原 著 論 文

高フィラー型硬質レジン修復物の補修に関する研究

表面処理条件が接着強さに及ぼす影響

川本 善和 檜山 礼秀 根本 美佳 島 弘光
河原 一茂 島田 和基 吉成 勝海 浅野 澄明
棧 淑行 五十嵐孝義 齊藤 仁弘* 西山 實*

A Study on Repair Restoration of High-Filler-Content Prosthetic Composite Resins

—Effect of Surface Treatment Conditions on Bending Bond Strength—

Yoshikazu Kawamoto, Norihide Hinokiyama, Mika Nemoto, Hiromitsu Shima,
Kazushige Kawahara, Kazuki Shimada, Katsuumi Yoshinari, Sumiaki Asano,
Yoshiyuki Kakehashi, Takayoshi Igarashi, Masahiro Saitoh* and Minoru Nishiyama*

歯科補綴学的意義

高フィラー型硬質レジンとは、フィラー配合量を高め、加熱により重合度を高めることで物性の向上を図った審美的
歯冠修復材料であり広く臨床応用されているが、歯冠修復物の補修について検討した報告は少ない。そこで、補修
時の最適な表面処理条件の解明を企図した。今回は試適時または修復直後の破折を想定して、高フィラー型硬質レ
ジンのエスニア補修時の直接法および間接法の表面処理条件について、曲げ接着強さから検討した。

抄 録

目的：本研究の目的は、高フィラー型硬質レジン修復物の補修時に追加築盛を行う際の表面処理条件が
曲げ接着強さに及ぼす影響を明らかにすることである。

方法：高フィラー型硬質レジンとしてエスニア（エナメル質用レジンEE，象牙質用レジンED）を
用い、製造者指示に従い重合した被着体（2×2×12.5 mm）に、処理なし（NT），シラン処理（S），
ボンディング処理（B），シラン処理とボンディング処理を併用（SB）の条件で表面処理を行った後
に、直接法（D）ではクリアフィル AP-X および間接法（I）ではEEによる追加築盛を行って重合し、
曲げ接着試験用試験体（2×2×25 mm）を作製した。作製した試験体は、37°Cで24時間水中保管後に
3点曲げ試験を行い、曲げ接着強さとした。

結果：被着体EEおよびEDの両者で、直接法はD-S≒D-SB>D-B>D-NTの順に、SとSB間を除
き有意（one-way ANOVA, $p<0.05$ ）に大きな値を示し、間接法はI-SB>I-S>I-B>I-NTの順に有
意に大きな値を示した。また、破断面のSEM観察では、D-NTおよびI-NT以外のすべての処理条
件で、被着体および追加築盛体での凝集破壊が認められた。

結論：直接法および間接法の両者で、SBとSが最も効果的で、次いでBが有効であった。

和文キーワード

高フィラー型硬質レジン，接着強さ，補修修復，コンポジットレジン，シラン処理剤

日本大学歯学部補綴学教室クラウン・ブリッジ学講座（主任：五十嵐孝義教授）

*日本大学歯学部歯科理工学教室

Department of Crown and Bridge Prosthodontics, Nihon University School of Dentistry (Chief : Prof. Takayoshi Igarashi)

*Department of Dental Materials, Nihon University School of Dentistry

受付：2001年6月11日/受理：2001年7月30日

Received on June 11, 2001/Accepted on July 30, 2001

I. 緒 言

高フィラー型硬質レジンとは、フィラー配合量の増加およびマトリックスレジン改良により、従来型硬質レジンに欠点であった機械的性質¹⁾、耐摩耗性^{2,3)}および耐変色性⁴⁾などを改善し、臼歯部にも応用可能な審美的歯冠修復材料として広く臨床応用されてきている^{5,6)}。しかし、この材料は、上記性質の改善と引き換えにレジン材料特有の粘り強さが減少して脆性が高まった⁷⁾ことから、偶発的な応力の集中により、陶材と同様に切縁や咬頭頂にチッピングや破折等が起こる危険性も高くなった^{8~11)}。

硬質レジン修復物に破折が生じた場合は同一材料で補修できる¹²⁾という利点があるが、追加築盛時に線状モノマーでみられるポリマー表面を溶解する膨潤溶解は、重合完了後および加熱重合後の硬質レジンでは低く、また未反応の官能基の残留が少ないことから、補修時の追加築盛後に十分な接着強さが得られない^{11~13)}ことが指摘されている。したがって、高フィラー型硬質レジン修復物の補修時には、破折面に露出した多量のフィラーをシラン処理^{14~18)}して接着強さの向上を図ることが有効であると考えられるが、補修時における表面処理条件の影響についての報告は少ない。

そこで、高フィラー型硬質レジン補修時に追加築盛を行う際の最適な条件を知るために、高フィラー型硬質レジン修復物が試適時あるいは装着後に破折したことを想定して、補修時の表面処理条件が曲げ接着強さに及ぼす影響について比較検討を行った。

II. 材料と方法

1. 使用材料

使用材料および略号を表1に示した。

被着体用レジンとは、エステニア・エナメル質用レジンE1（以下、EE）および象牙質用レジンDA3（以下、ED）を使用した。

追加築盛用レジンとは、製造者指示による口腔内で行う補修法（以下、直接法）では成形修復用コンポジットレジンのクリアフィルAP-X A3（以下、APX）を、製造者指示による口腔外で行う補修法（以下、間

接法）ではEEをそれぞれ使用した。

表面処理剤は、直接法ではシラン処理としてクリアフィルポーセレンボンド・アクティベーター（以下、CPA）とクリアフィルメガボンド・プライマー（以下、CMP）およびボンディング処理としてクリアフィルメガボンド・ボンド（以下、CMB）を、間接法ではシラン処理としてアドオンプライマー（以下、ADP）およびボンディング処理としてモデリングリキッド（以下、MDL）をそれぞれ使用した。

2. 実験方法

1) 被着体の作製

被着体は、EEおよびEDを、ISO 4049¹⁹⁾に準じた2×2×25 mmのステンレス製の型（以下、金型）に填入し、ポリエチレンフィルムを介在して圧接後、製造者指示に従って重合した。すなわち、光重合器（ α -ライトII，モリタ）にて上・下面それぞれ300秒間ずつ光照射を行い、エアバリアペースト（クラレ）を塗布した後に、加熱重合器（KL-310，モリタ）で110℃、15分間加熱重合を行った。その後、半分の長さになるようにマイクロカッター（MC 501 C，マルトー）およびキンバレー式ダイヤモンドブレード（マルトー）を用いて長軸に対して垂直に切断し、被着面（2×2 mm）を#800の耐水研磨紙で調整（Ra：0.21±0.02 μ m）した。

2) 曲げ接着試料の作製

曲げ接着試料は、被着体を以下に示した表面処理条件（表2）で被着面処理して金型に戻し、追加築盛用レジンにて追加築盛を行った後、重合して作製した。

すなわち、直接法では、被着体の被着面に特定の処理を行わなかったもの（以下、D-NT）、シラン処理剤CPAとCMPを等量混和し塗布し乾燥させたもの（以下、D-S）、ボンディング剤CMBを塗布した後に光重合器（XL 3000，3 M）を用いて10秒間光重合を行ったもの（以下、D-B）、シラン処理とボンディング処理とを併用したもの（以下、D-SB）の4条件の表面処理を行った。次に、これらを表面処理した被着面が中央にくるように金型に戻し、金型の残り半分にAPXを填入し、ポリエチレンフィルムを介在して圧接後、製造者指示に従って上・下面にそれぞれ光重合器（XL 3000，3 M）を用い20秒間光照射を行って重合した。

表 1 Materials assessed
使用材料

Materials	Product name	Manufacturer	Lot no.	Code
Proshetic composite	Estenia enamel E 1	Kuraray	00206 A	EE
	Estenia dentin DA 3	Kuraray	00115 A	ED
Restorative composite	Cleafil AP-X A 3	Kuraray	00636 B	APX
Silane coupling agent	Cleafil porcelain bond • activator	Kuraray	00091 E	CPA
	Cleafil mega bond • primer	Kuraray	00102 A	CMP
	Add-on primer	Kuraray	00011 C	ADP
Bonding agent	Cleafil mega bond • bond	Kuraray	00030 A	CMB
	Modeling liquid	Kuraray	00015 B	MDL

表 2 Surface treatment conditions
被着面の処理条件

Repair methods	Surface treatment methods	Code
Direct (APX)	No treatment	D-NT
	CPA+CMP	D-S
	CMB (irradiation 10 s)	D-B
	(CPA+CMP)+CMB	D-SB
Indirect (EE)	No treatment	I-NT
	ADP	I-S
	MDL	I-B
	ADP+MDL	I-SB

一方、間接法では、被着体の被着面に特定の処理を行わなかったもの（以下、I-NT）、シラン処理剤 ADP を塗布して乾燥させたもの（以下、I-S）、ボンディング剤 MDL を塗布したもの（以下、I-B）、シラン処理とボンディング処理とを併用したもの（以下、I-SB）の 4 条件の表面処理を行った後に、直接法と同様にジグに戻して EE を填入し、製造者指示に従って光および加熱重合した。

得られた重合体は、直接法および間接法ともに、掛谷ら²⁰⁾の報告に従って、# 800 の耐水研磨紙にて所定の寸法に調整した後、37°C の精製水中に 24 時間保管して曲げ接着試料とした。

3) 曲げ接着試験

曲げ接着強さ、弾性係数およびたわみ量の測定は、インストロン型万能試験機（5567, インストロン）を用い、支点間距離 20 mm, クロスヘッドスピード 1.0 mm/min の条件下で 3 点曲げ試験を行った。試験体数は、各条件につき 10 個とした。

曲げ接着強さは、曲げ強さと同様の計算式¹⁹⁾を用い

て算出し、平均値を求めた。

なお、曲げ接着試料の作製および曲げ接着試験は、温度 $23 \pm 1^\circ\text{C}$ 、湿度 $50 \pm 5\%$ の恒温恒湿室で行った。

3. 統計処理

曲げ接着強さについて、直接法および間接法での処理条件間を一元配置分散分析にて検定を行い、有意差の認められたものについては、多重比較検定の Fisher's PLSD ($p < 0.05$) を用いて統計学的有意差の検定を行った。

また、被着体間の各処理条件および直接法と間接法間の各処理条件について t-検定 ($p < 0.05$) を用いて統計学的有意差の検定を行った。

4. SEM 像の観察

SEM 像の観察は、被着体 EE および ED の # 800 研磨調整後（以下、# 800 面）および曲げ接着試験後の被着体側破断面（以下、破断面）を通法に従い金蒸着し、走査型電子顕微鏡（JSM-T 100, 日本電子）を用いて加速電圧 15 kV にて観察を行った。

III. 結 果

1. 曲げ接着強さ

各処理条件における曲げ接着強さを図 1 および 2 に示した。

1) 直接法

被着体 EE は $D-S \approx D-SB > D-B > D-NT$, 被着体 ED は $D-SB \approx D-S > D-B > D-NT$ の順に大きな値を示し、EE および ED の両者とも D-S と D-SB 以外では有意差が認められた。

図 1 Results of bending bond strength : EE
被着体 EE における曲げ接着強さ

図 2 Results of bending bond strength : ED
被着体 ED における曲げ接着強さ

2) 間接法

被着体 EE および ED はいずれも I-SB>I-S>I-B>I-NT の順に有意に大きな値を示した。

直接法および間接法の両者ともに、各処理における被着体 EE と ED 間では、すべての条件で有意差は認められなかった。

2. 弾性係数およびたわみ量

各処理条件ならびに EE, ED および APX の単体における弾性係数およびたわみ量を以下に示した。

1) 弾性係数

被着体 EE では D-NT 20.6 ± 1.7 GPa, D-S 20.2 ± 1.2 GPa, D-B 20.4 ± 1.0 GPa, D-SB 20.2 ± 1.5 GPa, I-NT 23.6 ± 1.7 GPa, I-S 24.5 ± 1.3 GPa, I-B 24.7 ± 0.9 GPa および I-SB 24.2 ± 1.4 GPa の値であった。被着体 ED では D-NT 20.5 ± 1.3 GPa, D-S 20.2 ± 1.2 GPa, D-B 19.7 ± 0.7 GPa, D-SB 20.3 ± 1.1 GPa, I-NT 22.3 ± 1.1 GPa, I-S 23.1 ± 1.3 GPa, I-B 22.8 ± 1.6 GPa および I-SB 23.1 ± 1.1 GPa の値であった。単体では EE 24.0 ± 1.0 GPa, ED 22.3 ± 1.2 GPa および APX 17.8 ± 1.2 GPa であった。

2) たわみ量

被着体 EE では D-NT 0.07 ± 0.03 mm, D-S 0.21 ± 0.04 mm, D-B 0.14 ± 0.03 mm, D-SB 0.20 ± 0.04 mm, I-NT 0.08 ± 0.02 mm, I-S 0.14 ± 0.03 mm, I-B 0.13 ± 0.03 mm および I-SB 0.18 ± 0.03 mm の値であった。被着体 ED では D-NT

0.06 ± 0.02 mm, D-S 0.19 ± 0.05 mm, D-B 0.13 ± 0.03 mm, D-SB 0.20 ± 0.04 mm, I-NT 0.08 ± 0.02 mm, I-S 0.14 ± 0.05 mm, I-B 0.14 ± 0.03 mm および I-SB 0.17 ± 0.04 mm の値であった。単体では EE 0.29 ± 0.02 mm, ED 0.32 ± 0.04 mm および APX 0.38 ± 0.04 mm であった。

3. SEM 観察

被着体 EE の #800 面の SEM 像を図 3 に、直接法および間接法における被着体 EE の破断面の SEM 像を図 4～11 に示した。

#800 面 (図 3) では、研磨によって生じた擦過痕とみられる像が主に観察された。

破断面では、D-NT (図 4) および I-NT (図 8) では、界面破壊とみられる図 3 と同様な研磨による擦過痕が主に観察された。D-S (図 5), I-S (図 9), I-B (図 10) および I-SB (図 11) では、被着体および追加築盛体における凝集破壊とみられる像が主に認められたが、研磨による擦過痕も一部に認められた。D-B (図 6) および D-SB (図 7) では研磨による擦過痕、追加築盛体における凝集破壊とみられる像およびボンディング剤とみられる層が認められた。

被着体 ED については EE と同様の像が認められた。

IV. 考 察

この修復材料は、破折や脱離などはまれであると報

図 3 SEM photograph of EE surface after polishing
研磨調整後における EE の被着面の SEM 像

図 4 SEM photograph of fracture surface D-NT after bending bond test: EE
被着体 EE における D-NT の破断面の SEM 像

図 5 SEM photograph of fracture surface D-S after bending bond test: EE
被着体 EE における D-S の破断面の SEM 像

図 6 SEM photograph of fracture surface D-B after bending bond test: EE
被着体 EE における D-B の破断面の SEM 像

図 7 SEM photograph of fracture surface D-SB after bending bond test: EE
被着体 EE における D-SB の破断面の SEM 像

図 8 SEM photograph of fracture surface I-NT after bending bond test: EE
被着体 EE における I-NT の破断面の SEM 像

図 9 SEM photograph of fracture surface I-S after bending bond test: EE
被着体 EE における I-S の破断面の SEM 像

図 10 SEM photograph of fracture surface I-B after bending bond test: EE
被着体 EE における I-B の破断面の SEM 像

図 11 SEM photograph of fracture surface I-SB after bending bond test: EE
被着体 EE における I-SB の破断面の SEM 像

告されている^{21,22)}一方、脆性が高まったことによって、切端や咬頭頂における偶発的な破折およびチッピングなどが懸念されている^{9,23)}。破折やチッピングが生じた場合の処置としては、広範囲に及ぶ場合は再製作となるが、小規模の場合は補修修復が主に行われている^{7,9,12,13,24)}。

補修修復は通常、直接法および間接法の 2 通りが行われている。直接法は口腔内に装着された固定性の歯冠修復物に対し、直接口腔内で行われる補修法であり、間接法はインプラントの上部構造物や可撤性ブリッジなど口腔外に取り出すことが可能な場合、技工室で行われる補修法である。臨床での補修の頻度は口

腔内で行う直接法が、技工室で行う間接法に比較して高いと考えられる。両者は表面処理剤や追加築盛用レジンの使用上の制限から、補修にあたっての術式に違いがあり、その異なった術式が接着強さに影響を及ぼすものと考えられるが、フィラーが多数露出した高フィラー型硬質レジンの破折面に対して、安定した接着強さを得るためには、何らかの表面処理が必要であると考えられた。そこで、各補修法における高フィラー型硬質レジン補修時の表面処理および追加築盛材の影響について接着強さから検討することとした。

補修後の接着強さの評価は、稲井ら^{25,26)}や Gregory ら²⁷⁾などの3点曲げ試験を応用した曲げ接着試験によって行った。この方法の利点としては次のことがあげられる。すなわち、破折やチッピングの一因となる切縁や咬頭頂にかかる咬合力は、材料の弾性によって緩衝されると考えられる。曲げ接着試験では、荷重はレジン自体の弾性によって、接着界面だけでなく試験体に分散すること、さらに、レジン単体の曲げ強さと曲げ接着強さを比較することで、補修によってどの程度まで回復しているかの指標にもなる^{25~27)}などである。これらのことから、本実験では、曲げ接着試験による接着強さの評価が適当であると考えた。

なお、製造者指示では、シラン処理の前に破折面の表層を1層削除してK-エッチャント GEL (クラレ) によるエッチングの指示があるが²⁴⁾、予備実験および橋本ら²⁸⁾の報告において、エッチングの有無による有意差は認められなかったことから、本実験ではエッチング処理を行わなかった。

1. 直接法について

曲げ接着強さの測定結果 (図1, 2) から、被着体 EE および ED は同様の傾向が認められた。

D-S は、SB とともに表面処理条件中で高い値を示した。これは、SEM で主に追加築盛体 APX の凝集破壊像、一部に被着体 EE の凝集破壊像が認められたことから、シラン処理によって被着面に対する追加築盛体 APX のぬれ性が高まったため、接着強さが大きい値を示したと考えられた。

エステニアの無機フィラー含有量は、齊藤ら²⁹⁾によると EE が 88.2 wt%, ED が 87.7 wt% で、被着面の表面積の大半をフィラーが占めている。このフィラーに対する表面処理は、 γ -methacryloxypropyl-

trimethoxysilane (γ -MPTS) を基剤としているシラン処理剤の場合、そのアルコキシ基の加水分解により生じたシラノール基が、ケイ素原子を主構成要素とするガラスやシリカ等に対して吸着、配向が起りやすく、ガラス表面のシラノール基と反応してシロキサン結合を生成し、化学的に接着することによる。このシロキサン結合は、熱処理や酸により活性化されると報告されているが^{30,31)}、熱や酸による活性は直接法では口腔内での使用が制限される。松村らは、口腔内での使用可能なカルボン酸系接着性モノマーがシロキサン結合を活性化すると報告しており³²⁾、同様に本実験で用いた CPA と CMP を混和する2液性のシステムは、CMP に含まれるリン酸エステル系接着性モノマーの 10-methacryloyloxydecyl dihydrogen phosphate (MDP) が、CPA とガラスとのシロキサン結合を活性化する^{15,33)}ため効果的に作用したのと考えた。以上のことから、被着面に露出したフィラーに対してシラン処理を行うことで追加築盛体のぬれ性が高まり、フィラーと APX が化学的に接着する¹⁴⁾ことで、全試料中最も高い接着強さを示したと考えられた。

D-SB は、S と同様に、表面処理条件中で高い値を示した。この理由としては、次のように考えられた。すなわち、SEM で破断面に D-S とほぼ同様な像が主に認められ、一部に D-B と同様の CMB での凝集破壊像が観察されたことから、シラン処理したフィラーに対するボンディング剤とのぬれ性が高まって、大きな接着強さを示したと考えられた。ボンディング剤は、流れが良いために直接 APX を追加築盛する D-S よりもより微細な凹凸に嵌合すると考えられるが、ボンディング剤の強度が低いために強固に接着された場合はボンディング層での破壊が生じるため、統計的な有意差は生じなかったと考えられた。

D-B は、NT よりも有意に高い値を示したが、S および SB よりも有意に低い値を示し、高い値を示した D-S および D-SB の 64% であった。これは、SEM で破断面に主に研磨による擦過痕が認められ、一部に APX および CMB の凝集破壊像が認められたことから、ボンディング処理のみではフィラーに対するぬれ性がシラン処理した場合と比較して低く、フィラーやマトリックスの比較的大きい凹凸への機械的嵌合力が主であるために、界面破壊が主に認められ、ま

た維持として作用した場合では EE および APX より強度が低い CMB で破壊したものと考えられた。したがって、B は処理法としての効果は認められたが、臨床ではシラン処理剤の用意がない場合の応急処置にとどまるものであることが示唆された。

D-NT は、本実験の表面処理条件中で最も低い値を示し、D-S および D-SB の 32~33% であった。これは、SEM で破断面に被着体 EE における研磨調整後と同様の研磨時に生じた擦過痕とみられる像が主に観察され、界面破壊が主に起こったものと考えられた。主に界面破壊が生じた場合、EE の弾性係数は 24.0 GPa と高く、曲げ試験時の応力は主に引張側に生じると考えられる。そのため接着強さが低い際には、NT のたわみ量 (0.06~0.07 mm) が S、B および SB (0.13~0.20 mm) よりも低い値を示したように、界面への応力が集中しやすいためと考えられた。また研磨のみでの接着操作は、ISO¹⁹⁾ で基準とされている 50 MPa を下回ったため、避けるべきであると考えられた。

以上から、直接法では S または SB が NT の 3.0~3.2 倍の接着強さを示し、適切な表面処理法であることが明らかとなった。

2. 間接法について

曲げ接着強さの測定結果 (図 1, 2) から、被着体 EE と ED では同様の傾向が認められた。

I-SB は、間接法における表面処理条件中で最も高い値を示した。渡辺ら³⁴⁾はエステニアに対する ADP と MDL の併用が有効であると報告しており、その有効性が確認された。この理由としては、次のように考えられた。すなわち、SEM で破断面に I-S と同様な像が観察されたことから、シラン処理によりフィラーとボンディング剤のぬれ性が高まり微細な凹凸にボンディング剤が入り込んだことによると考えられた。一方、直接法では S と SB との間に有意差が認められなかったが、間接法では SB が S より有意に大きな値を示した。これはシラン処理によりぬれ性が高まった場合、流れの良いボンディング剤が直接追加築盛用レジンを使用する場合と比較してより微細な凹凸に嵌合することが可能であり、ボンディング剤に対する光照射を行わないため、強度の低いボンディング剤の層が薄くなり、この部分での破壊が生じにくくなったことに

よると考えられた。

I-S は、間接法の表面処理条件中で I-SB の接着強さの 88~89% と 2 番目に高い値を示した。これは、SEM で破断面に被着体および追加築盛体の凝集破壊像が主に観察され、D-S の場合と同様に、シラン処理により被着面に露出したフィラーと追加築盛用レジン EE が強固に接着しているためと考えられた。シラン処理剤 ADP は、エステニア専用で技工操作を簡便にするために、あらかじめ γ -MPTS を活性化した 1 液タイプである。したがって、活性化したシラノール基とフィラーがシロキサン結合により結合しているため、被着体と強固に接着しているものと考えられた。

I-B は、D-B と同様に、NT よりも有意に高い値を示したが、SB および S よりも有意に低い値を示し、I-SB の 74~75% であった。これは、D-B と同様であると考えられ、I-B の SEM 像では破断面にボンディング層は認められず、主に研磨による擦過痕と一部追加築盛体の凝集破壊が観察されたことから類推された。ボンディング層が観察できなかったのは、MDL はエステニアのモノマー¹⁾と基本的な組成が類似しているののでぬれが良いことに加え、ボンディング剤に追加築盛前の光照射を行わないため、追加築盛時の填入圧でボンディング層が薄くなり追加築盛用レジン EE と判別できなかったと考えられた。

I-NT は、本実験の表面処理条件中で D-NT に続いて低い値を示した。これは、SEM で D-NT と同様に研磨による擦過痕が観察され、被着体 EE との界面破壊が主に起こったためであると考えられた。また、たわみ量が S、B および SB よりも低い傾向を示したことから、D-NT と同様に引張側に応力が集中したものと考えられた。

以上から、間接法では SB が 50 MPa を上回った NT の 1.9~2.2 倍の接着強さを示したため、適切な表面処理法であることが明らかとなった。

3. 直接法と間接法の比較について

各処理条件での、直接法と間接法の曲げ接着強さを比較すると、B と SB では有意差は認められず、NT では間接法、S では直接法がそれぞれ有意に大きな値を示した。

NT は、表面処理を行わないため、追加築盛を同一材料 EE で行う間接法が、追加築盛を APX で行う直

接法と比較して、親和性が高いことが考えられた。

Sは、シラン処理剤の相違と、追加築盛用レジンの違いによるものと考えられた。すなわち、直接法の2液性のシラン処理剤は間接法の1液性のシラン処理剤と比較して、シロキサン結合の活性化に優れていることによって接着強さが大きい値を示したのと考えられた。また、追加築盛用レジンの相違については、破断までのたわみ量は、EEが0.29 mm、APXが0.38 mmであり、弾性係数はEEが24.0 GPa、APXが17.8 GPaであることから、たわみが大きければそれだけ接着界面に応力が集中せずに分散されると考えられた。これは曲げ接着試料においても直接法が19.7～20.6 GPaであるのに対し、間接法では22.3～24.7 GPaと高い値を示したことで同様のことが確認でき、追加築盛用レジンのたわみ量の相違によって応力が分散し、直接法において高い接着強さを示したのと考えられた。

BおよびSBは、被着体や追加築盛体よりも強度の低いボンディング層に応力が集中しやすいため、直接法と間接法の曲げ接着強さに有意差がなかったと考えられた。

以上から、臨床上補修を行う頻度としては大半が直接法による補修であると考えられるが、使用材料や重合法の規制を受けない間接法と比較して同等かそれ以上の結果が示されたため、今回の実験条件では直接法の有用性が示唆された。

4. 被着体 EE と ED の比較について

被着体 EE および ED は、各処理条件における両者間の接着強さに有意差が認められなかったことから、今回の実験条件では破折が表面の EE で起こった場合と内部の ED にまで及んだ場合とで処理法を変える必要がないことが示唆された。

5. 臨床における補修について

今回、SB および S が効果的な処理法であり、被着体 EE で最も高い接着強さを示したのは D-S、被着体 ED で最も高い値を示したのは D-SB であったが、EE 単体の曲げ強さ (189.8 MPa) と比較すると、約 60% の値を示すにとどまったことから、今回の実験条件では補修を行っても破折前の状態には回復できないことが明らかとなった。

五十嵐ら⁹⁾は、陶材焼付鑄造冠における補修時には破折の部位、時期、状況および様相を診査検討し、破折の原因と考えられる因子を除去する必要があると報告している。このことは、高フィラー型硬質レジンでも同様であると考えられ、補修を行う際には、偶発的な応力集中による破折であるのか、持続的に負荷がかかったうえでの破折であるのかなど、破折を起こした原因を良く考慮し、補修を行うのか、再製するべきなのかを判断する必要があると考えられた。

今後さらにより臨床的な条件として、サンドブラスト処理等の機械的表面処理、サーマルサイクル等の接着耐久性および長期間装着し劣化した被着体に対する影響について検討する必要があると思われる。

V. 結 論

高フィラー型硬質レジンのエステニア修復物が、試適時あるいは装着後にエナメル部 (EE) およびデンチン部 (ED) の破折を想定した補修時の、表面処理条件が曲げ接着強さに及ぼす影響について比較検討を行った結果、以下の知見を得た。

1. エステニア補修時の表面処理条件は、SB、S および B が NT より有意に高い接着強さを示し、特に SB および S が有効で NT の 1.9～3.2 倍であった。

2. 直接法および間接法における各処理条件での接着強さは、被着体 EE および ED でほぼ同様の傾向が認められ、破折面のレジンの種類による影響は認められなかった。

以上から、エステニア補修時の表面処理は、シラン処理とボンディング処理とを併用したものおよびシラン処理が有効であり、全試料中で最も高い接着強さの平均値を示したのは被着体 EE の D-S であった。

本研究を遂行するにあたりご協力いただいた (株) クラレおよび同社の浅田雅之氏ならびに滝 一蔵氏に心より感謝申し上げます。

本論文の内容の一部は第 103 回日本補綴歯科学会学術大会 (平成 12 年 6 月 9 日、大宮) において発表した。

なお本研究の一部は平成 13 年度日本大学学術研究助成金の補助により行われた。

文 献

- 1) 齊藤仁弘, 金子和幸, 堀江康夫ほか. 歯冠用硬質レジンに関する研究—高フィラー型硬質レジンの曲げ強さ, 硬さ, 吸水量および溶解量—. 歯材器 20: 124-130, 2001.
- 2) 小泉寛恭, 吉田 剛, 五十嵐孝義ほか. 高フィラー型硬質レジン材料の歯ブラシ摩耗について. 補綴誌 43: 1016-1022, 1999.
- 3) 小泉寛恭, 大谷一紀, 五十嵐孝義ほか. 高フィラー型硬質レジン材料の歯ブラシ摩耗について 第2報 新規材料の摩耗性. 補綴誌 45: 152-160, 2001.
- 4) Douglas RD. Color stability of new-generation indirect resins for prosthodontic application. J Prosthet Dent 83: 166-170, 2000.
- 5) 横塚繁雄, 高橋英登. ハイブリッドセラミックス「エステニア」の臨床. 補綴臨床 30: 139-154, 1997.
- 6) 中村隆志, 丸山剛郎. ハイブリッド系高分子材料の現状と展望. QDT Year Book: 30-35, 1998.
- 7) 鈴木司郎, 酒匂充夫, 芝 輝彦. 硬質レジン人工歯の破折に関する研究. 補綴誌 32: 780-786, 1988.
- 8) 五十嵐孝義, 佐藤友彦, 金子行夫. 陶材冠の破折の原因とその修復法. 歯科ジャーナル 20: 27-37, 1984.
- 9) 鈴木司郎, 松村英雄. 口腔内にある修復物の補修に対する考え方. 接着歯学 8: 253-261, 1990.
- 10) Dahl BL, Øilo G. In vivo wear ranking of some restorative materials. Quintessence Int 25: 561-565, 1994.
- 11) Dijken JW. All-ceramic restorations: classification and clinical evaluations. Compendium 20: 1115-1132, 1999.
- 12) 林 頼雄, 松村英雄, 増原英一ほか. 可視光線重合型歯冠用硬質レジンの接着に関する研究 第1報 レジンとCo-Cr合金およびレジンどうしの接着について. 日歯技工誌 8: 4-7, 1987.
- 13) 友田浩三, 中林宣男, 河尻克己ほか. 硬質レジンの接着法—第1報 硬質レジン継ぎ足し時の接着強さ—. 日歯技工誌 11: 108-111, 1990.
- 14) 吉岡 博. シランカップリング剤. 日本接着協会誌 21: 252-260, 1985.
- 15) 西山典宏, 早川 徹. シランカップリング剤について. 接着歯学 5: 129-133, 1987.
- 16) 高橋英登. セラミック用接着剤の臨床応用. 接着歯学 5: 135-144, 1987.
- 17) 十河基文, 岡田政俊, 瀬谷直也ほか. 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. 補綴誌 34: 1039-1043, 1990.
- 18) Matsumura H, Hisamatsu N, Atsuta M. Effect of unfilled resins and a silane primer on bonding between layers of a light-activated composite resin veneering material. J Prosthet Dent 73: 386-391, 1995.
- 19) ISO 4049-1988. Dentistry resin-based filling materials. International Organization for Standardization, 1988.
- 20) 掛谷昌宏, 深瀬康公, 石川陽一ほか. 材料試験に関する一考察—測定条件が曲げ強さに及ぼす影響—. 歯材器 15: 29-37, 1996.
- 21) 新谷明喜, 住吉伸太, 浜松毅昌ほか. 白歯歯冠用硬質レジンクラウンの臨床評価. 歯学 81: 469-491, 1993.
- 22) 五味治徳, 古屋尚子, 吉野友貴ほか. 白歯部歯冠用硬質レジンの臨床評価—3年後の経過観察—. 歯学 83: 1307-1312, 1996.
- 23) 久保至誠. コンポジットレジンの辺縁破折に関するメカニズムについて, 第1報 コンポジットレジンの歯質接着性と辺縁破折との関連性. 日歯保存誌 30: 13-27, 1987.
- 24) クラレ. ハイブリッドセラミックスエステニア テクニカルマニュアル, 岡山, 1999.
- 25) 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) 充填後の短期間の追加築盛及びシラン処理剤を使用した場合の効果について. 日歯保存誌 31: 122-139, 1988.
- 26) 稲井紀通. 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2報) 比較的長期間口腔内或いは人工唾液中に保管されたレジンに対する追加充填. 日歯保存誌 33: 386-426, 1990.
- 27) Gregory WA, Berry S, Duke E et al. Physical properties and repair bond strength of direct and indirect composite resins. J Prosthet Dent 68: 406-411, 1992.
- 28) 橋本英子, 島田康史, 山口佐緒理ほか. エステニアの表面処理がレジンセメントの接着に及ぼす影響について. 歯科審美 13: 16-22, 2000.
- 29) 齊藤仁弘, 塩田陽二, 金子和幸. 歯科材料の熱的性質に関する研究—第10報 高フィラー型硬質レジン—. 歯材器 19: 441-447, 2000.
- 30) 早川 徹, 堀江港三, 渡辺 官ほか. シランカップリング剤の活性化に関する基礎的検討 その1 各pHのリン酸水溶液の効果. 接着歯学 9: 164-169, 1991.
- 31) 早川 徹, 堀江港三, 渡辺 官ほか. シランカップリング剤の活性化に関する基礎的検討 その2 接着歯学 10: 295-300, 1992.
- 32) 松村英雄, 田中卓男, 熱田 充. シランカップリング剤とカルボン酸系モノマーによる陶材, 石英, アルミナの接着. 補綴誌 31: 1494-1498, 1987.
- 33) 小村育男, 山内淳一. クリアフィルポーセレンボンドの接着特性. 接着歯学 5: 8-9, 1987.
- 34) 渡辺 明, 阿部信勝, 高橋礼子ほか. 白歯部歯冠用硬質レジンの追加築盛における接着強度—アドオンプライマーの効果について—. 日歯技工誌 17: 102-104, 1996.

著者連絡先: 川本 善和

〒101-8310 東京都千代田区神田駿河台
1-8-13

TEL: 03-3219-8145

FAX: 03-3219-8351

E-mail: kawamoto-y@dent.nihon-u.ac.jp

A Study on Repair Restoration of High-Filler-Content Prosthetic Composite Resins

—Effect of Surface Treatment Conditions on Bending Bond Strength—

Yoshikazu Kawamoto, Norihide Hinokiyama, Mika Nemoto, Hiromitsu Shima,
Kazushige Kawahara, Kazuki Shimada, Katsuumi Yoshinari, Sumiaki Asano,
Yoshiyuki Kakehashi, Takayoshi Igarashi, Masahiro Saitoh* and Minoru Nishiyama*

Department of Crown and Bridge Prosthodontics, Nihon University School of Dentistry
(Chief : Prof. Takayoshi Igarashi)

*Department of Dental Materials, Nihon University School of Dentistry

J Jpn Prosthodont Soc 45 : 632-641, 2001

ABSTRACT

Purpose : We evaluated the effect of surface treatments on bending bond strength in repair restoration of high-filler-content prosthetic composite resins.

Methods : Prosthetic composite resins (2×2×12.5 mm) were made of Estenia enamel (EE) and Estenia dentin (ED). Specimens (2×2×25 mm) for bending bond strength test were made of both prosthetic composite resins and two types of repair resins, such as Cleafil AP-X for the direct method (D), and EE for the indirect method (I). Estenia and Cleafil AP-X were polymerized according to the manufacturer's instructions. Surface treatments to the bonding surface were classified into the following four groups : no treatment (NT), silane surface treatment (S), bonding treatment (B), and silane+bonding treatment (SB). Bending bond strength was determined by the three-point bending test after 24 hours' storage in distilled water (37°C).

Results : Bending bond strength showed a large value in the order of D-S≒D-SB>D-B>D-NT (one-way ANOVA, $p<0.05$) and I-SB>I-S>I-B>I-NT. SEM observation of the adhesion surface after the bending bond test showed adhesive failure in NT, and cohesive failure in B, S, and SB.

Conclusions : SB and S were effective surface treatments in both direct and indirect repair restorations.

Key words

prosthetic composite resin, bond strength, repair restoration, composite resin, silane coupling agent