

篠原 綾乃 論文内容の要旨

主　論　文

Effects of tributylborane-activated adhesive and two silane agents on bonding
computer-aided design and manufacturing (CAD/CAM) resin composite

(コンピュータ支援設計製造 (CAD/CAM) 用コンポジットレジンの接着における
トリブチルボラン活性型接着剤と 2 種類のシラン処理剤の効果)

(篠原 綾乃 平 曜輔 澤瀬 隆)

(Odontology 掲載予定 時期未定)

[21ページ]

長崎大学大学院医歯薬学総合研究科医療科学専攻
(主任指導教員 : 澤瀬 隆 教授)

緒　　言

過去四半世紀の間に、コンピュータ支援設計製造 (CAD/CAM) システムを用いた歯冠修復が普及してきている。CAD/CAM 用材料の中でも、コンポジットレジンは機械的性質、摩耗、色調といった点で優れている。しかし、単一色の CAD/CAM 用コンポジットレジンのみでは天然歯の色調を完全には再現できない。さらに歯冠修復物の形態修正や破折部の補修を行うためにも、CAD/CAM 用コンポジットレジンに対する強力な接着が必要である。

これまでに、シリカコーティング、酸処理、シラン処理など、いくつかの表面処理や接着剤が検討されてきたが、重合開始剤に着目した研究はほとんどなく、コンポジットレジンの接着に対するトリブチルボラン (TBB) の役割を調べた報告もなかった。

そこで本研究では、メタクリル酸メチル (MMA) と TBB を含有する接着剤 (MT) を試作し、CAD/CAM 用コンポジットレジンと光重合型レジン間の接着強さに対する試作接着剤とシラン処理剤の効果を評価することを目的とした。

対象と方法

被着体として、合計 96 個の CAD/CAM 用コンポジットレジンブロック (Gradia Block) 製試験片を耐水研磨紙 600 番で研削、水洗、40wt%リン酸を塗布、水洗、乾燥し、マスキングテープで被着面を直径 2 mm に規定した。試作接着剤を 2 種類のシラン処理

剤 (Scotchbond Universal Adhesive (SC), GC Ceramic Primer II (GC)) と組み合させて塗布し、接着剤を用いないコントロール(Cont)を含めて 6 通りのグループ(SC, GC, Cont, MT/SC, MT/GC, MT/Cont) を作製した。被着体の上に置いたアクリル枠に光重合型レジン (Gradia Direct) を充填し、光照射した。

接着完了から 30 分間経過した後、試験片を 37°C 水中に 24 時間浸漬した (熱サイクル 0 回)。さらに各グループの半数の試験片には 4°C と 60°C 各の水中熱サイクルを 10,000 回付与した。万能試験機を用いてせん断接着強さを求め、試料数 8 個の平均値と標準偏差を計算し、有意水準 5% で等分散性検定 (Levene test), 二元配置分散分析、多重比較検定 (Tukey-Kramer HSD test) を行った。

また、Gradia Block を粉碎して KBr 錠剤法用試料とし、フーリエ変換赤外分光光度計 (FTIR) を使用して、700–2000 cm^{-1} の範囲で吸収スペクトルを測定した。

結果

接着強さは熱サイクルと接着剤の両方に影響を受けることが、分散分析の結果示された。せん断接着強さの平均値は、熱サイクル 0 回群で Cont (16.0 MPa), MT/Cont (27.5 MPa), SC (42.6 MPa), MT/SC (36.4 MPa), GC (27.2 MPa), MT/GC (40.5 MPa) であり、SC, MT/SC, MT/GC が最も高く、Cont が最も低い値であった。

一方、熱サイクル 10,000 回群では、Cont (12.9 MPa), MT/Cont (25.7 MPa), SC (27.9 MPa), MT/SC (38.7 MPa), GC (12.3 MPa), MT/GC (30.4 MPa) であり、MT/SC が最も高く、Cont と GC が最も低い値であった。

FTIR による定性分析の結果、吸収スペクトルのピークは 1050 cm^{-1} , 1637 cm^{-1} , 1731 cm^{-1} で認められ、それぞれエステル結合の C-O 伸縮、メタクリロイル基の C=C 伸縮、エステル結合の C=O 伸縮に該当した。

考察

本研究では、接着耐久性を比較するため、過去の文献を元に 10,000 回の水中熱サイクル試験を採用した。

シランは分子中に 2 種類の官能基を有しており、被着体中の SiO_2 とシロキサン結合を生じるとともに、他のメタクリレートと共に重合する。さらに、酸はこのシロキサン結合を促進させる。しかしながら、シランとリン酸系モノマーを含有している GC を用いた場合の接着強さは低かった。これは無機成分よりもむしろ有機成分の方が被着体表面に多く露出していたことを示唆しているのかもしれない。

一方、SC の接着強さが Cont, GC と比較して高かったのは、SC がシランとリン酸系モノマーの他に光重合開始剤を含有していることが一因と考えられ、これはシランと光重合型接着剤の併用を推奨している過去の報告とも一致している。

FTIR 分析の結果、CAD/CAM 用コンポジットレジン中に C=C 炭素二重結合が検出されたことから、被着体表面には未重合のメタクリロイル基が存在し、これが接着剤成分と共に重合することによって接着したのではないかと推察する。

また、熱サイクル試験後に MT/SC と MT/GC はそれぞれ SC と GC よりも高い接着強さを示した。MT に含まれている TBB には後重合と界面開始重合という特徴があり、接着界面における重合の促進が接着耐久性改善の重要な因子のひとつと考えられる。

結論として、接着剤の化学組成が CAD/CAM 用コンポジットレジンと光重合型レジンの接着に影響を及ぼすこと、MMA と TBB から成る試作接着剤とシラン処理剤の併用が接着強さを著しく改善することが明らかになった。