

氏名	今井 誠
学位の種類	歯学博士
学位授与番号	博甲第806号
学位授与の日付	平成2年3月28日
学位授与の要件	歯学研究科歯学専攻(学位規則第5条第1項該当)
学位論文題目	歯科用ポーセレンと接着性レジンの接着における被着面処理に関する研究
論文審査委員	教授 山下 敦 教授 中井宏之 教授 佐藤隆志

学 位 論 文 内 容 の 要 旨

[緒言] 歯科治療においてポーセレンは審美性に優れた材料として広く普及しているがポーセレン単体は脆性材料であるため口腔内で長期間機能するには金属への焼付あるいは接着材との強固な接着で補強することが不可欠である。現在、歯質削除量の少ないポーセレンラミネートベニア法やフルカバレッジのオールセラミッククラウンの有効性が注目をあび、ポーセレンと接着材の接着強化法が種々検討されている。その代表的なものに、ポーセレン被着面のフッ酸によるエッチング処理法(Calamiaら, 1983年)およびシラン処理法(Newburgら, 1976年)がある。しかし、両処理法ともフッ酸の危険性やシランカップリング剤の接着耐久性などに問題がある。

そこで本研究では、ポーセレンと接着性レジンの接着強化を目的にポーセレンのエッチング処理ならびにシランカップリング処理に改良を加えた。すなわち、両処理で良好な接着強さが得られる処理条件を求めるとともに、シランカップリング剤塗布と加熱処理を併用する方法について検索した。

[材料・方法] 1) 試験片の作製: ポーセレンを直径12mm高さ5mmに焼成し、被着面をサンドペーパー600番で研磨した。2) ポーセレン被着面処理: (a)機械的被着面処理としてカーボランダムポイントによる切削処理および50 μ mアルミナサンドブラスト処理を行い蒸留水で1分間超音波洗浄した。(b)フッ化物によるエッチング処理として2%フッ化ナトリウム, APFおよび2%フッ化ナトリウムのエッチング効果を増強するため85%リン酸を添加し作用させた。また、フッ酸処理条件を検討するために濃度5, 10, 20, 30および40%のフッ酸で5秒から180秒間エッチングした後超音波洗浄した。(c)シランカップリング処理として5種類のシランカップリング剤① γ -Methacryloxy propyl trimethoxy silane (γ -MPTS) ②Vinyltrichloro silane (VS) ③ γ -Glycidoxy propyl

trimethoxysilane (γ -GPTS) ④ n - β γ -aminopropyl methyl dimethoxy silane (AMDS) ⑤ n - β γ -aminopropyl trimethoxy silane (ATS)を0.01, 0.1, 1, 2および5 wt%の各濃度で作用させ、2% γ -MPTSについて塗布後、温度100, 150, 200°Cで各々1, 5, 10, 30分間加熱した。3) SEM観察および表面分析: 被着面処理を行ったポーセレン表面を走査型電子顕微鏡で観察した。また、フッ酸処理で表面に生成する析出物をエネルギー分散型X線分析装置で解析し、さらに加熱によるシランカップリング剤の縮合状態を赤外分光光度計で分析した。4) 接着強さの測定: 処理したポーセレン被着面にSUS-304円柱棒をパナビアEXで接着し、37°C水中に24時間保存後圧縮剪断試験により接着強さを求めた。耐久性試験は、SUS-304円柱棒と同寸法のポーセレン棒を製作し、被着面処理したポーセレン試験片とポーセレン棒をパナビアEXで接着し、4°C-6°Cのサーマルサイクリング試験を2万回行った。

[結果および考察] 機械的的被着面処理を行うと接着強さは600番研磨の191 kgf/cm²に比べ向上し、またフッ化物処理では30%フッ酸60秒処理で495 kgf/cm²の高い値が得られた。次に、エッチング効果のあったフッ酸の濃度および作用時間を変化させた場合の接着強さを調べると、いずれの濃度でも60秒まではエッチング時間とともに接着強さは向上したがそれ以降はほぼ一定となった。また、濃度30%までは濃度が高くなるにつれ接着強さも増し30%フッ酸60秒処理で最大となり、40%では逆に低下した。フッ酸処理での被着面の析出物を分析した結果、エッチングにより溶出したK⁺、Ca²⁺などがSiおよびF⁻と結合したことが分かった。従って、この析出物は接着を阻害するだけでなく水の存在で再び解離するため除去する必要がある。また、口腔内で使用されるフッ化ナトリウムにリン酸を添加すると添加量に従い接着強さも向上した。さらに、ポーセレンの微細凹凸構造が明瞭であるほど接着強さも高くなることがSEMにより観察された。

さらに、シランカップリング処理効果を調べると、VSおよび γ -MPTSは接着強さの向上が認められ、パナビアと親和性の高いビニル基およびメタクリロ基をもつシランカップリング剤が有効であることが分かった。特に、 γ -MPTSは濃度2%で425 kgf/cm²と高い接着強さを示した。この結果を踏まえて、2% γ -MPTS塗布後の加熱の影響を調べた結果、150°Cで10分間加熱処理すると523 kgf/cm²と高い接着強さが得られたが加熱を続けると接着強さは低下した。そこで γ -MPTSの縮合状態を分析すると1100 cm⁻¹付近のピークに変化がみられ、加熱処理で接着強さが向上したのはシラノール基の脱水縮合反応が促進されたためと推察された。また、耐久性試験でも、2万回で、2% γ -MPTS塗布のみの場合はすべて脱離したのに対し、加熱処理すると接着強さは26%の減衰にとどまりフッ酸処理とほぼ同等の効果を得ることができた。

論文審査の結果の要旨

本研究は、歯科用ポーセレンと接着性レジンの接着強さならびに接着耐久性の向上につ

ながる処理法を見出すことを目的にした研究で、ポーセレン被着面の機械的処理法、フッ化水素酸ならびにシランカップリングによる化学的処理法が接着強さに及ぼす影響について検討したものである。

その結果、機械的処理法は50 μ m アルミナブラスティング処理法がサンドペーパー 600 番研磨面の約 1.5 倍の接着強さを示した。化学的処理法のフッ化水素酸処理ではその濃度と作用時間に強く影響され30%フッ化水素酸60秒処理が最大値を示すことが分った。シランカップリング処理法では多分子層で接着する作用機序に対し、新しく加熱処理を加えることにより、接着強さは著しく向上することが分った。すなわち、シランカップリング剤塗布後 150 $^{\circ}$ C 10分間加熱処理することにより 2% γ -MPTS 間の縮合反応が促進されたためである。この加熱処理法により接着耐久性も向上することが分った。

以上の知見は、ポーセレン被着面の機械的ならびに化学的処理による被着面微細凹凸構造の生成ならびに接着面積の増大に寄与していることを示すと共に、シランカップリング剤の加熱処理は前者のメカニカルな処理効果とは異なり分子レベルで接着強さならびに接着耐久性を大きく向上させる処理法であることを見出したものである。また本研究は臨床にも応用できる価値ある内容のものである。したがって、本論文は歯学博士の学位の授与に値すると判定した。