

学位論文の全文に代えてその内容を要約したもの

愛知学院大学

甲 第 号	論文提出者 前迫 真由美
論文題目  構造発色技術が導入された新型コンポジットレジンの 構造特性と表面性状および再研磨面の評価	

## I. 緒言

コンポジットレジンは、Bis-GMA などのベースレジんにガラスフィラーを配合した歯科用合成樹脂であり、成形修復などの様々な用途に用いられる。初期のコンポジットレジンの含有フィラーは、粒径が大きく、その充填率も低かった。しかし、近年のコンポジットレジンは、フィラー粒径の微小化や高密度充填・均一分散化、有機複合フィラーの配合、およびベースレジンとの緊密接合技術の導入などの改良により、その物性や研磨性などの諸性質は著しく向上している。

また、コンポジットレジンは歯冠色を有することも特徴であり、様々な歯の色調に適合させるために色素が含有されている。レジンの色調は、基本組成のベースレジンやフィラーならびに添加された色素に、可視光線が吸収あるいは反射され発色することにより認識される。最近、基本組成は従来型と同じでありながら色素を全く含まず、単一ペーストで様々な歯の色調に合う、構造発色技術が導入された新型のコンポジットレジが開発された。構造発色とは、色素による発色とは異なり、物質自体は色素を含有することなく可視光線の波長以下の微細な構造に基づく光の反射で発色する現象である。

新型レジンは色素を含まず、赤～黄色の構造色を発する  $\phi 260$  nm の球状フィラーが均一分散されている。さらに、本構造発色だけでなくレジン表面における反射光、ならびにフィラーやベースレジンおよび背景となる歯質からの拡散反射光によるブレンド効果も発揮されることで種々の歯の色調に適合している。しかし、このレジんに近似した粒径フィラーを含有するが発色は主として色素による従来型コンポジットレジもある。したがって、色素を含まず高い色調適合性を発揮するには、その基本組成であるフィラーやベースレジン、および両者をカップリングするシラン処理技術等の向上や改良がなされていると想像されるが詳細な報告はない。

そこで、研究1では、構造発色技術により種々の歯の色調に適合する要因を解明する目的で、その要因の一つとして考えられるレジンの構造に着目した。構造発色可能な  $\phi 200$  nm の球状の無機フィラーや有機複合フィラーに加え色素も配合された同一製造業者の従来型レジンを比較対照として、両レジンの構造に関与する各種フィラーの粒径や形状、分布の様相ならびに密度、あるいはフィラーとベースレジンの接合状態等についてアルカリ劣化試験を用いて比較検討した。また、これらの構造が両者のレジンの表面粗さ、光沢度、変色の程度、およびぬれ性等の表面性状に及ぼす影響についても併せて検討を加えた。

ところで、口腔内で修復されたコンポジットレジンの経年劣化のなかで多く見られるのは変色である。種々の変色の原因のなかでも特にフィラーとベースレジンの接合状態が大きな影響を及ぼすと言われている。すなわち、両者のシロキサン結合の加水分解に伴うフィラーの剥離・脱落による色素の吸着や侵入により変色が引き起こされる。また、臨床においてコンポジットレジ修復の約半数例に変色が発生したとの報告もあり、変色した部分の改善には再研磨や再修復が必要となる。このように、コンポジットレジが審美的修復材料である以上、再研磨は不可欠な処置であるが、これまで再研磨後のコンポジットレジンの表面性状についての詳細な報告は見受けられない。さらに、構造発色性を有する新型コンポジットレジについては皆無である。

そこで、研究2では、新型レジンの経年劣化後に再研磨を施した表面性状が経年劣化前のそれと同等であるという仮説を立て、レジンの経年劣化と劣化面の再研磨を再現した *in vitro* のモデルを新規に調製し、新型レジンの再研磨面の変色の程度、表面粗さ、光沢度およびぬれ性について、劣化前のそれらと比較し、フィラーとベースレジンの接合性との関連について検討した。

## II. 材料および方法

### 研究 1

新型コンポジットレジン (OMNICHROMA、以下 OC)、および対照として同一製造業者の従来型コンポジットレジン (Estelite  $\Sigma$  Quick、以下 EQ) を用いた。完全重合した鏡面研磨試料をそれぞれ調製し、走査電子顕微鏡 (以下、SEM) にて表面の微小形態を観察した。次いで、当該面の表面粗さ (線粗さ、面粗さ)、光沢度、変色の程度、ぬれ性を測定し、それぞれのレジンにおけるこれらの表面性状の相関について、Pearson の積率相関係数検定 ( $\alpha=0.05$ ) により解析した。測定後の試料は、0.1 N NaOH 水溶液 (60 °C、pH 12.7) に 1 日間浸漬し、浸蝕された表層の微小形態 (表面および側視断面) を SEM にて観察した。

### 研究 2

研究 1 と同様の方法で新たに OC の鏡面研磨試料を調製し、表面の SEM 観察ならびに変色の程度、線粗さ、光沢度およびぬれ性の各種表面性状を測定した (n=15)。これらの試料は 0.1 N NaOH 水溶液 (60 °C、pH 12.7) に 1 日間浸漬して加速劣化させ劣化面の微小形態観察後、再度各種表面性状を測定した。次いで、試料を長軸方向に切断して断面の微小形態を SEM 観察し、劣化の様相を確認した。SEM による側視断面観察を繰り返しながら、アルカリ劣化した表層部 (以下、劣化層) を注意深く除去した後、最終的に酸化アルミナ粉末 (0.3  $\mu\text{m}$ ) と研磨バフを用いて鏡面研磨を施したものを再研磨試料とし、再び当該面の微小形態観察と表面性状の測定を行った。その後、鏡面研磨試料、アルカリ浸漬試料および再研磨試料の各種表面性状を比較検討するために、一元配置分散分析と Bonferroni's test を用いて統計学的検定を施した ( $\alpha=0.001$ )。

## III. 結果および考察

供試レジンの基本組成について、フィラーの種類や形状、分布等がアルカリ劣化により明確になった。OC では、略球形状で EQ に比べ粒径分布が小さい有機複合フィラーが多数分散しており、それを取り巻くベースレジン内および有機複合フィラー内に  $\phi 260$  nm の球状無機フィラーがほぼ同程度の密度で均一分散していた。アルカリ環境下でも、カップリングが難しい有機複合フィラーとベースレジンは緊密な接合を保っており、有機複合フィラーの表層に若干の無機フィラーの脱落を認めたが、中心部は周囲のベースレジンと同様軽微な変化が生じたのみであった。EQ では、不定形状で OC より粒径分布が広い有機複合フィラーと  $\phi 200$  nm の球状無機フィラーおよびベースレジンが境界明瞭に観察された。アルカリ環境下では、OC とは異なり有機複合フィラーとベースレジン間に間隙を認め、また、有機複合フィラーは内部まで一様に劣化して無機フィラーが脱落し、その程度は周囲のベースレジン内より顕著であった。なお、いずれのレジンにおいても、それらの構造が表面粗さ、光沢度、変色の程度、およびぬれ性等の表面性状に及ぼす影響は認められなかった。

新型レジンである OC は、無機フィラーとベースレジン、および有機複合フィラー内の無機フィラーとベースレジンのみならず、有機複合フィラーとベースレジンの接合状態がアルカリ環境下においても緊密に保たれていた。この格段に向上した緊密接合による光のブレイク効果に加え、各種フィラーの形状、粒径、密度や分布等の微細構造特性による構造発色が、OC が色素を含有しない単一シェードで良好な色調適合性を発揮できる要因と推察された。

このような緊密な接合と構造発色性を有する OC において、新たに考案した再研磨試料調製法により、アルカリ劣化面を再研磨しその表面性状を検討した。鏡面研磨面に比べ耐変色性やぬれ

性は同等で、表面粗さや光沢度は劣ることが判明し、本調製法の有用性が確認された。

レジンの変色は、フィラーとベースレジンの接合部における間隙や粗造な表面に色素が捕捉され光沢度も低下することが要因と従来されてきた。しかし、本研究により表面粗さや光沢度が変色に関与しない可能性も判明し、臨床では再研磨により視覚的にOCの変色を除去しても、表面粗さや光沢度は術直後の状態には回復しないことが示唆された。

今後は、レジンの変色の要因において、OCに認められた本結果が当該レジンに特有なものかについて初期のハイブリッド型レジンを用いて検証する必要がある。また、レジンの色素吸着性に関与する因子として、鏡面研磨面のぬれ性に加え表面自由エネルギーについても検討を加え、これらについて総合的に検討する必要性が示された。

#### IV. まとめ

構造発色技術が導入された新型コンポジットレジンとは、基本組成は従来型と同じでありながら、赤～黄色の構造色を発する $\phi$ 260 nmの球状無機フィラーがベースレジン内および有機複合フィラー内にほぼ同程度の高密度で均一分散されており、特にカップリングが困難といわれる有機複合フィラーとベースレジンの接合状態は格段に向上していた。このような微細構造特性が構造発色を効果的に発揮する要因と推察されたが、表面性状の向上は認められなかった。

さらに、この新型レジンが経年劣化により変色し再研磨を施した場合を想定して、新たに考案した再研磨試料調製法により、アルカリ劣化面を再研磨しその表面性状を検討したところ、鏡面研磨面に比べ耐変色性およびぬれ性は同等であるが、表面粗さや光沢度は劣ることが判明した。これらの結果より、新規考案の再研磨試料調製法の有用性ととも、レジンの変色の主要因と従来されてきた表面粗さや光沢度が、本レジンの変色には関与しない可能性を明らかにした。このような新型レジンに特徴的な表面性状については、今後初期のハイブリッド型レジンを用いてさらに比較検討する必要性も示された。