



Title	自己接着性レジンセメントの機械的強さと流動性の新しい評価方法の開発
Author(s)	河島, 光伸
Citation	大阪大学, 2024, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/96010
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

学 位 論 文

自己接着性レジンセメントの 機械的強さと流動性の新しい評価方法の開発

大阪大学大学院歯学研究科

河 島 光 伸

目次

I 緒言	1
II (実験①) 薄膜状 SARC の機械的強さ評価法の開発	5
1. 目的	
2. 材料と方法	
1) 被験材料	
2) 3 点曲げ試験	
a. 3 種の異なる厚さの試験片での比較	
b. 2 種の異なる支点間距離での比較	
3) せん断試験	
4) 引張試験	
5) 有限要素解析	
6) 統計解析	
3. 実験結果	
1) 3 点曲げ試験	
2) せん断試験	
3) 引張試験	
4) 有限要素解析	
4. 考察	
5. 小括	
III (実験②) SARC の流動性評価法の開発	26
1. 目的	
2. 材料と方法	
1) 被験材料	
2) クラウン装着に使用される SARC 体積の測定	
3) 支台歯の被着表面積の測定	
4) SARC 流動性の評価	
3. 実験結果	
1) クラウン装着に使用される SARC 体積	

2) 支台歯の被着表面積	
3) SARC 流動性の評価結果	
4. 考察	
5. 小括	
IV 結論	37
V 謝辞	38
VI 参考文献	39
VII 図表	47

I. 緒言

レジンの接着機構を導入した接着性レジンセメントは，従来の合着用無機セメントと比較してはるかに高い歯質接着性を示すことから，広く臨床で使用されている．なかでも，前処理を必要としない自己接着性のレジンセメント（Self Adhesive Resin Cement: 以下，SARC）は，2002 年の登場以降その性能が向上し，簡便な操作で高い接着性が得られるため[1-3]，日常の臨床において補綴物の装着に高頻度で使用されている[4,5]．そのような背景から，2017 年に，SARC の材料特性に関する国際規格として ISO/TS 16506:2017 “Dentistry - Polymer-based luting materials containing adhesive components”が制定され，操作時間や硬化時間，機械的強さ，吸水性，色調安定性等に関する試験が評価項目として組み入れられた[6]．このうち，補綴治療の長期臨床成績に関わる重要な特性である機械的強さ[7]については，3 点曲げ試験による曲げ強さの測定が採用されている．ただし，その測定方法は，充填用のコンポジットレジンの評価法を規定した ISO 4049:2019 “Dentistry - Polymer-based restorative materials” [8]に準じたもので，厚さ 2 mm，幅 2 mm，長さ 25 mm の直方体の試験片を用いることとされている．しかしながら，補綴物の装着における実際のレジンセメント層の厚さは約 10～300 μm であり[9,10]，ISO/TS 16506 : 2017 で規定されている試験片サイズは臨床で

の使用状態を全く反映していない。

SARC の機械的強さを評価した過去の論文を繙くと、曲げ強さ[7,11–14]のほかに、圧縮強さ[7,15]、間接引張強さ[15]、せん断強さ[16]など、さまざまな評価が行われているものの、そのほとんどにおいて厚い試料が用いられている。円柱状試験片を用いる圧縮強さや間接引張強さの測定では、当然のことながら薄い円盤状試料では測定ができないため、高さ 3～6 mm の円柱状試料が用いられている[7,14,15]。曲げ強さの測定では、前述の ISO 4049:2019 や ISO/TS 16506:2017 に倣い、厚さ 2 mm、幅 2 mm、長さ 25 mm の棒状試験片を用いた 3 点曲げ試験がもっぱら行われている[7,11–14]。せん断強さの測定でも、一般的に厚さ 1 mm の円盤状試験片が用いられている[16–19]。唯一、江田ら[20]が、試料厚さを 2.00～0.15 mm に変化させて打ち抜きせん断試験を行っているが、試料厚さの増加に伴ってせん断強さが増加する傾向を示したことを報告しているのみで、薄膜状試料での試験の可能性について検討を加えているわけではない。このように、SARC が臨床で使用される状態を反映した試料厚さに焦点を当てて機械的強さを詳細に評価した報告は、これまでに存在しないのが現状である。

一方、SARC の臨床使用においては、支台歯に補綴物を正確に装着することが重要である。このためには、SARC が補綴物と支台歯の間に均一に行き渡り、余剰分が補綴物辺縁から一定量流出する適切な流動性を備えている必要があるが、

この特性に関する国際規格は存在しない。歯科用セメントの流動性に関しては、リン酸亜鉛セメントについてのみ、ISO 1566:1978 “Dentistry - Dental zinc phosphate cement” [21]と ADA No. 8 for Zinc Phosphate Cement [22]において測定方法が定められている。これらの規格では、いずれも、平滑なガラス板の上に所定量の練和セメント泥を置き、その上に重量を規定したガラス板と一定重量のおもりを置いて、広がった練和セメントの直径を測定する方法が採用されている。Van Meerbeek ら[23]は、ADA No. 8 の方法に従い、13 種のコンポジットレジン系レジンセメントの稠度の比較を行っている。Bagheri[24]も、ADA No. 8 の方法に従い、6 種のコンポジットレジン系レジンセメントの稠度の比較を行っている。また、Ling ら[14]は、試作の SARC の稠度を市販品と比較するために、ISO 4823:1992 “Dentistry —Elastomeric impression and bite registration materials”[25]を参考にした方法を採用している。しかし、ISO 1566:1978, ADA No. 8, ならびに ISO 4823:1992 で規定されている方法は、単に、物質の粘稠性に関する指標である稠度を評価するものであり、この方法では被着セメントが臨床で使用された場合に、支台歯全体に行き渡るような補綴物の装着に適した流動性を有しているか否かを判断することはできない。

そこで本研究では、SARC の臨床での使用状況を考慮し、現在の SARC の国際規格である ISO/TS 16506:2017 がさらに取入れるべきと考えられる、薄膜状試

験片を用いた機械的強さの評価法，および被験セメントが補綴物と支台歯の間に十分かつ均一に広がる流動性を有しているかどうかを判定可能な流動性評価法を新規に考案し，より臨床的意義の大きい SARC の試験方法を開発することを目的とした．

II. (実験①) 薄膜状 SARC の機械的強さ評価法の開発

1. 目的

実験①では, SARC が補綴物の装着に使用され, 薄いセメント層として機能することを反映した機械的強さ評価法を設計することを目的に, SARC の薄膜状試験片を用いて, 曲げ強さ, せん断強さ, 引張強さを測定し, さらに, 有限要素法を用いて試験片モデルの内部に生じる最大主応力の分布と試験片の破折の様相を解析した.

2. 材料と方法

1) 被験材料

デュアルキュア型の SARC として, PANA VIA SA Cement Plus Automix (PC; クラレノリタケデンタル, 東京), iCEM Self Adhesive (IC; Kulzer, Hanau, Germany), ならびに BisCem (BC; Bisco, IL, USA) を使用した (表 1).

2) 3 点曲げ試験

a. 3 種の異なる厚さの試験片での比較

ISO/TS 16506:2017[6]で規定される 2.0 mm の試験片の場合と, それよりも

薄くした場合の曲げ強さを比較した。

厚さ 2.0, 1.0, または 0.5 mm, 幅 2.0 mm, 長さ 25 mm のステンレス製の金型 (図 1) を用いて 3 種の異なる厚さの試験片を作製し (図 2), ISO/TS 16506: 2017[6]に準じて 3 点曲げ試験を実施した。ガラス板に厚さ 50 μm のポリエステルフィルムを敷き, その上にステンレス製の金型を設置した。金型に SARC ペーストを充填し (図 3), ポリエステルフィルムで上面を覆い, さらにガラス板を置いた後, 金型の両端をクリップで挟んで圧接した。デュアルキュアモードで硬化させる「光照射あり群」については, まず, 光照射器 (ペンキュアー2000, モリタ製作所, 京都) を用いて試料を硬化させた。光照射は, 照射器の照射口 (口径; $\phi 9\text{ mm}$) をガラス板面に押し当て, 照射箇所の一部が重なり合うように 3 箇所に分割して行った。メーカーの指示に従い, 1 箇所に付き, PC では 10 秒, IC では 40 秒, BC では 20 秒とし, ノーマルモードの最大光量 $1,000\text{ mW/cm}^2$ にて, 試料の上下両面から照射した。その後, 各試験片を $37\pm 2^\circ\text{C}$ のウォーターバス (TB-1NC, アズワン, 大阪) に 15 分間浸漬し, 化学重合による後重合を行った。光照射を行わずにセルフキュアモードで硬化させる「光照射なし群」は, クリップで挟んで圧接した試料をすぐに $37\pm 2^\circ\text{C}$ のウォーターバス (TB-1NC) に浸漬し, 1 時間保管した。

金型から取り出した試験片を #1000 の耐水研磨紙 (日本研紙, 広島) で研磨

してバリを取り除いたうえで、蒸留水に浸漬し、 37 ± 2 °Cの恒温槽（Model IS-81，ヤマト科学，東京）で 24 時間保管した．その後，ただちに万能試験機（Autograph AG-Xplus，島津製作所，京都）を用い，支点間距離 20 mm にて，クロスヘッドスピード 0.5 mm/min で破断荷重 F (N) を測定した．なお，破断荷重の測定前に，試験片の中央部で，マイクロメーター（デジマチックマイクロメータ MDC-25MX，ミットヨ，神奈川）を用いて試験片の厚さと幅を 0.001 mm の精度で測定した．曲げ強さ σ_f (MPa) は，以下の式 (1) を用いて求めた．

$$\sigma_f = \frac{3Fl}{2bh^2} \quad (1)$$

ここで， l は支点間距離 (mm)， b は試験片の厚さ (mm)， h は試験片の幅 (mm) を表す．試料数は，各条件につき 10 とした．

b. 2 種の異なる支点間距離での比較

厚さ 0.5 mm の試験片について，試験片に生じるたわみを小さくする目的で，支点間距離を ISO/TS 16506:2017[6]で規定される 20 mm よりも短くして 3 点曲げ試験を行い，曲げ強さを測定した．

厚さ 0.5 mm, 幅 2.0 mm, 長さ 25 mm のステンレス製の金型を用いて, 2) a と同様にして試験片を作製した. バリを除去して蒸留水に浸漬し, $37 \pm 2^\circ\text{C}$ の恒温槽 (Model IS-81) で 24 時間保管した後, ただちに万能試験機 (Autograph AG-Xplus) を用い, 支点間距離 10 または 20 mm にて, クロスヘッドスピード 0.5 mm/min で試験を行い, 曲げ強さを求めた. なお, 本実験は, たわみがより大きい光照射あり群を対象に行い, 試料数は, 各条件につき 10 とした.

3) セン断試験

3 種の異なる厚さ (0.4, 0.2, 0.05 mm) の薄膜状試験片を作製し, Yamazaki ら[19]の方法に準じて打ち抜きせん断試験を行った.

予備実験において, 厚さ 0.5 mm の試験片を用いた場合には, 貫通孔の外縁に放射状の亀裂が発生することが明らかとなったため, 本実験では最大の厚さを 0.4 mm とした. ガラス板の上に厚さ 50 μm のポリエステルフィルムを敷き, その上に直径 10 mm, 厚さ 0.4, 0.2, または 0.05 mm の樹脂製モールド (厚さ 0.4 mm と 0.2 mm の試験片: ポリテトラフルオロエチレン製, 厚さ 0.05 mm の試験片: ポリエステル製) (図 4) を設置した. モールドに各 SARC ペーストを充填し, ポリエステルフィルムで覆った後, ガラス板を置き, クリップで挟んで圧接した. 光照射あり群では, 光照射器 (ペンキュアー2000) の照射

口（口径； $\phi 9\text{ mm}$ ）の中央がモールドの中央に位置するように保持したうえで、照射口をガラス板面に押し当て光を照射し、硬化させた。照射時間はメーカーの指示に従い、PC では 10 秒、IC では 40 秒、BC では 20 秒とし、ノーマルモードの最大光量 $1,000\text{ mW/cm}^2$ にて、試料の上下両面から照射した。その後、各試験片を $37\pm 2\text{ }^\circ\text{C}$ のウォーターバス（TB-1NC）に 15 分間浸漬し、化学重合による後重合を行った。光照射なし群は、モールドにペーストを充填して圧接後、 $37\pm 2\text{ }^\circ\text{C}$ のウォーターバス（TB-1NC）で 1 時間保管して硬化させた。

各試験片をモールドから取り出して蒸留水に浸漬し、 $37\pm 2\text{ }^\circ\text{C}$ の恒温槽（Model IS-81）で 24 時間保管した。その後、ただちに図 5 に示すように試験片を治具に設置し、万能試験機（Autograph AG-Xplus）を用いて、 $\phi 3\text{ mm}$ のステンレス製の円柱状押棒をクロスヘッドスピード 1.0 mm/min で押し込み、破断荷重 $F\text{ (N)}$ を測定した。なお、破断荷重の測定の前に、試験片の中央部で、マイクロメーター（デジマチックマイクロメータ MDC-25MX）にて 0.001 mm の精度で厚さを測定しておき、せん断強さ $\sigma_s\text{ (MPa)}$ は、以下の式 (2) [26]を用いて求めた。

$$\sigma_s = \frac{F}{\pi dh} \quad (2)$$

ここで、 πd は円柱状押棒の長手方向に垂直な断面の円の円周 (mm)、 h は試験片の厚さ (mm) を表す。試料数は各被験材料につき 10 とした。

4) 引張試験

3 種の異なる厚さ (0.4, 0.2, 0.05 mm) の薄膜状短冊型試験片を作製し、Bedran-Russo ら[27] の方法に従って引張試験を行った。

ガラス板に厚さ 50 μm のポリエステルフィルムを敷き、その上に、幅 3.0 mm、長さ 13.2 mm、厚さ 0.4, 0.2, または 0.05 mm の樹脂製モールド (厚さ 0.4 mm と 0.2 mm の試験片：ポリテトラフルオロエチレン製、厚さ 0.05 mm の試験片：ポリエステル製) (図 6) を設置した。モールドに各 SARC ペーストを充填してポリエステルフィルムで覆った後、ガラス板を置き、クリップで圧接した。光照射あり群では、光照射器 (ペンキュアー2000) の照射口 (口径 ; $\phi 9\text{ mm}$) の中央がモールドの中央に位置するように保持したうえで、照射口をガラス板面に押し当てて光を照射し、硬化させた。試験片に対して引張応力が生じる部位は、試験片の長軸の midpoint から上下に各 2.0 mm の範囲であるため、試料の中央部に対して、1 回の照射とした。照射時間はメーカーの指示に従い、PC では 10 秒、IC では 40 秒、BC では 20 秒とし、ノーマルモー

ドの最大光量 $1,000 \text{ mW/cm}^2$ にて、試料の上下両面から照射した。その後、各試験片を $37 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ のウォーターバス (TB-1NC) に 15 分間浸漬し、化学重合による後重合を行った。光照射なし群は、モールドにペーストを充填して圧接後、 $37 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ のウォーターバス (TB-1NC) で 1 時間保管して硬化させた。モールドから取り出した試験片は、#1000 の耐水研磨紙 (日本研紙) で研磨してバリを取り除いたうえで、蒸留水に浸漬し、 $37 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ の恒温槽で 24 時間保管した。

その後、ただちに試験片の長軸が引張方向と平行となり、かつ長軸の midpoint が、上下の微小引張接着強さ試験用治具の突合せ部に位置するように配置し、高粘度瞬間硬化型模型修復材 (モデルリペアーIIブルー, デンツプライシロナ, 東京) で試験片の両端を治具に固定した (図 7)。万能卓上試験機 (EZ Test EZ-SX, 島津製作所, 京都) によりクロスヘッドスピード 1.0 mm/min で引張試験を行い、破断荷重 $F \text{ (N)}$ を測定した。なお、破断荷重の測定の前に、試験片の中央部で、マイクロメーター (デジマチックマイクロメータ MDC-25MX) にて 0.001 mm の精度で幅と厚さを測定しておき、引張強さ $\sigma_t \text{ (MPa)}$ は、以下の式 (3) [28] を用いて求めた。

$$\sigma_t = \frac{F}{bh} \quad (3)$$

ここで、 b は試験片幅 (mm)、 h は試験片厚さ (mm) を表す．試料数は各被験材料につき 10 とした．

5) 有限要素解析

せん断試験と引張試験における 3 種の異なる厚さ (0.4, 0.2, 0.05 mm) の試験片と同サイズの解析モデルを設計し、有限要素法を用いてせん断解析と引張解析を行い、試験片モデルの内部に生じる最大主応力の分布と試験片の破折の様相を比較した．

せん断解析では、2-3) で実施したせん断試験に合わせて、厚さ 0.4, 0.2, 0.05 mm の異なる 3 種の円盤状の Computer-aided design (CAD) モデルを CAD ソフトウェア (Solidworks Simulation 2011, Dassault Systèmes Solidworks, Waltham, MA, USA) で設計した (図 8 上段)．「光照射あり」の条件で硬化させた PC の弾性率、ポアソン比、密度、ならびに破壊ひずみを、Yamaguchi らの報告[29] に従って、それぞれ 2,300 MPa, 0.38, 1.853 g/cm³, 0.018 とし、線形弾性体ならびに等方性材料と仮定して各モデルに適用した．円盤上面の中心に鉛直下向きの変位 (0.06 mm) を加え、試験片、治具、円盤状ロッドの間には互いに滑りが生じるように接触条件を定義した．各 CAD モデルにプリブ

ロセッサ (LS-PrePost, LSTC, Livermore, CA, USA) を用いてメッシュ生成を行い、得られた要素数は、厚さ 0.4 mm では 193,760 個、厚さ 0.2 mm では 96,880 個、厚さ 0.05 mm では 24,220 個であった。

引張解析では、2-4) で実施した引張試験に従い、厚さ 0.4, 0.2, 0.05 mm の異なる 3 種の短冊状 (3×13.2 mm) の CAD モデルを CAD ソフトウェアで設計した (図 8 下段)。各モデルには、せん断解析と同じ材料特性を適用した。試料を上下から挟み込む治具をいずれの方向にも動かないように拘束し、試料に負荷を加える治具には鉛直下向きに 0.05 mm の変位を与え、試験片と試料を上下から挟み込む治具は完全に結合した。各 CAD モデルにプリプロセッサ (LS-PrePost) を用いてメッシュ生成を行い、得られた要素数は、厚さ 0.4 mm では 126,720 個、厚さ 0.2 mm では 63,360 個、厚さ 0.05 mm では 15,840 個であった。

有限要素解析ソフトウェア (LS-DYNA, LSTC, Livermore, CA, USA) を用いて、非線形動的有限要素法にて引張解析とせん断解析を実施した。最大主応力の分布を解析し、各モデルの破折の様相を比較した。

6) 統計解析

得られた機械的強さの平均値と標準偏差に対して、統計処理ソフトウェア

(KaleidaGraph Version 3.6, ヒューリンクス, 東京) を用いて, one-way Analysis of Variance (ANOVA) と Tukey's test, および Student's *t*-test にて有意水準 5% で統計解析を行った.

3. 実験結果

1) 3 点曲げ試験

図 9 に, 試験片厚さを変化させた場合の光照射あり群の曲げ強さを示す.

PC においては, 厚さが薄くなるほど曲げ強さが小さくなる傾向が認められ, 試験片の厚さが 0.5 mm の場合には, 2.0 mm の場合と比べて有意に曲げ強さが小さくなった (2.0 mm-1.0 mm: $p = 0.1157$, 2.0 mm-0.5 mm: $p = 0.0024$, 1.0 mm-0.5 mm: $p = 0.2301$). IC においては, 厚さが薄くなるほど曲げ強さが有意に小さくなった (全ての群間で $p < 0.0001$). BC においては, 厚さが 1.0 mm の場合に, 2.0 mm の場合と比べて有意に曲げ強さが小さくなった (2.0 mm-1.0 mm: $p = 0.0201$) が, 2.0 mm と 0.5 mm の間, および 1.0 mm と 0.5 mm の間では有意差は認められなかった (2.0 mm-0.5 mm: $p = 0.3131$, 1.0 mm-0.5 mm: $p = 0.3568$).

図 10 に, 試験片厚さを変化させた場合の光照射なし群の曲げ強さを示す.

光照射なしの場合, PC においては, 試験片の厚さが 2.0 mm, 1.0 mm, 0.5 mm

と薄くなるにつれ曲げ強さが有意に小さくなった (2.0 mm-1.0 mm: $p = 0.0004$, 2.0 mm-0.5 mm: $p = 0.0064$, 1.0 mm-0.5 mm: $p < 0.0001$). IC においては, 厚さが 0.5 mm の場合に, 2.0 mm および 1.0 mm との場合と比べて曲げ強さが有意に小さくなった (2.0 mm-0.5 mm: $p < 0.0001$, 1.0 mm-0.5 mm: $p < 0.0001$) が, 2.0 mm と 1.0 mm の間では有意差は認められなかった ($p = 0.2371$). BC においては, 厚さが 1.0 mm と 0.5 mm の場合に, 2.0 mm の場合と比べて曲げ強さが有意に小さくなった (2.0 mm-1.0 mm: $p < 0.0001$, 2.0 mm-0.5 mm: $p < 0.0001$) が, 1.0 mm と 0.5 mm の間では有意差は認められなかった ($p = 0.3778$).

支点間距離 20 mm で 3 点曲げ試験を実施した場合, 破断に至るまでの変位は, PC の厚さ 2.0 mm の試験片 (光照射あり群) の場合は 0.4~0.7 mm (破断に至るまでの変位の最小-最大の範囲を示す. 以下同じ), 厚さ 1.0 mm では 0.7~1.5 mm, 厚さ 0.5 mm では 2.2~3.4 mm であった. IC では, それぞれ, 0.9~1.7 mm, 1.9~4.0 mm, および 7.0~7.3 mm であり, BC では, それぞれ, 0.2~0.3 mm, 0.6~0.9 mm, および 1.5~2.3 mm であった. いずれの SARC においても試験片厚さが薄くなるほど, 破断に至るまでの変位が大きくなり, とくに IC の厚さ 0.5 mm の場合は, 試験片の中央部に大きなたわみが観察された (図 11).

図 12 に, 異なる支点間距離での曲げ強さの測定結果を示す. 厚さ 0.5 mm

の試験片を用いて 2 種の異なる支点間距離 (20 mm と 10 mm) で 3 点曲げ試験を実施した結果, PC および BC では有意差は認められないものの (いずれの群も $p > 0.05$), IC では支点間距離 10 mm の場合に曲げ強さが有意に大きくなった ($p < 0.0001$).

厚さ 0.5 mm の試験片を用いて支点間距離 10 mm で 3 点曲げ試験を実施した場合, 破断に至るまでの変位が, PC では 0.5~0.7 mm, IC では 1.4~2.5 mm, BC では 0.4~0.6 mm であり, 支点間距離 20 mm の場合 (PC: 2.2~3.4 mm, IC: 7.0~7.3 mm, BC: 1.5~2.3 mm) と比較して, 試験片の中央部のたわみは小さくなった.

2) セン断試験

図 13 と図 14 に, 試験片厚さを変化させた場合の光照射あり群と光照射なし群のせん断強さを示す. 硬化様式 (光照射の有無) にかかわらず, PC, IC および BC のいずれにおいても, 試験片の厚さが 0.4 mm, 0.2 mm, 0.05 mm と薄くなるにつれて, せん断強さが有意に低下した (各 SARC の光照射あり群と光照射なし群それぞれの統計処理結果において $p < 0.0001$).

3) 引張試験

図 15 と図 16 に、試験片厚さを変化させた場合の光照射あり群と光照射なし群の引張強さを示す。硬化様式（光照射の有無）にかかわらず、いずれの SARC においても、引張強さに試験片の厚さによる有意差は認められなかった（各 SARC の光照射あり群と光照射なし群それぞれの統計処理結果において $p > 0.05$ ）。

4) 有限要素解析

せん断解析の結果を図 17 に示す。厚さ 0.4 mm と 0.2 mm の試験片においては、荷重部が試験片に接触する部分の直下で、引張応力と圧縮応力の境界、すなわちせん断応力が集中し、試料表面で円柱状押棒の外周に沿って均等に分布していることが確認された。一方、厚さ 0.05 mm の試験片では、試験片の断面にせん断応力は集中しておらず、試料表面では引張応力がまばらに分布していた。また、厚さ 0.4 mm と 0.2 mm の試験片モデルでは、円柱状押棒の外周に沿って、試料を打ち抜くように一気に破壊が生じたのに対して、厚さ 0.05 mm の試験片モデルでは、円柱状押棒の外周上の一部のみに破壊が生じた後、その破壊が時間の経過とともに徐々に進行し、厚さ 0.4 mm と 0.2 mm の試験片モデルとは破壊の様相が明らかに異なっていた。

引張解析の結果を図 18 に示す。いずれの厚さの場合も、試験片の把持部に

引張応力が集中していた。また、破壊の起点は厚さが異なっても同じ部位であり、引張応力が集中した部位が破壊の起点になっていた。

4. 考察

実験①において、まず、曲げ試験片の厚さを ISO/TS 16506:2017[6]で規定される 2.0 mm から薄くする検討を行った。幅 2.0 mm、長さ 25 mm のステンレス製の金型を用いて試験片の作製を行ったところ、厚さ 0.25 mm では SARC の硬化物を金型から取り外す際に硬化物に破損を認め、試験片を得ることができなかったことから、最小の薄さを 0.5 mm として曲げ強さを測定した。その結果、PC の光照射あり群では、試験片の厚さを 2.0 mm から 1.0 mm、さらに 0.5 mm と薄くすることにより、曲げ強さが減少する傾向が認められ、光照射なし群では、試験片厚さが薄くなるほど曲げ強さは有意に減少した。また、IC では試験片の厚さが薄くなると、曲げ強さは、光照射あり群では有意に減少し、光照射なし群でも減少する傾向が認められた。BC では、光照射あり群、光照射なし群ともに、試験片の厚さが薄くなるほど曲げ強さが減少する傾向が認められた。このように、3 種の SARC はいずれも 3 点曲げ試験において、試験片の厚さを 2.0 mm から 1.0 mm、さらに 0.5 mm と薄くすると、光照射あり、光照射なしにかかわらず、曲げ強さが小さくなる傾向にあることが確認された。なお、3 種の SARC 間

で、曲げ強さの大きさや、照射の有無での結果に違いが認められたのは、それぞれのセメントの硬化特性に違いがあるためと考えられる。すなわち、PC では、「光照射あり」、「光照射なし」のいずれの条件においても高い重合率が得られるのに対して、IC では、化学重合反応よりも光照射による硬化反応で重合率が高くなる重合開始剤システムが採用されており、BC は、化学重合反応で重合率が高くなるよう設計されているものと考えられた。

3 点曲げ試験においては、試験片の厚さを薄くすると、試験中に試験片が大きくたわむ現象が発生した（図 11）。そのため、実際には破断直前の支点間距離が増加するにもかかわらず、曲げ強さの算出には支点間距離の初期長を用いることから、試験片の厚さが薄くなると 3 点曲げ強さが変化したものと考えられる。そこで、試験片のたわみを小さくするため、光照射ありの条件で作製した厚さ 0.5 mm の試験片を用い、3 点曲げ試験の支点間距離を ISO/TS 16506 : 2017 で規定される 20 mm から 10 mm と短くした場合にたわみがどの程度緩和されるかについて検討を行った。その結果、PC および BC では、支点間距離 20 mm と 10 mm での結果の間に有意差は認められなかったが、IC では、支点間距離を 20 mm から 10 mm とすることにより、3 点曲げ強さが 49.0 MPa から 86.8 MPa まで有意に増加した。これは、PC や BC とは異なり、IC においては、支点間距離を小さくしたことによって、たわみ量が 7.0~7.3 mm から 1.4~2.5 mm へと大きく減

少ししたことによるものと考えられる。しかしながら、いずれの SARC においても、支点間距離を 20 mm から 10 mm と短くすることにより試験片のたわみは少なくなり、3 点曲げ強さの変化は緩和されたものの、たわみの影響を完全に解消することはできなかった。したがって、3 点曲げ試験では、試験片がたわむことで正確に曲げ強さを測定できず、薄膜状 SARC の機械的強さを評価する方法として適切でないことが明らかとなった。

つづいて、「試験片支持部と荷重部との間の距離」が 3 点曲げ試験と比べて短く、試験片のたわみを小さくすることが可能な試験方法として、せん断試験について検討した。予備実験で、厚さ 0.5 mm の試験片を用いた場合に、貫通孔の外縁に放射状の亀裂が不規則に発生することが確認されたため、せん断試験では最大の厚さを 0.4 mm とした。実際の臨床におけるレジンセメント層の厚みについて、大澤ら[9]は、40～126 μm であったと報告しており、Boitelle ら[10]の報告では 10～308 μm であったとされている。また、Owitayakul ら[30]は、CAD/CAM システムで製作したジルコニアクラウンを 2 種のレジンセメントで模型支台歯（上顎小臼歯）に 50 N の荷重で装着したところ、セメント層の厚さは 28～208 μm であったと報告している。このような実情を踏まえたうえで、せん断試験用の円盤状試料であれば 0.5 mm よりもさらに薄い試験片の作製が可能であったことから、本実験では、0.4, 0.2, 0.05 mm の薄膜状試料を作製して試験を行った。

その結果、いずれの試験片においても、せん断強さの測定は可能であったものの、試験片厚さを 0.4 mm から、0.2 mm, 0.05 mm へと薄くすると、PC, IC, および BC のすべてにおいて、光照射あり、光照射なしの条件にかかわらず、3 点曲げ試験と同様に試験片が薄くなるにつれてせん断強さが小さくなった。江田ら[20]による薄膜状試料を用いて 3 種の SARC のせん断試験を行った唯一の報告でも同様の結果が得られており、光照射ありの条件で作製した試験片で、厚さが 2.0, 1.0, 0.5, 0.25, 0.15 mm と薄くなるに従ってせん断強さが減少する傾向を示したとされている。すなわち、せん断試験ではたわみの影響は少なくなるものの、試験片が薄くなると断面内のせん断力が変化し、結果に影響が及ぶものと考えられた。

次に、Bedran-Russo らの歯質の引張試験方法[33]を参考に、3 種の異なる厚さ（0.4, 0.2, 0.05 mm）の薄膜状 SARC の「短冊型」試験片について引張試験を実施した。試験片の厚さは、前述の大澤ら[9], Boitelle ら[10], Owitayakul ら[30]の報告も踏まえ、せん断試験の場合と同じとした。なお、試験片作製の手技上も 0.05 mm が限界であった。引張試験では、光照射の有無にかかわらず、いずれの SARC においても、引張強さが試験片の厚さによって変化しない結果となった。3 点曲げ試験は、試験片の 2 点を下方から支え、その中央に上部から荷重を加えて試験片を湾曲させ、曲げに対する破壊強さを評価する方法であることから、前

述のように、試験片厚さが薄いほどたわみを引き起こすこととなった。せん断試験では、「試験片支持部と荷重部との間の距離」が 3 点曲げ試験と比べて短く、試験片のたわみを小さくすることが可能であったものの、試験片の厚さの減少に伴うたわみの影響を排除することはできなかった。これらの方法とは異なり、引張試験では、破断のために圧子を押し付けて試験片を湾曲させることがないため、得られる強さに試験片の厚さの影響が現れなかったものと考えられる。このように、3 点曲げ試験やせん断試験と比べてたわみや厚さの影響を受けないという点で、SARC 製品の薄膜状硬化物の評価には引張試験が適していることが明らかとなった。

そこで、薄膜状試料を用いた試験としての適性をさらに詳細に検討するために、試験片に明らかなたわみが認められなかった、せん断試験と引張試験に関して、有限要素解析モデルを作成し、試験片に生じる応力と破断の挙動を解析した。試験片モデルの厚さは、実際に試験を行った 0.4 mm, 0.2 mm, 0.05 mm の 3 種とし、内部に生じる最大主応力の分布と試験片の破折の様相を比較した。その結果、せん断解析では、厚さ 0.4 mm と 0.2 mm の試験片モデルにおいては、荷重負荷部が試験片モデルに接触する部分の直下に、引張応力と圧縮応力の境界、すなわちせん断応力が集中し、試料表面で円筒状に均等に分布していることが確認できた。これに対して、厚さ 0.05 mm の試験片では、試験片モデルの断面にせ

せん断応力は集中しておらず、試料表面では引張応力がまばらに分布していた。また、厚さ 0.4 mm と 0.2 mm の試験片モデルとは破壊の起点が異なっていた。すなわち、せん断試験では、引張応力と圧縮応力の境界で生じるせん断応力が、試験片の厚さが薄くなると引張応力のみに変わり、その分布がまばらになることが明らかとなった。一方、引張解析では、厚さ 0.4 mm, 0.2 mm, 0.05 mm のいずれの試験片モデルにおいても、試験片モデルの把持部に引張応力が集中し、厚さが異なっても引張応力が集中した部位が破壊の起点になっていることが明らかとなった。したがって、応力の集中部位と破壊の起点が試験片の厚さによらず一致するという点で、薄膜状 SARC 試験片の評価にはせん断試験よりも引張試験の方が適していることが、有限要素解析の結果からも確認された。

引張試験の方法として参考にした、梁状の歯質を被験対象にした Bedran-Russo らの装置[27]は、ISO/TS 11405:2015 “Dentistry — Testing of adhesion to tooth structure”[31]の Annex A に記載される微小引張試験[32–34]で使用される装置と同じ仕様である。現在、微小引張試験は、歯科用接着材料の接着性能を評価する方法として広く普及している[35–37]ことから、本研究で開発した引張試験方法も、一般に広く使用できるものと期待できる。

本研究で用いた SARC は、化学重合[2,38]と光重合[39,40]の両方を含むデュアルキュア型であることから、試験片を「光照射あり」と「光照射なし」の 2 通り

の硬化条件で作製できる。本研究において、ISO/TS 16506:2017[13]にて規定される2種の硬化条件（光照射あり，またはなし）で試験片を作製し，各種試験を実施したところ，とくに3点曲げ試験では，PC および IC で，「光照射の有無」によって，試験片厚さが曲げ強さにもたらす影響に差が認められた。Kim ら[15]によると，同条件で得られる SARC の圧縮強さ，間接引張強さ，ビッカース硬さは，各製品における高分子鎖の成長や架橋度に左右され，レドックス重合開始剤や光重合開始剤の種類に加えて，モノマーやフィラーの組成，また，それらの比率などが硬化機構に関連するとされている。このことから，各 SARC 製品の重合反応の設計が主にレドックス重合に重点を置いているか，あるいは光重合に重点を置いているかの違いが，曲げ試験において結果に明瞭な差異が生じた原因となっているものと考えられる。また，硬化後の経過時間の長さにより，SARC の重合度の度合いは異なり[41]，圧縮強さ，間接引張強さ，および微小硬さに違いが生じることが報告されている[15]。ただし，本研究の目的は，これらの異なる条件が SARC 製品の性能に及ぼす影響を比較・検討することではなく，規格化された条件下であれば，SARC 製品の性能を試験片の厚さに関係なく評価可能な新しい測定方法を開発することである。引張試験は，試験片の厚さに関係なく一定の引張強さを得られるという点で，本研究の目的を満たしているものと考えられた。

5. 小括

引張試験では、いずれの SARC においても、硬化様式（光照射の有無）にかかわらず、試験片の厚さを 0.4 mm, 0.2 mm, 0.05 mm と変化させても、得られる引張強さに有意差は認められなかった。また、引張試験では、試験片の厚さによって引張応力の分布傾向に違いが認められず、薄いセメント層として機能することを反映した薄膜状の SARC 試験片の機械的強さを評価する試験法として最も適していることが明らかとなった。

Ⅲ. (実験②) SARC の流動性評価法の開発

1. 目的

実験②では, SARC の流動性を評価する新しい方法を設計し, その有用性を検討した. すなわち, まず, クラウンを支台歯に装着する際に使用される SARC の体積, および支台歯被着表面積を測定し, SARC を用いてクラウンを装着する条件を規格化したうえで, SARC の流動性がクラウンの装着に適切か否かを判断するための方法を構築した.

2. 材料と方法

1) 被験材料

本実験では, 実験①で用いた 3 種のデュアルキュア型 SARC に加えて, 比較対照として, 85 wt%のフィラーを含む Bis-GMA/TEGDMA ベースの充填用コンポジットレジン (クリアフィル AP-X, クラレノリタケデンタル, 東京; 以下 AP とする) を使用した.

2) クラウン装着に使用される SARC 体積の測定

第一大臼歯の支台歯模型に対する CAD/CAM コンポジットレジン冠を作製

し、装着に必要な SARC 体積を測定した。

技工用スキャナー (D850, 3Shape, Copenhagen, Denmark) を用いて下顎第一大臼歯の CAD/CAM 冠用支台歯模型 (A55A-461, ニッシン, 京都) の光学印象を採得し、得られた印象データをもとに CAD ソフトウェア (DENTAL SYSTEM, 3Shape) でクラウンの設計を行った。セメントスペースは、清水ら [42] と新谷 [43] の報告を参考に、マージンラインから 1.0 mm までの帯状領域を 25 μ m, それ以外の領域を 40 μ m に設定した。加工データを NC ファイル形式で出力し (hyperDENT, FOLLOW-ME Technology, Munich, Germany), ミリング装置 (DWX-52DC, DGSHAPE, 静岡) で CAD/CAM 冠用コンポジットレジンブロック (カタナアベンシア P ブロック, クラレノリタケデンタル) を切削加工してクラウンを作製した。

作製したクラウンを支台歯模型 (A55A-461) に試適し、辺縁部の適合が良好であることを目視で確認した後、電子天秤 (Mettler Toledo, Columbus, OH, USA) を用いてクラウンと支台歯の合計重量 (m_1) を測定した。つづいて、メーカーの指示に従って練和した PC をクラウン内面に填入し、指圧で支台歯に圧接して装着した。溢出した PC を光照射器 (ペンキュアー2000) で 3～5 秒間照射して半硬化させた後、探針で除去し、再び照射器を用いて、装着したクラウンの頬側方向、および舌側方向からそれぞれ 10 秒ずつ光照射するこ

とで PC を硬化させた．その後，再び重量 (m_2) を測定し， m_2 と m_1 の差分をクラウン装着に使用した PC の重量として求めた．4 個の試料についてセメント重量を測定し，それらの平均値と PC の密度 (1.80 g/cm^3) から装着に使用した PC の体積を算出した．

また，実測実験とは別に，光学印象により得られた支台歯模型の CAD データに基づいて設計したクラウンの CAD データから，CAD ソフトウェア (FreeFormModeling, Ver.10, SensAble Technologies, Woburn, MA, USA) の機能を使ってセメント層のみの CAD データを作成し，その体積をセメント層の理論的な体積として求めた．

3) 支台歯の被着表面積の測定

2-2) で支台歯模型にクラウンを装着して作製した試料のクラウンと支台歯の間の PC の厚さを測定するため，頬舌面の長軸に沿って試料を切断した．粒度 #1200, #3000, #8000 の精密仕上げ用研磨フィルム (3M ラッピングフィルムシート, スリーエムジャパン, 東京) を順番に使用して切断面を研磨し，イオンスパッタ成膜装置 (MSP-1S, 真空デバイス, 水戸) で金パラジウムによるコーティングを施したうえ，走査型電子顕微鏡 (SU3500, 日立, 東京) を用いて 200 倍で観察した．得られた画像上で，咬合面と軸方向中央部のセメ

ント層の厚さを測定した。測定点数は、末瀬ら[44]の方法を参考に 1 試料あたり 6 点とした。末瀬らは、舌側・頬側の各軸面 2 点、咬合面 2 点の合計 6 点について計測している。本研究では、1 試料あたりの測定点は 6 点としつつも、軸面と咬合面での測定点数をそれぞれ 3 点としたうえで、隣り合う面の測定点数が同じとならないように、舌側・頬側の各軸面、咬合面の各斜面での測定点数を 2 点もしくは 1 点とした。また、それぞれの測定点は各面のセメントラインを等分する箇所に設定した。すなわち、咬合面については、舌側咬頭内斜面相当部のセメント層で、舌側面と咬合面の隅角から咬合面最深部までの間の $1/3$ と $2/3$ の部位、および頬側咬頭内斜面相当部のセメント層で、頬側面と咬合面の隅角から $1/2$ の部位の計 3 点で計測した。また、軸方向中央部については、頬側軸面のセメント層で、頬側面と咬合面の隅角から辺縁までの $1/3$ と $2/3$ の部位、および舌側軸面のセメント層で、舌側面と咬合面の隅角から辺縁までの $1/2$ の部位の計 3 点で厚さを計測した（図 19）。試験体は 3 個作製し、セメント層の平均厚さを求めた。

そして、上記のようにして得られたセメント層の平均厚さで、3-2) で求めた PC の体積を除算した値を支台歯の被着表面積とした。

4) SARC の流動性の評価

図 20 に流動性の測定方法の概略を示す。まず、平らで十分な面積を有するガラス板 1（厚さ 1.3 mm，幅 50 mm，長さ 50 mm）の中央部に，2-3）で求めたクラウンを装着するために使用される体積の SARC ペーストを置いた。ペースト量は，SARC を内径 3.15 mm のガラス製注射筒（インター注射筒 0.25 ml，翼工業，東京）に填入し，マイクロメーターヘッド（デジマチックマイクロメーターヘッド MHN-MX，ミットヨ，神奈川）で 2.11 mm 押し出す方法で規定した（図 21）。AP については，その高い粘性がゆえに注射筒からの押し出しが困難であるため，密度（ 2.30 g/cm^3 ，クラレノリタケデンタル提供）に基づき，電子天秤による重量測定にて，2-2）で求めた所要の体積に換算した。

被験材料の上に，2-3）で求めた支台歯の被着表面積に基づいて設定した接触面積を有する平坦で均一な厚さのガラス板 2（厚さ 5.7 mm，幅 12.8 mm，長さ 12.8 mm）を置き，上面の中央部に，クラウン装着時の手指での圧接力である 12.0 N[45]の荷重を負荷した。1 分間経過後，被験材料の広がりを目視で観察し，ガラス板 2 の下面全体に被験材料が広がっていれば「Pass」とし，広がっていなければ「Fail」と判定した。各材料につき 3 回の実験を行った。

3. 実験結果

1) クラウン装着に使用される SARC 体積

クラウン装着に使用された PC の重量は $29.6 \pm 1.60 \text{ mg}$ であり，クラウンを装着するために使用された PC の体積は $16.4 \pm 0.9 \text{ mm}^3$ （95%信頼区間：15.5～17.3 mm^3 ）であった．CAD ソフトウェアの機能を用いて求めた PC の理論的な体積は 16.3 mm^3 であり，実測による計算値とほぼ同一であった．

2) 支台歯の被着表面積

表 2 にセメント層厚さの測定結果を示す．咬合面における PC の平均厚さは $136 \text{ }\mu\text{m}$ （標準偏差：63.2， $n=3$ ），軸方向中央部における PC の平均厚さは $62.1 \text{ }\mu\text{m}$ （標準偏差：31.9， $n=3$ ）であった．これらの試験体 3 個，計 18 か所の計測点の平均厚さは， $99.1 \text{ }\mu\text{m}$ （標準偏差：43.4）であった．全計測点の平均値である $99.1 \text{ }\mu\text{m}$ をもとに算出した支台歯の被着表面積は， 165 mm^2 となった．

2) SARC の流動性の評価結果

図 22 に流動性の評価結果を示す．PC および IC は，ガラス板 2 の下面全体に広がり，余剰セメントが溢出したことから，3 回とも「Pass」となった．BC は，溢出した余剰セメントの量は少なかったものの，ガラス板 2 の下面全体にセメントが広がっていたため，3 回とも「Pass」となった．これらに対し，

AP は、ガラス板 2 の下面全体に十分に広がらなかったため、3 回とも「Fail」
となった。

4. 考察

Ling ら[14]は、ISO 4823: 1992 “Dentistry —Elastomeric impression and bite registration materials”[25]を参考に、ガラス板の間に 0.3 ± 0.01 g の被験体を置き、120 g の荷重を 1 分間負荷して 6 種の SARC の稠度を測定し、 2.70 ± 0.0 cm から 2.87 ± 0.04 cm の拡がりを見せたと報告している。また、Van Meerbeek ら[23]は、接着成分を含まない 13 種のコンポジットレジン系レジンセメントの稠度を、ガラス板の間に 0.5 ml の被験体を置き、120 g の荷重を負荷して広がった被験体の直径を測定する方法[27]にて求め、最小 18 mm、最大 43 mm であったと報告している。これらの方法は、製品間の流動性の比較には有効であるものの、臨床での操作における流動性の適否、すなわち、被験セメントが補綴物と支台歯の間全体に均一に広がり、余剰セメントが流れ出る特性を有しているかどうかを判断できるものではない。一方 Zeller ら[46]は、3 種の SARC と 3 種のコンポジットレジン系レジンセメントについて練和後の動的粘弾性の測定を行い、経時的な貯蔵弾性率と損失弾性率の変化を検討している。この結果からは、レジンセメントの化学硬化が進行する過程における流動性の変化の比較はできるものの、前

述の稠度測定の場合と同じく、臨床操作における流動特性の適否を判断できるものではない。本研究では、実際のクラウンを支台歯に装着する操作における SARC の体積、および支台歯の被着表面積を定量し、それらの数値に基づいて、クラウンを支台歯に装着する操作を規格化することにより、SARC の流動性を簡便かつ適切に評価する新しい方法を考案した。

下顎第一大臼歯の支台歯模型と、この支台歯の光学印象データをもとに作製した CAD/CAM クラウンの装着に使用される PC の体積は $16.4 \pm 0.9 \text{ mm}^3$ と求められ、95%信頼区間は $15.5 \sim 17.3 \text{ mm}^3$ であった。使用した SARC はすべて手練和の必要がないオートミックスタイプであり、練和時の気泡混入の可能性は低い。また、CAD/CAM クラウンの装着にあたり十分な量の SARC を塗布しており、走査型電子顕微鏡による測定においても、気泡はほとんど観察されなかったことから、この数値は十分に信頼性が高いものと判断される。さらに、CAD ソフトウェアの機能を用いて求めた PC の理論的な体積は 16.3 mm^3 であり、実験で得た数値の 95%信頼区間の範囲に収まったことから、クラウンの装着に使用される PC の体積を 16.4 mm^3 とすることは妥当であると考えた。

つづいて、PC の体積をセメント層の厚さで除算して支台歯の被着表面積を求めるために、支台歯模型に指圧でクラウンを装着した試料のセメント層の厚さを測定したところ、平均厚さは $99.1 \mu\text{m}$ であった。本研究で作製したクラウンで

は、マージンラインを基準として、1.0 mm 以下の帯状領域以外のクラウン内面に 40 μm のセメントスペースを設定した。これは、清水ら[42]が、クラウン内面に 0, 30, 60, 90, 120 μm のセメントスペースをそれぞれ付与した場合の適合性を評価し、セメントスペースが 30 μm 以下ではクラウンの浮き上がり量が大きくなる傾向を示し、90 μm 以上では両側軸面で支台歯への復位再現性が低くなる傾向を報告していることに基づいての設定である。なお、マージン部とマージンから上部数ミリ領域のセメントスペースを少なめに設定することで、保持力が向上するとの報告[43]を参考に、マージンラインを基準として、1.0 mm 以下の帯状領域のセメントスペースについては 25 μm とした。一方、15 名の歯科医師（男性 9 名、女性 6 名）を対象に、模型のクラウンを支台歯に指圧で装着するために要した荷重を測定した Zortuk ら[45]の報告では、最小荷重が 12 N、最大荷重が 67 N であったとされている。さらに Owitayakul ら[30]は、2 種のレジンセメントを用いて支台歯模型にジルコニアクラウンを 50.0 N の圧で装着した場合、セメント層の厚さが 28.0~208 μm となったことを報告している。クラウンを指圧で装着した本研究でのセメント層の平均厚さが 99.1 μm であったことは、これらの結果とも齟齬がなく、クラウンを装着するために使用された PC の体積 16.4 mm³ をこの値で除算することで、支台歯の被着表面積を 165 mm² と定義することは適正であるものと考えられた。

前述の結果を踏まえ、本研究では、臨床におけるクラウン装着の操作を標準化した SARC 流動性の評価方法を設計した。すなわち、まず、平らで十分な面積を有するガラス板 1 の中央部に、クラウン装着に使用される体積 16.4 mm^3 の SARC ペーストを置く。ペースト量は、SARC をガラス製の注射筒に填入し、マイクロメーターヘッドで押し出す方法で規定するが、この方法で得られる SARC ペーストの体積に製品間で有意差は認められず、十分に高い精度を有していることが分かっている[47]。次に、被験体の上に支台歯の被着表面積に基づいて接触面積を 165 mm^2 に設定したガラス板 2 を置き、その上面中央部に 12.0 N の荷重を 1 分間負荷して押し広げ、ガラス板 2 の下面全体に被験材料が広がるかどうかを判定する。SARC の硬化が開始する前に流動性の評価を終える必要があるため、今回は、使用した SARC のうち最も短い操作時間、すなわち 1 分間を荷重負荷時間とした。また、 12.0 N の荷重は、前述した Zortuk ら[45]が報告した、クラウンを装着するために必要であった荷重範囲の最小値として設定しており、セメントの広がりが最も少なくなる厳しい条件としているため、評価方法として妥当であるものと判断できる。

本実験では、粘性が高く、セメント用途に適さないユニバーサルタイプの充填用コンポジットレジン[48–50]を比較対照として使用した。しかし、ISO 4049:2019[8]の対象である接着成分を含まないコンポジットレジン系のレジン

セメント[23]にも、本試験方法の適用が可能であると考えられ、この点についてはさらに検討を進めているところである。また、近年は、流動性の高い充填用のフロアブルコンポジットレジン[®]のセメント用途への使用が検討され[51,52]、CLEARFIL MAJESTY ES Flow（クラレノリタケデンタル）や G-ænial Universal Flo（ジーシー、東京）等の製品は、使用目的にセメント用途も含み、臨床における症例も報告されている[53]。フロアブルコンポジットレジンについては、ハイフロータイプやローフロータイプ等、さまざまな流動性のものが上市されており[52]、それらがセメント用途に適しているか否かの判断に対しても、本研究で開発した方法が応用できる可能性があり、適用範囲の拡大に向けて、試験方法のさらなる改良に取り組んでいきたいと考えている。

5. 小括

クラウンを支台歯に装着する際に使用される SARC の体積、および支台歯被着表面積を規定し、クラウンを装着する条件を規格化した SARC の流動性評価法を設計したところ、SARC を「Pass」、充填用コンポジットレジン[®]を「Fail」と識別することができ、SARC の流動性がクラウンの装着に適切か否かを判断するための新たな評価方法の開発に成功した。

V. 結 論

薄膜状 SARC 試験片を用いて 3 点曲げ試験，せん断試験，ならびに引張試験を行った結果，たわみや厚さの影響を受けないという点で，引張試験が SARC の機械的強さの評価に有用であることが明らかとなった．また，SARC の流動性が補綴物の装着に適するか否かを評価する方法として，支台歯の被着表面積を考慮に入れた新たな方法を確立した．以上のように，本研究において，臨床での使用条件を反映した，より臨床的意義の大きい SARC の機械的強さと流動性の評価方法の開発に成功した．

VI. 謝 辞

稿を終えるにあたり，本研究の機会を与えていただき，御指導と御高配を賜りました大阪大学大学院歯学研究科歯科生体材料学講座の今里 聡教授に対し，深甚なる謝意を表します．

また，本研究の遂行にあたり，終始様々な御指導をいただきました大阪大学大学院歯学研究科歯科生体材料学講座の山口 哲准教授に心より感謝申し上げます．さらに，本研究を行うに際し多大なる御助言を頂きました ISO/TC 106/SC 1/WG 15 国内委員会分科会の橋本 隆様に厚く御礼申し上げます．

最後に，本研究を行うに際し，終始ご理解と多大なるご協力を頂きました大阪大学大学院歯学研究科歯科生体材料学講座の教室員各位ならびにクラレノリ タケデンタル株式会社の山口里志代表取締役社長，有川清之最高技術責任者，中塚和光氏および檜木信介氏に厚く御礼申し上げます．

VII. 参 考 文 献

- [1] Radovic I, Monticelli F, Goracci C, Vulicevic ZR, Ferrari M. Self-adhesive resin cements: a literature review. *J Adhes Dent* 10(4): 251-258, 2008.
- [2] Ferracane JL, Stansbury JW, Burke FJT. Self-adhesive resin cements - chemistry, properties and clinical considerations. *J Oral Rehabil* 38(4): 295-314, 2011.
- [3] Manso AP, Carvalho RM. Dental cements for luting and bonding restorations: self-adhesive resin cements. *Dent Clin North Am* 61(4): 821-834, 2017.
- [4] Brondani LP, Pereira-Cenci T, Wandsher VF, Pereira GK, Valandro LF, Bergoli CD. Longevity of metal-ceramic crowns cemented with self-adhesive resin cement: a prospective clinical study. *Braz Oral Res* 31(e22): 1-6, 2017.
- [5] 接着・合着材料. 歯科機器・用品年鑑 2022 年版 (32 版) . アール アンド デイ, p.180-184, 2022.
- [6] ISO/TS16506:2017. Dentistry —Polymer-based luting materials containing adhesive components. Geneva: Switzerland: The International Organization for Standardization; 2017.
- [7] Piwowarczyk A, Lauer H-C. Mechanical properties of luting cements after water storage. *Oper Dent* 28(5): 535-542, 2003.
- [8] ISO4049:2019. Dentistry —Polymer-based restorative materials. Geneva:

Switzerland: The International Organization for Standardization; 2019.

- [9] 大澤純子, 新谷明幸, 割田研司. 小臼歯部における全部鑄造冠の適合について. 昭歯誌 18(4): 366-375, 1998.
- [10] Boitelle P, Mawussi B, Tapie L, Fromentin O. A systematic review of CAD/CAM fit restoration evaluations. J Oral Rehabil 41(11): 853-874, 2014.
- [11] Schittly E, Le Goff S, Besnault C, Sadoun M, Ruse N. Effect of water storage on the flexural strength of four self-etching adhesive resin cements and on the dentin-titanium shear bond strength mediated by them. Oper Dent 39(4): E171-E177, 2010.
- [12] Nakamura T, Wakabayashi K, Kinuta S, Nishida H, Miyamae M, Yatani H. Mechanical properties of new self-adhesive resin-based cement. J Prosthodont Res 54(2): 59-64, 2010.
- [13] Furuichi T, Takamizawa T, Tsujimoto A, Miyazaki M, Barkmeier W, Latta M. Mechanical properties and sliding-impact wear resistance of self-adhesive resin cements. Oper Dent 41(3): E83-E92, 2016.
- [14] Ling L, Ma Y, Chen Y, Malyala R. Physical, mechanical, and adhesive properties of novel self-adhesive resin cement. Int J Dent 2022: 1-8, 2022.
- [15] Kim A-R, Jeon Y-C, Jeong C-M, Yun M-J, Choi JW, Kwon YH, HUH J-B. Effect of activation modes on the compressive strength, diametral tensile strength and

- microhardness of dual-cured self-adhesive resin cements. *Dent Mater J* 35(2): 298-308, 2016.
- [16] 江田義和, 長沢悠子, 重田浩貴, 松本篤樹, 日比野 靖, 中畠 裕. 光照射がセルフアドヒーシブレジンセメントのせん断強さに及ぼす影響. *日歯理工誌* 38(1): 41-51, 2019.
- [17] Roydhouse RH. Punch-shear test for dental purposes. *J Dent Res* 49(1): 131–136, 1970.
- [18] Mount GJ, Makinson OF, Peters MCRB. The strength of auto-cured and light-cured materials. The shear punch test. *Aust Dent J* 41(2): 118-123, 1996.
- [19] Yamazaki A, Hibino Y, Honda M, Nagasawa Y, Hasegawa Y, Omatsu J, Nakajima H. Effect of water on shear strength of glass ionomer cements for luting. *Dent Mater J* 26(5): 708-712, 2007.
- [20] 江田義和, 長沢悠子, 重田浩貴, 岡本和彦, 日比野 靖, 中畠 裕. 接着・合着用セメントの打ち抜きせん断試験用試料厚さがせん断強さに及ぼす影響. *日歯理工誌* 39(3): 254-268, 2020.
- [21] ISO 1566:1978. Dentistry —Dental zinc phosphate cement. Geneva: Switzerland: The International Organization for Standardization; 1978.
- [22] American Dental Association Specification No. 8 for Zinc Phosphate Cement.

American National Standard Z156.8, p.187-191, 1970.

- [23] Van Meerbeek B, Inokoshi S, Davidson CL, Gee AJ, Lambrechts P, Braem M, Vanherle G. Dual cure luting composites? Part II: Clinically related properties. *J Oral Rehabil* 21(1): 57-66, 1994.
- [24] Bagheri R. Film thickness and flow properties of resin-based cements at different temperatures. *J Dent Shiraz Univ Med Sci* 14(2): 57-63, 2013.
- [25] ISO 4823: 1992 Dentistry — Elastomeric impression and bite registration materials. Geneva: Switzerland: The International Organization for Standardization; 1992.
- [26] ASTM International. Standard test method for shear strength of plastics by punch tool. West Conshohocken, Pittsburgh, 2017.
- [27] Bedran-Russo AKB, Pereira PNR, Duarte WR, Drummond JL, Yamauchi M. Application of crosslinkers to dentin collagen enhances the ultimate tensile strength. *J Biomed Mater Res Part B: Appl Biomater* 80B(1): 268-272, 2007.
- [28] Fujishima A, Ikeda K, Aoyama M, Miyazaki T, Sasa R, Ferracane JL. Durability of resin-modified glass ionomer cements after long term water immersion. *J Showa Univ Dent Soc* 21(1): 178-185, 2001.
- [29] Yamaguchi S, Katsumoto Y, Hayashi K, Aoki M, Kunikata M, Nakase Y, Lee C, Imazato S. Fracture origin and crack propagation of CAD/CAM composite crowns

- by combining of in vitro and in silico approaches. *J Mech Behav of Biomed Mater* 112: 104083, 2020.
- [30] Owitayakul D, Lertrid W, Anatamana C, Pittayachawan P. The comparison of the marginal gaps of zirconia framework luted with different types of phosphate based-resin cements. *Mahidol Dent J* 35(3): 237-251, 2015.
- [31] ISO/TS 11405: 2015. Dentistry —Testing of adhesion to tooth structure. Geneva: Switzerland: The International Organization for Standardization; 2015.
- [32] Sano H, Shono T, Sonoda H, Takatsu T, Ciucchi B, Carvalho R, Pashley DH. Relationship between surface area for adhesion and tensile bond strength — evaluation of a micro-tensile bond test. *Dent Mater* 10(4): 236-240, 1994.
- [33] Phrukkanon S, Burrow MF, Tyas MJ. The influence of cross-sectional shape and surface area on the microtensile bond test. *Dent Mater* 14(3): 212-221, 1998.
- [34] 佐野英彦. The microtensile bond test. 日本接着歯学会. 学会設立 35 周年記念誌, p.109-110, 2018.
- [35] Van Meerbeek B, Peumans M, Poitevin A, Mine A, Van Ende A, Neves A, De Munck J. Relationship between bond-strength tests and clinical outcomes. *Dent Mater* 26(2): e100-e121, 2010.
- [36] Sano H, Chowdhury AFMA, Saikaew P, Matsumoto M, Hoshika S, Yamauti M. The

- microtensile bond strength test: Its historical background and application to bond testing. *Jpn Dent Sci Rev* 56: 24-31, 2020.
- [37] 佐野英彦, 松本真理子, 星加修平, ヤマウチモニカ. Microtensile bond strength 試験法. *日歯保存誌* 65(1): 1-8, 2022.
- [38] Moszner N, Salz U. Recent developments of new components for dental adhesives and composites. *Macromol Mater Eng* 292(3): 245-271, 2007.
- [39] Santini A, Gallegos IT, Felix CM. Photoinitiators in dentistry: a review. *Prim Dent J* 2(4): 30-33, 2013.
- [40] Singh S, Rajkumar B, Gupta V, Bhatt A. Current photo-initiators in dental materials. *Int J Appl Dent Sci* 3(1): 17-20, 2017.
- [41] Shim JS, Kang JK, Jha N, Ryu JJ. Polymerization mode of self-adhesive, dual-cured dental resin cements light cured through various restorative materials: polymerization aspects of resin cements. *J Esthet Restor Dent* 29(3): 209-214, 2017.
- [42] 清水沙久良, 新谷明一, 黒田聡一, 五味治徳. セメントスペースの設定値が CAD/CAM レジンクラウンの適合に及ぼす影響. *日歯理工誌* 35(2): 108, 2016.
- [43] 新谷明一. デジタルデンティストリーにおけるクラウンブリッジの適合について. *日補綴会誌* 10(3): 224-229, 2018.

- [44] 末瀬一彦, 岩井啓三, 角田 淳, 大塚 潔, 坂井田藤芳, 川添堯彬. 純チタン・クラウンの補綴学的考察. 補綴誌 28(5): 860-867, 1984.
- [45] Zortuk M, Bolpaca P, Kilic K, Ozdemir E, Aguloglu S. Effects of finger pressure applied by dentists during cementation of all-ceramic crowns. Eur J Dent 4(4): 383-388, 2010.
- [46] Zeller DK, Fischer J, Rohr N. Viscous behavior of resin composite cements. Dent Mater J 40(1): 253-259, 2021.
- [47] Kawashima M, Yamaguchi S, Mine A, Imazato S. Volume-based sampling of resin cements for new consistency evaluation test. Proc IDMC2022, p.151, 2022.
- [48] Dionysopoulos D, Tolidis K, Gerasimou P, Koliniotou-Koumpia E. Effect of preheating on the film thickness of contemporary composite restorative materials. J Dent Sci 9(4): 313-319, 2014.
- [49] Magne P, Razaghy M, Carvalho MA, Soares LM. Luting of inlays, onlays, and overlays with preheated restorative composite resin does not prevent seating accuracy. Int J Esthet Dent 13(3): 318-332, 2018.
- [50] Poubel DLN, Zanon AEG, Almeida JCF, Rezende LVML, Garcia FCP. Composite resin preheating techniques for cementation of indirect restorations. Int J Biomater 2022: Article ID 5935668, 2022.

- [51] Spazzin AO, Guarda GB, Oliveira-Ogliari A, Leal FB, Correr-Sobrinho L, Moraes RR. Strengthening of porcelain provided by resin cements and flowable composites. *Oper Dent* 41(2): 179-188, 2016.
- [52] Moon PC, Tabassian MS, Culbreath TE. Flow characteristics and film thickness of flowable resin composites. *Oper Dent* 27(3): 248-253. 2002.
- [53] Helvey GA. Creating super dentin: using flowable composites as luting agents to help prevent secondary caries. *Compend Contin Educ Dent* 34(4): 288-300, 2013.

IX. 図 表

表 1 実験に使用した自己接着性レジンセメント

材料	略号	製造社		モノマー	ファイラー	ファイラー含有率 (wt%)	ファイラー粒子径 (μm)
PANAVIA SA CEMENT Plus Automix	PC	クラレ ノリタケ	ペースト A	10-メタクリロイルオキシデシル ジハイドロジェンホスフェート, Bis-GMA, TEGDMA, 疎水性芳 香族ジメタクリレート, HEMA	シラン処理バリウムガラスファイ ラー, シラン処理超微粒子シリ カファイラー	約 63	0.02~20
				疎水性芳香族ジメタクリレート, 疎水性脂肪族ジメタクリレート	シラン処理バリウムガラスファイ ラー, 表面処理フッ化ナトリ ウム		
		デンタル	ペースト B				
iCEM Self Adhesive	IC	KULZER		酸性基導入ウレタン, ジアクリレ ートモノマー, トリアクリレート モノマー, マルチアクリレートモノ マー	ガラスファイラー (平均粒径 3.8 μm), 超微粒子シリカファイラ ー (平均粒径 16 nm)	49	—
BisCem	BC	BISCO	ベース	Bis-GMA, その他	ガラスファイラー, 超微粒子シリ カファイラー	60	0.02~5
			キャタ リスト	[2-(メタクリロイルオキシ)エ チル] リン酸, ビス (グリセリ ル 1,3-ジメタクリレート) リン 酸, HEMA	ガラスファイラー, 超微粒子シリ カファイラー	62	

Bis-GMA : ビスフェノール A ジグリシジル メタクリレート, TEGDMA : トリエチレングリコールジメタクリレート,

HEMA : 2-ヒドロキシエチルメタクリレート



図 1. 3 点曲げ試験の試験片作製のステンレス製金型
サイズ：幅 2.0 mm，長さ 25 mm，厚さは左から順に 2.0, 1.0, 0.5 mm.

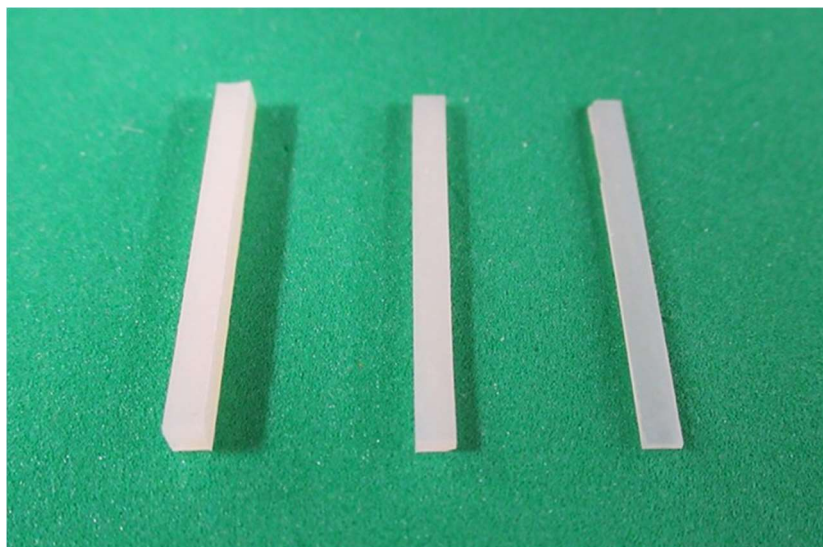


図 2. 3 点曲げ試験の試験片
サイズ：幅 2.0 mm, 長さ 25 mm, 厚さは左から順に 2.0, 1.0, 0.5 mm.

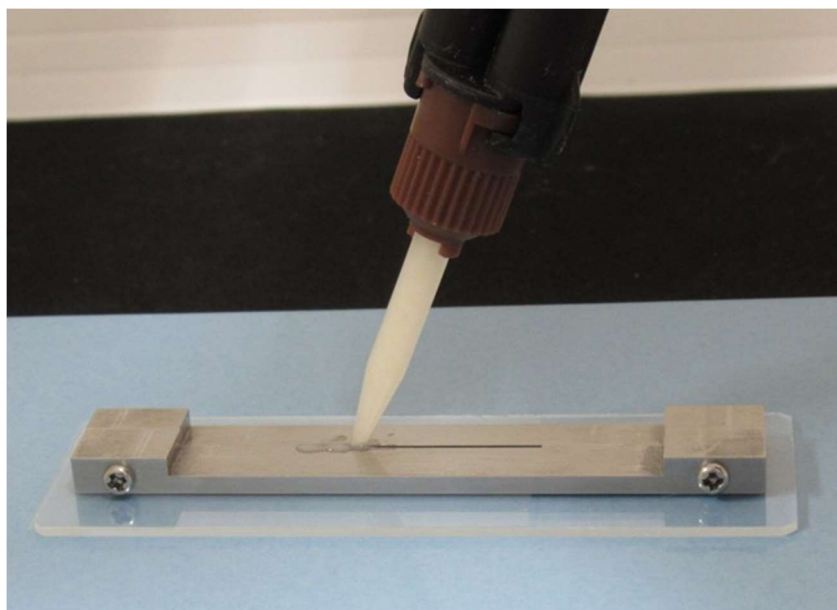


図 3. 3 点曲げ試験の試験片作製用のステンレス製金型
(サイズ : 幅 2.0 mm, 長さ 25 mm, 厚さ 0.5 mm)
に SARC を充填している様子

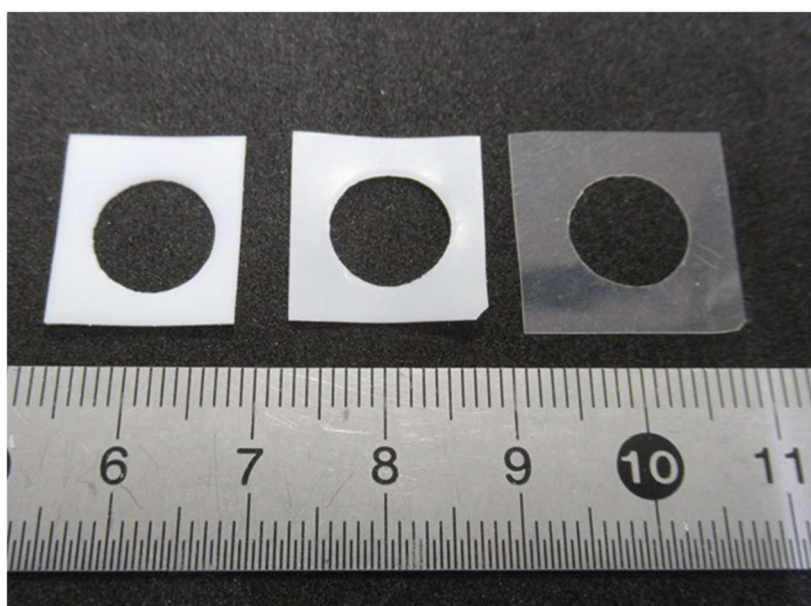


図 4. せん断試験の試験片作製の樹脂製モールド
サイズ：直径 10 mm，厚さは左から順に 0.4, 0.2, 0.05 mm
(厚さ 0.4 mm と 0.2 mm：ポリテトラフルオロエチレン製，
厚さ 0.05 mm：ポリエステル製)．

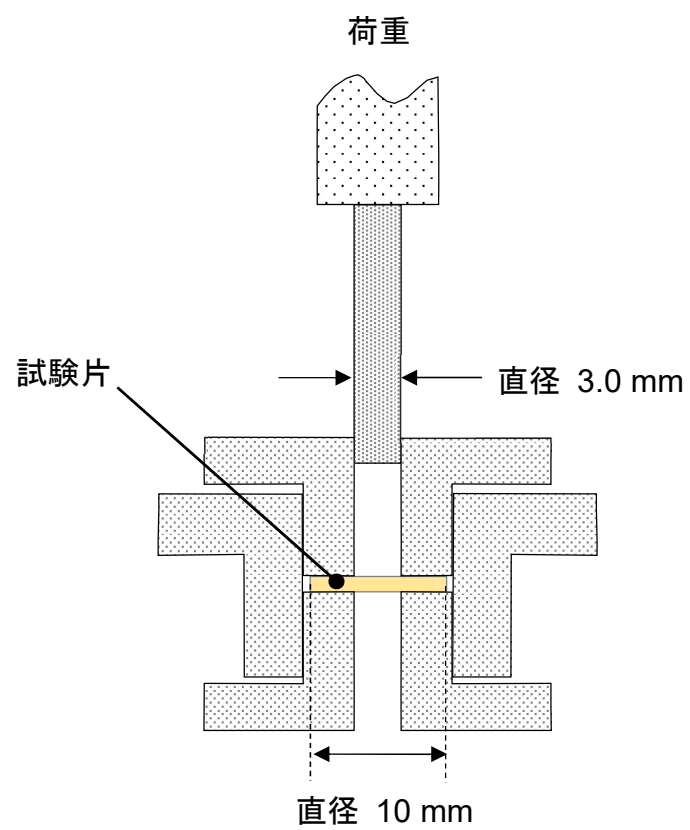


図 5. せん断試験の概略

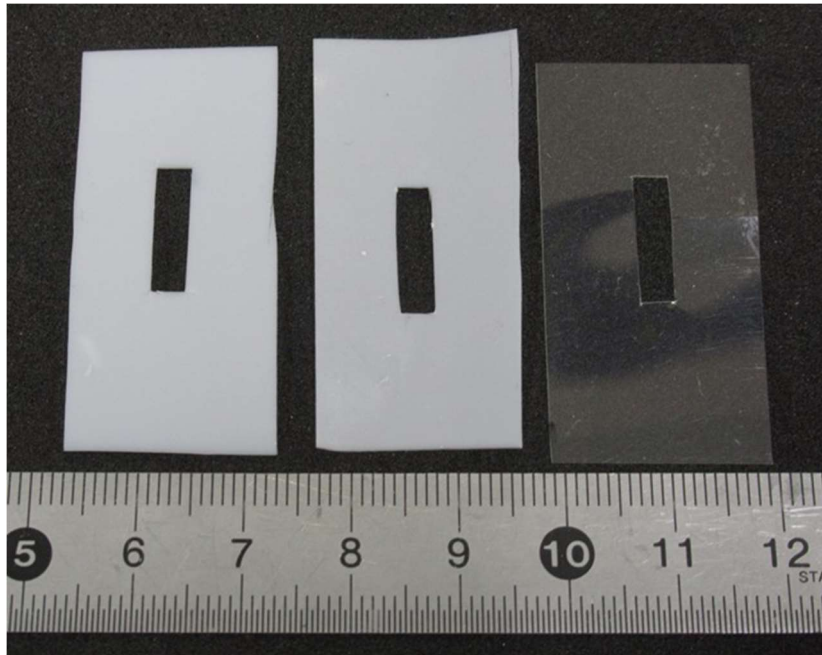


図 6. 引張試験の試験片作製の樹脂製モールド
サイズ：幅 3.0 mm, 長さ 13.2 mm,
厚さは左から順に 0.4, 0.2, 0.05 mm
(厚さ 0.4 mm と 0.2 mm : ポリテトラフルオロエチレン製,
厚さ 0.05 mm : ポリエステル製).

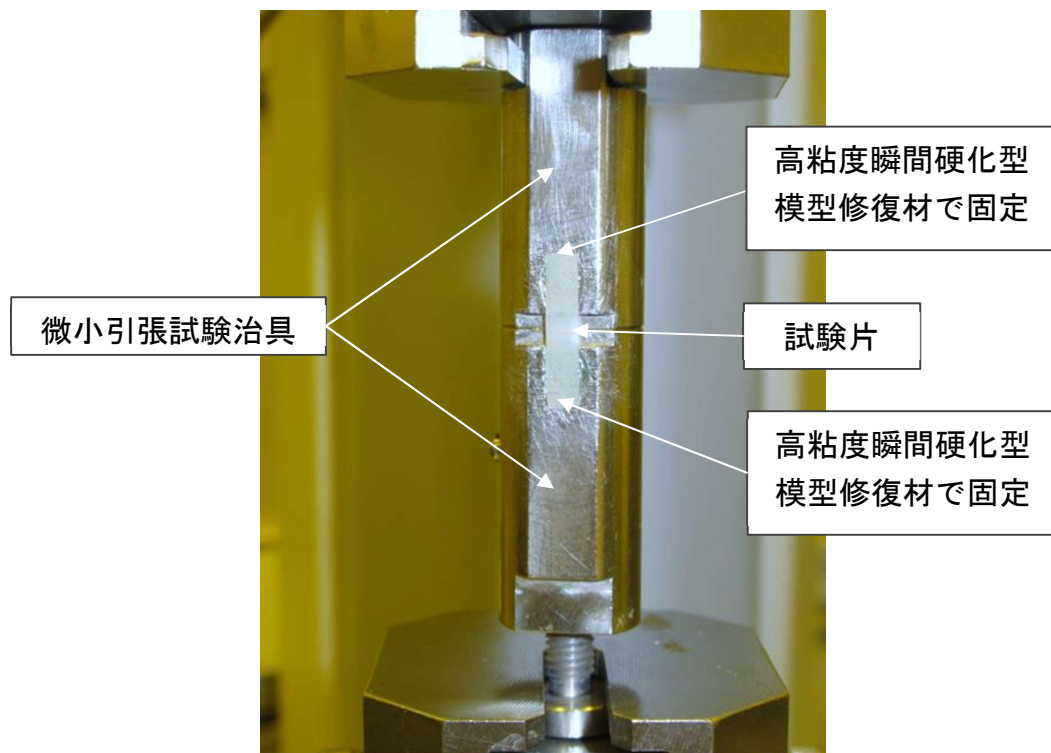
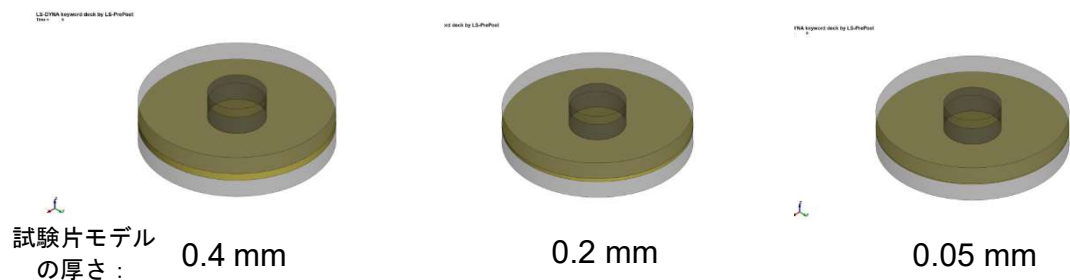


図 7. 引張試験片を微小引張試験治具に固定し、
万能卓上試験機に設置した状態

せん断解析



引張解析

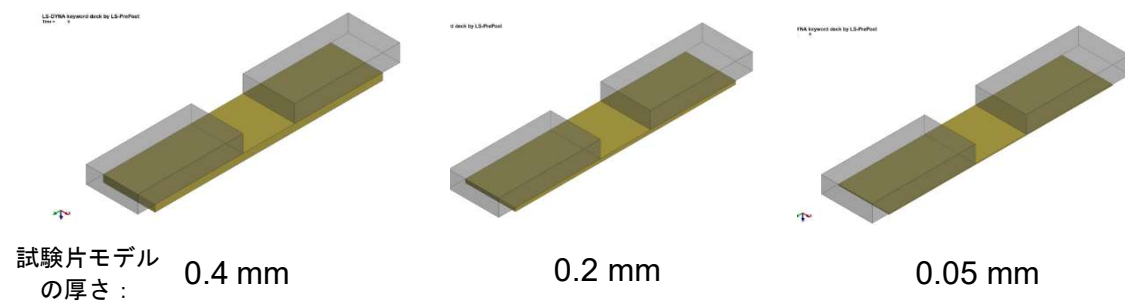
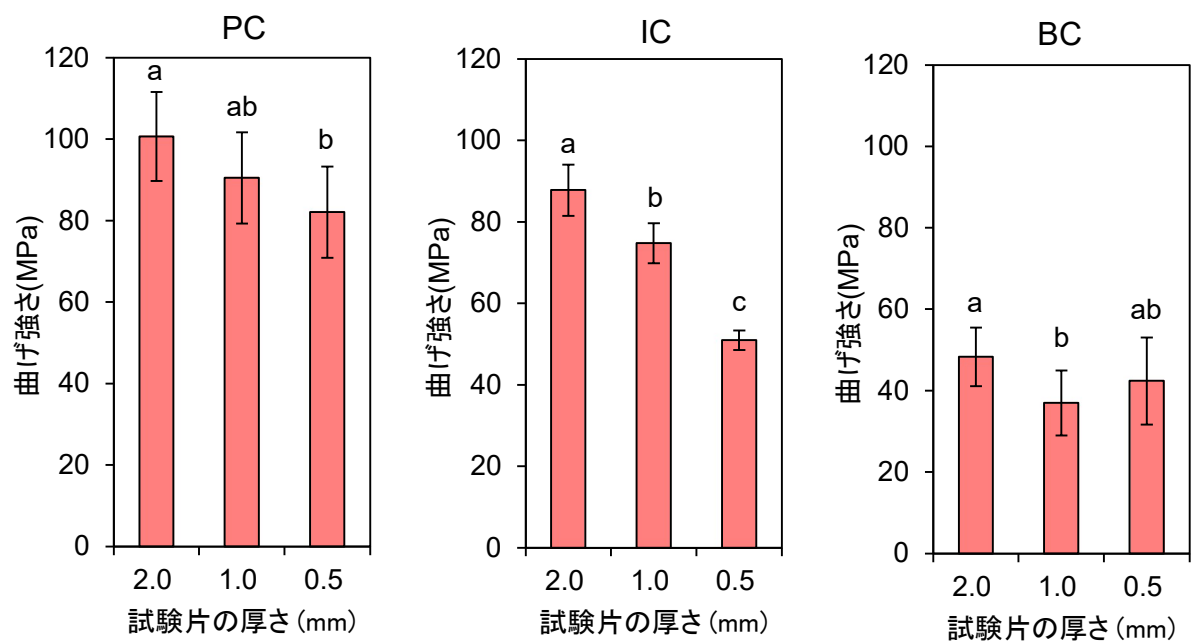
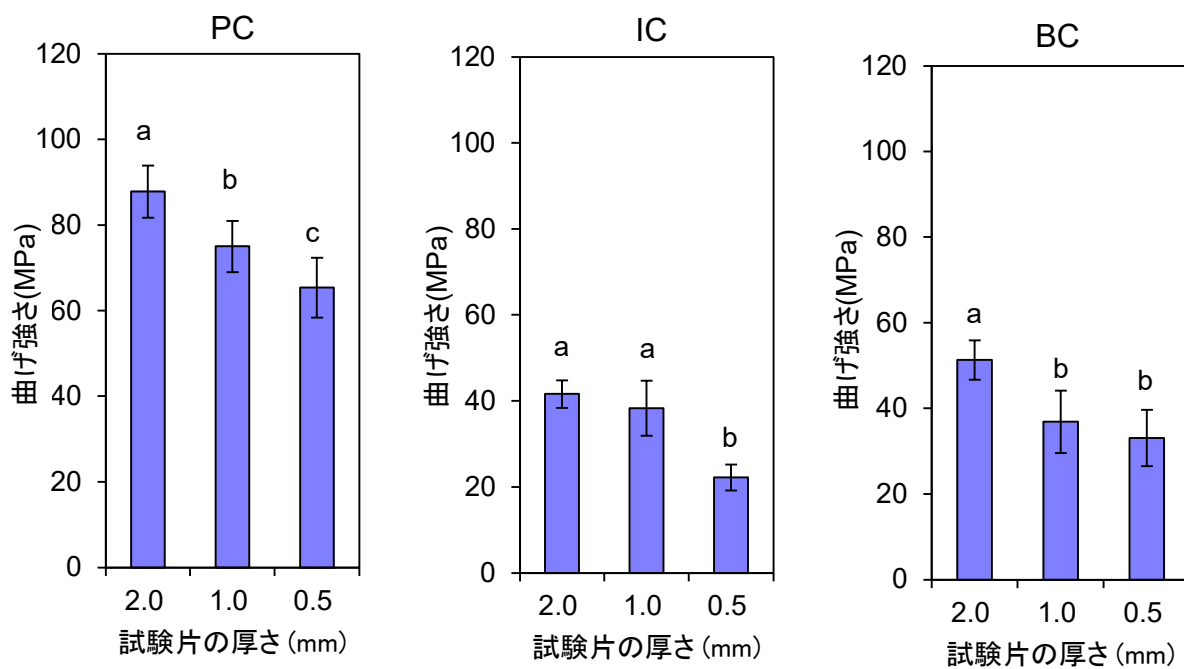


図 8. せん断解析と引張解析に用いた有限要素解析モデル
(黄土色：試料，半透明：治具)



各製品において同一アルファベット間に有意差認めず
 ($\alpha=0.05$, ANOVA and Tukey's test)

図 9. 試験片厚さを変化させた場合の光照射あり群の曲げ強さ



各製品において同一アルファベット間に有意差認めず
($\alpha=0.05$, ANOVA and Tukey's test)

図 10. 試験片厚さを変化させた場合の光照射なし群の曲げ強さ

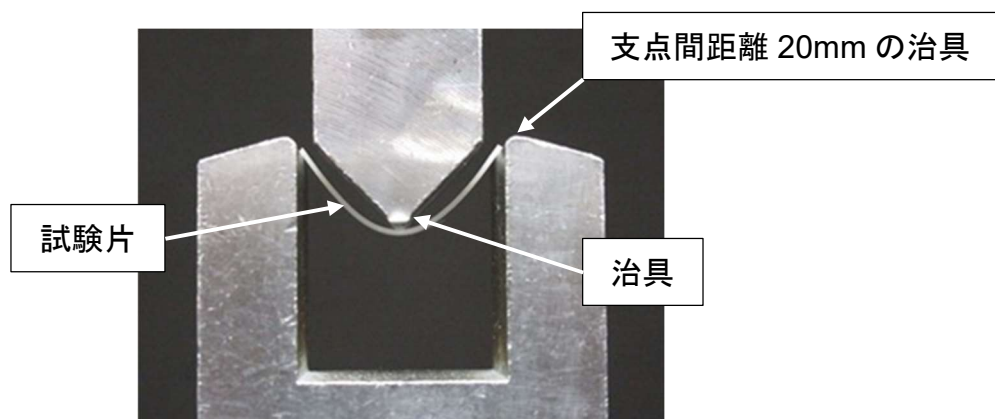
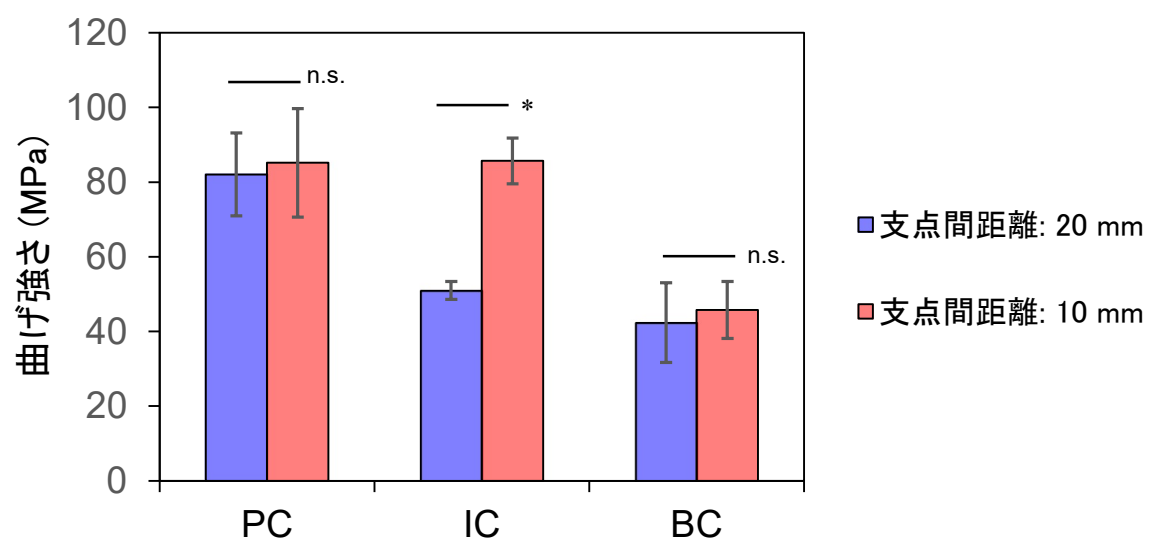


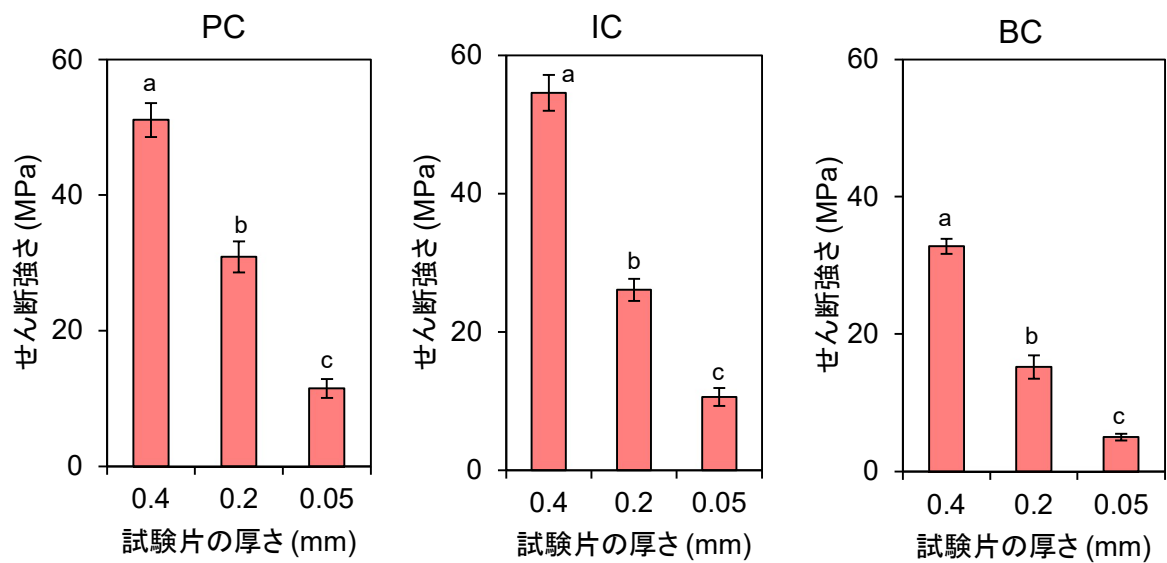
図 11. 厚さ 0.5 mm の IC 試験片（光照射あり）の
曲げ試験中（支点間距離：20 mm）の様子



*: $p < 0.05$, Student's t -test.

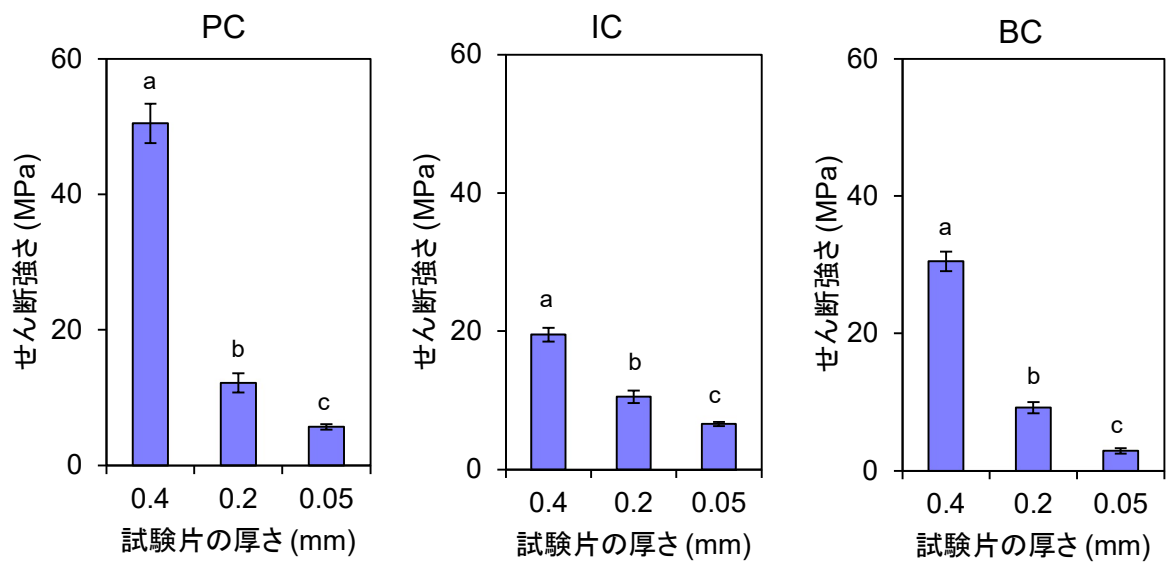
n.s.: 有意差無し ($p > 0.05$).

図 12. 異なる支点間距離での曲げ強さ



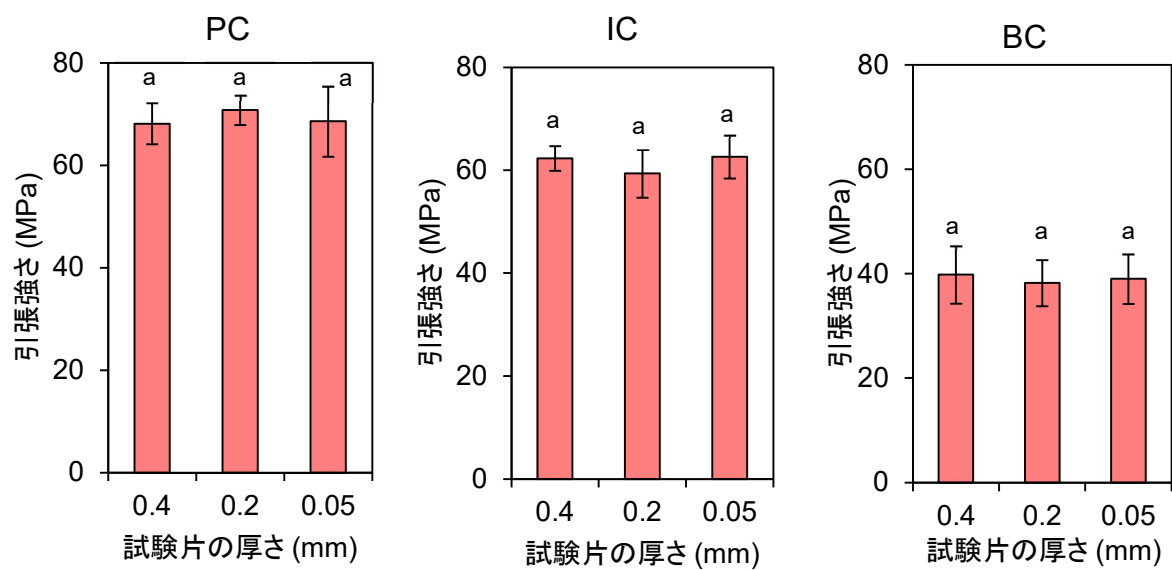
同一アルファベット間に有意差認めず
($\alpha=0.05$, ANOVA and Tukey's test)

図 13. 試験片厚さを変化させた場合の光照射あり群のせん断強さ



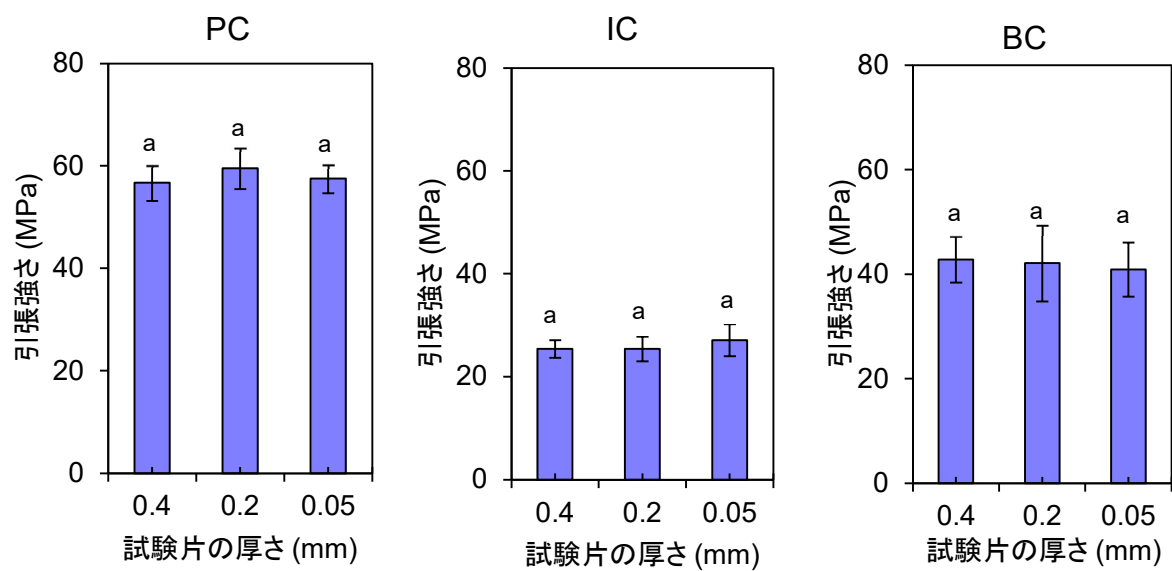
同一アルファベット間に有意差認めず
($\alpha=0.05$, ANOVA and Tukey's test)

図 14. 試験片厚さを変化させた場合の光照射なし群のせん断強さ



同一アルファベット間に有意差認めず
 ($\alpha=0.05$, ANOVA and Tukey's test)

図 15. 試験片厚さを変化させた場合の光照射あり群の引張強さ



同一アルファベット間に有意差認めず
 ($\alpha=0.05$, ANOVA and Tukey's test)

図 16. 試験片厚さを変化させた場合の光照射なし群の引張強さ

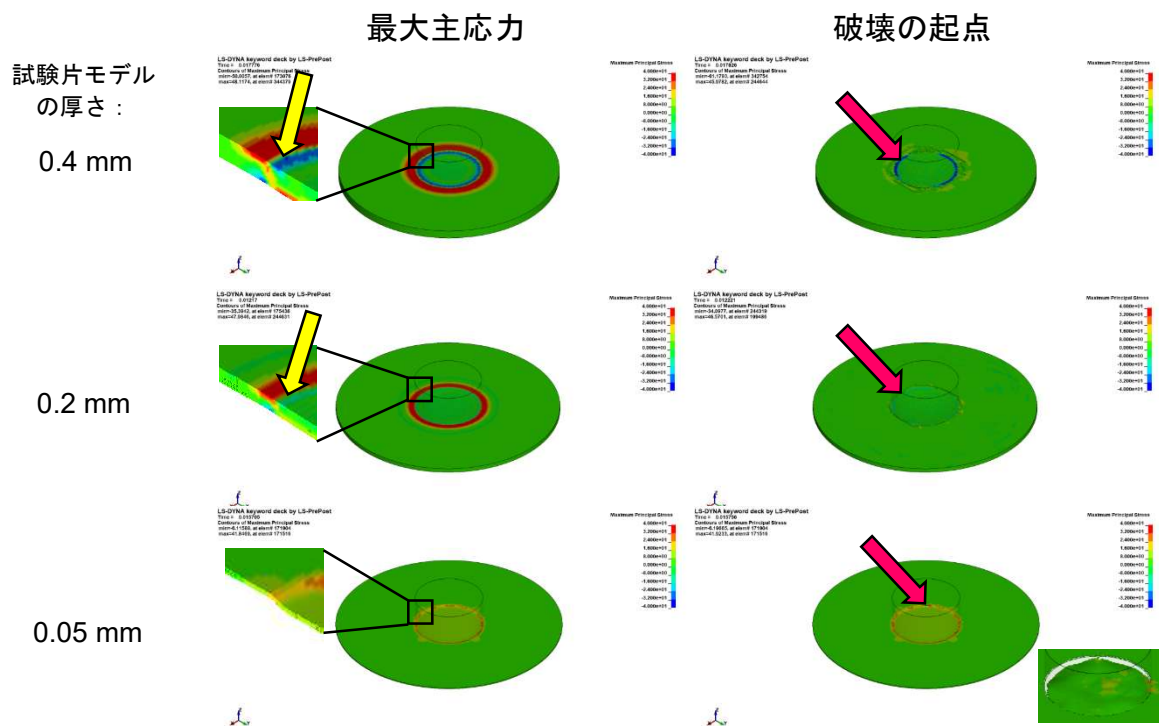


図 17. 非線形動的有限要素法によるせん断解析の結果
黄色矢印：応力の集中部位，赤色矢印：破壊の起点

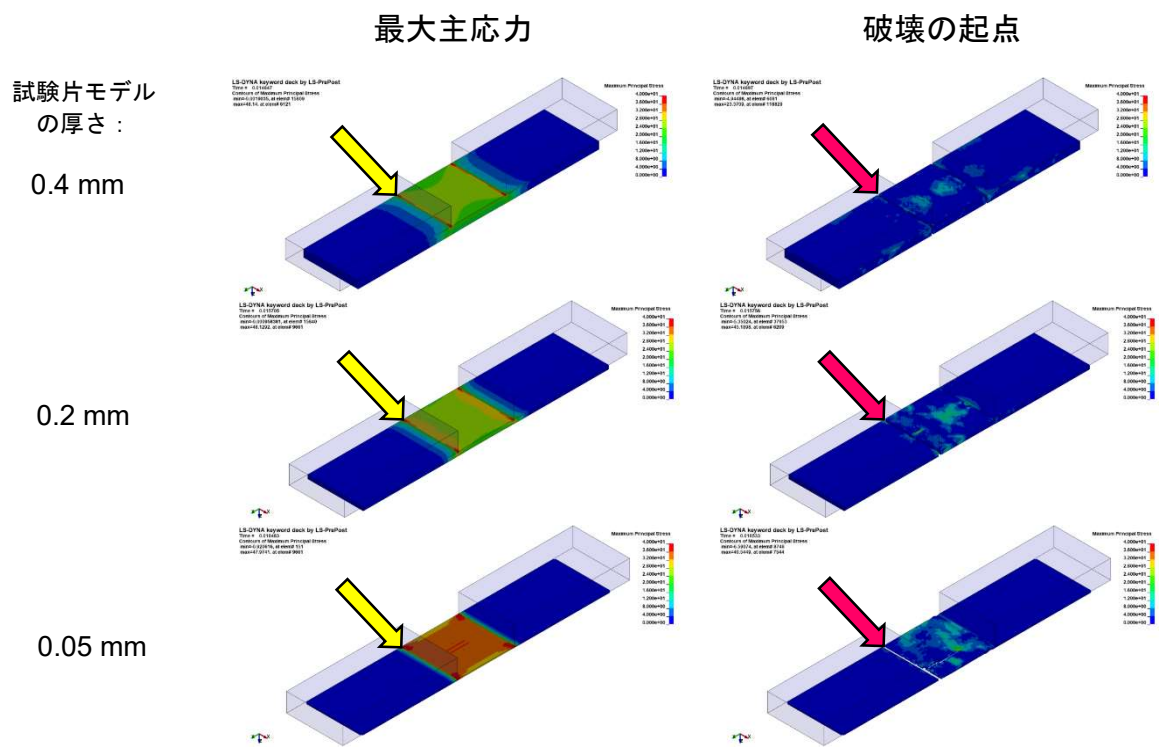


図 18. 非線形動的有限要素法による引張解析の結果
黄色矢印：応力の集中部位，赤色矢印：破壊の起点

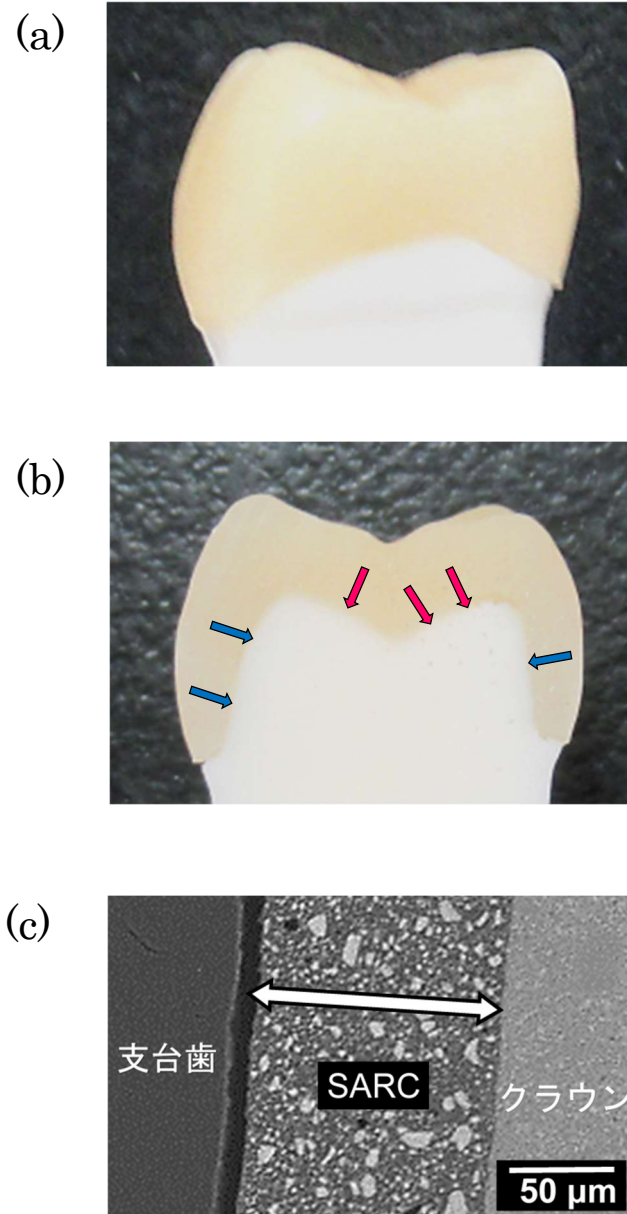


図 19. クラウンと支台歯の間の SARC の厚さの測定

(a) 支台歯模型に SARC でクラウンを装着した試験片. (b) セメント層の厚さを測定するために頬舌面の長軸に沿って切断した試験片. 赤色矢印は咬合面のセメント層の厚さの測定箇所を, 青色矢印は頬舌側面のセメント層の厚さの測定箇所を示す. (c) 走査型電子顕微鏡像上でのセメント層の計測の例.

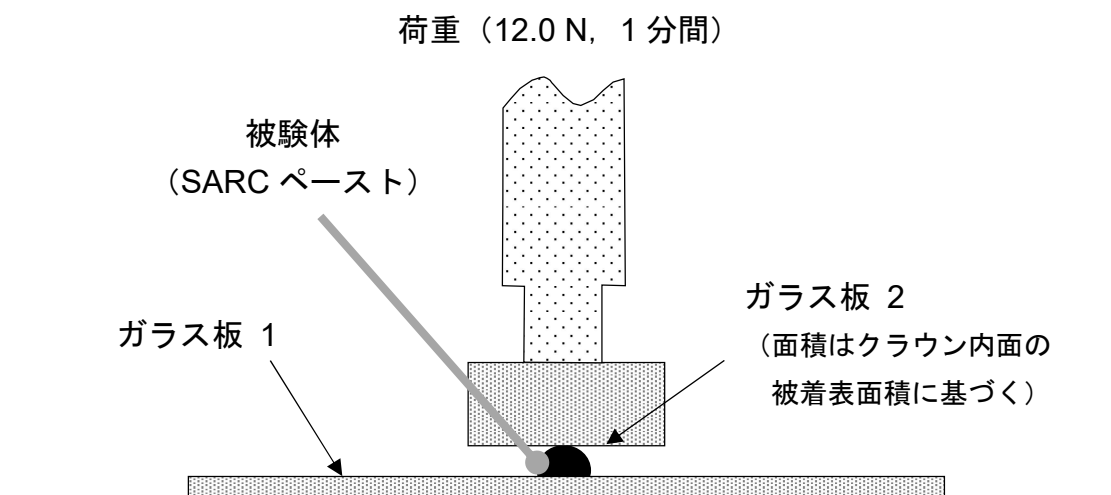


図 20. SARC 流動性の評価方法の概略

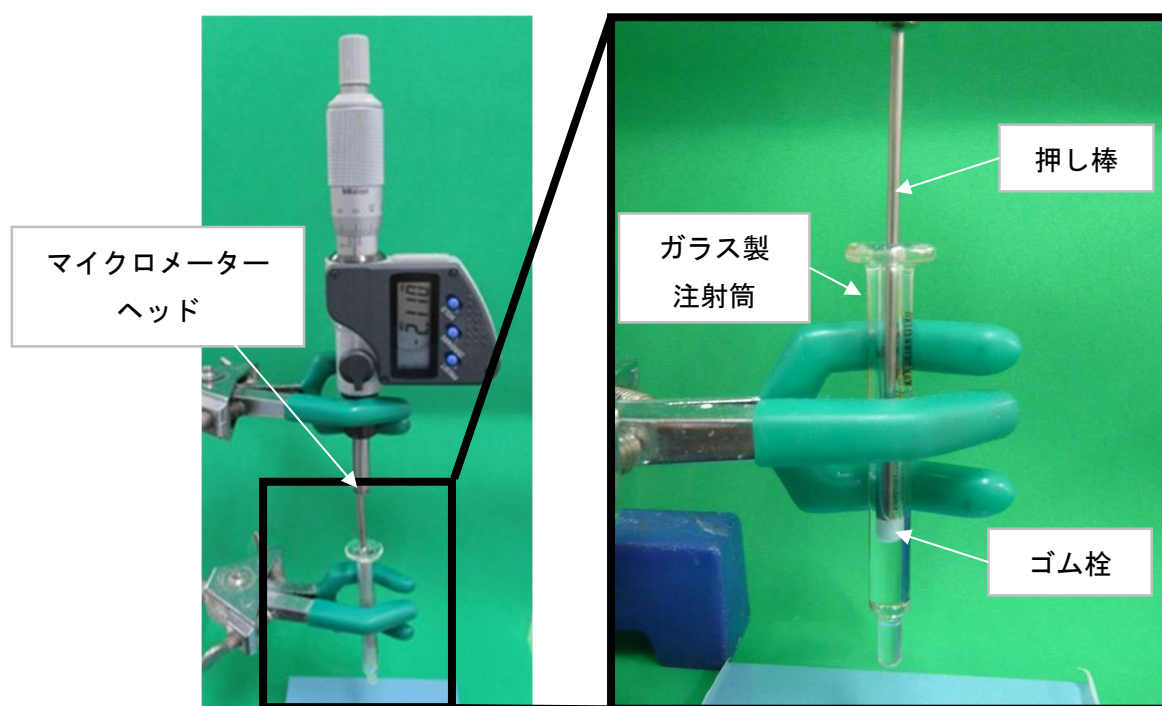


図 21. 規定量の SARC ペーストの採取方法

表 2 セメント層厚さの測定結果

測定箇所	試験体 番号	セメント層厚さ（ μ m）				クラウン と支台歯 の間のPC の厚さ	標準偏差
		測定値	各測定箇所 の平均値	標準偏差			
咬合面	1	122 , 119 , 118	136	63.2	99.1	43.4	
	2	172 , 144 , 151					
	3	140 , 129 , 129					
軸面	1	81.8 , 80.3 , 77.3	62.1	31.9			
	2	21.5 , 62.4 , 57.1					
	3	40.9 , 38.7 , 98.9					

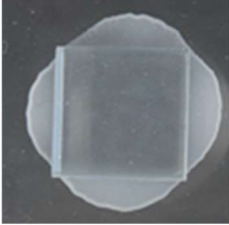
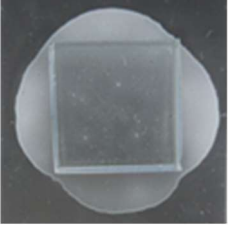
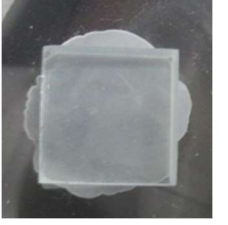
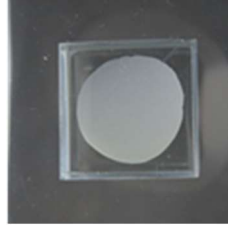
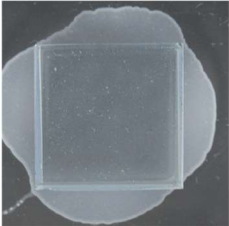
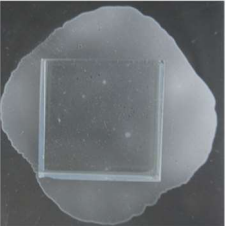
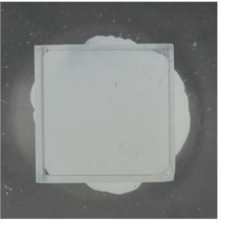
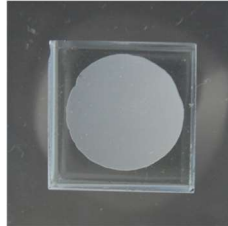
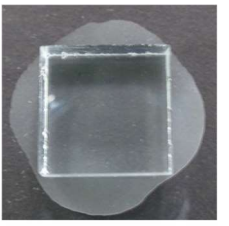
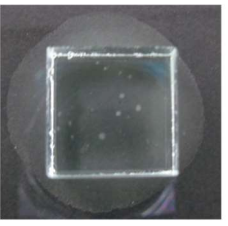
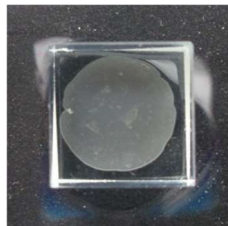
	PC	IC	BC	AP
1 回目	 Pass	 Pass	 Pass	 Fail
2 回目	 Pass	 Pass	 Pass	 Fail
3 回目	 Pass	 Pass	 Pass	 Fail

図 22. 流動性の評価結果