

## 論 文 要 旨

## Effect of hydrofluoric acid etching on shear bond strength of an indirect resin composite to an adhesive cement

フッ化水素酸処理が歯冠修復用コンポジットレジンと  
接着性レジンセメントのせん断接着強さに与える影響

堀 沙弥香

### 【序論および目的】

本研究では、歯冠修復用コンポジットレジン（エステニア C&B, クラレメディカル）に対する 1 % フッ化水素酸（HF）処理が、接着性レジンセメント（パナビア F 2.0, クラレメディカル）との接着強さに与える影響について評価を行った。

### 【材料および方法】

エステニア C&B を 2 種類の大きさ（ $\phi 10 \times 3$  mm,  $\phi 8 \times 3$  mm）の円板状に重合し、各々の片面を #600 SiC ペーパーにより注水下で研磨して被着面とした。被着面は、表面処理を施さない場合を（NT）とし、サンドブラスト法（AP）および 1 % HF 浸漬 30 秒, 5 分, 10 分（それぞれ E30s, E5m, E10m）のいずれかの方法で処理を施した。さらに、NT, AP および E5m では、シランカップリング処理の追加も行った（それぞれ SC, AP/SC, E5m/SC）。

表面処理を施した  $\phi 10$  mm の試料の被着面にマスキングテープを貼付して、接着面積を  $\phi 5$  mm に規定した。これに同一の処理を施した  $\phi 8$  mm の試料の被着面を重ね合わせてパナビア F 2.0 で接着した。接着試験片は 4°C と 60°C を各 60 秒間の水中熱サイクル試験を 50,000 回まで行った後、クロスヘッドスピード 1.0 mm/min でせん断接着強さを測定した。試験片の数は各グループにつき 5 個とし、測定値は 2 元配置分散分析後、Bonferroni's test ( $\alpha = 0.05$ ) にて統計処理を行った。また、試料処理面を走査型電子顕微鏡 (SEM) により観察した。

### 【結 果】

熱サイクル試験後において、E5m ( $18.3 \pm 1.1$  MPa) は HF 浸漬処理群の中で最も高いせん断接着強さを示した。また、シランカップリング処理を併用した場合、熱サイクル後では、AP/SC ( $14.3 \pm 1.8$  MPa) は AP ( $7.0 \pm 4.6$  MPa) に対して有意に高いせん断接着強さを示した ( $P = 0.0006$ ) が、E5m/SC ( $12.9 \pm 1.8$  MPa) は E5m と比較して有意に低い接着強さとなった ( $P = 0.0007$ )。さらに、E5m は AP/SC と比較しても有意に高い接着強さとなった ( $P = 0.0025$ )。SEM 観察では、HF 処理を受けたコンポジットレジン表面では、ガラスフィラーの溶解による多数の空洞の形成と、さらに、マトリックス部分においても微細ガラスフィラーの溶解で生じたと思われる多孔質で不規則な形状が認められた。

### 【結論及び考察】

本研究の結果から、エステニア C&B の硬化体をパナビア F 2.0 で接着する場合に、1 % HF 浸漬を 5 分間行う方法は、従来効果的であるとされてきたサンドブラスト処理とシランカップリング処理を併用する方法と比較して、より有効であることが明らかとなった。エステニア C&B は 76 wt% のガラ

スフィラーを含有する。E5m 処理でせん断接着強さが向上した理由として、HF がエステニア C&B に多量に含まれるガラスフィラーを溶解することで得られた多孔質な表面性状が、パナビア F 2.0 との間に良好な嵌合効力を生じさせたためと考えられる。

(Dental Materials Journal Vol.27, No. 4 2008 年 掲載予定)

## 論文審査の要旨

報告番号	総研第 40 号		学位申請者	堀 沙弥香
審査委員	主査	伴 清治	学位	博士 (医学・ <u>歯学</u> ・学術)
	副査	鳥居 光男	副査	長岡 英一
	副査	鬼塚 雅	副査	町頭 三保

### Effect of hydrofluoric acid etching on shear bond strength of an indirect resin composite to an adhesive cement

(フッ化水素酸処理が歯冠修復用コンポジットレジンと接着性レジンセメントのせん断接着強さに与える影響)

硬質レジンをはじめとするレジン系材料は、審美性や機械的強度のめざましい向上とともに歯科補綴治療に不可欠なものとなりつつある。特にエステニア C&B に代表されるハイブリッド型コンポジットレジンには、優れた機械的強度と耐摩耗性を有することで、臼歯部の補綴物への応用が可能となった。本材料の接着のための表面処理方法として、被着面の粗造化により機械的な維持を図る表面処理方法や、シランカップリング剤による化学的な表面処理方法（シラン処理）などが推奨されてきた。しかし、臨床的にはジャケット冠の破折などを経験することもあり、接着性レジンの効果は十分に得られているとは言えないのが実状である。そこで、学位申請者らは、これらの方法よりも効果的な接着用表面処理方法を見出すことを目的として、エステニア C&B に対する 1%フッ化水素酸（HF）処理が、接着性レジンセメント（パナビア F 2.0）とのせん断接着強さに与える影響について評価を行った。

その結果、本研究で以下の知見が得られた。

- 1) 熱サイクル 50,000 回後において、HF 浸漬を 5 分間行った E5m 群は、HF 処理群の中で最も高いせん断接着強さを示した。
- 2) シラン処理を併用した場合、熱サイクル後では、サンドブラスト処理後にシラン処理を併用した AP/SC は、サンドブラストのみ行った AP に対して有意に高いせん断接着強さを示した。しかし、E5m にシラン処理を追加した E5m/SC は、E5m と比較して有意に低い接着強さとなった。
- 3) 熱サイクル後において E5m は AP/SC と比較して有意に高い接着強さを示した。したがって、パナビア F 2.0 で接着を行う場合、エステニア C&B に対して 1%HF 処理を 5 分間行う方法は、サンドブラスト処理にシラン処理を加える方法と比較して、より有効であることが明らかとなった。
- 4) 走査型電子顕微鏡による観察では、HF 処理を受けたエステニア C&B の表面には、ガラスフィラーの溶解による空隙が多数認められた。E5m 処理群でせん断接着強さが向上した理由として、この多孔質な表面性状がパナビア F 2.0 との間に機械的嵌合力を生じさせたためと考えられた。

本研究は、エステニア C&B に対する 1%HF 処理が、従来効果的であるとされてきたサンドブラスト処理にシラン処理を併用する方法よりも有効であることを示した点で、臨床的に極めて有意義である。よって本研究は学位論文として十分な価値を有するものと判定した。

## 最終試験の結果の要旨

報告番号	総研第 40 号		学位申請者	堀 沙弥香
審査委員	主査	伴 清治	学位	博士(医学・ <u>歯学</u> ・学術)
	副査	鳥居 光男	副査	長岡 英一
	副査	鬼塚 雅	副査	町頭 三保

主査および副査の5名は、平成20年4月4日、学位申請者 堀 沙弥香 君に面接し、学位申請論文の内容について説明を求めると共に、関連事項について試問を行った。具体的には以下のような質疑応答がなされ、いずれについても満足すべき回答を得ることができた。

質問1) 今回の実験は実際の臨床ではどのような状況を想定しているのか? HFを使用することで人体への悪影響はないのか?

(回答) エステニア C&B で製作したインレーやジャケット冠などの間接修復物を、接着性レジンセメントで支台歯に合着する場合を想定している。間接修復物の接着用表面処理は口腔外で行うため、ドラフトチャンパー内でも実施が可能である。したがって、HFを使用しても患者や術者への悪影響はないものとする。

質問2) フッ化水素水溶液(以下HF)の濃度を1%とした理由は何か?

(回答) 各種の濃度でHFのエッチング効果を検討した予備実験において、エッチング面の性状を最もコントロールしやすかったのがこの濃度である。これよりも高い濃度ではエッチングが急速に進行し過ぎ、濃度が低い場合には長い処理時間を要した。

質問3) 間接修復物の合着を想定しているならば、被着体の一方は歯質にするべきではないか?

(回答) 今回は、エステニア C&B とレジンセメントの接着界面での検討を目的としている。歯質とレジンセメントの接着界面の検討ではないため、今回の試験方法で問題はないと考える。

質問4) パナビア F2.0 はエナメル質に対してどの程度の接着強さが得られるのか?

(回答) 熱サイクル 6,000 回のデータでは 23 MPa の接着強さが得られるという報告があり、これは HF 処理 5 分(以下 E5m) で得られたエステニア C&B に対する 18 MPa よりも高い値である。したがって、エナメル質部分にも合着する機会が多いインレー修復などにおいて、E5m よりもさらに接着強さが大きい表面処理方法の開発が望まれる。

質問5) エステニア C&B 以外のハイブリッド型コンポジットレジンに対しても HF 処理は有効か?

(回答) HF 処理によって溶解されるフィラーの含有率が高く、その溶解によって被着面の粗造化が十分に図れる材料であれば有効と考えられる。ハイブリッド型レジンでは、2種類以上の大きさのフィラーを高密度に含有するために、他の材料においても HF 処理で十分な粗造化ができる可能性は高いものと思われる。なお、従来型の硬質レジンでは小型フィラーの含有率が低いため、マトリックス部分の粗造化が不十分になりやすい。このため、従来型の硬質レジンに対して HF 処理を行っても、接着効果の改善は望めないとされている。

質問 6) 超微小フィラーとして含有されるアルミナは HF 処理の有効性に関係しているのか？

(回答) アルミナは HF によって溶解されないため、ガラスフィラー溶解後に残存したマトリックス部分を補強している可能性があり、有効に働くものと考えている。

質問 7) E5m ではガラスフィラーは完全に溶解していると考えて良いのか？

(回答) 走査型電子顕微鏡 (以下 SEM) 像から、E5m の被着面ではガラスフィラーの残存が観察されるため、完全に溶解した状態とはいえない。

質問 8) サンドブラスト処理 (以下 AP) と E5m に対してシランカップリングを併用した場合 (それぞれ AP/SC, E5m/SC), E5m/SC では熱サイクル試験後でのせん断接着強さの低下を認め、AP/SC では認めなかった。この理由はなにか？

(回答) サンドブラスト処理面では、シランカップリング処理の対象となるシリカ含有のガラスフィラーが被着面に存在するためシランカップリング処理が有効である。これに対して、HF 処理面ではフィラーが溶解して消失しており、カップリングする対象物がないため、効果が認められなかったものと思われる。

質問 9) 残存した HF がレジンセメントの重合阻害を引き起こす恐れはないのか？ また HF の残存についての確認は行ったのか？

(回答) HF 処理を行ったにも関わらず、E5m においては熱サイクル 50,000 回という過酷な耐久試験後にも、現在臨床で広く用いられる方法である AP/SC と比較して有意に高い接着強さを示した。したがって、重合阻害を引き起こしている可能性は低いと思われる。HF の残存についての確認は行っていないので、今後検討を行う予定である。

質問 10) E5m より E10m の方が熱サイクル試験後の接着強さが低下するのはなぜか？

(回答) E10m の方がより過度にフィラーの溶解が起こり、複合材料としての粒子強化効果が低下し、結果的にマトリックス層の脆弱化が生じたためと考えられる。

質問 11) HF 処理後すぐに接着操作を行わないと効果は消失してしまうのか？

(回答) HF 処理の効果は機械的な維持増強である。そのため、時間が経過しても処理効果に変化はないと思われる。

質問 12) 今後この実験をどのように発展させるのか？

(回答) ハイブリッド型コンポジットレジンは今後さらに臨床応用が広がる材料と思われる。したがって、エステニア C&B 以外の材料についても HF 処理の有効性を確認するとともに、架橋構造のマトリックス部分に機械的ではなく、化学的に結合させることが可能な表面処理方法の開発を検討する予定である。

以上の結果から、5 名の審査委員は申請者が大学院博士課程修了者としての学力・識見を有しているものと認め、博士 (歯学) の学位を与えるに足る資格を有するものと認定した。