

## 論文の要約

氏名：石 井 亮

博士の専攻分野の名称：博士（歯学）

論文題名：セラミックス表面への唾液汚染がレジンセメントの接着性に及ぼす影響

－表面自由エネルギーと接着強さからの検討－

近年、セラミックス修復材は、機械的強度および審美性に優れるとともに化学的に安定なところから、その歯科臨床における使用頻度が増加している。これらセラミックス修復物は、歯質およびセラミックスに対する前処理によって、レジンセメントを介して修復物と歯質とが一体化し、口腔内において長期間にわたって機能することが可能となる。一方、セラミックス修復物を口腔内で試適する際に生じる被着面の唾液汚染は、レジンセメントとのぬれ性が阻害されることで、接着性が低下するとされている。しかし、セラミックス表面における唾液汚染がレジンセメントの接着性に及ぼす影響については、その効果的な除去法を含めて不明な点が多いのが現状である。

そこで著者は、セラミックス表面の唾液汚染がレジンセメントの接着性に及ぼす影響について、セラミックス表面の表面自由エネルギーおよびレジンセメントとの接着強さを測定することによって検討するとともに、その表面の走査電子顕微鏡（以後、SEM）観察を行うことによって考察資料とした。

供試したセラミックスブロックは、IPS e.max CAD (Ivoclar Vivadent, 以後、EM) および IPS e.max ZirCAD (Ivoclar Vivadent, 以後、EZ) である。レジンセメントとしては、Multilink Automix (Ivoclar Vivadent, 以後、MA) を、セラミックスプライマーとしては Monobond Plus (Ivoclar Vivadent, 以後、MP) を使用した。また、唾液汚染後のセラミックスに対する表面処理材として、Total Etch (Ivoclar Vivadent, 以後 TE) および Ivoclean (Ivoclar Vivadent, 以後 IC) を使用した。

表面自由エネルギー測定用試片の製作に際しては、各セラミックスブロックを製造者指示に従って焼成したものを常温重合レジン（トレーレジン、松風）に包埋し、耐水性シリコンカーバイドペーパーの #600 まで研削した。これらの研削面に対して、EM では IPS Ceramic Etching Gel (Ivoclar Vivadent, 以後 CE) を 20 秒間塗布し、EZ ではサンドブラスト処理を 20 秒間行い、それぞれ Control 試片とした。さらに、37°C ヒト唾液中に浸漬させたものを汚染面（以後、SC 群）とした。汚染面に対して TE 処理（以後、TE 群）、IC 処理（以後、IC 群）および EM には CE 処理（以後、CE 群）、EZ にはサンドブラスト処理（以後、AB 群）を施した。接触角の測定は、全自動接触角計（Drop Master DM 500, 協和界面科学）を用いて、セシルドロップ法で各液滴を 1  $\mu$ L 滴下し、付属のソフトウェア（FAMAS, 協和界面科学）によって  $\theta/2$  法で測定した。表面自由エネルギーは、得られた接触角と拡張 Fowkes の理論式から求めた。

接着試験には、表面自由エネルギー測定用試片と同様に調製したセラミックスを被着面とし、MA を填塞して接着試験用試片とした。これらの試片を 37°C 精製水中に 24 時間保管後あるいは 24 時間保管後にサーマルサイクル試験機（サーマルショックテスター TTS-1, トーマス科学）を用いて 5~60°C を 1 サイクルとし、各係留時間を 30 秒間に設定したサーマルサイクル（TC）を 10,000 回あるいは 30,000 回負荷後、万能試験機（Type 5500R, Instron）を用いて、剪断接着強さを測定した。また、接着試験後の破断試片については、その破壊形式を分類、評価した。さらに、各処理後のセラミックス表面について、通法に従ってフィールドエミッション型 SEM（ERA-8800 FE, エリオニクス）を用いて観察した。

その結果、セラミックスにおける表面自由エネルギーは、唾液汚染によって低下するものの、表面処理を行うことによって有意に向上した。固体表面における表面自由エネルギーは、その界面における清浄度とともに界面活性の指標とされている。したがって、唾液汚染されたセラミックス表面は、各表面処理によって清掃効果が得られたと考えられた。表面自由エネルギーの各構成成分で比較すると、いずれの条件においても分散成分が支配的であるものの、唾液汚染により有意に低い値を示した。一方、双極子成分は、いずれのセラミックスにおいても唾液汚染が生じることで消失したが、表面処理によって高い値を示した。また、水素結合成分は、いずれのセラミックスにおいても唾液汚染によって有意に低下し、表面処理を行うことによって向上した。これらのことから、セラミックスに対する表面処理は、唾液成分を除去するこ

とで、その表層の界面科学的特性を改質したものと考えられた。

セラミックスに対するレジンセメントの24時間後の接着強さは、いずれのセラミックスにおいても唾液汚染によって有意に低下するものの、各表面処理によって向上した。EMでは、シランカップリング処理を行うことによってレジンセメントとの化学的接着が可能である。また、EZにはMDPなどのリン酸エステル系モノマーが有効とされている。しかし、セラミックス表面に唾液汚染が生じると、その唾液成分により前処理材との化学的相互作用が阻害され、結果として接着強さも低下してしまう。そこで、この汚染セラミックス面へ適切な表面処理を行うと、表面自由エネルギーが向上するとともに極性化が生じ、高い接着強さが得られたものと考えられた。

TC 負荷後のセラミックスに対するレジンセメントの接着強さは、いずれの条件においても、24時間後と比較して有意に低下するものの、その傾向はセラミックスの種類および表面処理法によって異なるものであった。SEM 観察からも EM に対する CE 処理あるいは EZ に対するサンドブラスト処理は、セラミックス表面に微小な凹凸を形成することでレジンセメントとの機械的嵌合力を得るものである。一方、TE および IC 処理は、化学的に清掃効果を得るものである。このような唾液汚染の除去法の違いによって、セラミックスのレジンセメントに対する長期接着耐久性が影響を受けた可能性が考えられた。

以上のように、セラミックスへの唾液汚染がレジンセメントの接着性に及ぼす影響について検討した結果、唾液汚染されたセラミックスに対する表面処理は、唾液成分を除去することで表面自由エネルギーおよびレジンセメントの接着強さを向上させることが明らかとなった。また、接着強さに有効な表面処理法はセラミックスの種類によって異なることから、臨床においてはセラミックスの種類と表面処理法の組み合わせに留意する必要があることが示唆された。