

論文の内容の要旨

氏名：横 川 未 穂

博士の専攻分野の名称：博士（歯学）

論文題名：メチルメルカプタンがコンポジットレジンに対する補修修復時の接着性に及ぼす影響

近年、Minimal Intervention（以後、MI）という治療概念の普及とともに審美性への要求の高まりから、光重合型コンポジットレジン（以後、光重合型レジン）を用いた修復処置を行う頻度が増加している。一方、光重合型レジン修復の臨床成績を通覧すると、修復物辺縁におけるギャップ形成あるいは表面摩耗が改善すべき事項とされている。そこで、修復物表層に限局して生じた欠陥に対して、問題のある部のみを削除して修復するという補修修復が、MIの観点から推奨されている。

口腔内には唾液や口腔内細菌などが存在し、光重合型レジン修復物表面も、これらに暴露されている。この口腔内細菌によって産生される揮発性硫黄化合物のうち、とくにメチルメルカプタンは、光重合型レジンを用いた補修修復を行うにあたってその接着性に影響を及ぼす可能性があるものの、その詳細については不明な点が多い。そこで著者は、メチルメルカプタンが光重合型レジンを用いた補修修復の接着性に及ぼす影響について、新旧修復物の接着強さおよび表面自由エネルギーを測定することによって検討した。

供試した光重合型レジンおよびシングルステップアドヒーズの組み合わせは、Beautiful II/BeautiBond (BF, 松風) および Estelite Σ Quick/Bond Force (EQ, トクヤマデンタル) である。補修修復の対象となる旧修復物として、内径 6 mm、高さ 2 mm の円筒形テフロン型にレジンペーストを充填、透明マトリクステープ（エピテックス, ジーシー）で圧接して 20 秒間光照射し、重合硬化させた。硬化試片の照射面を、耐水性シリコンカーバイド (SiC) ペーパーの # 2,000 まで研削した。次いで、これらの試片を 0.01 M, 0.1 M および 1.0 M の濃度に調整した 37°Cメチルメルカプタン水溶液（東京化成）に 4 週間浸漬した。また、同期間 37°C精製水中に浸漬した試片を Control とした。被着試片には各製造者指示条件に従ってアドヒーズを塗布、光照射を行い接着試験用試片とした。これらの試片は、照射直後から 37°C精製水に 24 時間保管した後、万能試験機 (Type 5500R, Instron) を用いて、クロスヘッドスピード 1.0 mm/min の条件で剪断接着強さを測定し、測定後の破断試片については、その破壊形式を評価した。

接着強さ試験と同様に製作した試片を、表面自由エネルギー測定用試片とした。表面自由エネルギーの測定には、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表面自由エネルギーが既知である液滴を 1 μ L 滴下し、装置に付属するソフトウェア (FAMAS, 協和界面化学) を用いて $\theta/2$ 法で測定を行った。表面自由エネルギーは、得られた接触角と拡張 Fowkes の理論式から算出した。さらに、新旧修復物における接着界面について SEM (ERA-8800 FE, エリオニクス) を用いて、その接合状態を観察した。

その結果、接着強さは BF では 1.0 M で、EQ では 0.01 M 以上の濃度条件で、Control と比較して有意に低い値を示した。これは、補修対象である旧修復物表層に一定濃度以上のメチルメルカプタンが残留すると、これがレジンの連鎖移動剤としてモノマーの転化率が低下したために、接着強さが低下した可能性が考えられた。また、Control と比較して BF の接着強さは 1.0 M 条件で有意に低下したものの、EQ では 0.01 M から有意な低下が認められた。これは光重合型レジンに含有されるフィラーの違いによるものと考えられた。すなわち、BF に含まれる S-PRG フィラーは酸性を示す機能的モノマーとの反応性が高いとされており、これが BF が EQ に比較して濃度が低い条件で接着強さの低下傾向が小さかった要因と考えられた。

表面自由エネルギーは、BF および EQ とともに Control と比較して、メチルメルカプタン濃度の上昇に伴って有意に高い値を示した。これは、試片を一定濃度以上に浸漬することで、試片表層付近におけるエネルギー状態が高まり、表面自由エネルギーも高くなったと考えられた。

表面自由エネルギーを構成する各成分で比較すると、分散成分および双極子成分においては BF および EQ とともにいずれの条件においてもメチルメルカプタン濃度による影響は認められなかった。一

方、水素結合成分は、Control と比較して BF および EQ とともに 1.0 M 条件において有意に高い値を示した。これは、接着面表層にメチルメルカプタンのメルカプト基がその表面に配向することによって高い水素結合成分の値を示したものと考えられた。

また、新旧修復物の接着界面の SEM 観察から、Control においては良好な接着界面が観察された。一方、BF においては 1.0 M 条件で、EQ においては 0.1 M および 1.0 M 条件で、旧修復物とアドヒーズとの接着界面にギャップの形成が観察された。削合群においては、両製品ともに Control およびいずれのメチルメルカプタン濃度においても良好な接着界面として観察された。

このように、メチルメルカプタンは光重合型レジンの補修修復の接着性を低下させることが明らかとなったが、このメチルメルカプタンに浸漬した旧修復物の被着面を一層削合することによる光重合型レジンの接着性への影響については不明である。そこで、旧修復物表層を 1 mm 削合して同様の検討を加えた。

その結果、削合群の接着強さおよび表面自由エネルギーは、BF および EQ とともに Control と比較して異なる濃度条件における有意差は認められなかった。とくに水素結合成分においては濃度の違いによる影響は認められなかった。これは、接着面を一層削合することで、メチルメルカプタンの影響のない層が露出したことを示すものと考えられた。

以上のように、メチルメルカプタンが光重合型レジンの補修修復における新旧修復物間の接着強さに及ぼす影響について検討した結果、メチルメルカプタンは光重合型レジンの補修修復の接着性を低下させることが明らかとなった。したがって、臨床においてコンポジットレジンをを用いた補修修復を行う際には、被着対象となる旧修復物表面を削除することは不可欠であることが示された。