

色調適合性を有するシングルシェードコンポジットレジンの

特性評価に関する研究

Study on characterization of single shade composite resins

with color-matching ability

塚原 弾

日本大学大学院 松戸歯学研究科

保存修復学講座

(指導： 福本 雅彦 教授)

本論文は、以下の参考論文をまとめ論文としたものである。

主となる参考論文

“色調適合性を有するシングルシェードコンポジットレジンの色調安定性”

日本歯科保存学会誌 2024 年第 67 卷 1 号掲載予定

副となる参考論文

“色調適合性を有するシングルシェードコンポジットレジンの機械的性質”

日本歯科理工学会誌 2022 年第 41 卷 3 号掲載

1. Abstract

2. 抄録

3. 諸言

4. 材料および方法

1) 使用材料

2) 走査電子顕微鏡による試料の観察

3) 無機質フィラー含有量の測定

4) ダイナミック硬さおよび押し込み弾性係数の測定

5) 曲げ強さおよび曲げ弾性係数の測定

6) 歯ブラシ摩耗試験

7) コーヒー液浸漬前後の色差 ΔE^*ab の測定

8) 吸水率および溶解率の測定

9) 統計分析

5. 結果

6. 考察

7. 結論

8. 文献

9. 図表

Abstract

Purpose: Recently, single shade composites resins (CRs) with color-matching ability were developed to simplify the shade taking for direct composite restoration. But there are few reports about mechanical properties and color stability of single shade CRs. In this study, the mechanical properties and the color stability of single shade CRs with color-matching ability and conventional CRs were evaluated by hardness test, bending test, toothbrush abrasion test and immersion test.

Methods: As four single shade CRs, Omnicroma (Tokuyama Dental, OMC), Omnicroma Flow (Tokuyama Dental, OMF), Beautifil Unishade (Shofu, BUN) , and Clearfil Majesty ES Flow Universal U (Kuraray Noritake, CLM), six conventional CRs as the control group, Estelite Σ Quick (Tokuyama Dental, EST), Estelite Universal Flow (Tokuyama Dental, ESF), Beautifil II (Shofu, BF II), Beautifil Flow Plus X (Shofu, BFF), Clearfil Majesty ES-2 (Kuraray Noritake, CMP) and Clearfil Majesty ES Flow (Kuraray Noritake, CMF) were used in this study.

To evaluate the mechanical properties of CRs, dynamic hardness, indentation elastic modulus, flexural strength, and flexural modulus were calculated by surface hardness test using a dynamic ultra-micro hardness tester and bending test using a universal testing machine. To evaluate the color stability of CRs, color difference ΔE^*_{ab} was calculated by immersion the samples in coffee solution for 28 days non-abrasion and abrasion groups, respectively. In addition, water sorption and water solubility were

calculated by immersing another samples in distilled water for 28 days.

Results: In the single shade CRs, BUN containing S-PRG filler showed higher values of dynamic hardness, indentation elastic modulus, and flexural modulus than the other CRs. Dynamic hardness, indentation elastic modulus and flexural modulus showed a positive correlation with the inorganic filler content. On the other hand, flexural strength showed no correlation with the inorganic filler content.

Also, BUN showed a significantly higher ΔE^*_{ab} values in both the non-abrasion and abrasion groups in 28 days of coffee solution immersion compared to the other CRs ($p < 0.05$). When comparing ΔE^*_{ab} between the non-abrasion and abrasion groups for each CRs, CLM, EST, ESF, BFF, and CMP in non-abrasion group showed significantly higher values than abrasion group at 28 days of coffee solution immersion ($p < 0.05$). Water sorption was significantly higher in BFF than in the other CRs ($p < 0.05$) and negative correlation with the inorganic filler content. Water solubility was highest for EST and CMP with significantly difference ($p < 0.05$) to CLM and CMF, but no correlation with the inorganic filler content.

Conclusion: While BUN exhibits high mechanical properties, it is inferior in color stability, suggesting that when using a single shade CRs, the site selection should take into account the characteristics of each CRs.

Key words: composite resin, mechanical properties, color stability

抄 録

目的：近年、シェードテイキングの簡略化を目的として、シングルシェードで広い範囲の色調に適合可能なコンポジットレジン（CR）が開発された。これらの CR について、機械的性質や色調安定性に関する報告は少ない。本研究では、色調適合性を有するシングルシェード CR について、硬さ試験、3 点曲げ試験、歯ブラシ摩耗試験および浸漬試験を行い、機械的性質および色調安定性に関して従来の CR との比較・検討を行った。

材料と方法：シングルシェード CR として、Omnichroma（トクヤマデンタル，OMC），Omnichroma Flow（トクヤマデンタル，OMF），Beautiful Unishade（松風，BUN）および Clearfil Majesty ES Flow Universal U（クラレノリタケ，CLM）の 4 種類と、対照群として従来の CR である，Estelite Σ Quick（トクヤマデンタル，EST），Estelite Universal Flow（トクヤマデンタル，ESF），Beautiful II（松風，BFII），Beautiful Flow Plus X（松風，BFF），Clearfil Majesty ES-2（クラレノリタケ，CMP）および Clearfil Majesty ES Flow（クラレノリタケ，CMF）の 6 種類とし、計 10 種類の CR について実験材料とした。

CR の機械的性質の評価として、ダイナミック超微小硬度計を用いた表面硬さ試験および万能試験機を用いた曲げ試験を実施することで、ダイナミック硬さ、押し込み弾性係数、曲げ強さおよび曲げ弾性係数を算出した。また、CR の色調安定性の評価として、歯ブラシ摩耗試験を行っていない群（未摩耗群）および歯ブラシ摩耗試験を行った群（摩耗群）についてそれぞれ、コーヒー液に 28 日間

浸漬を行うことで色差 ΔE^*ab を算出した。加えて、別規格の試料を蒸留水に 28 日間浸漬し、吸水率および溶解率を算出した。

成績：シングルシェード CR において、S-PRG フィラー含有の BUN は、ダイナミック硬さ、押し込み弾性係数および曲げ弾性係数が他の CR に比べて高い値を示した。ダイナミック硬さ、押し込み弾性係数および曲げ弾性係数は、無機質フィラー含有量との間に正の相関を示した一方で、曲げ強さは無機質フィラー含有量と相関を示さなかった。

また、BUN は、28 日間のコーヒー液浸漬で未摩耗群および摩耗群ともに他の CR と比較して有意に高い ΔE^*ab の値を示した ($p<0.05$)。各 CR の未摩耗群と摩耗群の ΔE^*ab を比較した場合、コーヒー液浸漬 28 日間では CLM, EST, ESF, BFF および CMP について、未摩耗群が摩耗群と比較して有意に高い値を示した ($p<0.05$)。吸水率は、BFF が他の CR と比較して有意に高い値を示し ($p<0.05$)、無機質フィラー含有量との間に負の相関を認めた。溶解率は、EST および CMP が最も高い値を示し、CLM および CMF に対して有意な差を認めたが ($p<0.05$)、無機質フィラー含有量との間に相関を示さなかった。

結論：BUN が高い機械的性質を示した一方で、色調安定性には劣る結果を示したことから、シングルシェード CR を使用する際には、それぞれの CR の特性を考慮した部位の選択が必要と考えられる。

キーワード：コンポジットレジン、機械的性質、色調安定性

緒 言

齲蝕治療におけるコンポジットレジン(CR)修復は, Minimal Intervention (MI) の概念¹⁾の普及に伴い, 適応範囲が拡大している²⁾. その理由として, 歯質接着材料の発展や CR 自体の機械的性質の向上^{2,3)}に加えて, 隔壁法を用いることで隣接面を含む広範囲の窩洞などに対し, 短時間での CR 修復が可能²⁾であることが挙げられる. また, 間接修復や歯冠補綴に用いる貴金属の価格高騰に加え, 審美的な欲求や金属アレルギー患者の増加から, 近年においてメタルフリー修復の需要は高まっている⁴⁾. その中で CR は優れた審美性を有し, 歯質の切削量を低減できることから, 修復処置を行う際に第一選択として用いられることが多い⁵⁾. 一方で, CR は半透明性の材料であるため, 変色歯や歯質の裏打ちがない窩洞などに充填を行う際には周囲の歯質や口腔内の背景色の影響を受けて色調が変化することがある⁶⁾. また, 天然歯は個人によって色調が異なり, 切端部, 中央部および歯頸部などの歯の部位においても色調は異なっていることから⁷⁾, シェードテイキングにより CR と歯質の色調を一致させるのは容易ではない.

近年, シェードテイキングの簡略化による治療時間の短縮を目的として, 各社よりシングルシェードで広い範囲の歯の色調に適合する CR が開発され, 臨床において用いられている⁸⁾. 例えば, その初期に開発されたトクヤマデンタル社のオムニクロマは, 均一な粒径のフィラーの微細構造による構造色を発現し, 歯質の色調の再現を可能にしている⁹⁾. これらシングルシェードタイプの CR は, 高い光透過性と光拡散性を有しており, 窩洞周囲の歯質の色調を反映すること

で優れた色調適合性を発揮している^{10,11)}。

一方で、CRの無機質フィラー含有量、種類および粒径などの特徴は、CRの色調や機械的性質に影響を与える^{12,13)}。また、CR充填後の問題点の一つとして、口腔内において唾液や飲食物に常に曝されることにより¹⁴⁾、亀裂や間隙、フィラーの脱落が生じ、CR表面の粗造化や変色を引き起こすことが挙げられる¹⁵⁾。加えて、歯ブラシを用いたブラッシングによるCRの摩耗は、変色の原因になるとの報告がある¹⁶⁾。CRが有するこれらの性質および問題点に対し、シングルシェードCRを用いて詳細を明らかにした報告は少ない。

そこで本研究では、色調適合性を有するシングルシェードCRに対し、硬さ試験、3点曲げ試験、歯ブラシ摩耗試験および浸漬試験を行い、その機械的性質および色調安定性について評価するとともに、従来のCRとの比較・検討を行った。

材料および方法

1. 使用材料

本研究に使用した材料および組成をTable 1に示す。本研究では色調適合性を有するシングルシェードCRとして、Omnichroma（トクヤマデンタル、OMC）、Omnichroma Flow（トクヤマデンタル、OMF）、Beautiful Unishade（松風、BUN）、Clearfil Majesty ES Flow Universal U（クラレノリタケ、CLM）の4種類を用いた。また、対照群として従来のCRである、Estelite Σ Quick（トクヤマデンタル、EST）、Estelite Universal Flow（トクヤマデンタル、ESF）、Beautiful II（松風、BFII）、Beautiful

Flow Plus X (松風, BFF), Clearfil Majesty ES-2 (クラレノリタケ, CMP) および Clearfil Majesty ES Flow (クラレノリタケ, CMF) の 6 種類を用いた. 対照群のシェードはいずれも A2 とした. これら計 10 種類の CR に対して, 以下の試験を行った.

2. 走査電子顕微鏡による試料の観察

走査電子顕微鏡 (S-3400N, 日立: SEM) を用いて, 各試料の表面性状について観察を行った. 各種 CR を ϕ 4.5 mm \times 2.0 mm のゴム製の型に充填し, ストリップス (Striproll, Kerr) を介してガラス板で圧接した後, 光照射器にて 90 秒間光照射した. 照射後, 試料を割型から撤去し, 耐水研磨紙の #100 から #1,000 まで順次研磨を行った. カーボンテープを用いて各試料を試料台に固定し, イオンコーター (IB-5, エイコー) にて Au-Pd 合金蒸着処理を 120 秒間行った後に, 加速電圧 15.0 kV の条件で撮影を行った.

3. 無機質フィラー含有量の測定

各種 CR のペーストを約 0.2 g ずつ採取し, 焼却用のるつぼに入れた状態で分析精密電子天秤 (AG285, メトラートレド) を用いて各試料の焼却前の質量 (m_1) を秤量後, 電気炉 (MSFT-1520-P, ニッカトー) にて, 550 $^{\circ}$ C まで昇温速度 5 $^{\circ}$ C/分の条件で加熱し, 有機質成分を焼却した. 試料数はそれぞれ 4 個とした. 焼却後, 残留した無機質フィラーの質量 (m_2) を秤量し, m_1 と m_2 の値から無機質フィラー含有量 (mass%) を算出した.

4. ダイナミック硬さおよび押し込み弾性係数の測定

各種 CR を長さ 20 mm×幅 2 mm×厚さ 2 mm のステンレス鋼製割型に填塞し、ストリップスを介してガラス板で圧接した後、光照射器（アルファライト V, モリタ）にて上面および下面にそれぞれ 90 秒間光照射を行った。照射後、試料を割型から撤去し、余剰部分を除去するとともに耐水研磨紙を用いて #100 から #1,000 まで順次研磨を行った。研磨した試料は蒸留水中に浸漬し、超音波洗浄機（US-2, エスエヌディ）で 10 分間洗浄後、37°C の蒸留水中に 24 時間保管した。

作製した試料を専用のジグに取り付け、装置に固定した後、ダイナミック超微小硬度計（DUH-211, 島津）を用いて、試験力 196.10 mN, 最小試験力 0.20 mN, 負荷保持時間 15 秒の条件で試料表面に稜間角 115° の Berkovich 圧子を押し込むことで負荷－除荷試験を行った。試料数はそれぞれ 10 個とした。試験により得られた荷重－押し込み深さ曲線から、塑性変形量 (h_p) と弾性変形量 (h_e), それらの総和である全変形量 ($h_t = h_p + h_e$) を算出した¹⁷⁾。なお、各試料表面において異なる箇所の 3 点で計測を行い、それらの平均値を試料の代表値として記録した。ダイナミック硬さ (DH) は式 (1) を用いて算出した。

$$DH \equiv aP/h^2 \quad (1)$$

a : Berkovich 圧子の形状による定数 (3.8584)

P : 押し込み荷重 (mN)

h : 押し込み深さ (μm)

また、押し込み弾性係数 (E) は式 (2) を用いて算出した。

$$1/E_r = (1 - \nu^2) / E + (1 - \nu_i^2) / E_i,$$

$$E_r = S\sqrt{\pi/2} \sqrt{A} \quad (2)$$

E_r : 押し込み接触による換算弾性係数

ν : 試料のポアソン比

ν_i : Berkovich 圧子のポアソン比 (0.07)

E_i : Berkovich 圧子の弾性係数 (1140 GPa)

S : 除荷開始時の荷重－押し込み深さ曲線の傾き

A : 圧子と試料間の接触投影面積

なお、押し込み弾性係数の算出に大きく影響しないため、本研究では式 (2) における試料のポアソン比を $\nu=0$ とした。

5. 曲げ強さおよび曲げ弾性係数の測定

各種 CR について、硬さ試験と同様の方法で 3 点曲げ試験の試料を作製した。試料の研磨後、ノギスを用いて試料の幅および厚さをそれぞれ 3 点で計測し、それぞれの平均値が 2.0 ± 0.05 mm に収まるように試料を調製した。調製した試料は蒸留水中に浸漬し、超音波洗浄機で 10 分間洗浄後、 37°C の蒸留水中に 24 時間保管した。万能試験機 (TG-5kN, ミネベアミツミ) を用いて、3 点曲げ試験を実施した。試料数はそれぞれ 10 個とした。曲げ試験の条件は ISO 4049 : 2009 に準拠し、支点間距離 20 mm, クロスヘッドスピード 1 mm/min とした。曲げ試験では、試料が破断点に至るまで荷重を加え、得られた最大荷重値から曲げ強さを、また得られた荷重－変位曲線の初期の傾きから曲げ弾性係数を算

出した．なお，曲げ強さ（ σ_b ）および曲げ弾性係数（ E_b ）はそれぞれ式（3,4）により算出した．

$$\sigma_b = 3F_{max} l / 2bh^2 \quad (3)$$

$$E_b = Fl^3 / 4bh^3 d \quad (4)$$

F_{max} ：最大荷重（N）

l ：支点間距離（mm）

b ：試験片の幅（mm）

h ：試験片の厚さ（mm）

F ：比例限内における荷重（N）

d ：荷重 F におけるたわみ量（mm）

6. 歯ブラシ摩耗試験

各種 CR を長さ 20 mm×幅 7 mm×厚さ 2 mm のステンレス鋼製割型に填塞し，ストリップスを介してガラス板で圧接した後，光照射器にて上面および下面にそれぞれ 90 秒間光照射を行った．照射後，試料を割型から撤去し，余剰部分を除去するとともに耐水研磨紙 #1,000 を用いて試料の側面の研磨を行った．研磨した試料は蒸留水中に浸漬し，超音波洗浄機で 10 分間洗浄後，37°C の蒸留水中に 24 時間保管した．なお，ストリップスを介して圧接を行った面を試料の歯ブラシ摩耗面とした．4 連摩耗試験機（K921，東京技研）に各試料を設置し，歯ブラシ摩耗試験を行った．試料数はそれぞれ 10 個とした．試験条件は小泉らの方法¹⁸⁾および ISO 14569-1：2007 に準拠し，スラリー（歯磨剤：蒸留水 = 120 g：

120 ml) 中にて，試験時間 120 分，ストローク回数 20,000 回，ストローク幅 30 mm，荷重 2.5 N とした．歯ブラシは Bee KING HARD (ビーブランドメディコデンタル)，歯磨剤はホワイトアンドホワイト (ライオン) をそれぞれ使用した．また，歯ブラシ摩耗試験後に，各試料の蒸着処理を行い，SEM を用いて摩耗面の表面性状について観察を行った．

7. コーヒー液浸漬前後の色差 ΔE^*ab の測定

歯ブラシ摩耗試験を行った試料について，20 ml のコーヒー液 (Nescafe Gold Blend 無糖[®]，Nescafe) に浸漬し，37°C の恒温槽 (IC-150MA，アズワン) の中で 28 日間保管を行った．試料数はそれぞれ 5 個とし，7 日ごとに浸漬液の交換を行った．分光測色計 (CM-700d，コニカミノルタ) を用いて，浸漬前と浸漬後 7 日，14 日，21 日および 28 日目において測色を行った．測色に際しては，試料を蒸留水にて 10 分間洗浄し，ペーパータオルで試料表面の水分を十分に除去した後， $L^*a^*b^*$ 表色系により白色背景にて任意の 3 点で測色を行い，その平均値を試料の測定値とした．得られた値から，色差 $\Delta E^*ab = (\Delta a^2 + \Delta b^2 + \Delta L^2)^{1/2}$ を算出した．また，歯ブラシ摩耗試験に使用した試料と同じ規格の未摩耗群を作製し，同様の方法で浸漬を行い，色差 ΔE^*ab を算出した．

8. 吸水率および溶解率の測定

各種 CR について，歯ブラシ摩耗試験と同様の方法で長さ 10 mm × 幅 7 mm × 厚さ 2 mm の試料を作製し，分析精密電子天秤を用いて各試料の浸漬前の質量 (w_1) を秤量した．次に，各試料を 20 ml の蒸留水に浸漬し，37°C の恒温槽の中

で 28 日間保管を行った。試料数はそれぞれ 4 個とした。浸漬終了後、ペーパータオルで試料表面の水分を除去した状態の質量 (w_2) を秤量した。次に、シリカゲルを入れた 40°C の真空検体乾燥器 (HD-15H, 石井理化) に試料を保管し、各試料の水分が蒸発し乾燥した状態の質量 (w_3) を秤量した。得られたこれらの質量から、Alshali らの方法¹⁹⁾に準拠した式 (5,6) をそれぞれ用いて吸水率 (%) および溶解率 (%) を算出した。

$$W_{sp} (\%) = (w_2 - w_3) / w_1 \times 100 \quad (5)$$

$$W_{sl} (\%) = (w_1 - w_3) / w_1 \times 100 \quad (6)$$

9. 統計分析

一連の試験から得られた値に対し、それぞれ平均値と標準偏差を求め、統計解析ソフト (エクセル統計, 社会情報サービス) を用いて正規性および等分散性の検定を行った後に一元配置分散分析を行った。有意差が認められた場合、多重比較検定 (Scheffé の方法) を行った。未摩耗群および摩耗群の色差 ΔE^*_{ab} に関しては、 t 検定を用いて比較を行った。いずれも有意水準は 5% とした。また、Pearson の積率相関係数を用いて、各種 CR の無機質フィラー含有量に対するダイナミック硬さ、押し込み弾性係数、曲げ強さ、曲げ弾性係数、吸水率および溶解率との相関関係 (r) と、吸水率と溶解率間での相関関係 (r) をそれぞれ分析した。

結 果

1. 走査電子顕微鏡による試料の観察

各 CR の試料表面を高倍率で観察した SEM 像を Fig. 1 に示す. OMC, OMF, EST および ESF においては, ほぼ均一なサイズの球状フィラーが認められた. BUN, BFII および BFF においては, 不均一なサイズの不定形フィラーが認められた. CLM, CMP および CMF においては, ほぼ均一なサイズの不定形フィラーに加えて, フィラーの凝集体 (白矢印) が含まれている像が確認できた.

2. 無機質フィラー含有量

各 CR の無機質フィラー含有量の結果を Fig. 2 に示す. BFIIは, 他の CR と比較して有意に高い値を示した ($p<0.05$). 一方で, BFF は最も低い値を示した ($p<0.05$).

3. ダイナミック硬さおよび押し込み弾性係数

各 CR の試料表面における全変形量 (h_t), 塑性変量 (h_p) および塑性変形率 (h_p/h_t), さらに弾性変形量 (h_e) および弾性変形率 (h_e/h_t) を Table2 に示す. OMF は最も大きい全変形量を示し, BFIIは最も小さい値を示した. また, 押し込み荷重における h_t に対する h_e の割合である弾性変形率は, CMF は最も高い値を示し, BFII は最も低い値を示した.

各 CR のダイナミック硬さの結果および無機質フィラー含有量との関係を Fig. 3 に示す. BFII は, 他の CR と比較して有意に高い値を示した (Fig. 3A, $p<0.05$). 一方で, OMF は最も低い値を示した ($p<0.05$). また, 無機質フィラー含有量とダイナミック硬さは強い正の相関を示した (Fig. 3B, $r=0.90$).

各 CR の押し込み弾性係数の結果および無機質フィラー含有量との関係を Fig.

4 に示す. BFII は, 他の CR と比較して有意に高い値を示した (Fig. 4A, $p<0.05$).

一方で, OMF は最も低い値を示した. また, 無機質フィラー含有量と押し込み弾性係数は強い正の相関を示した (Fig. 4B, $r=0.91$).

4. 曲げ強さおよび曲げ弾性係数

各 CR の曲げ強さの結果および無機質フィラー含有量との関係を Fig. 5 に示す. CMF は, 各 CR の中で最も高い値を示した (Fig. 5A). 一方で, EST は最も低い値を示した. また, 無機質フィラー含有量と曲げ強さは相関を認めなかった (Fig. 5B, $r=-0.24$).

各 CR の曲げ弾性係数の結果および無機質フィラー含有量との関係を Fig. 6 に示す. BFII は, 他の CR と比較して有意に高い値を示した (Fig. 6A, $p<0.05$). 一方で, OMF は最も低い値を示した. また, 硬さ試験の結果と同様に, 無機質フィラー含有量と曲げ弾性係数は強い正の相関を示した (Fig. 6B, $r=0.83$).

5. 走査電子顕微鏡による歯ブラシ摩耗試験後の試料の観察

各 CR の歯ブラシ摩耗試験後の試料表面を低倍率で観察した SEM 像を Fig. 7 に示す. BUN においては, サイズの大きい不均一な不定形フィラー (黒矢印) を認めた. 一方で, その他の CR においては歯ブラシ摩耗により平坦な面を呈しており, フィラーとマトリックスレジンの境界や摩耗痕はいずれも不明瞭であった.

6. コーヒー液浸漬前後の色差 (ΔE^*ab)

各 CR のコーヒー液浸漬群の ΔE^*ab の結果を Fig. 8 に示す. BUN は, 未摩耗

群および摩耗群のどちらも 28 日間で他の CR と比較して有意に高い ΔE^*_{ab} の値を示し ($p < 0.05$), 臨床的には許容できないとされる, 3.3 以上の値^{14,20})を示した. その他のコーヒー液浸漬後の CR において, 未摩耗群では OMC, BFII および BFF, 摩耗群では OMC, OMF および BFII の ΔE^*_{ab} が最終的に 3.3 以上の値を示した. また, 各 CR の未摩耗群と摩耗群の ΔE^*_{ab} を比較した場合, 浸漬から 28 日目では, CLM, EST, ESF, BFF および CMP の未摩耗群が摩耗群に比べて有意に高い値を示した ($p < 0.05$).

7. 吸水率および溶解率

各 CR の吸水率の結果および無機質ファイラー含有量との関係を Fig. 9 に示す. BFF は他の CR と比較して最も高い値を示した (Fig. 9A, $p < 0.05$). 一方で, CLM が最も低い値を示し, OMC, OMF, EST, BFF および CMP に対して有意な差を示した ($p < 0.05$). また, 無機質ファイラー含有量と吸水率は負の相関を示した (Fig. 9B, $r = -0.54$).

各 CR の溶解率の結果および無機質ファイラー含有量との関係を Fig. 10 に示す. EST および CMP は最も高い値を示し, CLM および CMF に対して有意な差を示した (Fig. 10A, $p < 0.05$). 一方で, CMF が最も低い値を示し, EST, ESF および CMP に対して有意な差を示した ($p < 0.05$). また, 無機質ファイラー含有量と溶解率は相関を認めなかった (Fig. 10B, $r = -0.12$). 各 CR の吸水率と溶解率の相関関係 (r) の結果を Fig. 11 に示す. 吸水率と溶解率は, 正の相関を示した ($r = 0.46$).

考 察

臨床で使用されている歯科用 CR 材料は、無機質フィラー、マトリックスレジン、およびそれらを化学的に結合させるためのフィラーへの表面処理剤から構成されている²¹⁾。その中で、フィラーの含有量やサイズ、形状といった要素は、CR が有する機械的性質においては重要な役割を果たしている^{22,23)}。しかしその一方で、CR におけるフィラーの特性は、CR の外因的な変色にも影響を与える²⁰⁾。一般に、CR の変色の原因として、プラークの蓄積や、コーヒー、赤ワインやコーラなどの着色性の飲食物の摂取による色素の吸着が挙げられる²⁴⁾。加えて、歯ブラシによるブラッシングや歯磨剤の介在によって引き起こされる摩耗は、さらなる CR 表面の光沢性の低下や変色、粗造な面へのプラークの蓄積を招く²⁵⁾。また、CR の吸水は変色だけでなく、加水分解によりマトリックスレジン／フィラー界面の結合の劣化を引き起こし、ひいては機械的性質の低下を招くとの報告がある¹⁹⁾。本研究では、各種シングルシェード CR が有する機械的性質および色調安定性を評価するために、ダイナミック超微小硬度計を用いた硬さ試験、万能試験機を用いた 3 点曲げ試験および歯ブラシ摩耗試験機を用いた歯ブラシ摩耗試験に加え、コーヒー液および蒸留水を用いた浸漬試験を行った。

硬さ試験の結果より、BUN と BFII は高いダイナミック硬さおよび押し込み弾性係数を示し (Fig. 3A, 4A)、各 CR のダイナミック硬さおよび押し込み弾性係数は、無機質フィラー含有量に対し強い正の相関を示した (Fig. 3B, 4B)。CR の無機質フィラー含有量とダイナミック硬さおよび弾性係数との間においては、

正の相関を認めることが報告されている¹⁷⁾。本研究で用いた BUN, BFII および BFF は、フッ素を徐放することで抗菌作用などの特性を発揮する²⁶⁾、表面改質酸反応性機能ガラスフィラー (S-PRG フィラー) を含有している。その中でも BUN と BFII は、無機質フィラー含有量が高く、強化材である無機質フィラーが緊密に充填されており、試料表面における無機質フィラーの割合が高いことから、ダイナミック硬さおよび押し込み弾性係数において高い値を示したと考えられる。また、変形量の結果より、ユニバーサルタイプの CR は、小さい変形量を示し (Table 2)、ダイナミック硬さも高い傾向を示したことから、ユニバーサルタイプの表面は高い機械的性質を有していることが示唆された。その一方で、弾性変形率に関しては、フロアブルタイプが大きい値を示した。一般に、マトリックスレジン構成する Bis-GMA, UDMA および TEGDMA などのジメタクリレートモノマーについて、TEGDMA の配合率が高くなるにつれて粘性の低下および重合収縮量の増加が生じることにより、その CR 重合体の粘弾性挙動に影響を及ぼすことが知られている^{27,28)}。本研究の結果から、TEGDMA の配合率が高いフロアブルレジンにより弾性的な性質を有していることが示唆された。

CR の曲げ強さの無機質フィラー含有量に対する相関性は低いとされており²⁹⁾、マトリックスレジン中の無機質フィラー含有量が増加するにつれて、曲げ弾性係数は上昇すると同時に剛直になって脆性が増すことで、曲げ強さは低下する^{29,30)}。本研究の曲げ試験の結果では、曲げ弾性係数は無機質フィラー含有量と強い正の相関を示したが、曲げ強さは相関を示さなかった。(Fig. 5B, 6B)。CR

の曲げ強さは、無機質フィラー含有量のみならず、フィラーの粒径や形状、モノマーの種類や配合量、およびフィラーへの表面処理方法などに影響を受ける^{29,31)}。特に、曲げ強さはフィラー粒径が小さくなるにしたがって向上することが報告されている³²⁾。このことから、高強度の CR を得るためには、含有する無機質フィラーの量だけではなく、粒径や形状、モノマーの組成の適正化が必要であることが示唆された。

各 CR における SEM 観察の結果から、シングルシェード CR の中で、BUN にはフィラー径の大きい不定形フィラーが含有されていることが確認できた (Fig. 1)。BUN に含有されているフィラーの径は平均 0.8 μm であり、他のシングルシェード CR に含有される無機質フィラーよりも比較的大きいサイズを示した。また、歯ブラシ摩耗試験後の SEM 観察の結果から、BUN は不定形フィラー (黒矢印) が確認できた (Fig. 7)。これは、歯ブラシ摩耗により弾性係数の低いマトリックスレジンが優先的に摩耗したことで観察されたものと思われる。

本研究で浸漬液として使用したコーヒー液は、浸漬試験では多く用いられている³³⁾。コーヒー液は極性の低い黄色色素を含有し、CR の表面に吸着するだけでなくマトリックスレジンに浸透することで変色を引き起こすとされている^{34,35)}。また、浸漬期間に関しては、*in vitro* での 24 時間の浸漬は *in vivo* での 1 ヶ月を模倣し、28 日間の浸漬は 2.5 年の口腔内での経時変化に相当するとの報告^{34,36)}があることから、本研究における浸漬期間は 28 日間とした。浸漬試験の結果より、S-PRG フィラーを含有する BUN と BFII は、浸漬 28 日目において、顕

著に高い ΔE^*ab の値を示した (Fig. 8). 一方で、同様に S-PRG フィラーを含有する BFF は低い ΔE^*ab の値を示した. S-PRG フィラーを含有する修復材料は、高い着色性および吸水性を示し^{37,38)}、フィラーがフッ素を徐放した際に微小な孔が生じ³⁸⁾、水分を吸収することにより着色を引き起こすと考えられる. 加えて、表層のマトリックスレジンが溶解すると、不規則に配置されたフィラーが露出し、CR の表面が粗造となることで着色が生じやすくなる³⁷⁾. BUN と BFII は無機質フィラー含有量が高く、高密度なフィラー含有量は表面が粗造となり、色素の沈着を促進するとの報告もあることから³⁹⁾、高い ΔE^*ab の値を示したと考えられる. 一般に、フィラーの粒径が小さいと CR の表面は滑沢になり、変色も少なくなる³⁵⁾. しかし、シングルシェード CR である OMC と OMF は、フィラーの粒径が小さいにもかかわらず、摩耗群では 28 日間のコーヒー液浸漬によって ΔE^*ab の値が 3.3 以上を示した (Fig. 8). 一方で、同じトクヤマデンタル社開発の従来 CR である EST と ESF の ΔE^*ab は 3.3 以下の値を示しており、先行研究においても類似した傾向が認められた⁴⁰⁾. OMC と OMF は、260 nm の球状フィラーを均一に配列することで構造色を発現させ、歯質の色調を再現しており、従来 CR とは異なり顔料を含有していない^{9,40)}. コーヒー液浸漬の結果から、フィラーの特性や顔料の有無が OMC と OMF の変色に影響を与えている可能性が考えられる.

本研究では、歯ブラシ摩耗試験を行った群に加えて、比較対照群として未摩耗の群を作製し、同様に浸漬試験を行った. CR の表面は仕上げ研磨を行うこと

で亀裂やかすり傷が生じ、表面性状が変化する⁴¹⁾。そのため、未摩耗群は研磨を行わずにストリップスを介してガラス板で圧接することで表面を滑沢にし、試料表面を規格化した。しかし、今回行った浸漬試験の結果から、未摩耗群と摩耗群の ΔE^*ab を比較した場合、未摩耗群が有意に高い ΔE^*ab を示す CR が認められた (Fig. 8)。ストリップスを介して CR を光硬化させることで、マトリックスレジンに富んだ樹脂リッチで滑沢な表面が形成される^{38,42)}。また本研究と同様、ストリップスで圧接後に研磨を行わなかった CR と研磨を行った CR の ΔE^*ab を比較した場合、研磨を行わなかった CR の方が高い ΔE^*ab を示したとの報告もあることから⁴²⁾、CR 表面の樹脂リッチ層の有無によって、未摩耗群と摩耗群との間で ΔE^*ab に差が生じたものと考えられる。

前述の通り、S-PRG フィラーを含有する CR は高い着色性および吸水性を示すとされている。しかし、本研究では BFF が他の CR と比較して有意に高い吸水率を示した一方で、BUN と BFII の吸水率は低い値を示した (Fig. 9A)。CR の無機質フィラー含有量が高いほどマトリックスレジンの割合は減少するため、水分の吸収量は減少する^{19,39)}。吸水率の結果において、各 CR の無機質フィラー含有量と吸水率の間には負の相関を確認できた (Fig. 9B)。このことから、S-PRG フィラーを含有する CR についても、BUN や BFII のように無機質フィラー含有量が高い場合、吸水率は低下することが示唆された。CR の溶解率は、主に未反応モノマーや添加剤の溶出に起因しており、重合度が高いほど未反応モノマーの量は少なくなり、溶解率は低くなる¹⁹⁾。本研究において、無機質フィラ

一含有量と溶解率は相関を示さなかったが、吸水率と溶解率は正の相関を示した (Fig. 10B, 11). よって、吸水率は無機質フィラー含有量すなわちモノマー含有量、溶解率は未反応モノマーが主体となって、それぞれの結果に影響を及ぼしたと考えられる.

結 論

本研究では、シングルシェード CR 材料の機械的性質および色調安定性について評価、検討を行った結果、以下の結論を得た.

1. シングルシェード CR について、S-PRG フィラーが高密度に充填されている BUN はダイナミック硬さ、押し込み弾性係数、曲げ弾性係数および色差 ΔE^*ab において最も高い値を示した. そのため、S-PRG フィラー含有のシングルシェード CR は機械的性質が優れている反面、変色しやすいことが示唆された.
2. 各種 CR の無機質フィラー含有量について、ダイナミック硬さ、押し込み弾性係数および曲げ弾性係数に対して正の相関が認められた. 一方で、吸水率に対しては負の相関を認めた. 曲げ強さおよび溶解率に関しては、相関を認めなかった.
3. 各種 CR のコーヒー液浸漬後の未摩耗群と摩耗群の ΔE^*ab を比較した場合、浸漬 28 日間において、CLM, EST, ESF, BFF および CMP は未摩耗群が摩耗群と比較して有意に高い ΔE^*ab の値を示した.

4. シングルシェード CR を使用する際には、機械的性質もしくは色調安定性など、それぞれの CR が有する特性を考慮し、部位に応じた適切な選択が必要と考えられる。

文 献

- 1) Tyas MJ, Anusavice KJ, Frencken JE, Mount GJ. Minimal intervention dentistry - a review. FDI Commission Project 1-97. Int Dent J 2000; 50: 1-12.
- 2) 二階堂徹. 充填用コンポジットレジン系材料の現状と将来. 日歯理工誌 2022 ; 41 : 14-146.
- 3) Chen MH. Update on dental nanocomposites. J Dent Res 2010; 89: 549-560.
- 4) 新谷明一, 三浦賞子, 小泉寛恭, 疋田一洋, 峯 篤史. CAD/CAM 冠の現状と将来展望. 日補綴会誌 2017 ; 9 : 1-15.
- 5) Demarco FF, Collares K, Coelho-de-Souza FH, Correa MB, Cenci MS, Moraes RR, Opdam NJ. Anterior composite restorations: A systematic review on long-term survival and reasons for failure. Dent Mater 2015; 31: 1214-1224.
- 6) Kim SJ, Son HH, Cho BH, Lee IB, Um CM. Translucency and masking ability of various opaque-shade composite resins. Journal of Dentistry 2009; 37: 102-107.
- 7) O'Brien WJ, Hemmendinger H, Boenke KM. Color distribution of three regions of extracted human teeth. Dent Mater 1997; 13: 179-185.
- 8) 新海航一, 大野寛, 高橋天佑, 山口耀平, 鈴木雅也. コンポジットレジン

- ン・ユニバーサルシェードのカメレオン効果に関する色彩学的評価. 歯科の色彩 2022 ; 28 : 31-38.
- 9) 小野瀬里奈, 大原直子, 松崎久美子, 澁谷和彦, 横山章人, 高橋 圭, 神農泰生, 山路公造, 島田康史, 吉山昌宏. Visual Analog Scale (VAS) を用いたコンポジットレジンの色調適合評価. 日歯保存誌 2020 ; 63 : 30-37.
- 10) Abdelraouf RM, Habib NA. Color-Matching and Blending-Effect of Universal Shade Bulk-Fill-Resin-Composite in Resin-Composite-Models and Natural Teeth. BioMed Res Int 2016; 2016: 4183432.
- 11) Foxton RM. Current perspectives on dental adhesion: (2) Concepts for operatively managing carious lesions extending into dentine using bioactive and adhesive direct restorative materials. Jpn Dent Sci Rev 2020; 56: 208-215.
- 12) Arai Y, Kurokawa H, Takamizawa T, Tsujimoto A, Saegusa M, Yokoyama M, Miyazaki M. Evaluation of structural coloration of experimental flowable resin composites. J Esthet Restor Dent 2021; 33: 284-293.
- 13) Manhart J, Kunzelmann KH, Chen HY, Hickel R. Mechanical properties and wear behavior of light-cured packable composite resins. Dent Mater 2000; 16: 33-40.
- 14) Arocha MA, Mayoral JR, Lefever D, Mercade M, Basilio J, Roig M. Color stability of siloranes versus methacrylate-based composites after immersion in staining solutions. Clin Oral Invest 2013; 17: 1481-1487.
- 15) 岸本崇史. 鏡面研磨された各種コンポジットレジンの表面性状の評価とア

ルカリ環境下における変化. 日歯保存誌 2015 ; 58 : 482-495.

- 16) Lai G, Zhao L, Wang J, Kunzelmann KH. Surface properties and color stability of dental flowable composites influenced by simulated toothbrushing. *Dent Mater J* 2018; 37: 717-724.
- 17) Iwasaki T, Kamiya N, Hirayama S, Tanimoto Y. Evaluation of the mechanical behavior of bulk-fill and conventional flowable resin composites using dynamic micro-indentation. *Dent Mater J* 2022; 41: 87-94.
- 18) Koizumi H, Saiki O, Nogawa H, Hiraba H, Okazaki T, Matsumura H. Surface roughness and gloss of current CAD/CAM resin composites before and after toothbrush abrasion. *Dent Mater J* 2015; 34: 881-887.
- 19) Alshali RZ, Salim NA, Satterthwaite JD, Silikas N. Long-term sorption and solubility of bulk-fill and conventional resin-composites in water and artificial saliva. *Journal of Dentistry* 2015; 43: 1511-1518.
- 20) Mundim FM, Garcia LFR, Pires-de-Souza FCP. Effect of staining solutions and repolishing on color stability of direct composites. *J Appl Oral Sci* 2010; 18: 249-254.
- 21) 亀山祐佳, 大橋 桂, 山口紘章, 三宅 香, 和田悠希, 緑野智康, 谷本安浩, 寺中文子, 岩井啓寿, 平山聡司, 二瓶智太郎. CAD/CAM 冠用ハイブリッドレジンブロックの特性に関する研究. *神歯学* 2020 ; 55 : 1-15.
- 22) Kim KH, Ong JL, Okuno O. The effect of filler loading and morphology on the

- mechanical properties of contemporary composites. *J Prosthet Dent* 2002; 87: 642-649.
- 23) Wille S, Hölken I, Haidarschin G, Adlung R, Kern M. Biaxial flexural strength of new Bis-GMA/TEGDMA based composites with different fillers for dental applications. *Dent Mater* 2016; 32: 1073-1078.
- 24) Al Kheraif AAA, Qasim SSB, Ramakrishnaiah R, Rehman IU. Effect of different beverages on the color stability and degree of conversion of nano and microhybrid composites. *Dental Mater J* 2013; 32: 326-331.
- 25) Tanoue N, Matsumura H, Atsuta M. Analysis of composite type and different sources of polymerization light on in vitro toothbrush/dentifrice abrasion resistance. *Journal of Dentistry* 2010; 28: 355-359.
- 26) 岡 正信, 堀田正人, 堀田康明, 小竹宏朋, 佐 誠太郎, 山本宏治. S-PRG フィラー含有試作コンポジットレジン of 微細構造と元素分析. *日歯保存誌* 2007 ; 50 : 321-324.
- 27) Ellakwa A, Cho N, Lee IB. The effect of resin matrix composition on the polymerization shrinkage and rheological properties of experimental dental composites. *Dent Mater* 2007; 23: 1229-1235.
- 28) Kalachandra S, Sankarapandian M, Shobha HK, Taylor DF, McGrath JE. Influence of hydrogen bonding on properties of BIS-GMA analogues. *J Mater Sci Mater Med* 1997; 8: 283-286.

- 29) 吉田英史, 野本理恵, 平林 茂, 新田馨子, 平野 進. 低粘性コンポジットレジンの性質. 歯材器 2008 ; 27 : 1-8.
- 30) 川口 稔, 福島忠男, 堀部 隆, 渡邊猛士. 可視光線重合型コンポジットレジンのフィラーに関する研究 : I. 機械的性質に及ぼす各種シリカフィラーの影響. 歯材器 1989 ; 8 : 174-179.
- 31) Asmussen E, Peutzfeldt A. Influence of UEDMA BisGMA and TEGDMA on selected mechanical properties of experimental resin composites. Dent Mater 1998; 14: 51-56.
- 32) Tanimoto Y, Kitagawa T, Aida M, Nishiyama N. Experimental and computational approach for evaluating the mechanical characteristics of dental composite resins with various filler sizes. Acta Biomater 2006; 2: 633-639.
- 33) Paolone G, Formiga S, Palma FD, Abbruzzese L, Chirico L, Scolavino S. Color stability of resin-based composites: Staining procedures with liquids - A narrative review. J Esthet Restor Dent 2022; 34: 865-887.
- 34) Ertas E, Güler AU, Yücel AC, Köprül H, Güler E. Color stability of resin composites after immersion in different drinks. Dent Mater J. 2006; 25: 371-376.
- 35) Rohym S, Tawfeek HEM, Kamh R. Effect of coffee on color stability and surface roughness of newly introduced single shade resin composite materials. BMC Oral Health 2023; 23: 236.
- 36) Ardu S, Duc O, Bella ED, Krejci I, Daher R. Color stability of different

- composite resins after polishing. *Odontology* 2018; 106: 328-333.
- 37) Tian F, Yap AUJ, Wang X, Gao X. Effect of staining solutions on color of pre-reacted glass-ionomer containing composites. *Dent Mater J.* 2012; 31: 384-388.
- 38) Huang W, Ren L, Cheng Y, Xu M, Luo W, Zhan D, Sano, H. Evaluation of the Color Stability, Water Sorption, and Solubility of Current Resin Composites. *Materials* 2022; 15: 1-14.
- 39) Islam MS, Nassar M, Elsayed MA, Jameel DB, Ahmad TT, Rahman MM. In Vitro Optical and Physical Stability of Resin Composite Materials with Different Filler Characteristics. *Materials* 2023; 15: 1-10.
- 40) Akgül S, Gündoğdu C. Color Change Evaluation of Three Universal Resin Composites after Storage in Water: An In Vitro Study. *Journal of Advanced Oral Research* 2022; 13: 176-182.
- 41) El-Rashidy AA, Abdelraouf RM, Habib NA. Effect of two artificial aging protocols on color and gloss of single shade versus multi shade resin composites. *BMC Oral Health* 2022; 22: 321.
- 42) Patel SB, Gordan VV, Barrett AA, Shen C. The effect of surface finishing and storage solutions on the color stability of resin-based composites. *Journal of the American Dental Association* 2004; 135: 587-594

図 表

Table 1 Composite resins (CRs) used in this study

Code	Brand name	Viscosity	Matrix	Fillers (size)	Lot No.	Manufacturer
Single shade composite resins with color-matching ability (Single shade CRs)						
OMC	Omnichorma	Universal	UDMA, TEGDMA	Silica-zirconium filler (260 nm)	105B1	Tokuyama Dental, Tokyo, Japan
OMF	Omnichroma Flow	Flowable	UDMA, Nonamethylene Glycol Dimethacrylate		0151	
BUN	Beautiful Unishade	Universal	Bis-GMA, UDMA, Bis-MPEPP, TEGDMA	S-PRG filler based on fluoroboroaluminosilicate glass	042152	Shofu, Kyoto, Japan
CLM	Clearfil Majesty ES Flow Universal U	Flowable	TEGDMA, Hydrophobic aromatic dimethacrylate	Surface treatment silica filler	3N0005	Kuraray Noritake Dental, Tokyo, Japan
Conventional composite resins (Conventional CRs)						
EST	Estelite Σ Quick	Universal	Bis-GMA, TEGDMA	Silica-zirconium filler (100-300 nm)	J0693	Tokuyama Dental, Tokyo, Japan
ESF	Estelite Universal Flow	Flowable	Bis-GMA, Bis-MPEPP, TEGDMA, UDMA,		0771	
BFII	Beautiful II	Universal	Bis-GMA, TEGDMA	S-PRG filler based on fluoroboroaluminosilicate glass (0.01-4 μm)	032105	Shofu, Kyoto, Japan
BFF	Beautiful Flow Plus X	Flowable	Bis-GMA, Bis-MPEPP, TEGDMA,		032125	
CMP	Clearfil Majesty ES-2	Universal	Bis-GMA, Hydrophobic aromatic dimethacrylate	Surface treatment silica filler (0.18-3.5 μm)	BG0115	Kuraray Noritake Dental, Tokyo, Japan
CMF	Clearfil Majesty ES Flow	Flowable	TEGDMA, Hydrophobic aromatic dimethacrylate		C80328	

Table 2 Total, plastic, and elastic deformations of CRs

Code	Total deformation ; h_t (μm)	Plastic deformation ; h_p (μm)	h_p/h_t (%)	Elastic deformation ; h_e (μm)	h_e/h_t (%)
Single shade CRs					
OMC	4.80 ± 0.11	2.32 ± 0.11	48.2	2.49 ± 0.07	51.8
OMF	5.68 ± 0.14	2.45 ± 0.17	43.2	3.23 ± 0.05	56.8
BUN	4.46 ± 0.13	2.20 ± 0.15	49.2	2.26 ± 0.07	50.8
CLM	5.18 ± 0.12	2.10 ± 0.11	40.6	3.08 ± 0.07	59.4
Conventional CRs					
EST	4.75 ± 0.06	2.11 ± 0.09	44.5	2.64 ± 0.10	55.5
ESF	5.05 ± 0.15	2.23 ± 0.25	44.0	2.82 ± 0.12	56.0
BFII	4.21 ± 0.07	2.12 ± 0.08	50.3	2.09 ± 0.06	49.07
BFF	5.21 ± 0.08	2.21 ± 0.09	42.5	3.00 ± 0.08	57.5
CMP	5.10 ± 0.24	2.23 ± 0.26	43.6	2.87 ± 0.14	56.4
CMF	5.18 ± 0.10	2.01 ± 0.07	38.7	3.18 ± 0.06	61.3

mean \pm SD

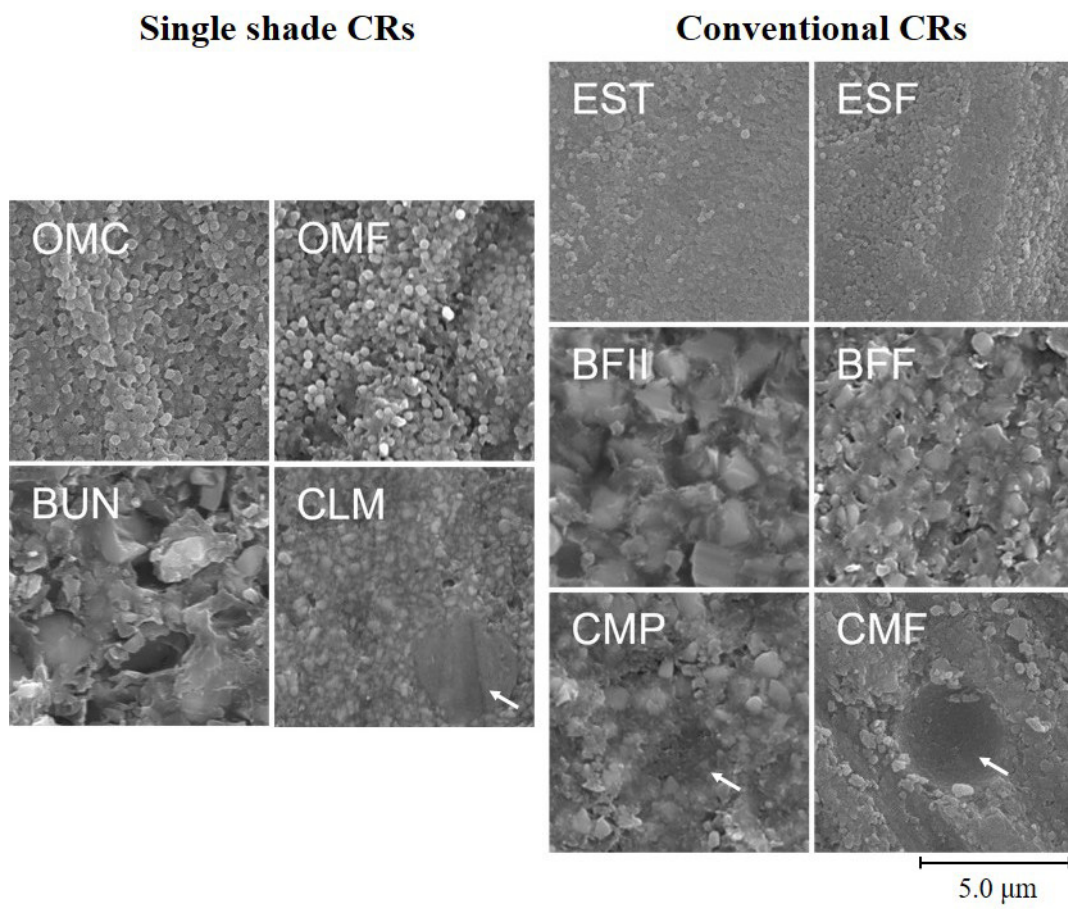


Fig. 1 SEM observations of CRs (original magnification $\times 10,000$).

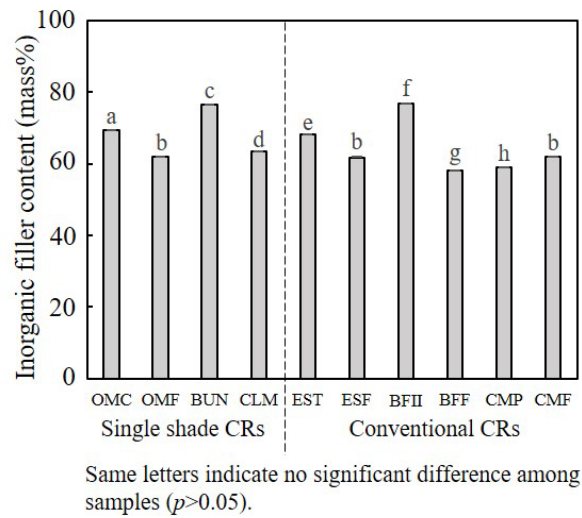


Fig. 2 Inorganic filler content of CRs.

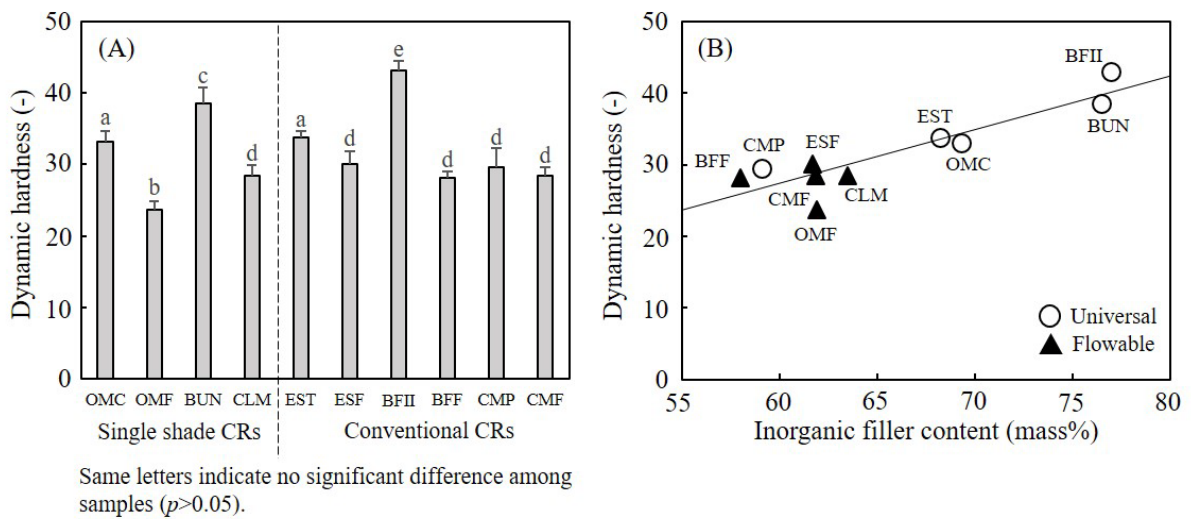


Fig. 3 Dynamic hardness of CRs. (A) Comparison of dynamic hardness. (B) Correlation between inorganic filler content and dynamic hardness ($r = 0.90$, $p < 0.01$).

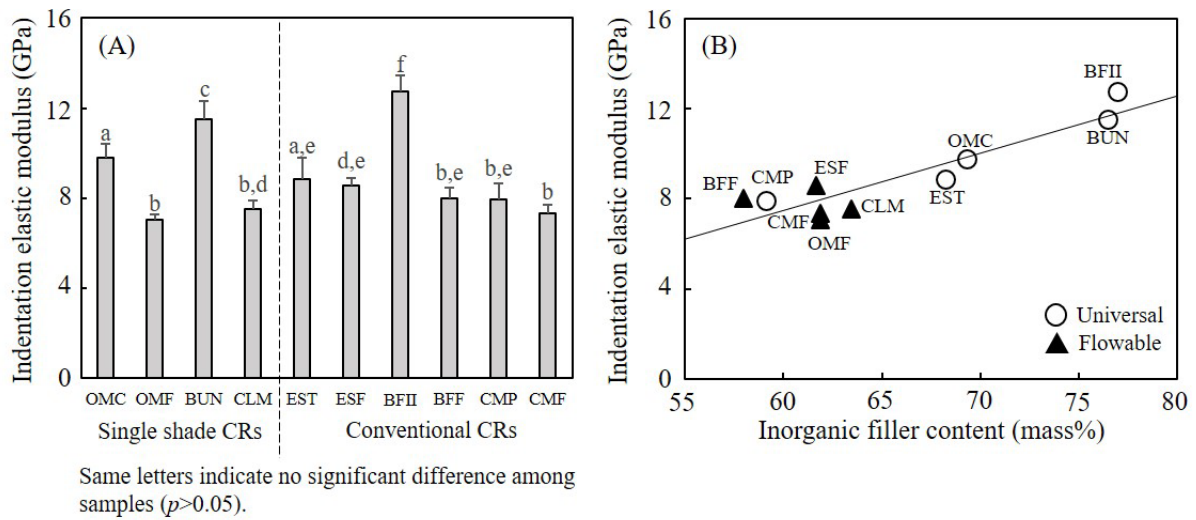


Fig. 4 Indentation elastic modulus of CRs. (A) Comparison of indentation elastic modulus. (B) Correlation between inorganic filler content and indentation elastic modulus ($r = 0.91$, $p < 0.01$).

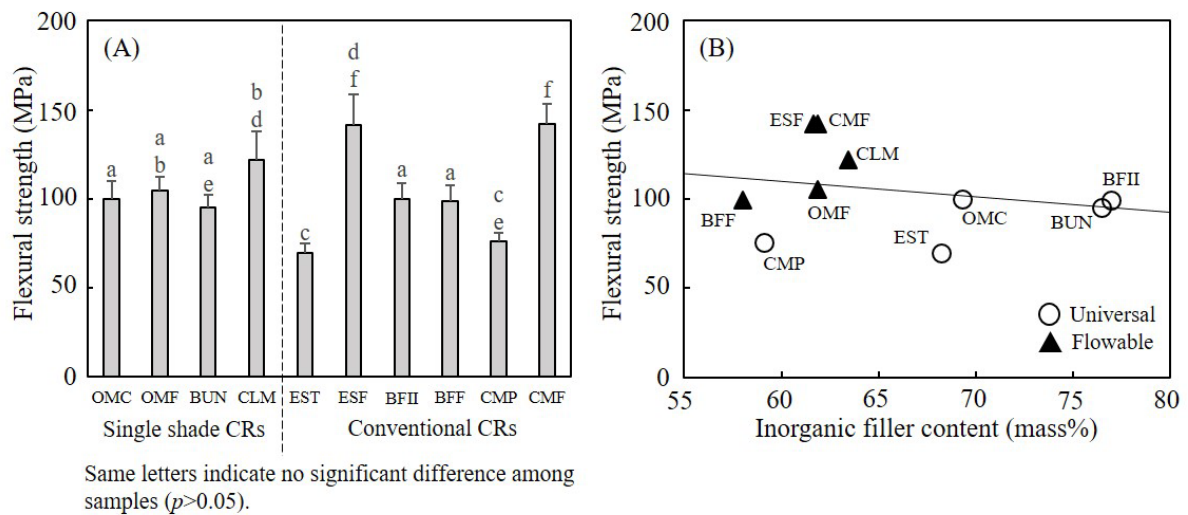


Fig. 5 Flexural strength of CRs. (A) Comparison of flexural strength. (B) Correlation between inorganic filler content and flexural strength ($r = -0.24$, $p = 0.50$).

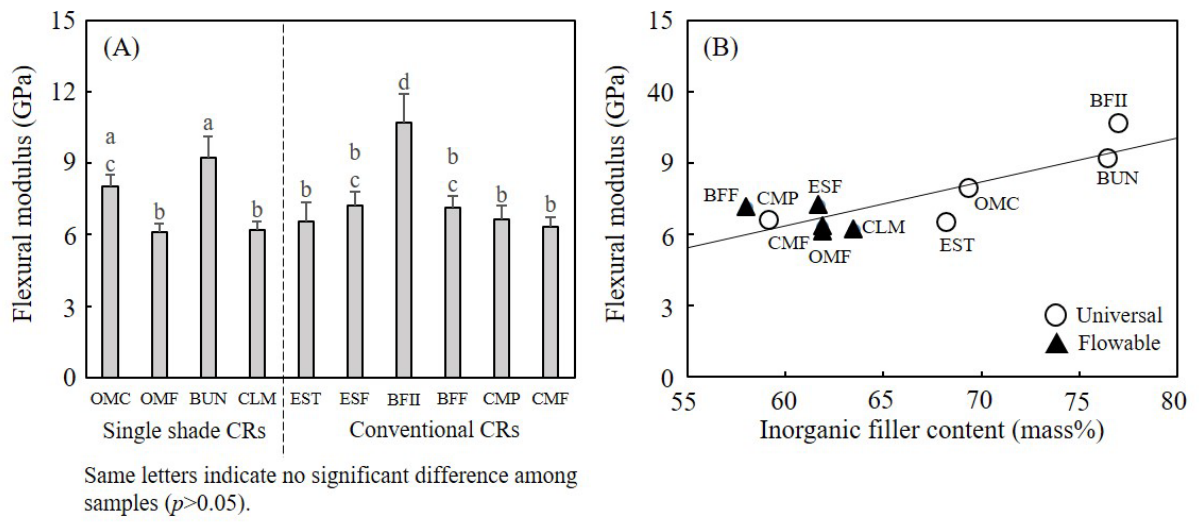


Fig. 6 Flexural modulus of CRs. (A) Comparison of flexural modulus. (B) Correlation between inorganic filler content and flexural modulus ($r = 0.83$, $p < 0.01$).

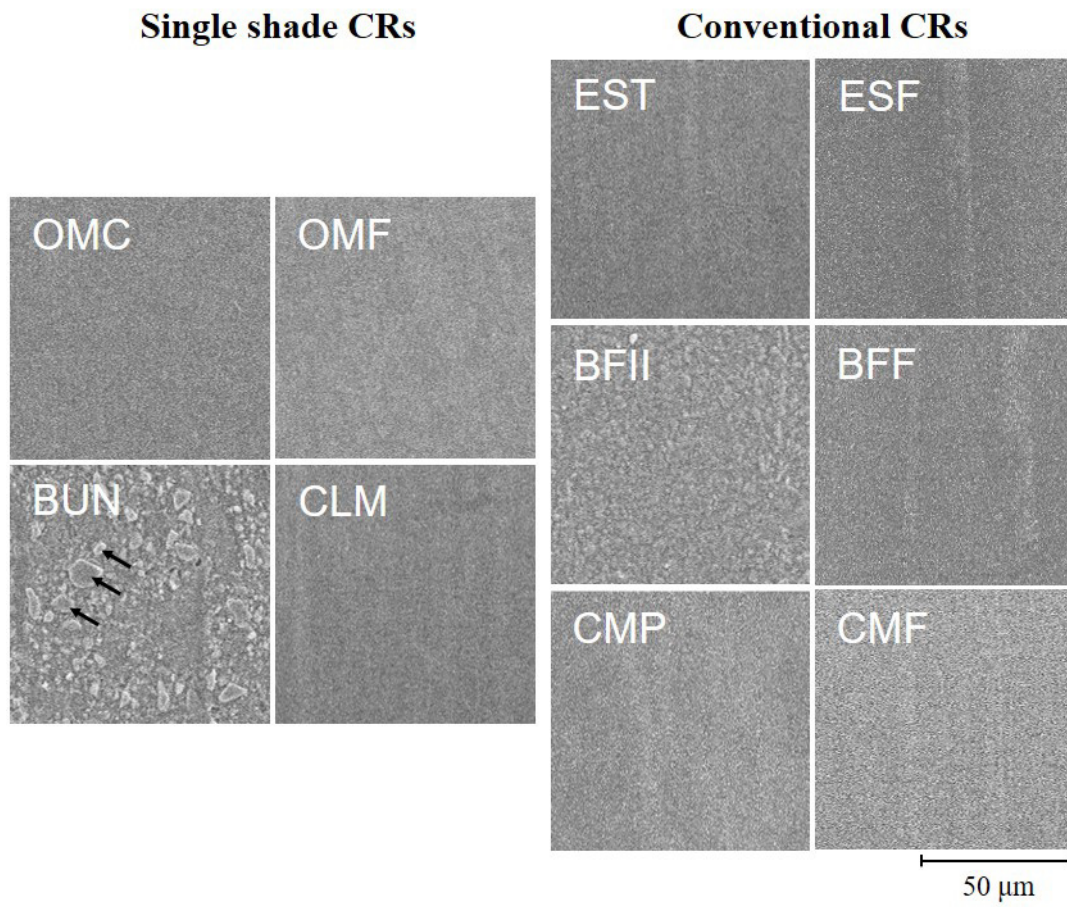
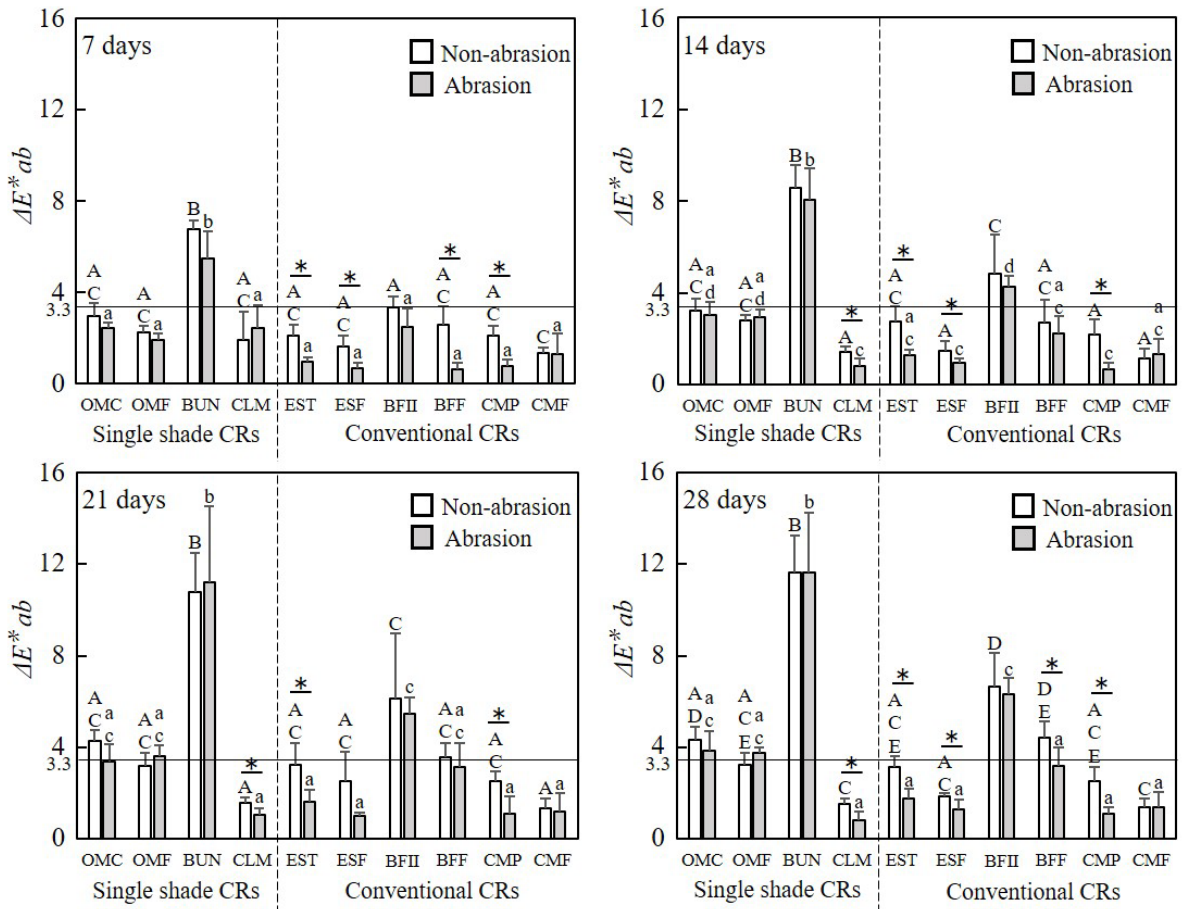


Fig. 7 SEM observations of CRs after abrasion (original magnification $\times 1,000$).



Same upper-case letters indicate no significant difference among non-abrasion samples ($p>0.05$). Same lower-case letters indicate no significant difference among abrasion samples ($p>0.05$). Asterisks indicate significant difference among non-abrasion and abrasion samples ($p<0.05$).

Fig. 8 Comparison color differences (ΔE^*_{ab}) of non-abrasion and abrasion CRs after immersion in coffee solution.

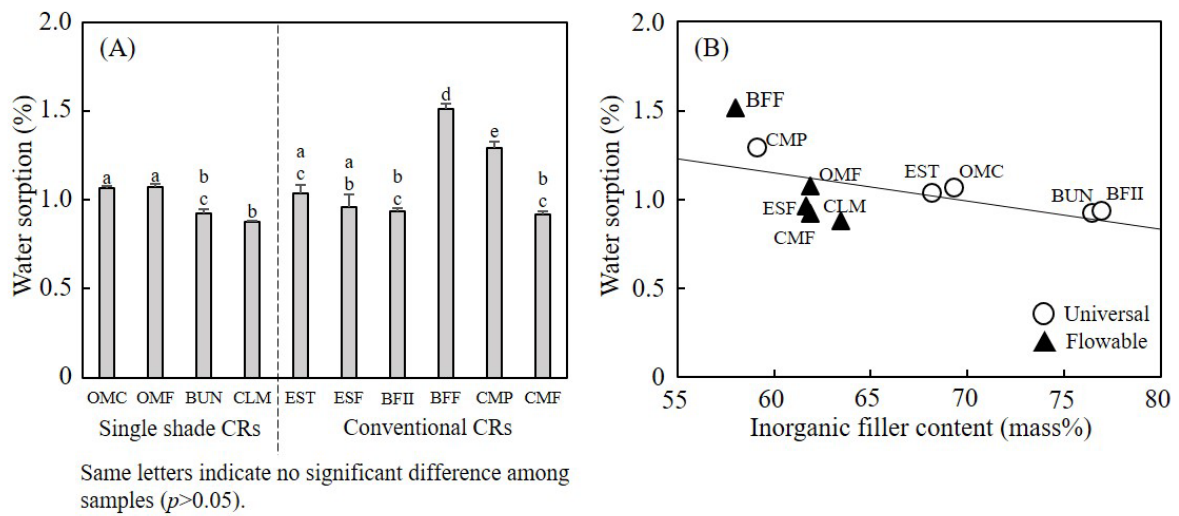


Fig. 9 Water sorption of CRs. (A) Comparison of water sorption. (B) Correlation between inorganic filler content and water sorption ($r = -0.54$, $p = 0.11$).

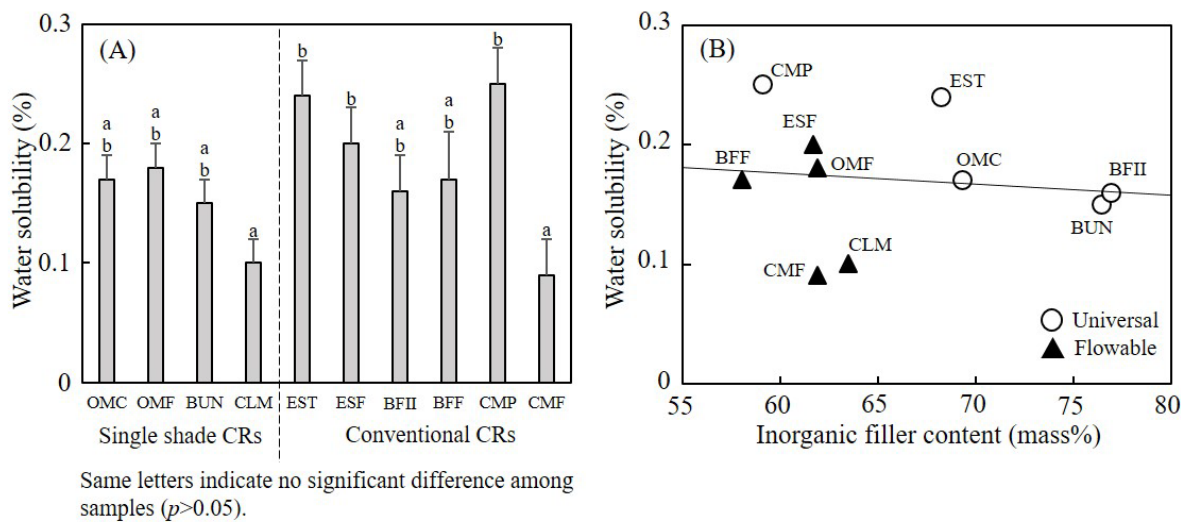


Fig. 10 Water solubility of CRs. (A) Comparison of water solubility. (B) Correlation between inorganic filler content and water solubility ($r = -0.12$, $p = 0.74$).

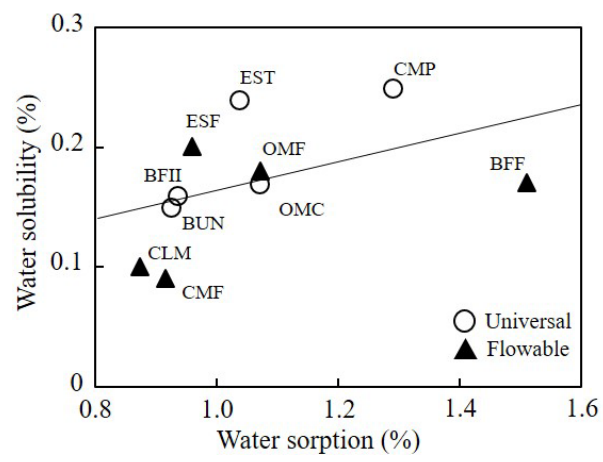


Fig. 11 Correlation between water sorption and water solubility ($r = 0.46$, $p = 0.18$).