

論文の内容の要旨

氏名：竹 中 宏 隆

博士の専攻分野の名称：博士（歯学）

論文題名：光線照射と水分の有無が自己接着性レジンセメントの硬化挙動および弾性率に及ぼす影響

近年、機械的強度および審美性に優れることから、コンポジットレジンやセラミックスを用いた間接修復処置を行う頻度が増加している。これら審美性歯冠修復物の装着に用いられるレジンセメントは、歯質および修復物の双方に対して接着性を有することが求められている。レジンセメントによる接着操作においては、歯質あるいは修復物などの各被着体に適した前処理が必要とされる。しかし、前処理を行うことは臨床操作を煩雑にさせるとともに、操作ステップ数の増加によって接着阻害因子の影響を受ける可能性がある。そこで、レジンセメントに機能性モノマーを含有させることで歯質とともに修復物の前処理を不要とした自己接着性レジンセメント（以後、自己接着セメント）が開発された。

自己接着セメントは、機能性モノマーを含有することによって被着歯面表層のスミヤ層を溶解除去するとともに、歯質を脱灰することによって化学的接着性を示す。自己接着セメントが酸として機能するためにも、被着歯面の湿潤状態は重要であり、その接着性に影響を及ぼす因子となる。一方、被着歯面における水分の存在は、自己接着セメントの初期硬化挙動あるいは機械的性質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、物体の状態変化を非破壊的に把握することが可能である超音波透過法を用いて、レジンセメントを透過する超音波の音速を測定することによって、水分の存在が自己接着セメントの硬化挙動および弾性率に及ぼす影響について検討した。

実験に供試した自己接着セメントは、リライエックスユニセム 2 オートミックス (UC, 3M ESPE) であり、レジンセメントとしてはリライエックス ARC アドヒーズレジンセメント (RX, 3M ESPE) を用いた。

超音波測定装置としてパルサーレーザー、縦波用トランスデューサーおよびオシロスコープから構成されるシステムを用い、伝播時間と試片の厚さの関係から縦波および横波音速を求めた。硬化挙動の測定は、光線照射を行わない、および光強度 600 mW/cm^2 として光線照射を行う 2 条件で、その各条件に水分がある条件とない条件の合計 4 条件で行った。照射を行う条件では、試片の両側面から 30 秒間照射を行い、照射開始から 5 秒ごと 15 分間測定した。また、練和から 1, 6, 12 および 24 時間経過した試片についても同様に測定を行った。

セメント硬化試片の弾性率の測定は、セメント練和開始から 15 分後、さらに 37°C 水中浸漬 1, 6, 12 および 24 時間後に行った。所定の時間が経過した試片については、前述した超音波測定と同様の超音波測定装置を用い、縦波および横波音速を求めた。音速を測定した試片は、マイクロメーターで寸法を電子天秤で質量をそれぞれ測定して密度を求め、得られた値を理論式に代入することによって弾性率を求めた。

また、製造者指示に従ってセメントを練和し、硬化した試片を順次研磨して観察面とした。試片は、デシケータに 24 時間保管して乾燥させ金蒸着を施した後、加速電圧 10 kV の条件で走査顕微鏡（以後、SEM）を用いて観察を行った。

その結果、測定開始から 900 秒までにおいて照射を行う場合、水分の有無に関わらずいずれの製品においても照射開始から音速が速やかに上昇し、それ以降でプラトーに達する変化を示し、音速の上昇傾向は水の影響を受けなかった。供試したレジンセメントで用いられている光重合開始剤は、アミンと反応することで励起錯体を形成することで、レジンモノマーの重合が開始される方式が採用されている。したがって、レジンセメントの重合硬化反応の進行には十分な光エネルギーとともに適切な pH 環境が必要である。自己接着セメントである UC の pH は、練和初期において 2.0~2.4 を示すものの、歯質の無機質成分との反応とともに光線照射によって重合反応が進行するためにこれが速やか

に上昇する。したがって、照射を行う条件では、セメント中の機能性モノマーの存在によって重合硬化反応が阻害されることなく、音速の上昇が速やかに生じたものと考えられた。

一方、照射を行わない条件では、これを行う条件と比較していずれのレジンセメントにおいても音速の上昇傾向が遅延した。水分の有無で比較すると **RX** の初期における音速の変化は水分の影響を受けなかったのに対して、**UC** では水分がある条件でこれがない条件と比較して音速の上昇開始時間が早くなった。すなわち、**UC** に含有されている無機質フィラーが塩基としての性質を示し、機能性モノマーと酸-塩基反応を開始するとともに、水和ゲルによる架橋反応が形成されることによって硬化反応が促進したためと考えられた。

レジンセメントの弾性率は、**UC** において照射を行う条件で、これを行わない条件と比較して高い値を示した。また、水分の有無で比較すると、**UC** では照射の有無に関わらず水分の影響は認められなかったのに対し、**RX** では照射を行わない場合、水分がある条件では有意に低い値を示した。**UC** は、練和直後は酸性を示すとともに親水性であるために歯質との良好なぬれ性を獲得できる。その後、機能性モノマーが歯質の無機質成分およびセメントに含有されるフィラーと反応しながら pH が上昇することで疎水性を示すとともに、光重合および化学重合とは別に、機能性モノマーとフィラーとの酸-塩基反応が進行することで硬化反応に寄与している。一方、**RX** は、その組成が疎水性であり、とくに硬化反応が緩徐に進行する化学重合では、マトリックスレジンの架橋構造が形成される過程で、水分による重合阻害が生じ、硬化物の弾性率が低下した可能性が考えられた。

本実験の結果から、自己接着セメントの歯質接着性を獲得するために必要とされている被着面の水分の存在は、その硬化挙動ならびに弾性率に影響を及ぼすことが示された。臨床において自己接着レジンセメントを使用する際には、良好な予後を得るためにも被着面の湿潤状態などに関するコントロールが必要であることが示唆された。