

## 論文の内容の要旨

氏名：山 路 歩

博士の専攻分野の名称：博士（歯学）

論文題名：セルフエッチシステムの表層低重合層が化学重合型コンポジットレジン象牙質接着性に及ぼす影響

近年、歯質接着システムとして、エッチング、プライミングおよびボンディング操作を簡略化した 2 ステップあるいはシングルステップのセルフエッチシステムの臨床使用頻度が増加している。これらの接着システムのボンディング材表層には、大気中の酸素によって重合阻害を受けた低重合層が存在し、これによって充填されるコンポジットレジンとの化学的接着が可能と考えられている。一方、ボンディング材表層の低重合層には酸性機能性モノマーが残留する可能性があり、とくに化学重合型コンポジットレジンを用いて修復する際には、その残留によって接着性が低下することが指摘されているものの、その詳細は不明な点が多い。

そこで、セルフエッチシステムの表層低重合層が化学重合型コンポジットレジン象牙質接着性に及ぼす影響について、表面自由エネルギーおよび接着強さを測定することによって検討するとともに、走査電子顕微鏡（SEM）観察を行った。

実験に供試したセルフエッチシステムは、シングルステップの Clearfil tri-S Bond（クラレノリタケデンタル、以後 CT）および G-Bond Plus（ジーシー、以後 GB）、2 ステップシステムの Clearfil Mega Bond（クラレノリタケデンタル、以後 MB）および Unifil Bond（ジーシー、以後 UB）の合計 4 製品とした。また、化学重合型コンポジットレジンとしては、Clearfil F II（クラレノリタケデンタル）を用いた。

被験歯としてウシ（2～3 歳齢）の下顎前歯を用い、その歯冠部のみを常温重合型レジン（トレーレジン、松風）に包埋し、象牙質平坦面が得られるように、モデルトリマーを用いて研削した。さらに、この面を耐水性シリコンカーバイドペーパーの #600 まで研削して、被着歯面とした。

表面自由エネルギーの測定は、セルフエッチシステムのボンディング材を、製造者指示条件に従って被着歯面に塗布して光照射を行い、低重合層を有する試片（残存群）およびボンディング材表層の低重合層をエタノール綿で除去した試片（除去群）の 2 条件を設定した。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、セシルドロップ法で各液滴を 1  $\mu$ L 滴下し、装置に付属するソフトウェア（FAMAS, 協和界面科学）を用いて  $\theta/2$  法で測定を行った。

接着試験に際しては、表面自由エネルギー測定用試片と同様に残存群および除去群の 2 条件を設定し、化学重合型コンポジットレジンを用いて接着試片を製作した。これらの試片を、37°C 精製水中に 24 時間保管後、万能試験機（Type 5500R, Instron）を用い、クロスヘッドスピード毎分 1.0 mm の条件で剪断接着強さを測定した。また、接着強さ測定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、コンポジットレジンと象牙質との接合界面について、通法に従ってフィールドエミッション型 SEM（ERA-8800FE, エリオニクス）を用いて観察した。

その結果、ボンディング材の表面自由エネルギーは、いずれの製品においても、除去群と比較して残存群で有意に低い値を示した。また、Lewis 酸性成分はいずれの製品においても残存群では認められなかったものの、除去群で高い値を示した。一方、Lewis 塩基性成分は、いずれの製品においても除去群と比較して残存群で有意に高い値を示した。ここで、Lewis 酸性成分は固体表面の電子受容性を、Lewis 塩基性成分は固体表面の電子供与性を示す。セルフエッチシステムのボンディング材は、光重合開始剤であるカンファークイノンが光照射によって励起され、還元剤であるアミンと励起錯体を形成し、ラジカルを生じることで多官能性モノマーの重合反応を開始させる。このことから、ボンディング材に未反応の還元剤成分が多く存在し、これによって電子受容体成分が減少したため、相対的に電子供与体成分が有意に高い値を示したものと考えられた。

シングルステップシステムの化学重合型コンポジットレジンに対する接着強さは、残存群が除去群と比較して有意に低い値を示した。シングルステップシステムの pH は、象牙質のヒドロキシアパタイトと反

応することによってその pH は中性領域まで上昇するが、ボンディング材の表層低重合層における pH は低いまま残留することになる。これは、ボンディング材の低重合層に残留した酸性機能性モノマーによるものであり、化学重合型コンポジットレジンの重合開始剤のひとつであるアミンと酸性機能性モノマー由来の水素イオンとが反応することによって電荷移動錯体を形成され、重合反応が阻害される可能性がある。この現象は、化学重合型コンポジットレジンと象牙質との接合界面における SEM 観察からも、界面付近における重合不良層として確認された。

一方、2 ステップシステムの化学重合型コンポジットレジンに対する接着強さは、残存群と除去群との差は認められず、表層低重合層の影響は認められなかった。2 ステップシステムのボンディング材は酸性機能性モノマーの存在下においても、スルフィン酸塩などを添加することなどによって硬化反応が進行するような組成となっている。したがって、2 ステップシステムのボンディング材においては、その表層低重合層は界面科学的観点からは高い電子供与性を有するものの、化学重合レジンの重合反応への影響は少なかったものと考えられた。

以上のように、セルフエッチシステムのボンディング材表層に存在する低重合層が化学重合レジンとの接着性に及ぼす影響について検討した結果、シングルステップシステムにおいてはその存在によって接着性が低下するものの、2 ステップシステムにおいては影響が無いことが明らかとなった。今後、セルフエッチシステムの歯質接着機構の詳細を明らかにするためにも、重合反応がより複雑なデュアルキュア型コンポジットレジンの接着性についても同様な検討が必要と考えられた。