

氏名	吉本彰夫
授与した学位	博士
専攻分野の名称	歯学
学位授与番号	博甲第 1861号
学位授与の日付	平成11年3月25日
学位授与の要件	歯学研究科歯学専攻(学位規則第4条第1項該当)
学位論文題名	アクリルコアシェルポリマーによるコンポジット型接着性レジンセメントの改良
論文審査委員	教授 鈴木一臣 教授 山下 敦 教授 井上 清

## 学位論文内容の要旨

### 【緒言】

クラウンやブリッジの装着に接着性レジンセメントを用いると従来型セメントを用いた場合と比較して約15%機能期間の延長につながるが、経時的にはクラウンで15年間に約20%の補綴物の脱離、二次齲蝕等のトラブルの生じることが臨床疫学研究で明らかにされている。

申請者は、クラウン・ブリッジにおけるこれらのトラブルは、負荷される咬合力によって装着材層に発生するひずみ量(変形率)が一因と考えられ、装着材に弾性を付加することでひずみ量に対応できるのではないかと考えた。

そこで本研究では、優れた接着強さを保持したまま接着材の組成を変え、大きなひずみにも対応できる新しい接着材を試作し、その物理的特性ならびに接着強さについて検討した。

### 【材料および方法】

#### 1. 接着性レジンセメントの試作

コアシェル(核;長側鎖ポリメタクリレート、外殻;ポリメタクリル酸メチル(PMMA)(クラレ、アクリル事業部))を10、15、20%の割合でパナビア21レジンセメント(クラレ)のモノマー部に配合後、シリカガラス系フィラーを70、55および40%の重量比で添加して試作接着材(以下順にAC10、15、20と略す)とし、パナビア21(以下P21と略す)を対照として用いた。

#### 2. 試作レジンセメントの物性測定

3種の試作接着材およびP21の物性を以下の10項目の物性試験により評価した:(1)熱膨張係数、(2)吸水および溶解率、(3)圧縮強さ、(4)引張り強さ、(5)曲げ強さ、(6)弾性率、(7)ヌープ硬さ、(8)たわみ量、(9)被膜厚さ、(10)硬化物の組織観察。

#### 3. 接着強さの測定

##### 1) 歯科用合金に対する接着強さ

硬質金合金および金銀パラジウム合金からなるロッド状試験体を作製後、被着面を耐水研磨紙#1000まで研磨、アルミナサンドブラスト処理して、試作接着材で接着して試験体とした。

##### 2) 歯質に対する接着強さ

抜去後冷凍保存した牛歯唇面のエナメル質および象牙質面を#600まで研磨し、EDプライマーで60秒間処理してこれを試作接着材でステンスロッドと接着した。

これら試験体を 37℃ 蒸留水中に 24 時間浸漬後、初期および 4℃/60℃ 熱サイクル 3, 000、5, 000、10, 000、20, 000 回後の引張り接着強さを測定した。

#### 4. 接着界面の形態観察

走査型電子顕微鏡 (SEM) により、接着界面の樹脂含浸層生成状態を観察した。

### 【結果】

#### 1. 物性試験

コアシェル配合量が増えるにつれて熱膨張係数、吸水率は増加し、圧縮強さ、引張り強さ、曲げ強さ、弾性率、ヌーブ硬さは低下する傾向を示した。AC10、15 はこれらいずれの試験においても P21 と AC20 の中間的物性を示した。溶解率と被膜厚さは 4 種の接着材とも少なかった。たわみ量の計測では、P21 が 0.4 mm の 1 回目の変位に耐えられず、ほとんど破折したのに対し、AC20 では 0.6 mm の変位で 100 回以上の負荷に耐えた。

#### 2. 引張り接着強さ試験

##### 1) 歯科用合金に対する接着強さ

初期接着強さについては、硬質金合金に対して 38MPa で試作接着材が P21 より有意に高い ( $p < .05$ ) 値を示したのに対し、金銀パラジウム合金に対しては接着材間に有意差を認めなかった。一方、熱サイクル 20, 000 回後における硬質金合金、金銀パラジウム合金に対する接着強さには接着材間に有意差を認めなかった。

##### 2) 歯質に対する接着強さ

初期接着強さは、エナメル質に対して 21MPa で接着材間に有意差を認めなかったが、象牙質に対しては 4.4MPa で P21 が 7.1MPa と有意に高い値を示した ( $p < .01$ )。熱サイクル 10, 000 回後のエナメル質に対する接着強さは初期同様、接着材間に有意差を認めず、象牙質に対しては AC10 が 4.3MPa で有意に高い値を示した ( $p < .01$ )。

#### 3. 接着界面の組織構造

SEM 観察から試作接着材の接着界面に P21 の場合と形態的に同様な樹脂含浸層を認めた。

### 【考察ならびに結論】

本研究結果から、アクリルコアシェルポリマーをコンポジット型接着性レジンセメントに配合した粒子構造および組成がたわみ量を大幅に改善し、大きなひずみにも対応できると推定された。コアシェルの配合量を過剰にすると弾性率、熱膨張係数、圧縮強さ、曲げ強さ、ヌーブ硬さ等の物性に影響し、接着材自身の物性低下を招くことが判った。また、コアシェルの配合は接着要件である被膜厚さや溶解量には悪影響を及ぼさなかった。

試作接着材の歯科用合金およびエナメル質に対する熱サイクル後の接着強さは P21 と同等であった。象牙質に対する初期接着強さは AC10 が P21 よりも低かったが、熱サイクル後も初期の接着強さを維持し、結果的に P21 よりも有意に高い接着強さを示した。これは象牙質接着時の被着体同士の熱的膨縮差が大きく、この時接着材に加わる繰り返し応力に対応できたものと考えられる。SEM 観察から試作接着材は、コアシェルが配合されても樹脂含浸層が生成され、接着モノマーの象牙質微細組織への浸透・拡散に影響を及ぼさないことが明らかとなった。

以上の結果から、コンポジット型接着性レジンセメントのマトリックスの一部をアクリルコアシェルで構成すると高い接着性能を維持しながら弾性変形量を増大させることができる結論を得た。

## 論文審査結果の要旨

本研究は、クラウン・ブリッジなどの修復物と歯質との間に介在するセメントが、上部構造の変形に伴って破壊する現象に着目し、これを改良すべく歯質に優れた接着性を示すと同時に変形に対応できる弾性を持った新しいコンポジット型接着性レジンセメントを開発することを目的としている。レジンセメントの弾性発現素材は、核にアルキル長側鎖ポリメタクリレート、外殻が PMMA から成るコアシェルを採用したことによって、弾性変形が大きくても永久変形が少ないこと、またセメントのレジンマトリックスと結合して粒子分散配合されることなどが評価される。試作レジンセメントの物性は、コアシェルの含有量の増加に伴って熱膨張係数、圧縮強さ、引張り強さおよび硬さなどは低下するが、本研究の改質項目であるたわみ量の計測では 0.6mm の変位で 100 回以上の繰り返し荷重に耐えられた。一方、歯科用金属および歯質に対する接着強さは、市販の同系統のレジンセメントと比較して同等かそれ以上の性能を発現する成果をあげている。

以上、コンポジット型接着性レジンセメントのマトリックスの一部をアクリルコアシェルで構成することによって、高い接着性能を維持しながら弾性変形を増大させることができることを示唆したもので、材料開発の基礎および臨床的側面から極めて意義がある。従って、本論文は博士（歯学）の学位授与に十分値するものと認めた。