

比較兩種 Glass Ionomer Cements 釋放氟離子之速率

劉居平 郭永昌

摘 要

許多國外研究報告顯示填補材料 glass-ionomer cements 可長期釋出氟離子，具有預防再發性齲齒之效果。本研究目的在探討國內常用的二種窩洞填補用 glass-ionomer cements 其所釋放出之氟離子濃度與時間之關係。研究中選定 Fuji glass ionomer Type II 及 HY-BOND glass ionomer F Type I 此兩種 glass-ionomer cements 在室溫 $27 \pm 1^\circ\text{C}$ 及相對溼度 $75 \pm 10\%$ 條件下，依廠商指示調配製成直徑 12 mm 厚 1 mm 的圓形薄片各 12 片，硬化後以不銹鋼線懸於含去離子水的蓋杯中，置於 $37 \pm 1^\circ\text{C}$ 恒溫箱中，逐日更換杯中水。所換出之溶液以離子測定儀測氟離子濃度。結果顯示此二種材料所釋出氟離子濃度於一週內銳減至穩定的低濃度，並可持續至 120 天以上，而且 Fuji glass ionomer 釋放較多的氟離子，但此二種材料所釋出濃度差異頗大，將濃度及時間做對數轉換，以直線迴歸及相關的統計方法檢定，二者在截距及斜率上的 P 值均小於 0.05，顯示此二種材料釋放的初濃度及速率均具有意義的差異。又本研究顯示不同廠牌的 glass-ionomer cements 釋放氟離子濃度相差頗大，意涵其預防再發性齲齒的效果可能也不相同。

前 言

由於 Silicate cement 中含有多量的氟化物，所以若用作齲齒的窩洞填補物時，其中的氟離子會釋放出來，取代齒質中氫氧磷灰石 (Hydroxyapatite) 之氫氧基而成氟化磷灰石 (Fluoroapatite)，可以降低齲齒本身的再發率，同時亦可增加鄰近牙齒牙釉質中氟的含量，以增加牙齒的抗酸性質而達到預防齲齒的效果^(1,2,3)。此外亦可發現用 Silicate cement 當填補物時，其周圍牙菌斑 (Dental plaque) 的聚

集量也較一般不含氟化物的填補物為少^(4,5)。觀察其用 Silicate cement 當填補物的最有效利益乃因其一直釋放出氟離子而達到預防齲齒的效果^(6,7)。但是 Silicate cement 有個最大的缺點是：溶解率很高，耐磨耗性亦差，且與齒質間之黏著性質不佳，酸性亦大，易造成牙髓炎。因而 Dr. Wilson & Kent 在 1972 年發展出 Glass ionomer cement 之材料；此種產品可以說是 Silicate cement 和 Polycarboxylate cement 的混合體，也就是說它的粉末是與 Silicate cement 一樣是 Aluminosilicate glass，而液體是與 Polycarboxylate cement

北醫牙醫學系

民國七十七年一月十五日受理

所使用相類似的酸為 Polyacrylic acid。因此 Glass ionomer cement 具有 Silicate cement 與 Polycarboxylate cement 的優點——可以釋放出氟離子，有預防齲齒的特性 (Anticariogenic property)；與齒質間又具有相當之黏著力 (Adhesion)，對牙髓之刺激性亦小，而不具有兩者之缺點。Maldonado⁽⁸⁾, Swartz⁽⁹⁾, Derkson⁽¹⁰⁾ 等人測量初期發展出來的 Glass ionomer cement——ASPA，發現此種填補物確實可釋放出若干氟離子。然而這些實驗結果只是一種廠商提供的 Glass ionomer cement，而且是短期的；與最近台灣牙醫界常用的二種廠牌不同，再者以前那些實驗因使用的方法不同，幾乎無法同時比較其結果；所以本研究的目的是：依循美國牙科學會 (American Dental Association Specification) 所提示之方法，在國內環境下測量國內二種常用的 Glass ionomer cements 的 restorative type 其長時期可釋放出氟離子的濃度及其釋放速率。

材料與方法

實驗用的材料如 Table 1 所示。將二種材料依廠商指示，量取正確量的粉末及液體，在室溫 $27 \pm 1^\circ\text{C}$ ，相對濕度 $75 \pm 10\%$ 之條件下，其粉末與液體之比例亦如 Table 1 所示，用塑膠調刀在調紙上，在 1 分鐘之內調拌均勻，然後放在直徑約 12 mm 的 5 c.c 塑膠空針內，再壓在玻璃板上，除去多餘的材料，待 glass ionomer cement 混合十分鐘硬化後，從空針中取出，用金剛砂紙 (Emery paper) No. 200~No. 800 逐步研磨成厚 1.0 ± 0.1 mm，直徑 12.0 ± 0.1 mm 大小的圓形試片各 12 片，再把試片各自放在溫度 $37 \pm 1^\circ\text{C}$ ，溼度 100% 的恆溫恆濕箱中 1 小時，待其硬化完全之後，用不銹鋼線繫住試片懸掛於含有 40 ml 二次去離水的塑膠蓋杯中，再放入恆溫箱內，經所定時間後，取出試片放入另一新的蓋杯中繼

續浸泡至所定之時間。把原先浸泡過試片的去離子水取出 10 ml 加入等量的離子強化劑 TISAB (Total Ionic Strength Adjustment Buffer; ORION Cat No. 940909)，放在氟離子測定儀 (Corning Model 135 PH/Ion Analyzer c̄ Corning Double Junction Reference Electrode and Fluoride Electrode) 上，在電磁攪拌器下；用 Known Additional Method 測出釋出氟離子濃度。如此依序測出試片浸泡 6, 12, 24 小時及 2, 3, 4, 5, 6, 7, 14, 20, 40, 60, 80, 100, 120 日等氟離子釋放的濃度及速率。

結果

由 Table 2 可知 Fuji glass ionomer Type II 在浸泡去離子水三小時後，所釋放出的氟離子濃度為 31.808 ppm 之後即急速下降至第 12 小時的 11.547 ppm，經 24 小時後的 6.782 ppm 慢慢下降，至第 7 天以後則呈平穩狀態而持續地釋放出少量氟離子，至第 120 天的 0.508 ppm。而 HY-BOND glass ionomer F Type I 在浸泡去離子水三小時後，所釋放出的氟離子濃度為 4.853 ppm，約為 Fuji glass ionomer Type II 的 15%，而後亦如 Fuji glass ionomer Type II 釋放氟離子濃度一時間之型式如 Fig. 1 快速地下降至第一天的 1.497 ppm 或第二天的 1.444 ppm 再慢慢下降，至第十四天左右以後即徐徐而緩慢地釋放出氟離子至第 120 天的 0.174 ppm，又從表二可知 Fuji glass ionomer type II 在任何時間下其釋放出之氟離子濃度皆約為 HY-BOND glass ionomer F Type I 所釋放出的 1.2~6.5 倍左右。若把氟離子的釋放濃度與時間行對數轉換，做線性迴歸，其相關係數 γ 的絕對值趨近於 1 (Fig. 2)，並同時比較此二種不同廠牌的迴歸線的截距與斜率 (Table 3)，發現此二條迴歸線的截距與斜率均是有意義的差異 ($P < 0.05$) (Table 3)。

Table 1. Cements Used in This Experiment.

CEMENT	Fuji Ionomer	HY-BOND glass ionomer F
Manufactures	G-C	SHOFU
Type	II, Brown No: 22	I, Yellow No: 2
Powder-Liquid Ratio, gm/ml	0.16/0.10	0.17/0.08
Batch number	powder-26045I liquid-3I055I	powder-0685I2 liquid-078567

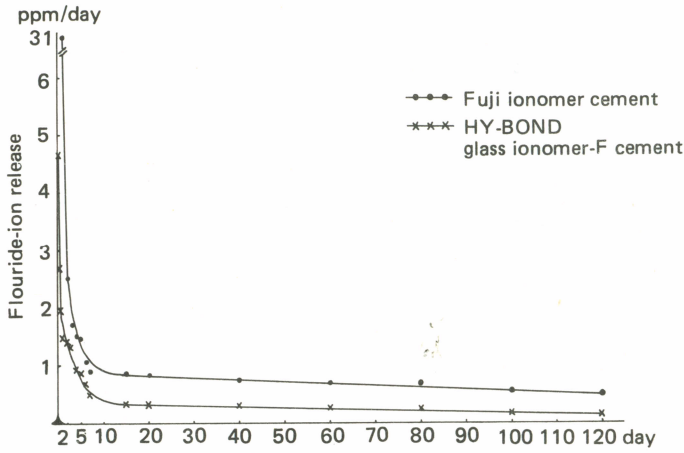


Fig. 1. The rate of fluoride release from the two cements over a 120-day time period.

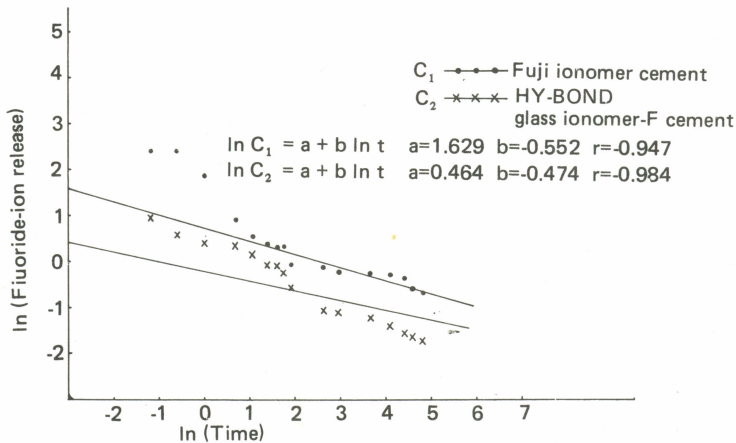


Fig. 2. The ln of fluoride release from the two cements vs. the ln of time in day.

Table 2. The Mean Values of Fluoride Release from Two Cements after Different Incubation Times.

Time (day)	Fluoride-ion Concentration Released (ppm/day)	
	Fuji Ionomer cement	HY-BOND glass ionomer F cement
0.125	31.808	4.853
0.25	11.120	2.640
0.5	11.547	1.885
1	6.782	1.497
2	2.515	1.444
3	1.730	1.370
4	1.548	0.884
5	1.520	0.843
6	1.054	0.685
7	0.892	0.451
14	0.864	0.336
20	0.815	0.341
40	0.767	0.282
60	0.718	0.229
80	0.683	0.216
100	0.551	0.186
120	0.508	0.174

Table 3. Comparison of Regression Lines of Cements.

		d.f.	x ²	xy	y ²	Reg. Coef.	Deviations from Regression			
							d.f.	S.S.	M.S.	
L	Within									
1	CG	16	70.92	-39.20	24.14	-0.552	15	2.485	0.166	
2	SHOFU	16	70.96	-33.67	16.49	-0.474	15	0.514	0.034	
3							30	2.999	0.099	
4	Pooled, W	32	141.92	-42.87	40.63	-0.302	31	27.68	0.893	
5			Difference between slopes					1	24.68	24.68
6	Between. B	1	0.01	-0.01	8.82					
7	W + B	33	141.93	-42.88	49.45		32	36.50		
8			Between adjusted means					1	8.82	8.82

Comparison of Slopes: $F = 24.68/0.099 = 249 > 7.56$ (d.f. = 1, 30) $P < 0.05$

Comparison of Elevations: $F = 8.82/0.893 = 9.98 > 7.53$ (d.f. = 1, 31) $P < 0.05$

討論

本實驗顯示出氟離子自 Fuji glass ionomer cement 或 HY-BOND glass ionomer cement 所釋出之量至長時期的 120 天仍可測得，此與 Swartz^(3,9)，Wesenberg & Hals⁽¹¹⁾ 等做長時期氟離子仍可自 glass ionomer cement 釋出之報告同。因此可知 glass ionomer cement 應用在牙科之窩洞填補時氟離子可長時期不斷持續地釋出，可降低齲齒本身之再發率，但是此實驗中釋出的氟離子濃度與速率是在靜止的去離子水中所測得的累積濃度，與實際在口腔內唾液是流動性的，且有溫度及酸鹼值等情況不同⁽¹²⁾；所以氟離子釋放濃度是否比實驗值高，或者牙釉質 (Enamel) 是否能吸收到釋放出的氟離子的全部量；就算能吸收，但其吸收深度若干及能達到預防齲齒的有效濃度是多少⁽¹³⁾ 等問題，到現在還沒有定論，有待進一步的研究。Cranfield⁽¹⁴⁾，Kuhn^(15,16)，Tevit⁽¹⁷⁾ 曾指出材料本身粉末與液體的比例，調拌時的方法、溼度、溫度，試片厚度，表面積大小，粗糙度和試片硬化的時間，溫度等之內在因素及浸泡試片的溶液的成份，PH 值，體積大小和更換浸泡液的時間次數等之外在因素，均會影響氟離子釋放速率的快慢，釋放量的多寡及在溶液中的飽和度。所以此次實驗依材料廠商指示的比例量取粉末和液體，製成厚 1.0 ± 0.1 mm，直徑 12.0 ± 0.1 mm 的圓形試片，使在試片中間的氟離子不會因試片太厚而無法釋放出來。試片表面也用金剛砂紙 (Emery paper) 研磨使其粗糙面一致，不會影響到氟離子的釋放量。等試片硬化後置於含 40 ml 的二次去離子水中，目的是避免因溶液量太小，試片不能溶解，或溶解後氟離子濃度很快達到飽和量即不再釋放，再者溶液中的緩衝劑 (Buffer agent) 或不同的 PH 值會影響氟離子的鍵結力，因而實驗中選用 40 ml 的中性二次去離子水作為浸泡

液。此外實驗中所測得的氟離子釋放濃度是浸泡試片一定時間後的累積濃度，為了避免氟離子釋放濃度達到飽和量之後會影響氟離子的釋放速率，因而每天更換浸泡液直到 120 天。實驗結果 Fuji glass ionomer cement 與 HY-BOND glass ionomer cement 所釋出氟離子的量及速率有明顯的差異 ($P < 0.05$)；可能是由於材料本身中含氟量的多寡不同；氟離子與其他分子鍵結力不同或是材料本身溶解率不同所致。

結論

由實驗的結果可知 Fuji glass ionomer cement 較 HY-BOND glass ionomer cement 釋放出較多的氟離子而且速率較快；7 天後此二種廠牌的氟離子濃度均呈一穩定的釋放速率，如此可持續 120 天。此外 Fuji glass ionomer cement 釋放出氟離子的初濃度及以後釋放出氟離子的速率，均較 HY-BOND glass ionomer cement 為大，且是有意義的差異 ($P < 0.05$)。

參考文獻

1. NORMAN RD, PLATT JR, PHILLIPS RW, SWARTZ ML: Additional Studies on Fluoride Uptake by Enamel from Certain Dental Materials. *J Dent Res* 40; 529-537, 1961.
2. HALLSWORTH AS, WEATHERELL JA: The Microdistruction, Uptake and Loss of Fluoride in Human Enamel. *Caries Res* 3; 109-118, 1969.
3. SWARTZ ML, PHILLIPS RW, CLARK HE, NORMAN RD, POTTER R: Fluoride Distribution in teeth Using a Silicate Model. *J Dent Res* 59: 1596-1603, 1980.

4. NORMAN RD, MEHRA RV, SWARTZ ML, PHILLIPS RW: Effects of Restorative materials on Plaque Composition. *J Dent Res* 51; 1596-1601, 1972.
5. SKJORLAND KK: Plaque Accumulation on Different Dental Filling Materials. *Scand J Dent* 81; 538-542, 1973.
6. WILSON AD, BATCHELOR RF: Dental Silicate Cements. I. The Chemistry of Erosion. *J Dent Res* 46; 1067-1075, 1967.
7. deFREITAS JF: The Long-term Solubility of Silicate Cement. *Aust Dent J* 13; 129-134, 1968.
8. MALDONADO A, SWARTZ ML, PHILLIPS RW: An in Vitro Study of Certain Properties of a Glass Ionomer Cement. *JADA* 96(5); 785-791, 1978.
9. SWARTZ ML, PHILLIPS RW, CLARK HE: Long-term Fluoride Release from Glass Ionomer Cements. *J Dent Res* 63(2); 158-160, 1984.
10. DERKSON GD, POON PJ, RICHARDSON AS: Fluoride Release from a Silicophosphate Cement with Added Fluoride. *J Dent Res* 61(5); 660-664, 1982.
11. WESENBERG G, HALS E: The Structure of Experimental in Vitro Lesions Around Glass Ionomer Cement Restoration in Human Teeth. *J Oral Rehabilitation* 7; 175-184, 1980.
12. NORMAAN RD, PHILLIPS RW, SWARTZ ML: Fluoride Uptake by Enamel and Dentin from Certain Dental materials. *J Dent Res* 39; 11-16, 1960.
13. NORMAN RD, PLATT JR, PHILLIPS RW, SWARTZ ML: Additional Studies on Fluoride Uptake by Enamel from Certain Dental Materials. *J Dent Res* 40; 529-537, 1961.
14. RANFIELD M, KUHN AT, WINTER GB: Factors Relating to the Rate of Fluorideion Release from Glass Ionomer Cement. *J Dent* 10(4); 333-341, 1982.
15. KUHN AT, WINTER GB, TANWK: Dissolution Rates of Silicate Cements. *Biomaterials* 3(7); 136-144, 1982.
16. KUHN AT, LESAN W, SETCHELL D: Some Further Factors Affecting the Solubility of Silicate Cement. *J Material Sci* 5; 191-194, 1983.
17. TEVIT AB, GJERDE TN: Fluoride Release from a Fluoride-containing Amalgam, a Glass Ionomer Cement and a Silicate Cement in Artificial Saliva. *J Oral Rehabilitation* 8; 237-241, 1981.

Comparison of The Rate of Fluoride Ion Release from Two Different Glass Ionomer Cements

C_{HU}-P_{ING} L_{IU} and Y_{UNG}-C_{HAN} K_{UO}

ABSTRACT

Glass ionomer cement is used in dentistry both for filling cavities and cementing fixed prostheses. It is translucent, with optical properties similar to enamel, adheres both to enamel and dentine and releases fluoride. This latter property is important for it to confer caries resistance on adjacent tooth material. This study is to compare the rate of fluoride ion release from Fuji ionomer type II and HY-BOND glass ionomer F type I in deionized water. After storing specimens in deionized water over a 3 months period, the fluoride content in the solvent was determined with an Orion fluoride ion-sensitive electrode using a TISAB solution. The general pattern of fluoride release from the two glass ionomer cements was similar while the fluoride release from Fuji ionomer type II was about 1.5 times greater than from HY-BOND glass ionomer F type I and it is expected that this release should confer some protection against secondary caries.

Key word: Dental filling cement, Fluoride release.

School of Dentistry, Taipei Medical College, Taipei, R.O.C.
Received for Publication: January 15, 1988.