

# シリカ・酸化バリウム混合型フィラー 配合試作コンポジットレジンのX線造影性に関する研究

豊岡 博夫, 平 雅之, 宮脇 博正  
若狭 邦男, 山木 昌雄

## Studies on the Radiopacity of Experimental Composite Resins Containing Mixed Type SiO<sub>2</sub> · BaO Fillers

Hiroo Toyooka, Masayuki Taira, Hiromasa Miyawaki,  
Kunio Wakasa and Masao Yamaki

(平成5年3月25日受付)

### 緒 言

コンポジットレジンは、操作性に優れているため歯冠修復用材料として広く普及している<sup>1)</sup>。コンポジットレジンには、充填状態の観察や二次齲蝕の検知の目的で、X線不透過性を付与することが望まれている<sup>2,3)</sup>。しかしながら、コンポジットレジンに必要とされるX線不透過度に規格が存在しないため、現在市販のコンポジットレジンのX線不透過度にはかなりのばらつきが存在し<sup>4)</sup>、二次齲蝕の誤診の原因となっている。コンポジットレジンのX線造影性は主に配合されている無機フィラー（シリカ系粉体）に起因している。現在これらのフィラーには、X線造影剤としてバリウム、ストロンチウム、ジルコニウム、イットリビウム等が添加されているが、その種類や添加量がコンポジットレジンのX線造影性に及ぼす影響について、これまであまり検討されてこなかった<sup>5)</sup>。

そこで、本研究では、前報で検討を加えたシリカ・酸化バリウム混合型粉体<sup>6)</sup>をフィラーとして配合した試作光重合型コンポジットレジンと人エナメル質並びに人象牙質について、X線不透過度の比較検討を行った。

### 材料ならびに方法

#### 1. 材 料

シリカ・酸化バリウム混合型フィラーの調製に使用した2粉体は、シリカ (SiO<sub>2</sub>, 和光純薬 Co., 大阪, Lot No.=LKJ 3319) と酸化バリウム (BaO, 和光純薬 Co., 大阪, Lot No.=ECN 4204) であった。シリカ2元系混合粉体におけるBaOの含有量は10, 20, 30, 40 wt% とし、順次乳棒と乳鉢を用いて機械的に混和した。モノマーの主成分は、Bisphenol A glycidyl dimethacrylate (G-DMA, 新中村化学 Co., 和歌山, Lot No.=0215H; 以下, Bis-GMA) と Triethylene glycol dimethacrylate (東京化成 Co., 東京, Lot No.=GA 01; 以下, TEGDMA) を用い、光重合開始剤として Camphorquinone (東京化成 Co., 東京, Lot No.=FCU 01; 以下, CQ) と Dimethylaminoethyl methacrylate (和光純薬 Co., 大阪, Lot No.=A 002; 以下, DMA-EMA) を添加した。モノマーの配合比は 59.5 wt% Bis-GMA, 39.5 wt% TEGDMA, 0.5 wt% CQ, 0.5 wt% DMAEMA とした。試作コンポジットレジンのフィラー成分 (75 wt%) とモノマー成分 (25 wt%) は計量後、乳鉢と乳棒を用いて練和調製した。これらのコンポジットレジンペーストは直径 6 mm, 厚さ各 1, 2, 3 mm のテフロン金型に充填し、2方向から40秒間照射 (Quicklight model VL-1, モリタ Co., 京都) することによって硬化させた。

人新鮮抜去大白歯を常温重合型レジン (Rigolac, 昭和高分子 Co., 東京) に包埋後、低速ダイヤモンドカッター (Isomet, Buhler Co., Ill., U.S.A.) を用いて

広島大学歯学部歯科理工学講座 (主任: 山木昌雄教授) 本研究は一部文部省科学研究費補助金 (奨励研究A平成4年度 No. 04857237) による。

歯軸に沿って切断し、エナメル質と象牙質を含む厚さ1 mm と 2 mm の人歯縦断切片を得た。

## 2. X線不透過度の評価

試作コンポジットレジン試料並びに人歯縦断切片は順次、アルミニウムステップ (2 mm から 16 mm まで 2 mm ごとに厚みを増加させたアルミニウム製の階段状ブロック) とともに高感度フィルム (DF 58, Eastman Kodak Co., N.Y., U.S.A.) 上に置き、以下に示す条件で規格化X線写真撮影を行った。すなわちX線装置=Super Max 70 (モリタ Co., 京都); 焦点-被写体間距離=26.5 cm; 電圧=70 kVP; 電流=10 mA; 照射時間=0.27秒。X線写真は各試料について3枚ずつ撮影し、フィルムの現像には自動現像機 (Dental Pony 2, 富士X線 Co., 大阪) を用いた。現像後、フィルムの濃淡度をデンスitomーター (Densicon model 1HAD-301, 平沼産業 Co., 茨城) を用いて測定した。アルミニウムステップを撮影したX線フィルムの透過濃度は、アルミニウムの厚みが増すにつれて双曲線的に減少した。各試料のX線不透過度はアルミニウムの厚みおよび現像フィルムの透過濃度間の校正曲線<sup>6)</sup>を用いて、Al等長 (mm) で表現した。

## 結 果

図1に、シリカ・酸化バリウム混合型フィラー中の酸化バリウム含有量が同フィラー配合試作コンポジットレジンのX線不透過度に及ぼす影響を示した。フィラー中における酸化バリウム含有量 (wt%) (X) の増加に伴いコンポジットレジンのX線不透過度 (Al等長, mm) (Y) は直線的に増加していた。また、この増加の傾向は試料厚み (t) の増加に伴いより顕著となった。t=1, 2, 3 mm における X と Y の直線回帰

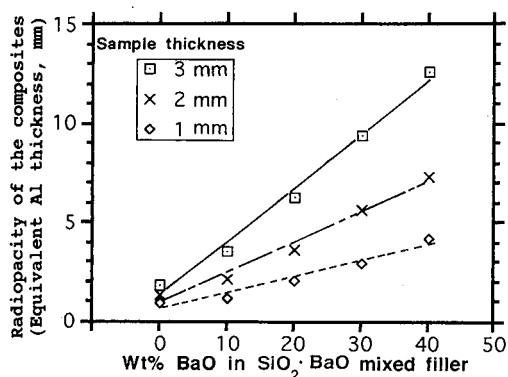


図1 シリカ・酸化バリウム混合型フィラー中の酸化バリウム含有量が同フィラー配合試作コンポジットレジンのX線不透過度に及ぼす影響

式を求めると

$$t=1 \text{ mm の時 } Y=0.594+0.0833X \quad (r=0.976)$$

$$t=2 \text{ mm の時 } Y=0.918+0.1554X \quad (r=0.991)$$

$$t=3 \text{ mm の時 } Y=0.121+0.2750X \quad (r=0.994)$$

(ただし, r: 相関係数) であった。

図2には、試作コンポジットレジンと人エナメル質並びに人象牙質のX線不透過度の測定結果を3次元立体グラフによって示した。100 wt% SiO<sub>2</sub> 含有コンポジットレジンには有意なX線造影性を有せず、象牙質のそれと同程度であった。フィラー中に酸化バリウムを20 wt% 含有するコンポジットレジンではエナメル質に近似したX線不透過度を有することが明らかとなった。フィラー中における酸化バリウム含有量が30 wt% 以上になると、コンポジットレジンのX線不透過度はエナメル質を有意に上回ることが判明した。

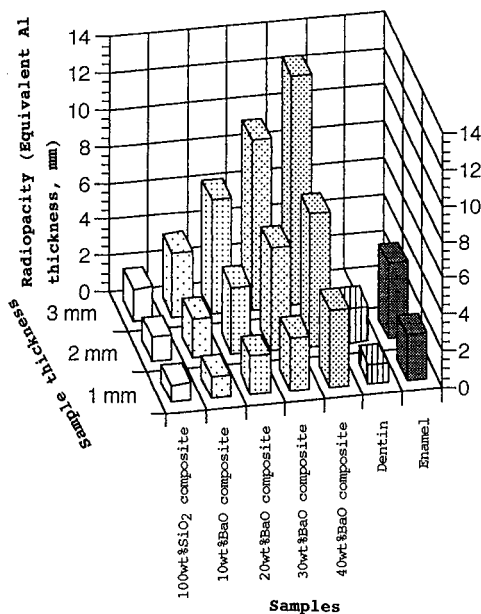


図2 シリカ・酸化バリウム混合型フィラー配合試作コンポジットレジン、人エナメル質並びに人象牙質のX線不透過度の測定結果

## 考 察

シリカ・酸化バリウム混合型フィラー中の酸化バリウム含有量と同フィラー配合試作コンポジットレジンのX線不透過度には直線回帰性が認められた<sup>5)</sup>。このことはフィラー中のX線造影剤の量を調節することによってコンポジットレジンのX線不透過度が容易に制御できることを意味している。

最近の学説によると、二次齲蝕の検知のためにはコンポジットレジン中のX線不透過度はエナメル質を若干上回る程度が良いといわれている<sup>7)</sup>。本研究で試作したコンポジットレジンの中では30 wt% BaO・70 wt% SiO<sub>2</sub>混合型フィラーを含有したコンポジットレジンがこれに該当するものと考えられる。なお、この配合のコンポジットレジンにはフィラーとモノマー組成間の屈折率の大きな違いから、色調は不透明感の強い白色を呈するため、前歯部の審美的修復材料としては使いづらいことに留意する必要がある。

一般的に混合型フィラー配合光重合型コンポジットレジンでは、照射深部において光の散乱が大きくなり重合深度が浅くなる欠点を有している。一方、酸化バリウムを(化学的に)均一にシリカに添加すると、その含有量の増加に伴いシリカの基本構成分子(SiO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)間の結合力を弱め、化学耐久性の低下をもたらす<sup>8)</sup>。その結果フィラーとレジマトリックス間のシランカップリング層の破壊を生じたり<sup>9)</sup>、フィラーそのものが一部口腔環境下で溶解<sup>10)</sup>してしまう。従って、上述の有害作用を防止して酸化バリウムをシリカ系フィラーとして用いる場合には、混合型フィラーとし、白歯部用やコア用コンポジットレジンに応用することが妥当と考えられる。

## 結 論

シリカ・酸化バリウム混合型フィラー配合試作コンポジットレジン中のX線不透過度に検討を加えた結果、以下の知見を得た。

(1) フィラー中における酸化バリウム含有量の増加に伴い、試作コンポジットレジン中のX線不透過度は直線的に増加した。

(2) 30 wt% 酸化バリウム・70 wt% シリカ混合型フィラー配合試作コンポジットレジン中のX線不透過度は人エナメル質のX線不透過度を少し上回る程度であった。

## 謝 辞

デンシトメーターは広島大学歯学部付属病院臨床検

査室の御好意で使用させて頂きました。ここに厚く御礼申し上げます。

## 文 献

- 1) Knibbs, P.J. and Smart, E.R.: The clinical performance of a posterior composite resin restorative material, Heliomolar R.O.: 3 year report. *J. Oral Rehabil.* **19**, 231-237, 1992.
- 2) Chandler, H.H., Bowen, R.L., Paffenbarger, G.C. and Mullineaux, A.L.: Clinical investigation of a radiopaque composite restorative material. *J. Amer. Dent. Assoc.* **81**, 935-940, 1970.
- 3) 松村和良, 作田倫子, 井上浩一, 風呂川彰, 原哲也, 突沖真由美, 福田善彦, 寺地睦久, 井上清: コンポジットレジン中のX線不透過性に関する研究. *日歯保誌* **28**, 120-127, 1985.
- 4) Stanford, C.M., Knoepfel, R., Fan, P.L., Stanford, J.W. and Schoenfeld, C.M.: Radiopacity of light-cured posterior composite resins. *J. Amer. Dent. Assoc.* **115**, 722-724, 1987.
- 5) Watts, D.C.: Radiopacity vs. composition of some barium and strontium glass composites. *J. Dent.* **15**, 38-43, 1987.
- 6) 豊岡博夫, 平 雅之, 宮脇博正, 若狭邦男, 山木昌雄: コンポジットレジン用シリカ系フィラーのX線造影性に関する研究—特にジルコニアと酸化バリウム添加によるX線不透過性について—. *広大歯誌* **24**, 205-209, 1992.
- 7) Espelid, I., Tveit, A.B., Erickson, R.L., Keck, S.C. and Glasspoole, E.A.: Radiopacity of restorations and detection of secondary caries. *Dent. Mater.* **7**, 114-117, 1991.
- 8) Kingery, W.D., Bowen H.K. and Uhlmann, D.R. 著, 小松和蔵, 佐多敏之, 守吉祐介, 北沢宏一, 植松敬三 訳: ガラスの構造; セラミックス材料科学入門 基礎編, 初版, 内田老鶴園, 東京, 89-120, 1980.
- 9) Soderholm, K.-J., Zigan, M., Ragan, M., Fischl-schweiger, W. and Bergman, M.: Hydrolytic degradation of dental composites. *J. Dent. Res.* **63**, 1248-1254, 1984.
- 10) Bowen, R.L. and Cleek, G.W.: A new series of X-ray-opaque reinforcing fillers for composite materials. *J. Dent. Res.* **51**, 177-182, 1972.