

神奈川歯科大学大学院歯学研究科

2019年度 博士論文

光重合型試作レジンコアの物性に関する研究

2020年2月28日

和田 悠希

Yuuki Wada

神奈川歯科大学大学院歯学研究科

口腔科学講座

神奈川歯科大学大学院歯学研究科

2019年度 博士論文

光重合型試作レジンコアの物性に関する研究

2020年2月28日

和田 悠希

Yuuki Wada

神奈川歯科大学大学院歯学研究科

口腔科学講座

二瓶智太郎教授 指導

## 論文内容要旨

臨床において、支台築造にはメタルコアが多く使用されているが、金属材料の曲げ弾性率は象牙質と比較して著しく高いことから、根尖付近への応力集中により歯槽骨縁下での歯根破折が問題とされている。これに対して、支台築造用コンポジットレジンには曲げ弾性率が象牙質と近似していることから、歯根破折を予防できる可能性があり、レジン系材料の物性向上と象牙質接着システムの確立により使用頻度は今後増加するものと考えられる。支台築造後の補綴装置が良好な予後を得るために、築造体は十分な機械的強度と歯質接着性を有する必要がある。レジン系材料においては、その組成や重合方式など様々な要因が硬化後のレジンの物性に影響する。現在、市販されているレジンコアの多くは光の到達しにくい根管深部での重合を化学重合により補償するため、デュアルキュア型が採用されているが、その性状から操作性と気泡混入に注意が必要である。一方、光重合型は光の到達しにくい部分での重合不良や窩底部で生じる重合収縮などの問題点はあるが、デュアルキュア型に比べると操作性が良好で気泡の混入も少なく、その上で光到達性が良好となれば重合率は高くなるため、強度や耐久性の向上が期待できると考えられる。

本研究では光照射による確実な重合を目的として、光重合型の試作レジンコアを開発し、硬化深度、無機フィラー含有量、吸水量、機械的強度および歯質接着強さの測定を行い、市販レジンコアと比較検討した。

供したレジンコアは、試作レジンコア LND-012 (LN, ジーシー) とビューティコア LC インジェクタブル (BC, 松風), クリアフィル DC コアオートミックス ONE (DC, クラレノリタケデンタル), エステコア (EC, トクヤマデンタル) およびルクサコア Z デュアル (LC, DMG) の計 5 種とし、JIS 規格 T6514 に準じて各試験を行った。

その結果、試作レジンコアの硬化深度は高く、吸水量は低い値を示した。また、機械的強度および歯質接着強さにおいては市販レジンコアとほぼ同等の値であったが、水中浸漬およびサーマルストレス負荷による物性低下は認められなかった。

以上より、試作レジンコアはその組成成分や配合比の改善により高い硬化深度を示したことで懸念された根管深部での光重合を可能とし、光重合方式

により重合率の向上が図れた可能性が示唆された。また、確実な重合によりレジンの吸水劣化による影響も軽減できたと推察された。さらに、試作レジンコアは象牙質と近似した曲げ弾性率を示したことにより、他のレジンコアと同様に歯根破折の予防に有用な材料であることが示唆された。

## 論文審査要旨

学位申請論文である「光重合型試作レジンコアの物性に関する研究」は、失活歯におけるレジン支台築造材料の欠点を補うべく、光重合型に焦点を当て、より重合度が高く物性的にも臨床使用に適した材質の開発を行った論文である。

現在主に使用されている支台築造材料はレジンであり、特にデュアルキュア型が多く製品化され用いられている。しかし、デュアルキュア型は、その化学的特性からミキシングが必要となり、気泡混入や粘性から操作時に十分な注意が必要である。また、光が到達しづらいことより化学重合での根管内レジン重合を期待しているが不確実な重合となり物性的にも問題を生じる可能性がある。そこで、より高い重合度を得られ、操作性に優れる光重合型を開発した本研究の目的は新規性があり高く評価できる。

研究方法の概略は以下の通りである。新たに光重合型の支台築造用レジンを開発し、現在市販されている支台築造用レジン材 4 種類との比較を行った。評価項目として、硬化深度、無機フィラー含有量、吸水量、機械的強度と歯質接着強さを設定した。硬化深度は JIS T6514 により製作した試料から一定の光照射後に重合硬化部の長さを測定し求めた。無機質フィラー含有量は熱重量測定装置にて加熱処理前後での重量差から算出した。吸水試験は JIS T6514 により試料を製作しデシケータ保管による質量変化を求めた。機械的強度として 3 点曲げ試験を JIS T6514 により試料を製作し、室温大気中に 7 日間保管群、37°C 水中に 7 日間保管する群と 5°C と 55°C の水槽によるサーマルストレスを 10,000 回負荷した群の 3 群で 3 点曲げ試験を行い、最大荷重と弾性率を求め、そこから曲げ強さを算出し比較検討した。歯質接着強さはウシ前歯を用いて前処理後に各試料を規定した量と形態で築盛し重合硬化させ、37°C 水中で 24 時間保管する群と 7 日間保管する群の 2 群において微小引張接着試験を行い、引張接着強さを求めた。なお、統計処理は、正規分布であることを確認後に、硬化深度、フィラー含有量と吸水量は一元配置分散分析、曲げ強さ、曲げ弾性率と引張接着強さは二元配置分散分析を行い、有意差を認めた場合は Tukey's の多重比較検定を行い適正に解析されていた。以上により、研究テーマに対する研究方法の組み立ては理論的であり、適切な解析手法により実験が行われていた。

結果としては、重合深度は試作レジンコアにおいて有意に高く、無機質フイラー含有量は市販レジンコア材料とほぼ同程度であり、吸水量は市販レジンコア材料と同等か低い値を示した。曲げ強さと曲げ弾性率並びに歯質接着強さにおいては市販レジンコア材料と同程度であったが、特に試作レジンコアでは水中浸漬やサーマルストレス負荷による物性の低下は認められなかったことが示された。

本研究により開発された試作レジンコア材料は、高い重合深度と臨床使用時に懸念される物性劣化が抑えられたことにより、安定した支台築造を行える材料を開発下点は高く評価でき、更に現時点での研究の限界と今後の展望も適切に述べられており、今後の更なる研究が期待できる。

本審査委員会は、論文内容および関連事項に関して、口頭試問を行ったところ十分な回答が得られることを確認した。更に新たなレジンコア材料は今後の歯科治療に有益なものであるとの結論に至った。そこで、本審査委員会は申請者が博士（歯学）の学位に十分値するものと認めた。

2020年2月28日

主査：星 憲幸

副査：木本克彦

副査：井野 智

目次

緒言 1

材料および方法 4

結果 10

考察 12

結論 22

謝辞 23

文献 23

付図説明 31

Table および Figure

Table1 33

Fig.1 34

Fig.2 35

Fig.3 36

Fig.4 37

Fig.5 38

Fig.6 39

## 緒言

支台築造は、歯冠部に実質欠損を生じた歯に対して金属材料や複合材料により欠損部を補い、適正な支台歯形態を構築するための処置であり、その後装着される補綴装置の予後を左右するため、適切な材料および術式を慎重に選択する必要がある。支台築造には、主に歯科用合金の鑄造によるメタルコアと支台築造用コンポジットレジンを使用したレジンコアがある。以前はメタルコアが多く使用されていたが、曲げ弾性率が対象となる象牙質と比較して著しく大きいことから、歯根破折のリスクが高く、応力分布によって歯肉縁下の破折や歯根縦破折を引き起こすことから抜歯に至るケースが多くあった<sup>1-8)</sup>。これに対して、レジンコアは曲げ弾性率が象牙質と近似していることから、歯根部での応力集中を防ぎ、抜歯に至る重篤な歯根破折を予防できると言われている<sup>3,5)</sup>。さらに、直接法においてはアンダーカットが許容されることから、歯質削除量を最小限とし、健全歯質を可及的に保存することができる。以上より、レジンコアはメタルコアと比較して様々な利点を有しているが、唾液や滲出液が存在する口腔環境下での



歯質接着性やレジン系材料の欠点である吸水性および溶解性においては未だ不明な点が多く、臨床上において不安が残る。現在、これらの問題点はレジン系材料の物性向上や象牙質接着システムの進歩により改良されつつあり、さらに 2016 年にファイバーポストが保険収載となったことで臨床における使用頻度は増加していくものと思われる。

築造材料には十分な機械的強度と歯質接着性を有することが要求され、レジンコアにおいてはレジンの重合性が強度、吸水性および接着性に影響し、耐久性にもつながると考えられる。レジンの重合方式には化学重合型、光重合型、およびデュアルキュア型がある。光重合型では光の到達しにくい部分では重合が困難であることや、光照射された部位に向かって重合収縮応力が発生するため窩底部にギャップが形成されることが懸念される。デュアルキュア型は、光重合のみでは重合不足となる光の到達しにくい部分の重合を化学重合により補うために、化学重合と光重合を兼ね備えた重合方式である。支台築造では根管深部のような光の到達しにくい部位でもレジンが十分に重合硬化する必要があるため、現在市販されているレジンコアの多くはデュアルキュア型の

重合方式が採用されている。しかし、デュアルキュア型はオートミックス化がされているもののミキシングが必要となることから操作性が悪く、気泡の混入の可能性もある。さらに化学重合は不安定であり、光重合に比べて光到達性が低いことから、重合反応率および反応速度に影響する恐れがある。これに対して光重合型は1ペーストにより操作性が良好であり、気泡の混入が少なく、さらに化学重合と比べて光重合によるレジンの重合率は高いとの報告もあり<sup>9)</sup>、強度および耐久性の向上が期待できると考えられる。また従来、光照射器として使用してきたハロゲンランプは、照射対象までの距離によって照射エネルギーが減弱し、ボンディングレジンの重合反応や接着強さに影響していたが、近年では、LED光源が開発されたことで、より確実な根管深部への照射が可能となっていることから<sup>10)</sup>、今後、さらに光重合型レジンへの期待が高まっているところである。

本研究では光照射による確実な重合を目的とし、光重合型の試作レジンコアを開発した。光重合型であることから、光到達性が重要となるため、硬化深度を測定し、市販レジンコアと比較検討した。また、レジンの特性として無機フィラー含有量、レジンの

劣化に影響する可能性があることから吸水量を測定し，さらに機械的強度として3点曲げ強さおよび曲げ弾性率，歯質接着性として歯根象牙質に対する微小引張接着強さの測定を行った．

## 材料および方法

### 1. 材料

本研究に供した支台築造用コンポジットレジンは，試作レジンコア LND-012 (LN, ジーシー), ビューティコア LC インジェクターブル (BC, 松風), クリアフィル DC コアオートミックス ONE (DC, クラレノリタケデンタル), エステコア (EC, トクヤマデンタル), およびルクサコア Z デュアル (LC, DMG) の計 5 種とした．供したレジンコアの組成を Table 1 に示す．

### 2. 方法

#### 1) 硬化深度の測定

試料は，JIS T6514 を参考に直径 4 mm，厚さ 12 mm の金型を用意し，白い紙の上にスライドガラス，プラスチックフィルム，および金型を順に配置し，型内にレジンを填入後，上面を同様にプラスチックフィルムおよびスライドガラスで覆い，手指にて圧

接し，可視光線照射器（オプチラックス LCT, Kerr）にて上面より光照射強度平均  $600 \text{ mW/cm}^2$  で 20 秒間光照射を行い，重合硬化させた．

光照射後，試料を直ちに型から取り出し，未重合部をキムワイプで拭き取った．その後，硬化体の長さをマイクロメータ（MDE-MX, ミットヨ）にて測定し，測定長さの  $1/2$  を硬化深度とした．なお，試料数は各群 5 個とした．

## 2) 無機フィラー含有量の測定

試料は， $2 \times 2 \times 25 \text{ mm}$  のステンレス製の金型にレジンを填入し，上面にプラスチック板とガラス板を乗せ，手指にて軽く圧接した後， $1 \text{ kg}$  の荷重を 60 秒間負荷し，上面のガラス板を取り除き，可視光線照射器（オプチラックス LCT, Kerr）にて光照射強度平均  $600 \text{ mW/cm}^2$  で上方向より 1 分間光照射を行い，重合硬化させた．作製した試料はダイヤモンドディスクにて約  $3 \text{ mm}$  の長さに切断したものを，試料皿に移送し，熱重量測定装置（TG/DTA 6300, セイコーインスツルメント）にて昇温速度  $10 \text{ }^\circ\text{C/min}$  の条件で  $800 \text{ }^\circ\text{C}$  で 3 時間加熱後，室温まで冷却した．加熱処理前後の

重量差により，無機フィラー含有量を算出した．なお，試料数は各群 3 個とした．

### 3) 吸水試験

試料は，JIS T6514 を参考に内径 12 mm，厚さ 1.5 mm のゴム製の型を用意し，スライドガラスの上にプラスチックフィルムおよび型を配置し，型内にレジンを填入した後，上面を同様にしてプラスチックフィルムとスライドガラスで覆い，上面より 1 kg の荷重を 1 分間かけて圧接した．圧接後，可視光線照射器（オプティックス LCT, Kerr）にて光照射強度平均  $600 \text{ mW/cm}^2$  で上下面より各 40 秒ずつ光照射を行い，15 分経過後に試料を型から取り出した．作製した試料は耐水研磨紙 # 1000 まで研磨を行い，蒸留水にて 15 分間の超音波洗浄を行った後にデシケータ中に保管し恒量に達するまで繰り返し秤量を行った．

吸水試験は， $37 \text{ }^\circ\text{C}$  水中に 7 日間浸漬後，試料をピンセットで取り出し，キムワイプで表面の水分をふき取り，空気中で 15 秒間よく振った後，1 分後に秤量した質量を  $m_1$  とした．測定後，再び試料をデシケータ中に保管し，恒量となった質量を  $m_2$  とした．また，各試料について 2 点の直径の平均より平均直径，等間隔の 4

点の厚さの平均より平均厚さを求め、体積  $V$  を求めた。さらに、次式を用いて吸水量を算出した。なお、試料数は各群 5 個とした。

$$W_{sp} = (m_1 - m_2) / V$$

$W_{sp}$ : 吸水量 ( $\mu\text{g}/\text{mm}^3$ ),  $m_1$ : 水中浸漬後の試験片の質量 ( $\mu\text{g}$ ),  $m_2$ : 恒量とした試験片の質量 ( $\mu\text{g}$ ),  $V$ : 試験片の体積 ( $\text{mm}^3$ )

#### 4) 3 点曲げ試験

試料は、JIS T6514 を参考に  $2 \times 2 \times 25$  mm のステンレス製の金型にレジンを填入し、上面にプラスチック板とガラス板を乗せ、手指にて軽く圧接した後、1 kg の荷重を 60 秒間負荷し、上面のガラス板を取り除き、可視光線照射器 (オプチラックス LCT, Kerr) にて光照射強度平均  $600 \text{ mW}/\text{cm}^2$  で上方向より 1 分間光照射を行い、重合硬化させた。作製した試料は、室温にて 24 時間放置後に試料各面を耐水研磨紙 # 600 まで研磨し、室温大気中に 7 日間保管する群 (R 群)、 $37^\circ\text{C}$  水中に 7 日間保管する群 (W 群) および  $5^\circ\text{C}$  と  $55^\circ\text{C}$  の水槽に各 40 秒間ずつ浸漬するサーマルストレスを 10,000 回負荷する群 (T 群) に分け、測定を行った。

3 点曲げ試験は、小型万能試験機 EZ Test (EZ-S 500N, 島津製作所) にて支点間距離 20 mm, クロスヘッドスピード  $1 \text{ mm}/\text{min}$

の条件で行い，最大荷重および弾性率を求め，さらに次式を用いて曲げ強さを算出した．なお，試料数は各群 5 個とした．

$$\sigma = 3Fl / 2bh^2$$

$\sigma$  : 3 点曲げ強さ (MPa),  $F$  : 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)

#### 5) 微小引張接着試験

被着体にはウシ前歯を用い，歯冠部を自動回転切断機 (ISOMET, BUEHLER) にて切断した後，ダイヤモンドディスクにて歯根部を歯軸と平行に 2 分割した．これを歯根内面が上面になるように常温重合レジン (TRAYRESIN II, 松風) に包埋した後，被着面を耐水研磨紙 # 600 で研磨し，被着体試料とした．

前処理として，G-プレミオボンド (ジーシー) と G-プレミオボンド DCA (ジーシー) を 1:1 で混和したものを各被着面に塗布，10 秒間放置した後，強圧エアーにて 10 秒間乾燥させ，可視光線照射器 (オプチラックス LCT, Kerr) にて上面より光照射強度平均 600 mW/cm<sup>2</sup> で 20 秒間光照射を行った．前処理後，各レジンを約 2 mm の高さで築盛し，上面より 40 秒間光照射をして重合硬化させた．なお，この操作を繰り返し行うことで約 4 mm の高

さまで積層充填した。作製した試料は 37°C 水中にて 24 時間保管する群，および 7 日間保管する群に分け，各保管後，ダイヤモンドディスクにて歯軸と直行するように約 1.5 mm の厚みで切り出し，短冊状の試料を作製した。

微小引張接着試験は，各試料片をモデルリペアー II（デンツプライ三金）で専用の治具に固定し，小型万能試験機 EZ Test（EZ-S 500N，島津製作所）にてクロスヘッドスピード 1 mm/min の条件で行った。各試料片の断面積はマイクロメータ（MDE-MX，ミットヨ）にて測定し，試験時の最大荷重より引張接着強さを算出した。なお，試料数は各群 5 個とした。

## 6) 統計処理

統計処理には，統計用解析ソフト SPSS Statistics Ver.23(IBM)を使用した。得られた結果から，Kolmogorov-Smirnov の正規性検定にて正規分布に従うことを確認した後に，硬化深度，フィラー含有量，および吸水量は一元配置分散分析，曲げ強さ，曲げ弾性率および引張接着強さは製品と保管期間の 2 条件より二元配置分散分析を行い，さらに有意差が認められた場合には Tukey's の多重比較検定（ $\alpha = 0.05$ ）を行った。



## 結果

### 1. 硬化深度

硬化深度の結果を Fig. 1 に示した。LN の硬化深度は 3.8 mm であり、市販レジンコアの硬化深度は BC が 2.8 mm, DC が 2.0 mm, EC が 2.2 mm, LC が 2.6 mm で、材料間において LN がすべての市販レジンコアと比較して有意に高い値を示した ( $p < 0.05$ )。

### 2. 無機フィラー含有量

無機フィラー含有量の結果を Fig. 2 に示した。LN のフィラー含有量は 67.8 % であり、市販レジンコアのフィラー含有量は BC が 66.5 % , DC が 69.1 % , EC が 73.9 % , LC が 67.1 % であり、材料間において LN は DC および EC と比較して有意に低い値を示したが ( $p < 0.05$ ) , BC および LC と同等の値を示した。

### 3. 吸水量

吸水量の結果を Fig. 3 に示した。LN の吸水量は  $7.7 \mu\text{g}/\text{mm}^3$  であり、市販レジンコアの吸水量は BC が  $9.8 \mu\text{g}/\text{mm}^3$  , DC が  $9.3 \mu\text{g}/\text{mm}^3$  , EC が  $6.1 \mu\text{g}/\text{mm}^3$  , LC が  $9.9 \mu\text{g}/\text{mm}^3$  で、材料間において LN は EC と比較すると有意に高い値を示したが ( $p$

$< 0.05$ ), BC, DC および LC と比較して有意に低い値を示した ( $p < 0.05$ ).

#### 4. 曲げ強さおよび曲げ弾性率

3点曲げ試験の結果として曲げ強さを Fig. 4, 曲げ弾性率を Fig. 5 に示した. LN の曲げ強さは R 群で 126.8 MPa, W 群で 121.0 MPa, T 群で 100.7 MPa を示し, 材料間において LN は EC と比較すると有意に低い値を示したが ( $p < 0.05$ ), その他の市販レジソコアと同等の値を示した. さらに市販レジソコアではすべてにおいて R 群および W 群と比較して T 群で曲げ強さの有意な低下が認められたのに対し ( $p < 0.05$ ), LN は保管条件間に有意な差は認められなかった ( $p > 0.05$ ). また, LN の弾性率は R 群で 8.0 GPa, W 群で 8.1 GPa, T 群で 7.5 GPa を示し, 材料間において LN は曲げ強さと同様 EC と比較すると有意に低い値を示したが ( $p < 0.05$ ), その他の市販レジソコアと同等の値を示した. さらに LN も含めて BC, DC, および EC において保管条件間に有意な差は認められなかった ( $p > 0.05$ ).

#### 5. 微小引張接着強さ

微小引張接着試験の結果を Fig. 6 に示した。LN の引張接着強さは 24 時間保管で 13.8 MPa, 7 日保管で 12.7 MPa を示し, 材料間において LN は市販レジンコアと比較して同等の値を示した。また, LN も含めて BC, DC, および EC において水中浸漬期間の延長による引張接着強さの有意な低下は認められなかった ( $p > 0.05$ )。

## 考察

レジン系材料は物性向上および歯質接着システムの確立により, 現在臨床において応用範囲が拡大している。支台築造においても, 以前は金属材料によるメタルコアが主流であったが, 支台築造用コンポジットレジンが開発されたことで, レジンコアの使用頻度は増加傾向にある。築造後の歯冠補綴装置が良好な予後を得るために, 築造材料が具備すべき条件は象牙質と近似した機械的強度と歯質に対する強固な接着性を有することである。現在多くの市販レジンコアは光の到達しにくい根管深部での重合を化学重合により補うためにデュアルキュア型の重合方式が採用されている。しかし, 化学重合は不安定で光重合と比較して重合率

が低く，さらには操作性や気泡の混入の点で問題がある．したがって，本研究では光重合型の試作レジンコアを開発し，硬化深度，無機フィラー含有量，吸水量，3点曲げ強さ，曲げ弾性率および歯根象牙質に対する引張接着強さを測定することで物性評価を行い，市販レジンコアと比較検討した．

支台築造においては，根管深部でのレジンの確実な重合が求められる．光重合型である LN はデュアルキュア型と異なり，光が到達しにくい部位での化学重合が期待できないことから，確実な重合を得るためには十分な硬化深度を有する必要がある．今回の結果より，LN の硬化深度は他のレジンコアと比較して有意に高い値を示した．また，硬化深度は測定長さの 1/2 としているため，実際に硬化した試料の寸法は約 8 mm であったことから，照射源から離れた部位でも光重合反応の進行は十分可能であり，さらに本研究で作製した試料の厚さは約 2～4 mm であるため，試料全体に光は十分に到達したと考えられる．また，光重合型コンポジットレジン<sup>9,11)</sup>は化学重合型コンポジットレジンより重合率が高いことが報告されていることから，光重合型である LN および BC の重合率はデュアルキュア型の DC，EC および LC と比較して高

いと推察される。したがって、LNは高い重合率により耐久性が向上したことで、水中浸漬およびサーマルストレス負荷後の物性低下を認められなかったと考えられる。また、平均的な歯根の長さは約10～12 mmであり、歯内療法の観点からは根尖から約3～5 mmの根管充填剤による封鎖が必要であり、一般的に根管形成は歯根の長さの約1/2～2/3とされているため、約5～9 mmの深さでの確実な重合が必要となることから、LNは十分な硬化深度を有していると思われる。レジンの硬化深度にはマトリックスレジンの種類、フィラー含有量、光重合触媒、フィラーとマトリックスレジンの屈折率の差、レジンの色調が関与する<sup>12)</sup>。フィラー含有量が高く、フィラーとマトリックスレジンの屈折率の差が大きいとレジンの透明度が低下するため、硬化深度は低くなる。特にTEGDMAの割合の増加により屈折率の差は大きくなるとの報告がある<sup>13,14)</sup>。各レジンコアで硬化深度に差が生じたのは、マトリックスレジンの種類および組成の違い、フィラー含有量、着色剤の有無が影響したと考えられた。さらに、フィラーとマトリックスレジンの屈折率の差が大きいと硬化深度が低くなるだけでなく、硬化体内部の重合が不均一となることから、レジンの溶出が

生じやすくなる。レジンの溶出は物性低下につながるため、水中浸漬およびサーマルストレス負荷後の強度および接着性にも影響を生じたと推察された。

機械的強度において、築造体は咬合圧などの外力によって破壊しない十分な靱性を持ち、さらに応力集中による歯根破折を予防するための適度な弾性を持つ必要がある。口腔内で機能する際には上部に歯冠補綴装置が装着されるため、機械的強度は対象となる象牙質と同等であればよいと考えられている<sup>15,16)</sup>。試作レジンコアを含めて供したレジンコアの曲げ強さは約 100~170 MPaを示したことから、象牙質の曲げ強さの値 100~270 MPa<sup>1,5,17)</sup>に及ばずとも十分な強度を有していた。一方、試作レジンコアを含めて供したレジンコアの曲げ弾性率は約 6~11 GPaを示し、銀合金の値 110~150 GPa<sup>5)</sup>と比較して顕著に小さく、象牙質の値 10~20 GPa<sup>1,5,6,16,17)</sup>と近似した値を示した。レジンの物性にはマトリックスレジンの種類、フィラーの粒径、形状、含有量および表面処理法、さらに組成や重合性など様々な因子が影響すると報告されている<sup>12, 18-20)</sup>。マトリックスレジンには、主なものとして Bis-GMA, TEGDMA および UDMA が挙げられ、その構造により特性

が異なる。Bis-GMA は架橋間距離が短いため、曲げ強さは大きく、UDMA は架橋間距離が長いため、曲げ強さは小さい<sup>21,22)</sup>。また、Bis-GMA は粘性の高いモノマーであり、根管内に填入するレジンコアにおいてはその操作性に影響する。そこで TEGDMA が Bis-GMA の希釈材として使用される。しかし、TEGDMA は増加により架橋密度が向上することで圧縮強さは大きくなるが、過剰であると分子屈曲性の低下により曲げ強さは小さくなると報告されている<sup>22)</sup>。さらに、UDMA は Bis-GMA と TEGDMA の混和物よりも高い物性を有するとの報告もある<sup>23)</sup>。また、レジンの強度はフィラー含有量の増加により向上し、曲げ強さにおいてはフィラー含有量以外にフィラーの粒径および形状といったフィラーの種類も影響し<sup>18,24-27)</sup>、曲げ弾性率においては特にフィラー含有量の影響が大きいとされている<sup>26)</sup>。したがって、EC が LN と比較して高い曲げ強さおよび曲げ弾性率を示したのは、その高いフィラー含有量によるものと考えられた。

保管条件において、曲げ強さは BC, DC, EC および LC でサーマルストレス負荷後に低下したが、LN では変化が認められなかった。一方、曲げ弾性率は LC のみ水中浸漬およびサーマルスト

レス負荷後に低下したが，LNも含めてBC，DCおよびECでは変化が認められなかった．レジンは吸水により劣化し，物性が低下することが広く知られているため，吸水量はできるだけ少ない方がよいと考えられる．今回の結果より，LNの吸水量はECと比較すると高い値を示したが，その他のレジンコアと比較して有意に低い値を示した．レジンの吸水劣化の主な原因はシランカップリング剤の加水分解によるものとされている<sup>28-32)</sup>．シランカップリング剤の加水分解によりマトリックスレジンとフィラー界面の結合が剥離し，フィラーが脱落することによりレジンの劣化が生じる．さらに，サーマルストレスによる熱刺激は加水分解を促進する．特に曲げ強さは熱の影響を受けやすく，曲げ弾性率は受けにくいとされているため<sup>27)</sup>，供したレジンコアの多くにおいてサーマルストレス負荷後の曲げ弾性率に変化はなく，曲げ強さのみが低下したと推察された．また，レジンの吸水性にはマトリックスレジンおよびフィラーの種類，組成および含有量などが関与する．Bis-GMAおよびTEGDMAは親水性モノマーのため吸水性が高く，加水分解されやすい．さらにBis-GMAは分子内のエステル結合が弱いいため，熱水により分解されやすく，親水性基として



水酸基を持つため、水との親和性が高く吸水量は高くなると報告されている<sup>29)</sup>。また、Bis-GMAの希釈材であるTEGDMAは中心骨格にエーテル結合を持つことで吸水性の高いモノマーとして知られているため、TEGDMAを多く含むと吸水量は高くなる。これに対してUDMAおよびBis-MPEPPは疎水性モノマーであり、特にBis-MPEPPは吸水性が低いとされている<sup>23,26)</sup>。一方で、UDMAは疎水性モノマーではあるが、親水性基としてイソシアネート基を持つため水との親和性が高く、二重結合間距離が長いいため分子骨格内への水分の取り込みにより、初期の吸水量は低いが経時的に吸水量が増加するとの報告もある<sup>22)</sup>。したがって、LNは疎水性モノマーであるUDMA含有により、Bis-GMA含有の他のレジンコアと比較して低い吸水量を示したと考えられ、さらにBC、DCおよびECはBis-GMA含有により、加水分解および熱の影響を受けやすいことで、サーマルストレス負荷後の曲げ強さが低下したと推察された。また、フィラー含有量の増加により吸水性を示すマトリックスレジンは相対的に減少するため、吸水量は低くなる。したがって、ECが最も低い吸水量を示したのは疎水性モノマーであるBis-MPEPPの配合と高いフィラー含有量による

ものと考えられた。また，バリウムおよびストロンチウムガラスは石英系と比較して水に対する感受性が高く，加水分解の影響を受けやすいとの報告があることから<sup>27)</sup>，LCはバリウムガラス含有により，高い吸水量を示し，水中浸漬およびサーマルストレス負荷後の曲げ強さおよび曲げ弾性率がともに低下したと推察された。

築造体は歯質と一体化することで良好な予後が得られることから，対象となる象牙質との接着性が重要となる。構成成分のほとんどが無機質のハイドロキシアパタイトからなるエナメル質とは異なり，象牙質は水分と有機質のコラーゲンを含有することから，接着が困難とされてきた<sup>33,34)</sup>。疎水性のレジンは象牙質に対してそのままでは接着しないため，ボンディング材による前処理が必要となる。ボンディング材には接着性モノマー，水，有機溶媒が含まれることで親水性を示し，接着性モノマーが接着阻害因子となるスミヤー層を除去し，象牙質表層を脱灰，そこにレジン成分が浸透硬化することで接着性を獲得する。各レジンコアにはそれぞれ指定の接着システムが存在し，各々のボンディング材に含まれるモノマーおよび有機溶媒など成分は異なり，さらにそ

の接着メカニズムも異なる。ボンディング材の性能およびボンディング材とレジンコアの相性は接着性に大きく影響するため、一般的には指定の接着システムの使用が推奨されている。本研究では試作レジンコア LN の接着性に関して検証を行うことを目的としたため、接着システムは統一して実験を行った。今回の結果より、すべてのレジンコアで同等の引張接着強さを示した。ボンディング材が同一であることから、引張接着強さには供したボンディング材とレジンコアの相性およびモノマーの浸透拡散能が影響したと考えられる。しかし、前述のように各レジンコアには指定の接着システムがあるため、推奨された接着システムの利用により、市販レジンコアにおいては今回の結果よりも高い値を示すことが予想される。一般的に光重合においては光照射部位に近い表層から重合が開始し、最も離れた深層が最も遅く重合し、硬化が遅れた部分に重合収縮の影響が大きく表れるため、窩底部から引きはがされる方向に重合収縮応力が働き、ギャップを生じる。したがって、LN においては硬化深度が高くなったことで重合収縮は大きくなることによる接着強さへの影響も懸念される。したがって、LN の接着システムに関しては重合収縮による影響も考

慮し、タッチキュアのような接着システムを最大限に活用できるように<sup>11)</sup>、さらなる検討が必要であると思われる。

以上より、試作レジンコア LN は高い硬化深度を示したことで光の到達しにくい根管深部での光重合が十分可能であることが示唆された。さらに、光重合方式をとることで重合率の向上を図れる可能性があり、また気泡混入の可能性を最小限に抑えたことでレジンの吸水劣化による影響を軽減できたと推察される。また、試作レジンコア LN も含めて供したレジンコアの曲げ弾性率が象牙質と近似していたことより、他のレジンコアと同様に歯根破折の予防に有用な材料であることが示唆された。しかしながら、本研究における水中保管ならびにサーマルストレス負荷の期間は7日から10日間と短期間であることから、保管期間延長により物性が低下する可能性は十分に考えられる。また、口腔内には水分の存在や温度変化の他にも様々なリスク因子が存在し、その厳しい環境下で支台築造後の補綴装置はなるべく長期間機能を維持することが望まれるため、材料の劣化および歯質との接着性に関してはさらなる検討が必要である。

## 結論

試作レジンコアの硬化深度，無機フィラー含有量，吸水量，機械的強度および歯質接着強さを測定し，市販レジンコアと比較検討した結果，以下の結論が得られた．

1. LN の硬化深度は市販レジンコアと比較して最も高い値を示した．
2. LN のフィラー含有量は多くの市販レジンコアと同等の値を示した．
3. LN の吸水量は EC より高い値を示したが，BC，DC および LC より低い値を示した．
4. LN は市販レジンコアと同等の機械的強度を有していた．さらに，水分および熱による曲げ強さおよび曲げ弾性率の低下は認められなかった．
5. LN の象牙質に対する接着強さは水中浸漬期間の延長による低下は認められなかった．

本論文に関して申告すべき利益相反はない．

## 謝辞

本研究を進めるにあたり，終始丁寧かつ熱心なご指導をいただきました神奈川歯科大学大学院歯学研究科口腔科学講座 二瓶智太郎教授，ならびに大橋桂准教授に深く感謝申し上げます。また，本論文を作成するにあたり，様々なご助言をいただくとともに本論文の細部に渡りご指導をいただきました神奈川歯科大学大学院歯学研究科口腔統合医療学講座 木本克彦教授，ならびに星憲幸准教授，高度先進口腔医学講座 井野智教授に深く感謝の意を表します。

最後に本研究のご支援をいただきました神奈川歯科大学大学院歯学研究科口腔科学講座教室員各位に心より感謝致します。

## 文献

1. 渥美克幸：【ファイバーポスト A to Z】接着支台築造の勘所．接着歯学．35(1)：25-30，2017．
2. 坪田有史：ファイバーコアの位置づけ 支台築造とファイバーポストコアの現状．日補綴会誌．9(2)：94-100，2017．

3. 坪田有史 : ファイバーポストレジンコアの臨床 ファイバーポストレジンコアの現状と展望. DENTAL DIAMOND. 42(16) : 70-77, 2017.
4. Chiba Ayaka, Hatayama Takashi, Kainose Kimisuke, Nakajima Masatoshi, Pashley David H., Wakabayashi Noriyuki, Tagami Junji : The influence of elastic moduli of core materials on shear stress distributions at the adhesive interface in resin built-up teeth. *Dent Mater J.* 36(1) : 95-102, 2017.
5. 高場雅之, 田中晋平, 上村江美, 馬場一美 : ファイバーポストを用いた支台築造. 日歯内療誌. 37(1) : 11-19, 2016.
6. 渥美克幸 : Basic for Advance ファイバー併用レジン支台築造の勘所(第2回) ファイバーアレンジメント. Quintessence. 35(10) : 2394-2399, 2016.
7. 小林賢一 : ファイバーポストを考える. 歯界展望. 106(2) : 365-383, 2005.
8. 福島俊士, 西村 康, 坪田有史, 橋本 興, 深川菜穂 : 【レジン支台築造のスタンダードを求めて その臨床応用基準と鑑別診

- 断】 レジン支台築造の位置づけ. 補綴臨床. 37(6) : 603-616, 2004.
9. 坪田有史, 福島俊士 : レジン支台築造をマスターする 直接法によるレジン支台築造. 歯界展望. 99(6) : 1281-1286, 2002.
10. 野津繁生, 松田有之, 岩田有弘, 吉川一志, 山本一世 : 照射エネルギーが接着強さに与える影響. 日歯保存誌. 58(6) : 446-455, 2015.
11. Kadowaki Yoshitaka, Kakuda Shinichi, Kawano Shimpei, Katsumata Aiichiro, Ting Shihchun, Hoshika Shuhei, Ikeda Takatsumi, Tanaka Toru, Carvalho Ricardo Marinsde, Sano Hidehiko : Bond performance of "Touch and Cure" adhesives on resin core systems. *Dent Mater J.* 35(3) : 386-391, 2016.
12. 辻本暁正, 鈴木崇之, 佐藤愛子, 寺井里沙, 高橋史典, 川本諒, 坪田圭司, 高見澤俊樹, 宮崎真至 : バルクフィルコンポジットレジンの機械的諸性質. 日歯保存誌. 57(2) : 162-169, 2014.



13. Lee YK : Influence of filler on the difference between the transmitted and reflected colors of experimental resin composites. *Dent Mater J.* 24(9) : 1243-1247, 2008.
14. Shortall AC, Palin WM, Burtscher P : Refractive index mismatch and monomer reactivity influence composite curing depth. *J Dent Res.* 87(1) : 84-88, 2008.
15. 天川由美子 : 確かなレジン支台築造のために押さえておきたいポイント 支台築造の基本. 日本歯科評論. 77(2) : 141-146, 2017.
16. 木本克彦, 星 憲幸 : 【予知性の高い支台築造がしたい!今選  
びたいファイバーポスト+レジンコア関連材料 46+】 .  
*Quintessence Dent Technol.* 38(4) : 0480-0502, 2013.
17. 渥美克幸 : 【緊急企画 Q&A で学ぶファイバーポストと接着  
支台築造 これだけは知っておきたいポイント 10】 .  
*Quintessence.* 35(1) : 45-55, 2016.
18. 色川敦士, 高見澤俊樹, 坪田圭司, 森健太郎, 山本 明, 古市  
哲也, 横川未穂, 高橋史典, 黒川弘康, 宮崎真至 : 低重合収縮

- 光重合型コンポジットレジンの体積重合収縮率および材料学的特性. 日歯保存誌. 55(4) : 265-271, 2012.
19. 神農泰生, 岸本麻実, 穴吹優佳, 神谷絵里子, 大前正範, 西谷佳浩, 吉山昌宏 : 白歯直接修復用コンポジットレジンの物性に関する検討. 日歯保存誌. 51(6) : 622-629, 2008.
20. 岩崎直彦, 高橋英和, 青柳裕仁, 金景月, 砺波健一, 西村文夫 : 6Bis-GMA系レジンをを用いたコンポジットレジンにおける被削性に及ぼすフィラー形状及びフィラー含有量の影響. 歯材器. 22(3) : 194-200, 2003.
21. 齊藤仁弘, 金子和幸, 堀江康夫, 小泉寛恭, 大谷一紀, 五十嵐孝義, 塩田陽二, 吉橋和江, 廣瀬英晴, 西山實 : 歯冠用硬質レジンに関する研究 高フィラー型硬質レジンの曲げ強さ, 硬さ, 吸水量及び溶解量. 歯材器. 20(2) : 124-130, 2001.
22. 村上あつ子, 牧志寿子, 杉山久, 他 : 各種マトリックスレジンがコンポジットレジンの物性に与える影響について. 歯学. 79(3) : 605-626, 1991.

23. 高橋好文，鶴田昌三，河合達志，他：インレー用コンポジットレジンの諸性質について．愛院大歯誌．30(4)：777-792, 1992.
24. 岸本崇史，富士谷盛興，井上和穂，堀江卓，友田篤臣，千田彰：各種インジェクタブルおよびペーストタイプのコンポジットレジンの二軸曲げ強さ．日外傷歯会誌．13(1)：73-80, 2017.
25. 坪田圭司，角野奈津，山路歩，高見澤俊樹，大藤竜樹，黒川弘康，升谷滋行，宮崎真至，Latta Mark A.：白歯部用コンポジットレジンの wear および曲げ特性 (Evaluation of Wear and Flexural Characteristics of Resin Composites for Posterior Lesions)．日歯保存誌．56(3)：169-177, 2013.
26. 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．27(1)：1-8, 2008.
27. 平林茂，野本理恵，原島郁郎，他：熱サイクルによる各種光重合コンポジットレジンの耐久性評価．歯材器．9(1)：53-64, 1990.
28. 平野進：わが国のコンポジットレジンの研究．日歯理工会誌．29(4)：356-369, 2010.

29. 原島 厚, 中 貴弘, 本多宗暁, 山崎淳史, 森山明勲, 倉持健一, 高橋洋子, 山賀谷一郎, 日比野靖, 中 嶋 裕 : 熱水浸漬による支台築造用コンポジットレジンの物性変化. 歯材器. 23(3) : 211-219, 2004.
30. 張 志勇, 楊 髓茹, 師 偉策, 吉田貴光, 寺島伸佳, 矢ヶ崎裕, 永澤 栄, 伊藤充雄 : コンポジットレジンの曲げ強さにおけるサーマルサイクルの影響. 松本歯学. 29(1) : 32-43, 2003.
31. 宮崎 隆 : もう一度学ぶ歯科理工学 わかって楽しい歯科理工学 生体材料としての歯科材料 デンタルインプラントと歯科技工のかかわりを理解する(後). 歯科技工. 27(9) : 1120-1129, 1999.
32. Arikawa H et al. : Deterioration of mechanical properties of composite resins. *Dent Mater J.* 14(1) : 78-83, 1995.
33. 吉田靖弘, 中山陽一, 吉原久美子, 英 將生, 峯 篤史, 井上哲, 鈴木一臣, Van Meerbeek Bart : 歯質接着における化学分析の応用. 接着歯学. 28(1) : 1-13, 2010.

34. 佐野英彦, 野田 守, 小城賢一, 藤田恵理, 井上 哲 : 次世代の接着 樹脂含浸層の劣化と化学接着. *Quintessence*. 23(2) : 55-61, 2004.

## 付図説明

### Fig.1 Curing depth of resin core materials

LN の硬化深度は BC, DC, EC および LC と比較して有意に高い値を示した ( $p < 0.05$ ).

### Fig.2 Filler content of resin core materials

LN のフィラー含有量は DC および EC と比較して有意に低い値を示し ( $p < 0.05$ ), BC および LC と同等の値を示した.

### Fig.3 Water absorption of resin core materials

LN の吸水量は EC と比較して有意に高い値を示し ( $p < 0.05$ ), BC, DC および LC と比較して有意に低い値を示した ( $p < 0.05$ ).

### Fig.4 Three point bending strength of resin core materials

LN の曲げ強さは EC と比較して有意に低い値を示し ( $p < 0.05$ ), BC, DC および LC と同等の値を示した. また, LN のみ保管条件間に有意な差は認められなかった ( $p > 0.05$ ).

### Fig.5 Three point flexural modulus of resin core materials

LN の弾性率は EC と比較して有意に低い値を示し ( $p < 0.05$ ), BC, DC および LC と同等の値を示した. また, LN も含めて BC,

DC および EC で保管条件間に有意な差は認められなかった ( $p > 0.05$ ).

Fig.6 Micro-tensile bond strength of resin core materials to root canal dentin

LN の引張接着強さは BC, DC, EC および LC と同等の値を示した。また, LN も含めて BC, DC および EC で保管条件間に有意な差は認められなかった ( $p > 0.05$ ).

Table 1

製品名	製造業者	コード	組成	製造番号
LND-012	ジーシー	LN	ウレタンジメタクリレート, ジメタクリレート, フルオロアルミノシリケートガラス, シリカ微粉末, 光重合開始剤, 化学重合開始剤, 安定剤	1806301G
ビューティコアLC インジェクタブル	松風	BC	ガラス粉, Bis-GMA, TEGDMA, 反応開始材, 着色材, その他	041610
クリアフィルDCコア オートミックスONE	クラレ ノリタケ デンタル	DC	Aペースト：モノマー（Bis-GMA, その他のメタクリル酸系モノマー）フィラー（表面処理ガラス粉, 表面処理シリカ系マイクロフィラー, シリカ系マイクロフィラー）, 光重合触媒, 化学重合触媒, 着色剤, その他 Bペースト：モノマー（TEGDMA, その他のメタクリル酸系モノマー）フィラー（表面処理ガラス粉, 表面処理シリカ系マイクロフィラー, アルミナ系マイクロフィラー）, 化学重合促進剤, その他	9G0171
エステコア ハンドタイプ	トクヤマ デンタル	EC	Aペースト：シリカジルコニアフィラー, Bis-GMA, TEGDMA, Bis-MPEPP, その他 Bペースト：シリカジルコニアフィラー, Bis-GMA, TEGDMA, Bis-MPEPP, 過酸化物, カンファークイノン, ラジカル増幅剤, その他	HU003
ルクサコア Zデュアル	DMG	LC	バリウムガラス, ジメタクリレート類, 酸化ジルコニウム, 重合開始剤, 色素, その他	736702



Fig.1 Curing depth of resin core materials

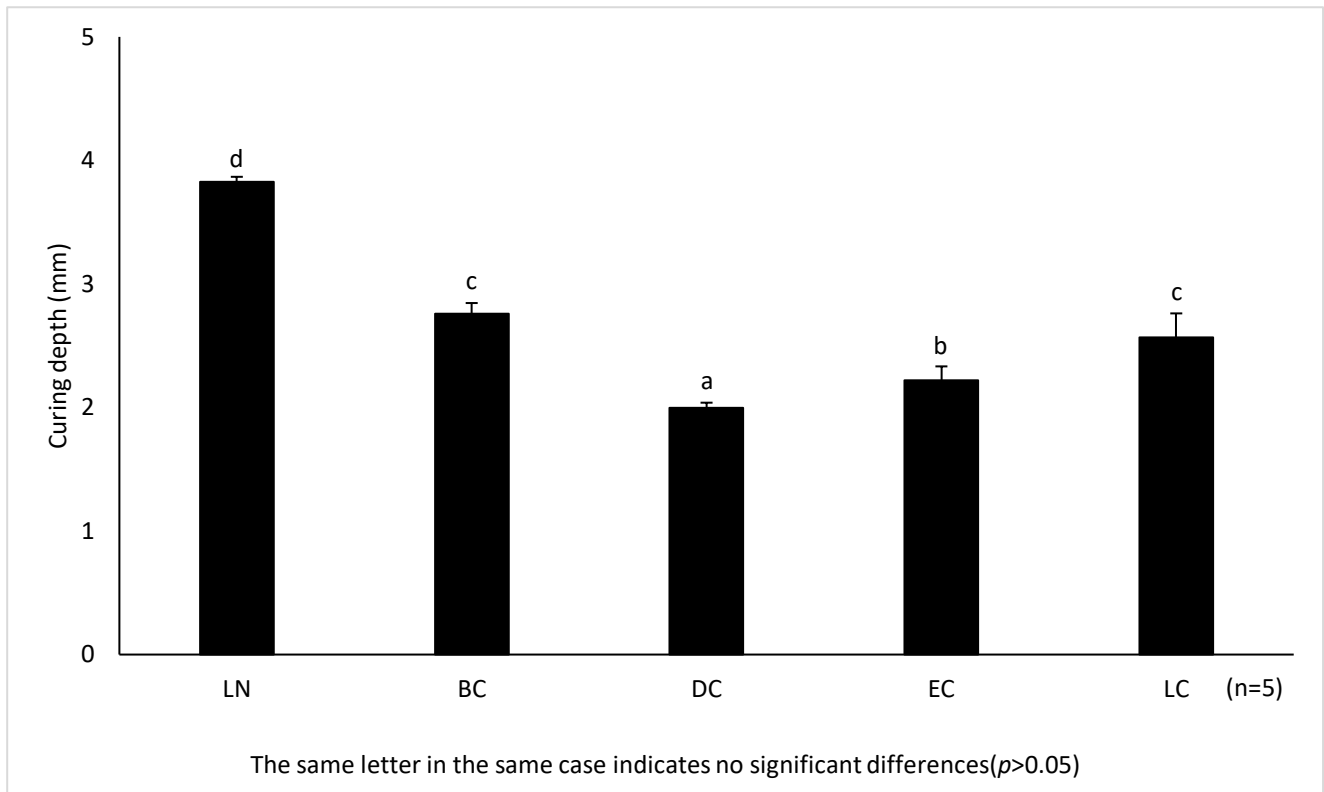


Fig.2 Filler content of resin core materials

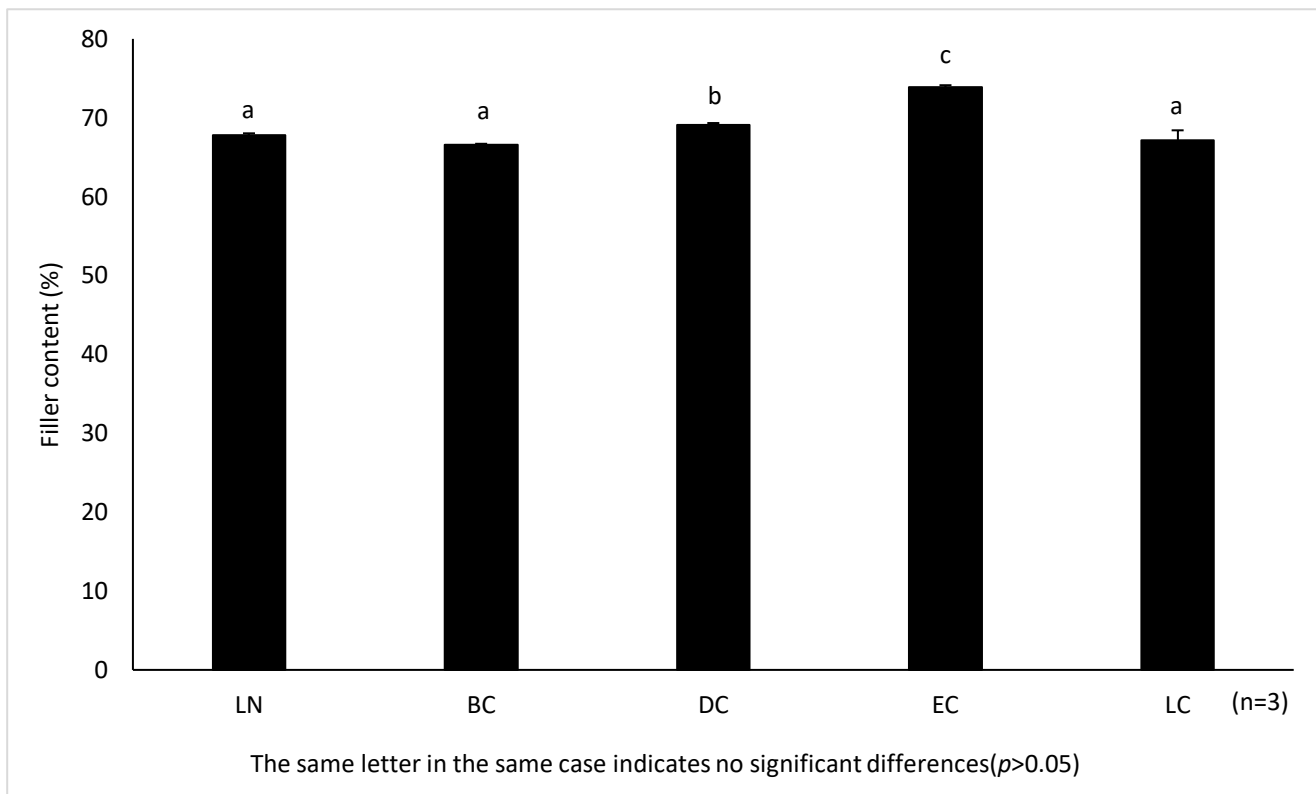


Fig.3 Water absorption of resin core materials

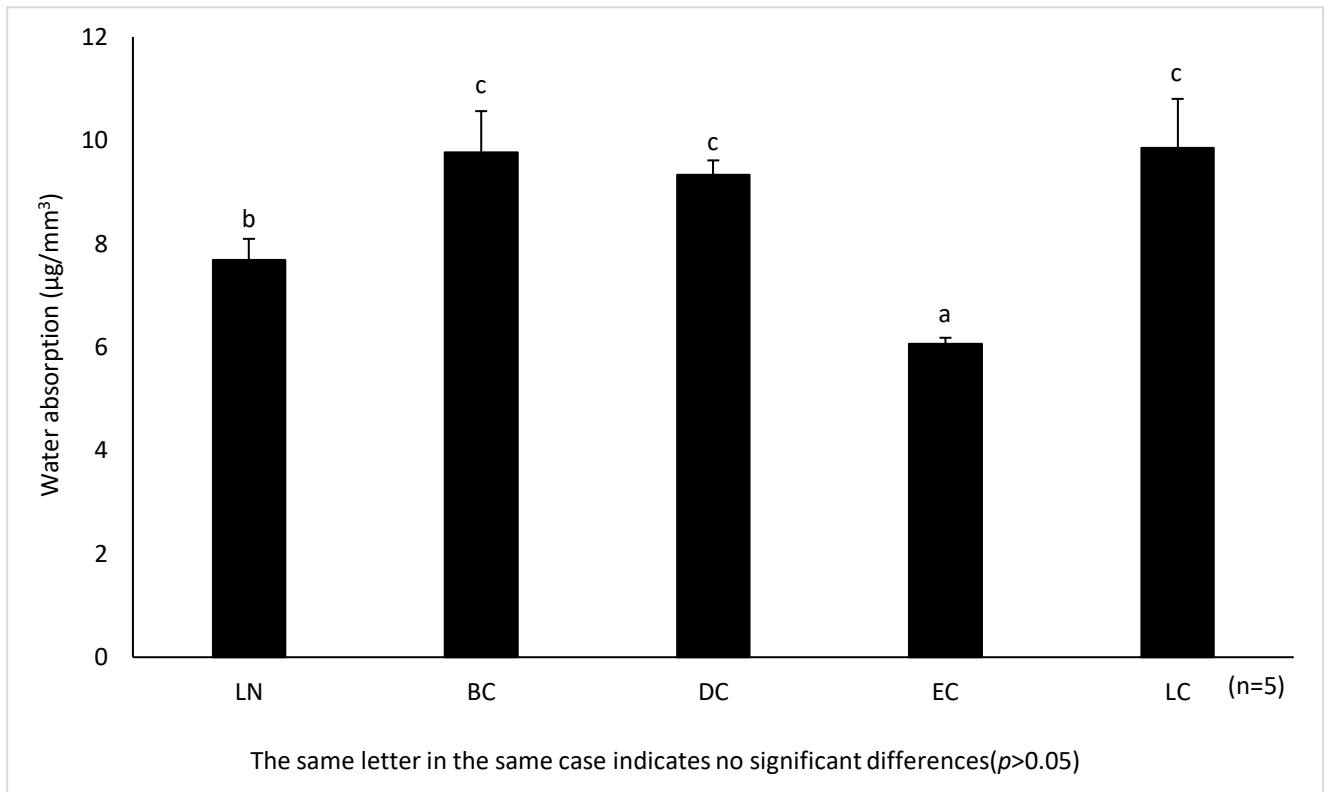


Fig.4 Three point bending strength of resin core materials

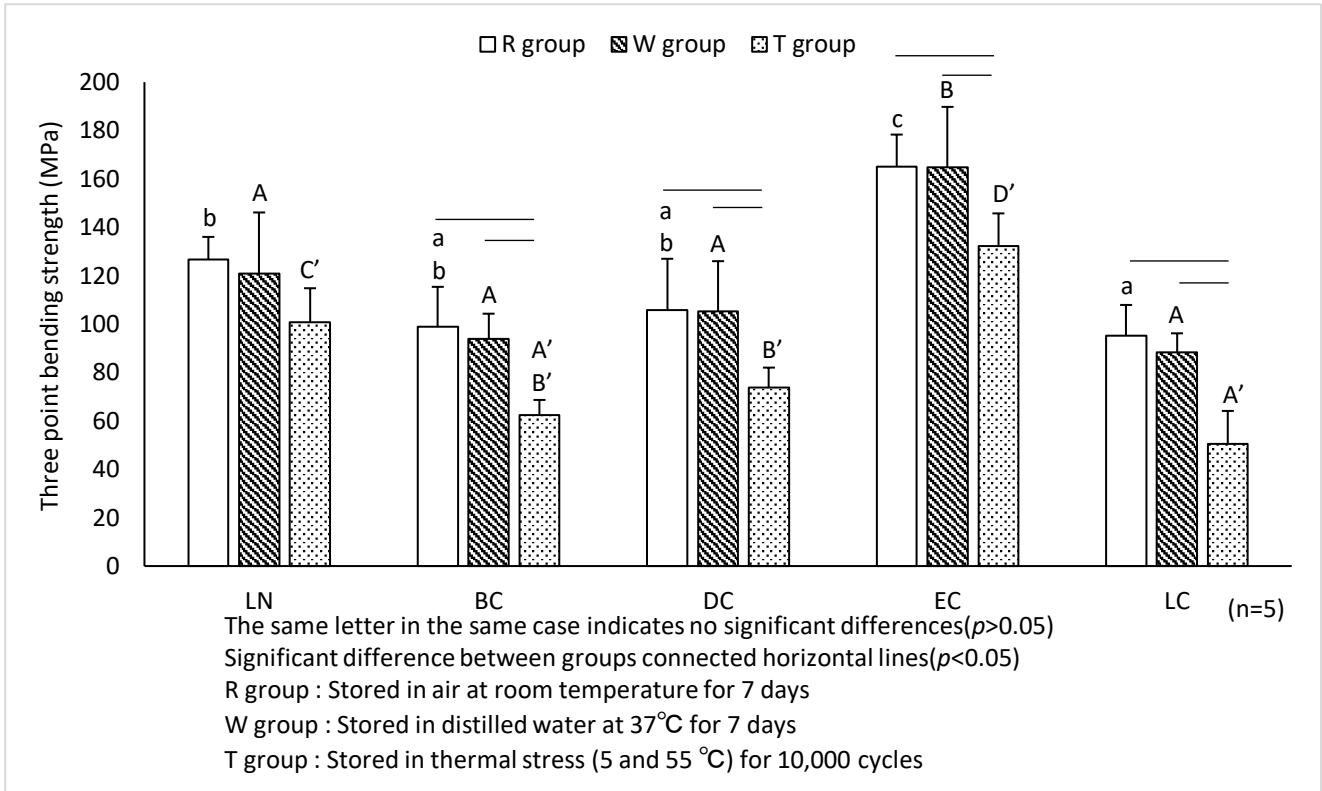


Fig.5 Three point flexural modulus of resin core materials

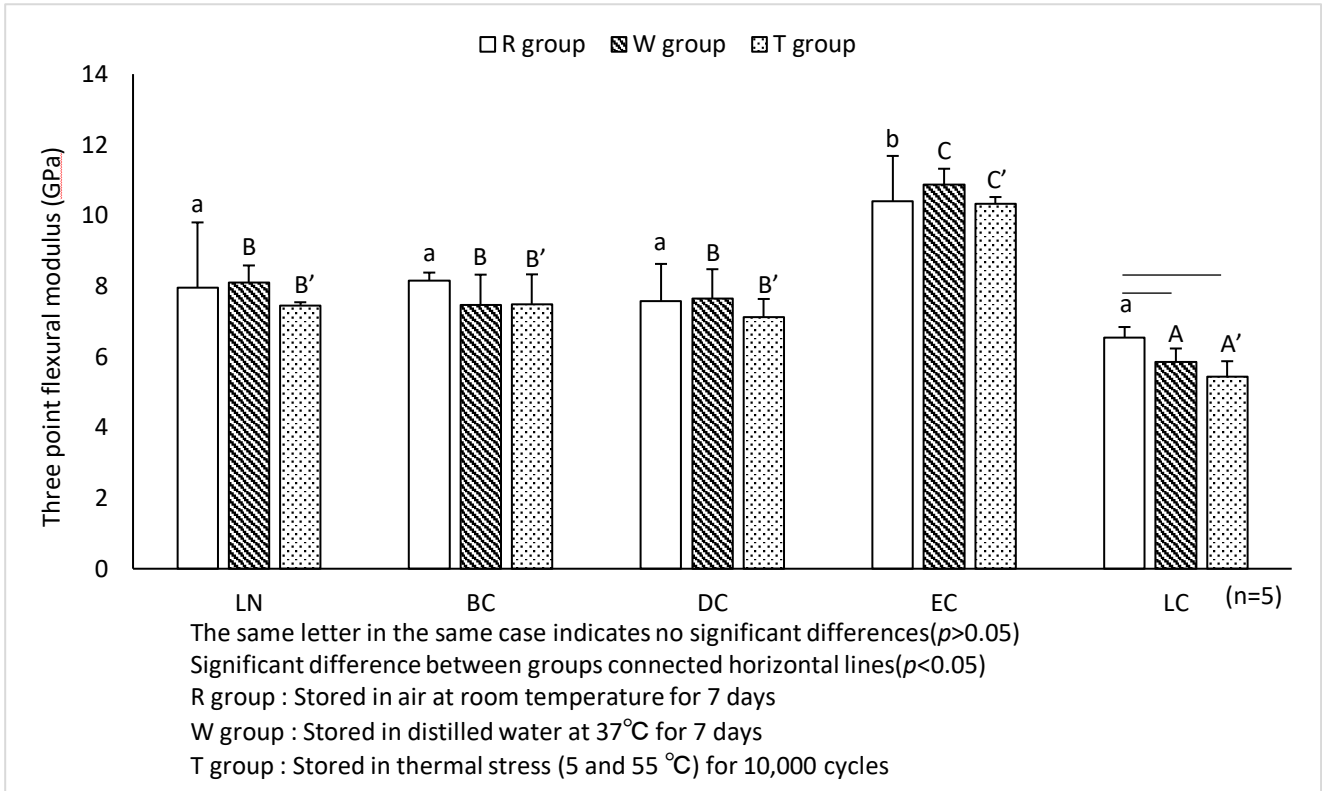


Fig.6 Micro-tensile bond strength of resin core materials to root canal dentin

