, 1989.
- 33) 清野 学. 酸化チタン一物性と応用技術, 東京 : 技報堂出版, 1991.

著者連絡先 : 砂田 徳保

〒102-8158 東京都千代田区富士見 2-3-16

TEL : 03-3261-5743, 03-3261-5738

FAX : 03-3261-3924

Study on Mechanical Properties and Glossiness of Marketed Hard Resin for Posterior Restorations

Noriyasu Sunada, Akiyoshi Shinya and Shigeo Yokozuka

Department of Crown and Bridge, The Nippon Dental University School of Dentistry at Tokyo
(Chief : Prof. Yoshikazu Watanabe)

J Jpn Prosthodont Soc 45 : 137-151, 2001

ABSTRACT

Purpose : The research investigated marketed hard resins for dental usage as to mechanical properties affected by dipping conditions, and as to glossiness provided by finishing materials. Three candidates : Esthenia, Conquest Thermocrystal, and Art Glass, went through the following tests, for that purpose.

Methods : 1. Dipping Test for Four Mechanical Properties : Compressive Strength, Tensile Strength, Bending Strength, and Vickers Hardness. Condition 1 : Each candidate dipped in 37°C water for 24 hours. Condition 2 : Dipped in 70°C water for one week. 2. Finishing Material Test for Glossiness. Employed Materials : A. Six kinds of waterproof polishing paper : # 150, 600, 1,200, 2,000, 4,000, 8,000. B. Silica powdered solution : 0.06 μ m fine.

Result : The data in Condition 1 were more ideal in each material property compared with Condition 2 ; Esthenia showed the highest result in each material property, of all the candidates. The test for glossiness indicated two noticeable orders of the candidates : a. Art Glass, Conquest Thermocrystal, and Esthenia, in descending order, qualified by the finishing materials # 150-2,000. b. Esthenia, Conquest Thermocrystal, and Art Glass, by # 4,000, 8,000, and 0.06 μ m silica solution.

Conclusion : In conclusion, the research showed three results : All the resins showed higher material properties in 37°C water for 24 hours than in 70°C water for one week ; Esthenia showed the highest measurement in the dipping test ; and the finishing material test showed different glossiness ranks of Esthenia and Art Glass in # 2,000 or lower and in # 4,000 or higher of finishing materials.

Key words

posterior hard resin, mechanical properties, glossiness