

〔原著〕 松本歯学 6 : 203~208, 1980

市販コンポジットレジンおよび
グラスアイオノマーの機械的性質の検討

中田幸一, 宮沢てる子, 高橋重雄

松本歯科大学 歯科理工学教室 (主任 高橋重雄 教授)

Evaluation on Mechanical Properties of Composite Resins and a Glass Ionomer

KOICHI NAKATA, TERUKO MIYAZAWA, SHIGEO TAKAHASHI,

Department of Dental Technology, Matsumoto Dental College

(Chief: Prof. S. Takahashi)

Summary

Mechanical properties of two composite resins and a glass ionomer were evaluated. Composite resins were used to commercial products, such as Adaptic and Concise. A glass ionomer was Fuji ionomer. This report was described on the compressive strength and the hardness affecting by the elapsed time after setting, the ratio of universal and catalyze pastes, and the mixing time.

Results were as follows;

1. The compressive strength of two commercial composite resins was 2,300 kg/cm² at a day after setting. But, that of the glass ionomer was 1,800 kg/cm² at 4 days.
2. Although the manufacture's directions have consulted to use a part of universal paste with a part of catalyze paste, on the Adaptic, mixing two parts of universal paste with catalyze paste and on the Concise, mixing a part of universal with two parts of catalyze, the compressive strength of composite resins was decreased.
3. The hardness of composite resins was unaffected by the proportioning the amounts of the pastes.
4. Vicker's hardness numbr of three products was from 85 to 105.
5. The influence of the mixing time to the compressive strength was unrecognized. But, the standerd deviations of the measurements for the compressive strength of specimens prepered by mixing for 60 seconds, were decreased to a half of them which were prepered by mixing for 30 seconds.

緒 言

複合レジンとは従来の充填用レジンあるいはシリケートセメントに代る材料として使用されている。レジンとはかたさが小さく、耐摩耗性が低く、吸水性および熱膨張係数が大きいなどの欠点があるが、簡単かつ容易に充填操作を行なうことができる。シリケートセメントはレジンに比較するとかたさ、耐摩耗性が大きく、熱膨張係数は歯質と同程度であるが、唾液に対する溶解度が大きく、歯髄に対するリン酸の刺激性のあることが難点とされている。複合レジンとはこれらの欠点を架橋結合する高分子材料と無機質 filler を混合することによって相互に補い、その特徴を増大している。網状構造を形成する高分子 Bis-GMA は、Bowen, R. L. によって 1962 年に開発された。これと結合するように表面処理した filler を多量に混合した充填材は、"composite resin" として発表された。しかし、"composite" とは、一般に 2 種以上の成分からなる複合材料の意味であり、有機質と無機質あるいは有機質と金属と言うように 2 種類から成るものはすべて含まれるとした方が妥当とされよう。その見地から、1972 年 Wilson らによって発表された ASPA セメントはポリアクリル酸水溶液とアルミノシリケートガラス粉末の反応によって硬化する一種の複合レジンである。アクリル酸の反応基がカルシウムイオンあるいはアルミニウムイオンと反応して硬化することは歯質および金属に対する接着性を考えることができる。この点では従来にない充填材料としての期待がもたれている。

本報はこのような 2 つの異なった高分子材料を基質とする充填材料について、臨床操作の見地から練和条件が圧縮強さにおよぼす影響を検討し、材料の種類によって特性のあることを明らかにする。

実験材料

実験に使用した材料は市販コンポジットレジン 2 種類とグラスアイオノマーセメント 1 種類である。これらの材料はいずれも市販製品を購入したものである。表 1 は製品および製造者を示すが、以下実験材料は A, C, F の記号で表わす。

表 1：実験に使用した材料

記号	試料	製造業者
A	Adaptic	Johnson & Johnson Co (U.S.A.)
C	Concise	3M Co (U.S.A.)
F	Fuji ionomer II	而至歯科工業株式会社 (日本)

実験方法

1 試験片の作製方法

圧縮強さ試験片は直径 6 mm, 高さ 12 mm の円柱状に作製した。これらは所定の条件で練和したペーストをポリエチレン樹脂の割型に多目につめ、上、下面に金属板を固定し、おさえ型で圧接した。各試験片は 30 分後に割型から取り出し、37°C, 水中に保存した。

かたさ試験片は、同様に作製した試験片を 7 日後にエポキシ樹脂に包埋固定し、自動研磨機によって 0.05 μ 粒度アルミナまで研磨した。

各試料の練和は指示書にしたがって行なった。試料 A および C はユニバーサルペースト (UP) とキャタリストペースト (CP) の割合を 1 : 1 (0.5 g : 0.5 g) とした。試料 F は液と粉末の混液比を 0.5 g : 1.1 g とした。前者は、さらにペーストの割合を 1 : 2 (UP 0.3 g : CP 0.6 g) および 2 : 1 (UP 0.6 g : 0.3 g CP) とした場合についても比較した。

また、練和時間は 30 秒と指示されていたが、60 秒間とした場合も比較した。

2. 圧縮強さの測定

圧縮強さの測定は島津オートグラフ IS 5000 で行なった。試験片の圧縮強さは練和後 30 分, 60 分, 8 時間, 12 時間, 24 時間, 2 日, 4 日, 7 日の経過変化に測定した。また、UP と CP の割合を変えた試験片は 7 日後の圧縮強さを比較した。測定値は 7 個の試験片の平均である。

3. かたさの測定

かたさは島津微小硬度計でビッカースかたさを測定した。荷重は 25 g, 荷重時間は 15 秒とした。かたさは 8 個の試験片にそれぞれ 11 点圧痕をつけて、それらの平均から求めた。

4. 組織の観察

各試験片の組織は、かたさ測定用試験片について顕微鏡で観察した。

また、圧縮強さの測定によって破碎した試験片は、それぞれ破断面を走査電顕によって観察した。

5. 無機質フィラー含有量の測定

各試料は、無機質フィラーと高分子を結合した複合材料である。フィラーの含有量は機械的性質に影響のある要素として含有量の測定を行なった。

測定は各試料を恒量にした磁製ルツボに入れ、800°C の電気炉中で2時間有機質を焼却した。無機質フィラー含有量は焼却後の残渣量によって算出した。

実験結果

1. 圧縮強さの経時変化

図1は、試料A、CおよびFの圧縮強さの経時変化である。試料Aの圧縮強さは30分後に1200 kg/cm²に達し、60分にはさらに450 kg/cm²の増加がみとめられる。それは8時間後に1900、12時間後に2300、1日後に2500 kg/cm²になるが、4日後、7日後の圧縮強さは2300 kg/cm²となった。

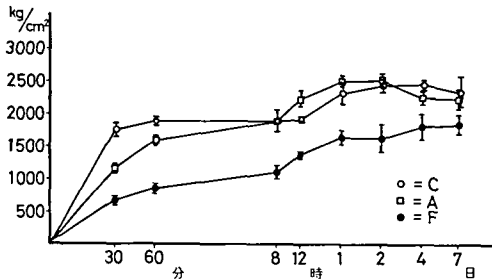


図1：各試料の圧縮強さの経時変化

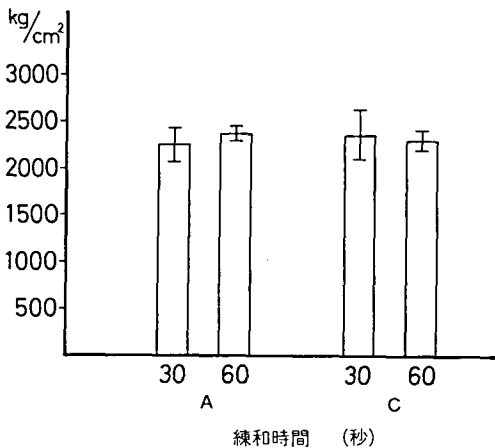


図3：圧縮強さに対する練和時間の影響

た。

試料Cの圧縮強さは、30分後に1800 kg/cm²となり、12時間後に2000 kg/cm²に増大する。さらに1日後の圧縮強さは2400 kg/cm²になるが、以後2日、4日、7日と変化がなかった。

試料Fの圧縮強さ、30分後に700 kg/cm²、60分後に900 kg/cm²になる。さらに、8時間後1100、12時間後1400、1日後1600、7日後に1900 kg/cm²に達する。

2. 圧縮強さに対する練和条件の影響

図2は、試料AおよびCの圧縮強さについて、ペーストの混合比を変えた場合の影響を比較した。試料Aの圧縮強さはCPを少くした場合、1800 kg/cm²と減少するが、CPを標準の2倍量にした場合は影響がなく、2300 kg/cm²である。試料C

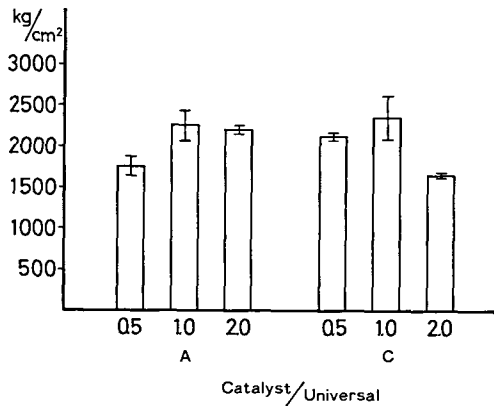


図2：圧縮強さに対するキャタリストペーストとユニバーサルペーストの割合の影響

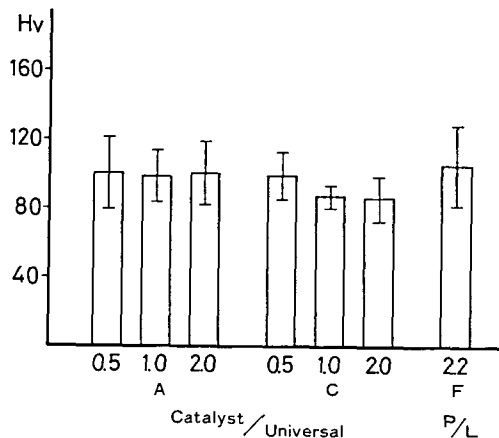


図4：各試料のビッカースかたさ、およびキャタリストペーストとユニバーサルペーストの割合のかたさに対する影響

の圧縮強さはCPを少くした場合は 2200 kg/cm^2 で標準条件で作製した試験片と比較すると小さくなっている。また、CPを多くした場合は 1700 kg/cm^2 となり、試料Aと異なった傾向を示した。

図3は圧縮強さに対する練和時間の影響である。試料AおよびCの両者は、指示された30秒間の練和を60秒間としても、とくに圧縮強さの減少は有意性がみられなかった。しかし、60秒間練和した場合の試験片は、圧縮強さの標準偏差は ± 200

および ± 260 から ± 100 および ± 130 に減少している。

3. 各試料のかたさ

図4は、各試料のかたさの測定結果である。かたさはHv 85~106の間に各試験片ともある。最も小さいものは試料CでA、Fの順に大きくなる。しかしこれらのかたさの違いは変動が大きく有意性はみとめられない。また、CPとUPの混合比の影響はみとめられない。各試験片のかたさは測

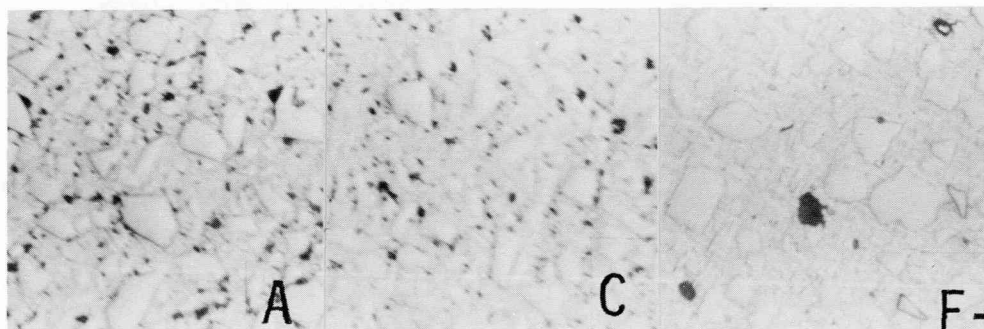


図5：各試料の硬化組織

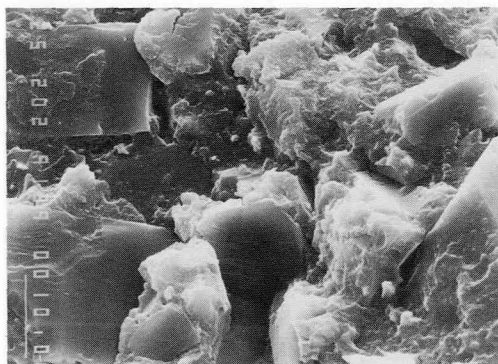


図6：試料Aの試験片作製30分後の破断面

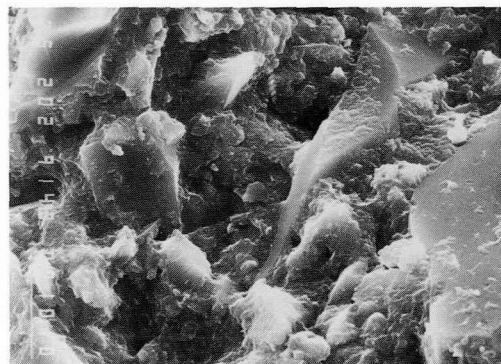


図7：試料Aの試験片作製7日後の破断面

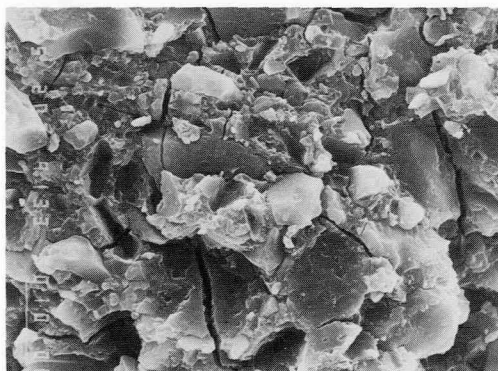


図8：試料Fの試験片作製30分後の破断面



図9：試料Fの試験片作製7日後の破断面

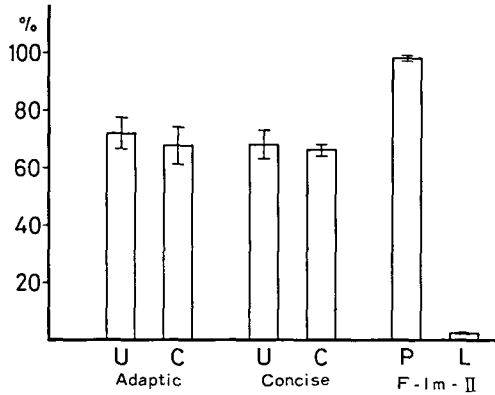


図10: 各試料中の無機質フィラー含有量

定値の変動が大きく、標準偏差は最小 10, 最大 25 である。

4. 組織観察

図5は試料A, C, Fの硬化組織である。これらの組織はいずれも同じような粉末が基質にかこまれて存在している。粉末のもっとも大きい径は, A 50 μ , C 30 μ , F 50 μ であるが, それぞれ長径が 100 μ , 50 μ , 100 μ の粉末も観察された。その形状はいずれも不整形の碎片状を呈している。これらの組織写真から, フィラーと基質の結合構造は明らかではないが, 試料A, CはFに比較して空隙が多く観察される。

図6, 7, 8, 9は試料AおよびFの圧縮強さを測定した試験片の破断面である。図6は試料Aの試験片で作製後30分で破断した面である。粉末の面は基質のレジンときれいに剝離している。しかし, 図7は1週間後に破断した面であるが, 粉末の石英の面に基質が附着している状態が観察される。図8は試料Fの試験片で作製後30分で破断した面である。また図9は1週間後に破断した面である。試料Fの試験片の破断面は30分後と1週間後でとくに変化はなかった。また, 試料Cは, Aと同様な状態であった。

5. 無機質フィラー含有量

各試料の無機質含有量はユニバーサルペースト, キャタリストペースト, 粉末, 液について測定した。図10はその結果である。試料A, Cのユニバーサルペースト, キャタリストの無機質含有量は, 71 ± 5%, 68 ± 6%, 68 ± 5%, 66 ± 2% である。また試料Fの粉末は98 ± 1%, 液は2 ±

0.1%である。これらの結果から試料A, Cの無機質フィラーの含有量は約70%である。試料Fにおいてもその混液比から試験片の無機質含有量は68%になる。硬化した試験片を焼却した結果は68%になり, 計算値と一致した。

考 察

口腔内で反応して硬化する材料の臨床上的の問題点は第1は操作方法の影響であり, 第2は口腔内において修復物の性質変化の過程である。

前者は, 材料を取扱う温度, 練和条件, 方法, 時間などが因子となる。とくにユニバーサルペーストとキャタリストペーストの割合, あるいは粉末と液の比率は日常の操作で変動しやすい因子である。また, 練和時間は十分に両者を反応させる大きな要素として取り上げた。実験結果から, ペーストの混合比は, 圧縮強さ, かたさには影響がみられなかった。両者とも, 硬化反応は重合開始剤に過酸化ベンゾイルと, 触媒にジメチルパラトルイジンが使用されている。これらの反応は, ジメチルパラトルイジンによって, 過酸化ベンゾイルが活性化され, Bis-GMAの両端を形成するメチルメタアクリレートの2重結合が活性化される。しかし, こうした多官能モノマーは網状構造を形成するが, 一方において未重合のまま残留することも多いと言われている。7日後における, 重合開始剤と触媒の圧縮強さに対する影響は試料AにおいてはCPが少ない場合が小さくなり, 試料CはUPが多い場合に小さくなるという反対の傾向がみられた。しかしかたさに対しては, CP/UP比の影響がなかった。これはペースト中に含有する無機質フィラーの含有量は, CP/UP比に関係なく一定に保つことができることによるものであろう。また, 3種類の試料について, かたさはほぼ同じであることも, 無機質フィラーが同じ程度のかたさであり, かつ含有量も同じであることに原因する。

練和時間は, 圧縮強さの大きさに対して, 影響がみられなかったが, 測定値の標準偏差にみとめられた。30秒間の練和より, 60秒間練和した場合の方が, 変動が小さくなっている。これは均一な反応の遂行を示唆していると考えてよいであろう。

第2の問題点である圧縮強さの経時変化は, 試

料A, C, Fでわずかに異なっている。試料Cは30分後にはば8時間後の強さと同程度に硬化するが、試料Aは8時間後まで漸増する。両試料とも、8時間後においても、圧縮強さは増加する傾向があり、1日後において終結する。圧縮強さを測定した破断面から、試料A, Cは30分後において、フィラー粉末と基質の高分子の結合が不完全で剥離した状態がみられる。しかし7日後の試験片は、フィラーの表面に高分子が附着してその結合が大きいことが推察される。これに対して、試料Fはガラス粉末とポリカルボン酸水溶液でガラス中のCaイオン、Alイオンと反応することによって硬化する。したがってポリカルボン酸はフィラーと反応して硬化することになり、図7, 8の破断面は30分であってもフィラーに基質が附着した状態が観察される。試料Fにおける圧縮強さの経時変化は、A, Cと比較すると、4日後まで増加して行く傾向がみとめられる。これは、反応基の数が多きことによるものと思われる。それによって、歯質との反応も十分に考えられるが、ポリカルボン酸の反応はシリケートセメントと同様、水と反応することなども報告があり、臨床的に解決すべき点が残されている。

結 論

実験材料は、Bis-GMAを基材とする2種類の修復用複合レジン、およびポリカルボン酸を基材とする修復用レジンである。前者はアダプテックとコンサイズであり、後者は、フジアイオノマーである。本報はこれらの材料の圧縮強さおよびかたさに対する経時変化とユニバーサルペーストとキャタリストペーストの割合、および練和時間

の影響について検討した結果である。

結果は次の通りである。

1. 2種類の複合レジン of 圧縮強さは7日後に2300 kg/cm²である。グラスアイオノマーは1800 kg/cm²で4日後に最大になる。
2. ユニバーサルペーストとキャタリストペーストの割合は、アダプテックはキャタリストが少ない場合、コンサイズはキャタリストが多い場合に、圧縮強さは低下する。
3. かたさは、ペーストの割合の影響がみられなかった。
4. 3種類の充填用材料のかたさはいずれも Hv 85~105であった。
5. 圧縮強さに対する練和時間の影響はみとめられなかった。しかし、60秒間練和した試験片の測定値の標準偏差は、30秒間練和して作製した試験片に比較して約半分になった。

参 考 文 献

- 1) Bowen, R. L. (1963) Properties of a silica-reinforced polymer for dental restoration. J. Amer. Dent. Ass. 66-1: 57.
- 2) Kent, B. E. et al. (1973) The properties of a glass ionomer cement. Brit. Dent. J. 135: 322-329.
- 3) 増原英一 他2名 (1972) 修復用複合レジン进行测试する。DE, 23: 16-25.
- 4) 齊藤季夫 (1978) グラスアイオノマーの性質と臨床。歯科ジャーナル, 8: 456-468.
- 5) 若井永 (1972) 歯冠色充填材の研究。歯理誌, 13: 154-169.
- 6) 山本昌雄 他2名 (1971) 複合レジン of 最近の進歩。廣大歯誌, 3: 11-24.