

## 接着性コンポジットレジン修復における 歯質との接着, 接合

小 松 正 志

東北大学歯学部歯科保存学第二講座

### Bond Strengths and Adaptation of Various Adhesive Composite Resin Restorations to Cavity Walls

Masashi Komatsu

*Department of Operative Dentistry, Tohoku University School of Dentistry*

**Abstract:** A good clinical outcome of adhesive composite resin restoration requires high bond strength and good adaptation to cavity walls. Material and technical factors affecting clinical outcome are discussed. The elution of environmental estrogen bisphenol A (BPA) is also discussed.

To measure bond strength *in vivo*, freshly extracted adult bovine first and second incisors should be used. The bond strengths of many commercially available bonding systems have been measured, and the adaptation of adhesive composite resin restorations to cavity walls has also been evaluated under SEM. The bond strength of experimental self-etching solution was remarkably augmented by admixture of glutaraldehyde, ferric chloride, and HEMA (hydroxyethyl methacrylate) with an aqueous solution of EDTA, maleic acid, tannic acid or potassium thiocyanate; all tests revealed a bonding strength of more than 15 MPa. The bond strengths of many commercially available adhesive composite resin systems have also been measured up to 3 years after bonding. Bonding systems such as Imperva Fluorobond (Shofu Inc.), Mac Bond (Tokuyama Corp.), Super Bond D-Liner (Sun medical Co., Ltd.), Clearfil Liner Bond 2 (Kuraray Co., Ltd.), and Scotch Bond Multipurpose (3M Healthcare Co., Ltd.) had high bond strengths. Some bonding systems showed no decline in bond strengths for 2 years. Even with these systems, bond strengths decreased after 3 years. The Gluma system (Heraeus Dental Materials Co., Ltd.) also showed excellent adaptation to dentinal walls and good clinical performance.

SEM observation of the cavity walls treated with conditioners showed that the primers and bonding agents promoted good adaptation to cavity walls. The adaptation to dentin after application of 4-META/MMA-TBB resin systems was superior to that of phosphonate ester monomer systems, which was also confirmed with human vital teeth.

The combination of a three-layer bonding system with a three-increment filling system showed better adaptation to cavity walls than did the conventional system. Exudation of internal fluids into the dentinal tubules, which may adversely effect bonding, was observed on all cut surfaces of freshly extracted vital teeth under SEM by means of the precise replica technique. Exudation however, was not observed on surfaces treated with 37% phosphoric acid or 3% ferric chloride in 10% citric acid. The amount of exudation decreased with time and no exudation was observed after 1 hour. A strong correlation has been confirmed between the accumulated data on bond strength and

adaptation indices of the adhesive composite resins to cavity walls.

The high molecular base resin for composite Bis-GMA consists of BPA frame. BPA may, therefore, remain as an impurity and leach out of these fillings. Recent improvements in the precision of detection and measurement techniques permit detection of minute quantities of BPA in liquids. Various values of elution for the leachable components of dental materials have been reported.

Adhesive composite resin systems that strongly bond to cavity walls with no BPA in the eluate from the base resin are required for the a good clinical outcome.

**Key words:** tensile bond strength, shear bond strength, adaptation, bis-phenol A, exudation of internal fluids

## はじめに

コンポジットレジンを修復を行う際には、歯質と修復物を接着させしかもそれを持続させることによって、辺縁封鎖が良好で、修復物境界にギャップや褐線が発現せず、二次ウ蝕の発生のない良好な臨床成績を得ることが可能となる<sup>1-4)</sup>。

以前は前歯の修復には、MMA系即時重合レジンが用いられていた。筆積み法によって充填されていたMMA系即時重合レジン<sup>5)</sup>は、①硬化時の重合収縮が大きい、②十分な硬度および耐摩耗性を欠いている、③熱膨張係数が大きい、④色調が経時的に変化することがある、⑤吸水により膨張し、乾燥により収縮する、⑥X線透過性である等が欠点として挙げられていた。これら欠点を補う修復材として、BOWEN R.L.<sup>6-10)</sup>により複合材料の化学重合型のコンポジットレジが開発された。合成されたBis-GMAベースレジに、シラン処理を施した無機フィラーを加えた材料である。さらに、現在では化学重合型の欠点を改善した光重合型のコンポジットレジが開発され、広く用いられている。

光重合レジンは、良く知られているように①機械的強度が高い、②充填操作に時間がかけられ、多数歯修復が可能である、③ワンペーストであるため練和の必要が無く、気泡の混入が少ない、④修復後の変色が少ない、⑤積層充填が可能である、⑥多数の色調が準備されており、歯の色調に合わせやすい、⑦照射すれば急速に重合硬化する、⑧材料の無駄が少ない等の長所を有している。これら長所ならびに歯質との接着性の向上により、BLACK G.V.によって提唱され行われてきた窩洞形態の概念は変わり<sup>11,12)</sup>、ウ蝕による感染歯質を除去し、アンダーカットは付与せずに充填するだけという修復が広く行われるようになってきている。現在では充填時の歯質に接着させるための

操作法も極めて簡便になり、プライマー塗布、ボンディング材塗布の2ステップで接着処理が終了するシステムも出現している。

しかし近年、この分野にも環境ホルモン問題が浮上<sup>13-26)</sup>している。ベースレジに用いられているBis-GMAは、外因性内分泌攪乱化学物質Bisphenol A(以下BPA)にエピクロロヒドリンを付加した後脱塩酸し、得られたビスフェノールAジグリシジルエーテルにメタクリル酸を付加し、合成されている。このような現在のBis-GMAの合成法はBowenが合成したころのものにくらべ、純度は高いが、BPAが残存する可能性があり問題となっている。

ここでは、これまで検討してきた各種ボンディングシステムの歯質との接着性能について解説し、環境ホルモン問題も含めて、臨床でコンポジットレジ充填を行う際、何をどのように充填すればより良好な予後成績が得られるかについて述べてみたい。

## 接着性に影響を与える因子

接着強さを測定し、接着性能を評価するにあたり、被着体として用いられる象牙質の均一性は極めて重要である。ISOからは「歯質の接着性に関する指針」<sup>27)</sup>が出されている。これによると被着体としては人歯で、抜歯後1ヶ月以上6ヶ月以内の18~25歳の第三大臼歯頰側面の、できるだけエナメル質に近い象牙質表層を使用するよう要求されている。しかし、この条件では、抜歯直後の歯ではないため、歯髄はすでにNon-vitalの状態となっており、生活歯にみられるような象牙質細管内液の滲出がない状態での測定になっている。この被着体を用いれば、臨床特に生活歯とは異なる条件での測定となってしまう。またこの年代の歯を用いれば石灰化度のばらつきが大きくなりすぎると思われる事などの問題がある。

人抜去歯の代用被着体として、牛下顎前歯が広く用いられている<sup>28,29)</sup>。ISOでは、牛歯は新しい接着材の開発あるいは製造過程での検討用に使用しても良いが、牛歯で得られた結果は人歯での結果に置き換えてはならず、材料の表示あるいは宣伝に使用すべきではないとしている。しかし、牛歯は比較的入手しやすく、歯種統一するための選別が容易で、大きな被着面が確保でき、接着試験成績が人抜去歯と大きく変わらない等の理由から教室では牛の新鮮抜去歯に対する接着試験を重ね、すでに10,000例以上のデータが蓄積されている。このようにして得られるデータは、臨床に用いた場合の接合状態やその永続性と高い相関が示されてはじめて、本来の意味を成すものとなりうるが、一般には臨床における症例において、各種の要因に関するばらつきが大きく、相関性を検討することはきわめて困難である。しかし、これらのデータに関しては、すでに人歯を用いた場合の測定値あるいは牛歯や人歯（いずれも生活歯）に形成された窩洞に填塞されたコンポジットレジン接着剤の接合状態に関する検討が成され、高い相関を示すことが明らかにされている。

一般に、同一材料を用いた接着試験においても各研

究者によって試験成績に差異がみられることが多い。これは被着体としての牛歯使用条件、測定環境等の違いによるものと思われる。具体的には歯種、歯齢、薬液中への浸漬や凍結などの保管状態さらに保管期間などによって異なっている。また有髄歯か無髄歯か、樹脂包埋歯か非包埋歯か、被着面が歯髄に近接した面かあるいはエナメル質に近い表層かなど被着体側の条件

表1 牛齢、歯種別引張接着強さ  
3% グルタルアルデヒド, 1% 塩化第二鉄含有  
0.3 M EDTA 液 60 秒処理, MMA-TBB をボン  
ディング材として Occlusin 充填

Type of Teeth		Tensile Bond Strength (MPa)
Adult Bovine	First Incisor (I <sub>1</sub> )	17.3 (5.6)
	Second Incisor (I <sub>2</sub> )	17.2 (3.6)
	Third Incisor (I <sub>3</sub> )	17.6 (3.8)
	Fourth Incisor (I <sub>4</sub> )	* 11.4 (6.3)
Young Bovine	First Incisor (I <sub>1</sub> )	* 13.0 (6.0)
	Second Incisor (I <sub>2</sub> )	* 8.9 (2.8)

( ) S.D. \* : Significant ( $p < 0.05$ )

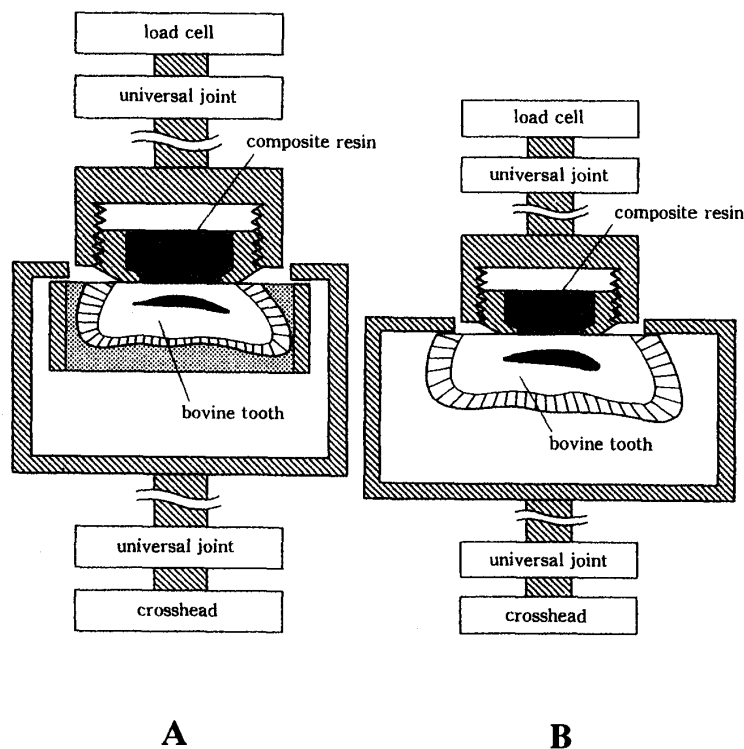


図1 引張接着強さ測定装置  
A: 包埋歯の引張接着強さ測定装置  
B: 非包埋歯の引張接着強さ測定装置

が一定でなく、これら因子が測定に少なからず影響を与えていたためと考えられる。そこで、牛歯の加齢ならびに歯種さらに凍結保存や樹脂包埋が象牙質とレジンの接着強さに与える影響等を検討した。その結果、成牛と若牛、歯種(表1)、新鮮抜去歯と保管歯、包埋歯と非包埋歯(図1)、同一歯の再使用、処理液の塗布法等により、接着強さに差があることが明らかとなった<sup>30-37)</sup>。従って接着試験用には、I<sub>1</sub> から I<sub>4</sub> まで萌出している牛前歯で、抜去12時間以内の新鮮抜去歯 I<sub>1</sub> あるいは I<sub>2</sub> の象牙質を、非包埋で被着面として用い、同一歯の再使用等はせずに、処理液を浸した綿球で被着面をこすらずに処理すべきであることが判明している。

### 接着強さの測定

#### 1. 試作 Self Etching Dentin Bonding Agent

象牙質接着に関して有効であると思われる酸で、しかも象牙質コラーゲンに傷害を与えないと思われる酸を選び、グルタルアルデヒド、塩化第二鉄、HEMA (Hydroxyethyl methacrylate) を加えた Self Etching Dentin Bonding Agent (以下 SEDBA) を試作した。試作 SEDBA を象牙質面に1分間作用させた後、水洗せず30秒間乾燥した。前処理を完了した被着面上に穿孔したセロテープを介在させて内径約4mm、高さ2.5mmの金枠を固定した。ついで MMA と TBB を

重量比で10:1にて混合し市販 PMMA 粉を併用して筆積み法により被着面に一層塗布した。塗布より10分後に光重合型コンポジットレジンを、オクラシン (ICI社) を充填しセルロイドストリップスを介在させて圧接後可視光線照射器ラクソールを用いて60秒間照射して重合させた。筆積み開始より30分後にこれらの試片を蒸留水中に移し37°C恒温箱中に保存した。24時間後に試料を取り出しインストロン万能試験機1123型に装着し、クロスヘッドスピード0.5mm/minにて引張接着強さを測定した<sup>38,39)</sup>。

平均値で15MPa以上の接着強さを示した SEDBA は図2に示したように、0.3M EDTA に3%グルタルアルデヒド、1%塩化第二鉄、18% HEMA を加えた処理液(図中処理液番号1)(0.3M EDTA 3-1-18 (1)以下同様)、50%中性リン酸標準液3-1-35 (2)、pH 1.0の5%シュウ酸アルミ3-1-50 (3)、4%硫酸アンモニウム-35%アクリル酸3-1-50 (4)、0.5Mマレイン酸3-1-18 (5)、同3-1-35 (6)、同3-1-50 (7)、0.5%タンニン酸3-1-35 (8)、1%タンニン酸3-1-18 (9)、同3-1-35 (10)、2.5%タンニン酸3-1-18 (11)、同3-1-35 (12)、同3-1-50 (13)、5%タンニン酸3-1-35 (14)、10%タンニン酸3-1-35 (15)、同3-5-35 (16)、1%チオシアン酸カリウム3-1-35 (17)であった。

なかでも鉄を含有するチオシアン酸カリウム水溶液を象牙質に作用させると暗赤色だったものが30秒から1分程度の時間の経過とともに無色に変化する。こ

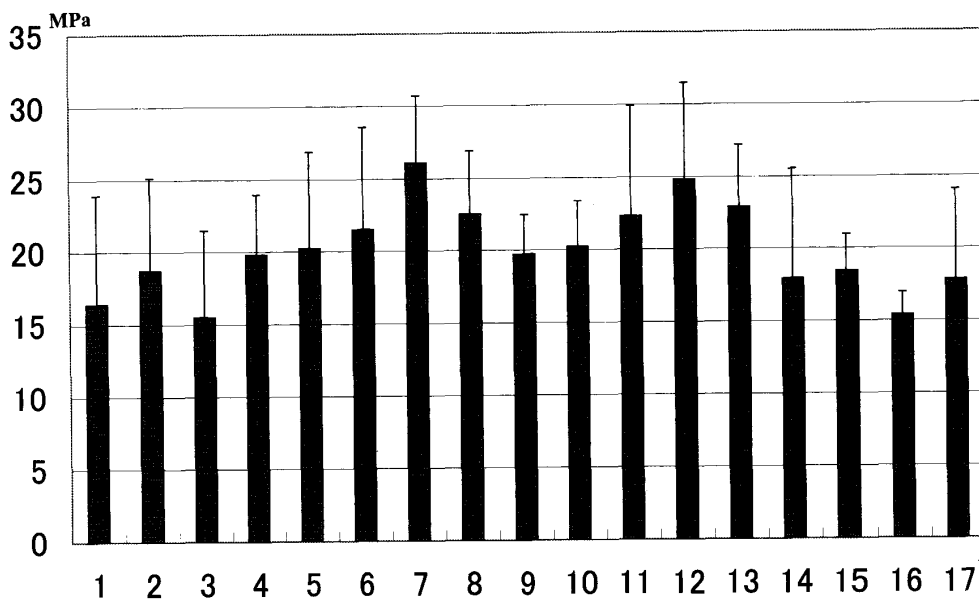


図2 試作 Self Etching Dentin Bonding Agent の引張接着強さ

の現象を処理時間のメルクマルとする可能性については現在検討中である。

## 2. 市販ボンディングシステムの歯質接着性

各種市販ボンディングシステムの歯質に対する引張接着強さを測定した。象牙質接着群には前述の接着強さ測定値のばらつきに対する影響が最も少ないと思われる成牛での I<sub>1</sub> もしくは I<sub>2</sub> を、エナメル質接着群には I<sub>1</sub> から I<sub>2</sub> まで萌出している若牛の I<sub>1</sub> のみを使用し

た。この牛新鮮抜去歯唇面のエナメル質あるいは象牙質を耐水研磨紙で #1000 まで仕上げた。前処理終了後穿孔したセロテープを介在させ内径 4 mm の金枠を接着面に固定した。ついで各種ボンディングシステムをメーカーの指示に従ってコンポジットレジンを接着させた。接着より 30 分後に試料を 1% クロラミン T 溶液中に浸漬し、24 時間、6ヶ月、1年、2年、3年までの各期間保管後、インストロン万能試験機を用いてクロスヘッドスピード 0.5 mm で引張接着強さを測定し

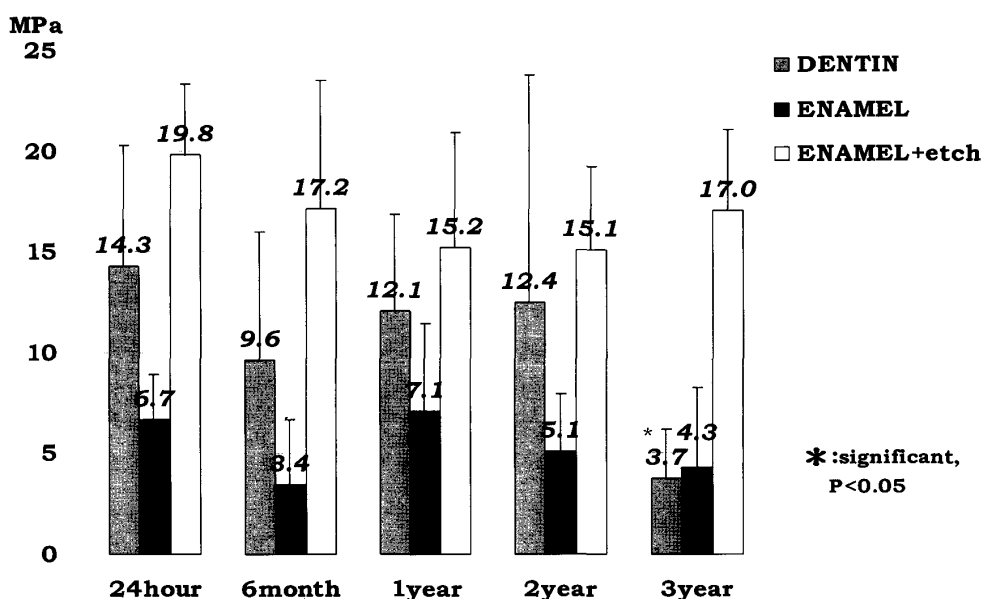


図3 Imperva Fluoro Bond (Litefil II A) の引張接着強さ

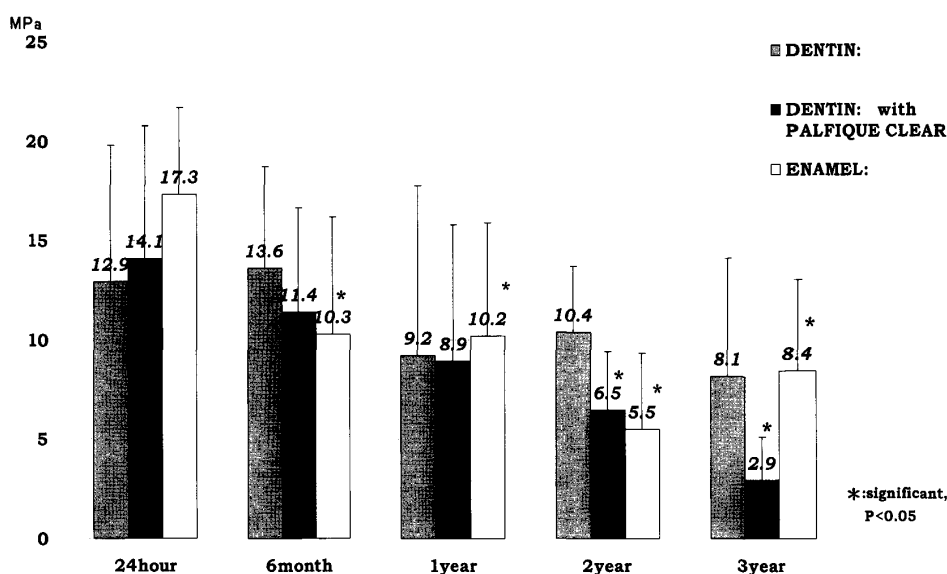


図4 Mac Bond (Palfique Estelite) の引張接着強さ

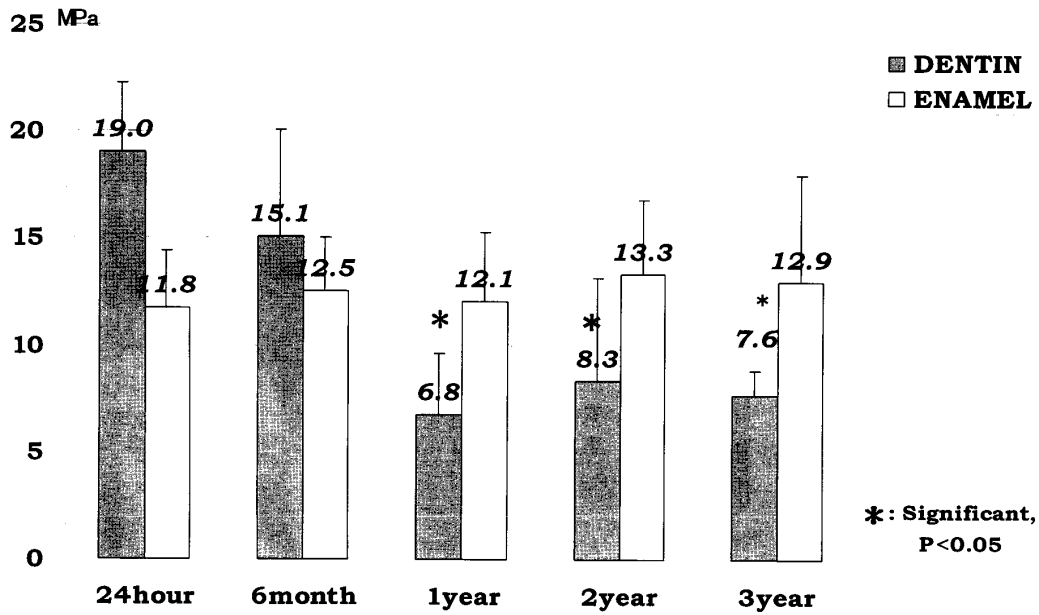


図5 Super Bond D-Liner (EPIC-TMPT) の引張接着強さ

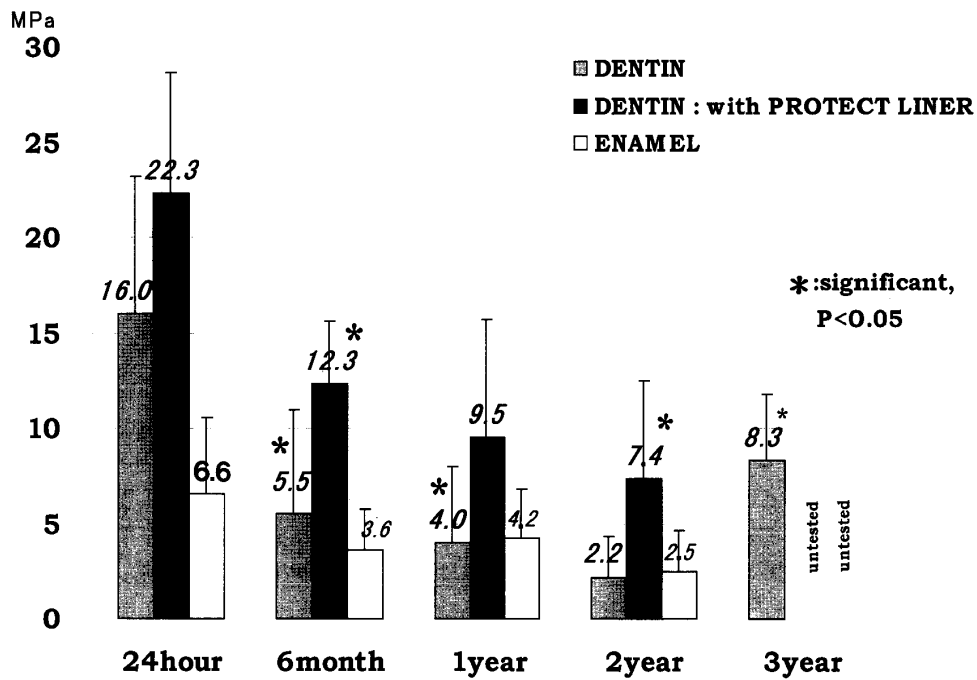


図6 Clearfil Liner Bond 2 (Clearfil Photoposterior) の引張接着強さ

た。大きな接着強さが測定された Imperva Fluoro Bond (コンポジットレジンは Litefil II A を充填) (株松風), Mac Bond (Palfique Estelite) (株トクヤマ), Super Bond D-Liner (EPIC-TMPT) (サンメディカル株), Clearfil Liner Bond 2 (Clearfil Photoposterior) (株クラレ), Scotch Bond Multipurpose (Z-100)

(スリーエムヘルスケア株) の測定結果を図3~7に示した<sup>40-42</sup>。

象牙質接着群では、試験された大部分のボンディングシステムにおいて6ヶ月~3年保管群における接着強さは接着後24時間保管群に比べて保管期間に準じ低下した。Imperva Fluoro Bond や Mac Bond のよ

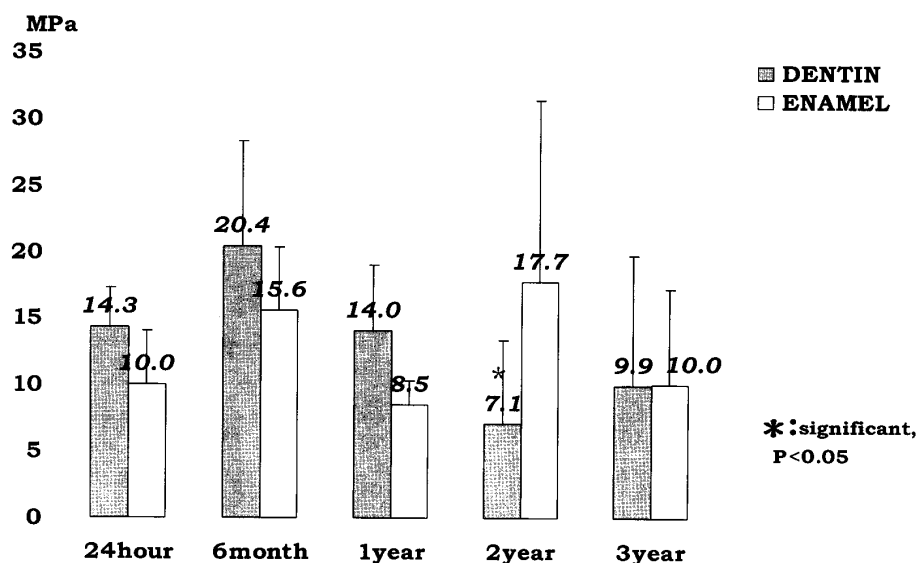


図7 Scotch Bond Multipurpose (Z-100) の引張接着強さ

うに2年まで象牙質に対する接着強さの低下を示さなかった試験群も存在したが、3年目になると有意に低い接着強さを示すようになった。エナメル質接着群では、3年経過後も接着強さが低下する群は少なかった。この違いは、エナメル質に比較すると象牙質においては、接着界面付近への水分の浸入が発現しやすく、接着界面付近の劣化がより早期に起こったためと考えられる。

Imperva Fluoro Bond においては、メーカー指示ではプライマー処理後FBボンド塗布、光照射を行うことになっている。しかし図3にみられるように、エナメル質をリン酸で30秒エッチング処理を追加した後同様のボンディング操作を行うと、3年後でも大きな接着強さが測定された。このことから、エナメル質が窩洞に含まれる場合には、接着処理操作はメーカーの指示通りでなく、エナメル質をリン酸でエッチング処理した後プライマー処理、ボンディング処理をした方が、長期間経過後も接着強さの低下がみられない、よりすぐれた臨床成績が得られるものと思われる。

### 3. 剪断接着強さ

象牙質とレジン系修復材の接着性を測定するには、引張接着強さあるいは剪断接着強さ測定法がある。従来、剪断接着強さ測定では、測定装置への固定、装着等の必要性から樹脂包埋歯を用いるのが一般的であった。しかし、引張接着強さ測定において、高橋らは樹脂包埋した歯を用いると樹脂包埋しない新鮮抜去歯を

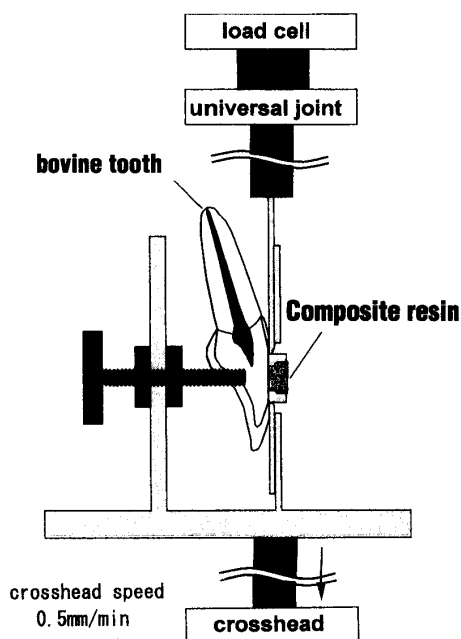


図8 剪断接着強さ測定装置

用いて測定した結果に比べ、明らかに高い測定値が得られた例を報告している<sup>43-47)</sup>。また、引張接着試験では、接着強さが大きい場合、ボンディング材内、コンポジットレジン内、ボンディング材とコンポジットレジン界面あるいは象牙質内で破壊が起こってしまい、接着界面における接着強さが測定されていない例がみられた。そこで、非包埋で剪断接着強さを測定できる装置を新たに考案、試作し(図8)、測定を行うととも

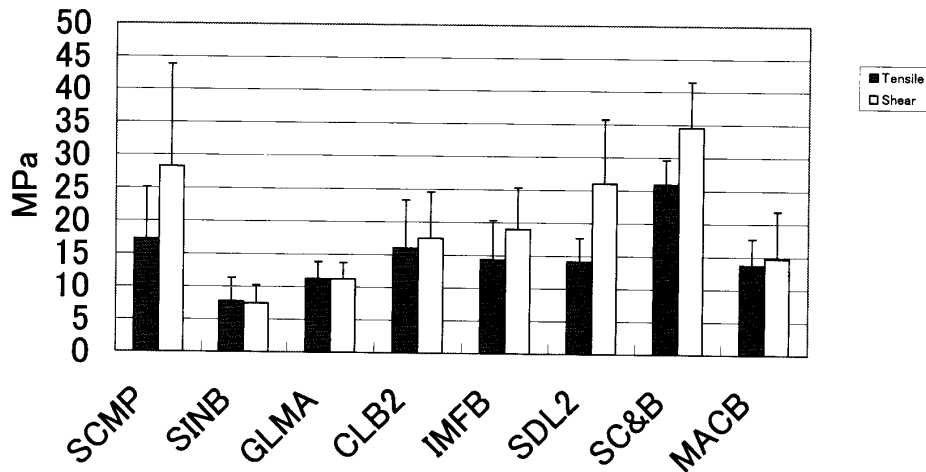


図9 引張接着強さと剪断接着強さ  
 SCMP: Scotch Bond Multipurpose (Z-100)  
 SINB: Single Bond (Z-100)  
 GLMA: Gluma (Pekafill)  
 CLB2: Clearfil Liner Bond 2 (Clearfil Photoposterior)  
 IMFB: Imperva Fluoro Bond (Litefil II A)  
 SDL2: Super Bond D-Liner 2 (EPIC-TMPT)  
 SC & B: Super Bond C & B (EPIC-TMPT)  
 MACB: Mac Bond 2 (Palfique Estelite)

に、同様な条件で測定した引張接着強さとの比較検討を行った。

その結果は図9に示す通り、Scotch Bond Multipurpose (SCMP)、Imperva Fluoro Bond (IMFB)、Super Bond D-Liner 2 (SDL2)、Super Bond C & B (SC & B)の測定例において、剪断接着強さのほうが引張接着強さより有意に大きな値を示した。その他のシステムでも、ほとんどの場合剪断接着強さのほうが大きな測定値を示したが、有意差を持って引張接着強さ測定値より大きいとはいえなかった。一般に剪断接着強さ平均値は引張接着強さのそれに比べ1~8割程度の範囲で大きな値を示した。また破壊面の観察では、剪断試験ではほとんどが界面破壊であったのに対し、引張試験ではボンディング材内あるいはコンポジットレジ内にみられ、象牙質内破壊も少なくなかった<sup>43,44</sup>。

## 接 合 性

### 1. 精密レプリカ法による接合性のSEM観察

コンポジットレジ充填断面の精密レプリカを製作し、SEM観察<sup>48,49</sup>を行い、種々の条件における接合状態の評価、検討を行った。まず、牛象牙質壁面の処理、プライマーの使用、さらに各種ボンディング材の使用、

複合レジンの種類などがコンポジットレジ修復物の適合状態に与える影響を比較検討した。エッチング処理、プライマー使用、ボンディング材塗布処理を行った群の方が優れた接合状態を示した。

Box typeの根面窩洞に種々のコンポジットレジ充填を行い、それらの接合状態をSEM観察した。観察した接合状態を図10のように模式化して表わし、評価検討を行った。Clearfil New Bond使用群では隙間が全周にみられたが、Clearfil Photo Bond使用群では側壁部において比較的優れた適合状態が観察された。Scotch Bond 2使用群では試料作成時に5例中1例脱離、3例で10~20 μmの隙間、1例は比較的優れた適合状態を示した。B-2, HEMA使用、Graft LC充填群に

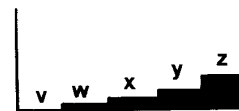


図10 模式図の隙間と記号との関係  
 v: 隙間の無い状態  
 w: 亀裂程度の隙間  
 x: 5 μm以下の隙間  
 y: 5~10 μmの隙間  
 z: 10 μm以上の隙間



Specimen No.	Control (Clearfil F II)	New Bond Clearfil F II	Photo Bond Photo Posterior	Scotch Bond 2 Valux	B 2 HEMA Graft LC	B 2 HEMA Metafil A	Super Bond Metafil A
1	dislodged R.F						
2	dislodged R.F						
3							
4	dislodged R.F			dislodged R.F			
5							

図 11 各種ボンディング材の牛歯象牙質ボックスタイプ窩洞における接合状態模式図

においては窩底部で比較的優れた適合状態が観察されたのに対し側壁部窩縁付近には 10 μm 前後の隙間が観察された。B-2, HEMA 使用, Metafil A 充填群では側壁, 窩底部とも比較的優れた適合状態が観察された<sup>50,51)</sup>。Super Bond 使用, Metafil A 充填群では側壁, 窩底部とも極めて優れた適合状態が観察された (図 11)。

経時的な接合状態の変化は, Saucer type 窩洞, Box type 窩洞いずれもリン酸エステル系より 4-META/MMA-TBB のほうが接合状態は一般に優れており, 象牙質窩洞での 4-META/MMA-TBB では 3ヶ月までの劣化の程度は低く, 12ヶ月後まで緩やかに変化した。エナメル象牙質窩洞では象牙質窩洞より劣化の程度は軽度で, Saucer type 窩洞で 12ヶ月後, Box type 窩洞で 6ヶ月後から劣化することが判明した<sup>52)</sup>。

処理液 (Gluma Bond) 中に 5% グルタルアルデヒドと 35% HEMA を含む GLUMA システムについ

て検討を行った。エナメル質を含む窩洞で GLUMA 処理に New bond を併用した実験群で Saucer type, Box type 窩洞いずれにおいても接合状態は良好で 4-META/MMA-TBB 使用群とほぼ同程度の接合状態の評価が得られた。しかし 4-META/MMA-TBB でみられるような樹脂含浸層<sup>53)</sup> はみられず, 象牙質窩洞での接合状態にはかなりのバラツキがみられた<sup>54,55)</sup>。また, GLUMA 法を用いたコンポジットレジン修復 LUMIFOR は, ビーグル犬を用いた病理試験で歯髄刺激は無視できる程度のものであること<sup>56)</sup> (表 2), 58 名の患者 108 窩洞への充填例でも短期間の観察では全く問題が無かった事, 2年後の観察 (表 3) では, C と判定された症例が 9 例で, その内訳は, 脱落 5 例, 変色, ギャップ等 4 例であったこと<sup>57,58)</sup> 等が報告されている。

新鮮抜去牛前歯根面に大小の円柱窩洞を形成し, スコッチボンド 2 を使用したのちバラックスを充填しボ

表 2 GLUMA システムの病理成績

Pathological assessment	Days	A	B	C	Total
LUMIFOR	10	13 ( 86%)	2 (14%)	0	15
	28	14 ( 93%)	1 ( 7%)	0	15
SILUX	10	15 (100%)	0	0	15
	28	13 ( 86%)	1 ( 7%)	1 (7%)	15

A=Alpha ; B=Bravo ; C=Charlie.

LUMIFOR : GLUMA システム (Heraeus Dental Materials Co., Ltd.)

SILUX : SILUX システム (3M Healthcare Co., Ltd.)

表3 GLUMA システムの24ヶ月までの臨床成績

Cavity	Total No.	1 Wk				1 Mo				3 Mo				6 Mo				12 Mo				24 Mo			
		A	B	C	U	A	B	C	U	A	B	C	U	A	B	C	U	A	B	C	U	A	B	C	U
Class I	3	1	0	0	2	3	0	0	0	3	0	0	0	2	0	0	1	1	0	0	2	1	0	0	2
Class III	56	44	1	0	11	54	1	0	1	52	1	1	2	44	2	2	8	46	2	4	4	34	6	3	13
Class IV	4	3	0	0	1	3	0	0	1	4	0	0	0	3	0	0	1	2	2	0	0	1	2	1	0
Class V	31	26	0	0	5	29	2	0	0	26	3	0	2	26	2	0	3	22	3	0	6	17	3	1	10
WSD*	14	9	2	0	3	10	1	1	2	11	1	1	1	12	1	1	0	8	2	3	1	8	1	4	1
Total	108	83	3	0	22	99	4	1	4	96	5	2	5	87	5	3	13	79	9	7	13	61	12	9	26

A=Alpha ; B=Bravo ; C=Charlie ; U=unavailable for evaluation.

\* Cavity preparation for wedge-shaped defects.

Cavity	S cavity			L cavity
	Bonding application	1 layer(thin)	1 layer(thick)	3 layers
	Filling technique	1 increment	1 increment	3 increments
1				
2				
3				
4				
5				
Group	a	b	c	d

図12 ボンディング材の塗布法, 厚さ, 充填術式, 窩洞の大きさの影響  
 ボンディング材: Scotch Bond 2  
 コンポジットレジンは: valux

ボンディング材の塗布法, 同層の厚ささらに充填術式がボンディング材と象牙質壁との接合状態にどのような影響を与えるのかについての検討も行った。図12に示すように, いずれもボンディング材3回塗布, コンポジットレジン積層3回分割充填すると接合状態は1回充填法群にくらべ明らかに優れていた。また, 大型窩洞(L cavity)に充填した場合にはボンディング材3回塗布, コンポジットレジン積層3回分割充填しても窩底中央部付近に30 μm前後のかなり大きな隙間が観察された<sup>59,60)</sup>。

4-META/MMA-TBB系レジンはあるいは, 市販ボンディング材を接合材として臼歯用複合レジンをエナメル質を含む Box type 窩洞に充填後, 各時期に充填

物咬合面部から50 kgf, 5,000回の繰り返し荷重を加え, 負荷試験後の象牙質との接合状態, 窩縁部エナメル質の亀裂発生状況を観察した。4-META/MMA-TBB系レジン使用群における象牙質との接合状態には繰り返し荷重負荷後のいずれの試料にも劣化はみられずいずれも良好な接合状態を示していたのに対し, リン酸エステル系使用群では, 接合状態は不良で大小の差こそあれいずれの条件でもほとんどすべての試料に隙間が観察された<sup>61)</sup>。

さらに, 牛歯だけでなく人新鮮抜去歯あるいは人生活歯に4-META/MMA-TBB系ボンディング材を用い, 光硬化型コンポジットレジンを充填して窩壁との接合状態および窩縁部エナメル質内の亀裂の発生状態

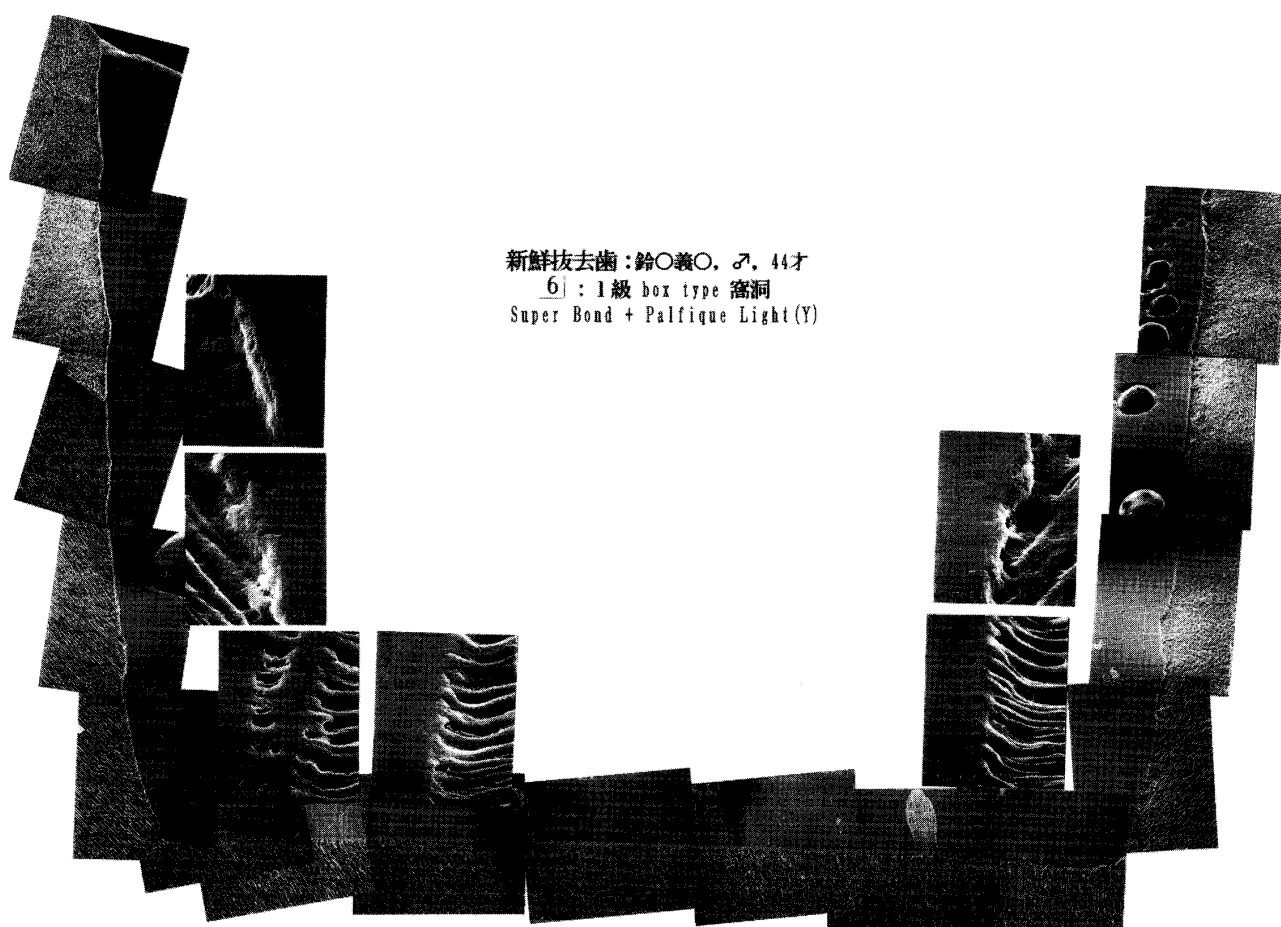


図13 ヒト新鮮抜去歯ボックスタイプ窩洞での Super Bond C & B をボンディング材とし Palfique Light を充填した場合の接合状態

を調べ、臨床応用した場合の長期予後観察も行った。

人新鮮抜去歯 Box type 窩洞での Super Bond C & B をボンディング材とした場合の代表症例を図13に、Super Bond D-Liner をボンディング材とした場合の代表症例（いずれもコンポジットレジンに Palfique Light を充填）を図14に示した。いずれも良好な接合状態を示したが、Super Bond C & Bの方がより優れていた<sup>62,63</sup>。窩縁部エナメル質における亀裂は Super Bond C & B で5例中1例、Super Bond D-Liner で5例中3例に観察された。図15～16に示した人生活歯での観察結果からも同様の傾向がみられた。

Super Bond C & Bあるいは Super Bond D-Liner をボンディング材として歯頸部窩洞にコンポジットレジン充填した症例の長期にわたる予後観察を行った。各リコール期における臨床成績は、表4に示す通りであった。表5に示すように、Super Bond C & B 使用群では36歯中61%の22歯に脱落がみられ、D-Liner

使用群では32歯中50%の16歯に脱落がみられた。残存している症例の平均経過日数は Super Bond 使用群のうち WSD 窩洞で2,797日、5級窩洞で3,152日であった。一方 D-Liner 使用群では WSD 窩洞で1,982日、5級窩洞で1,397日であった。長期残存症例では Super Bond 使用群、D-Liner 使用群ともすべての症例で辺縁部にステップと変色が認められた。なお、Super Bond 使用群における脱落例の象牙質壁にはすべての症例において Super Bond の層の付着、残留が認められた<sup>64</sup>。Super Bond とコンポジットレジンとして使用した Palfique Light との接着界面の劣化等がなければさらに臨床成績は改善されたものと思われる。

## 2. 象牙細管内液の滲出と酸処理の影響

生活歯では、象牙細管内にはトームスの繊維が存在し、その間隙を象牙細管内液が満たしており、象牙質



生活歯：馬〇と〇子、#63才  
 2] :5級、saucer type窩洞  
 Super Bond + Palfique Light (Y)  
 80日後 Ext

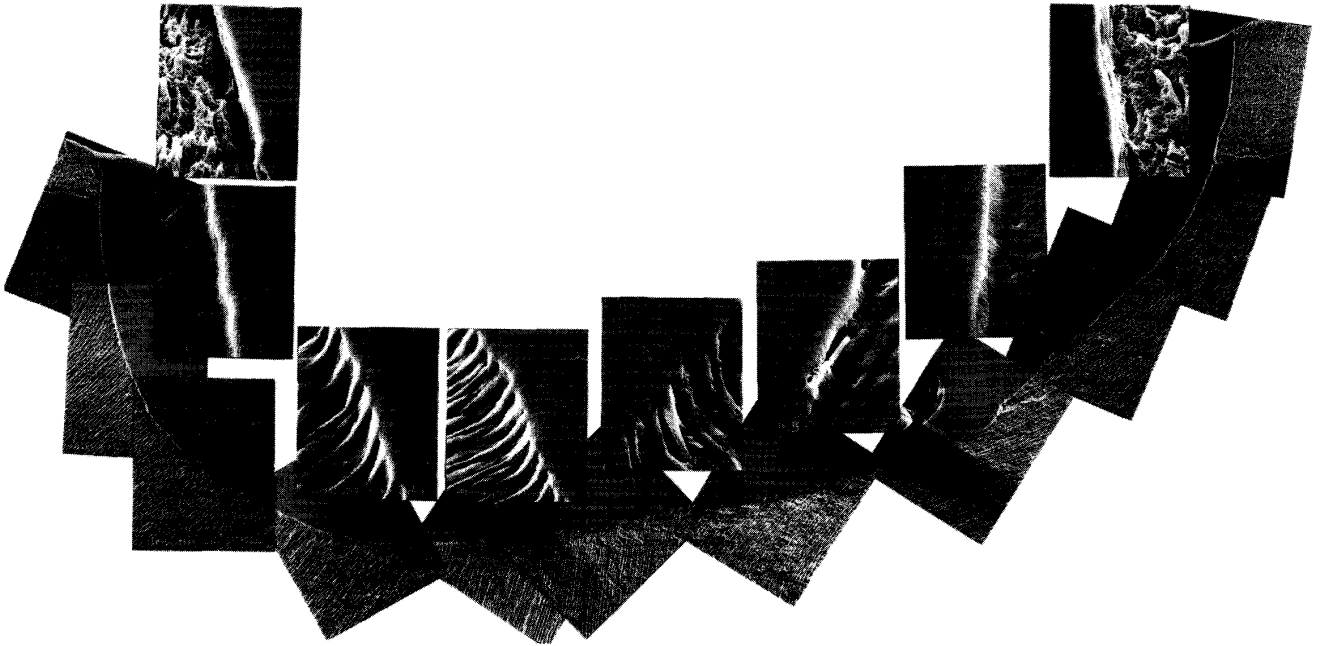


図15 ヒト生活歯皿型窩洞での Super Bond C & B をボンディング材とし Palfique Light を充填した場合の接合状態

生活歯：中〇之〇、#50才  
 4] :5級、saucer type窩洞  
 DLiner + Palfique Light (Y)  
 充填直後 Ext

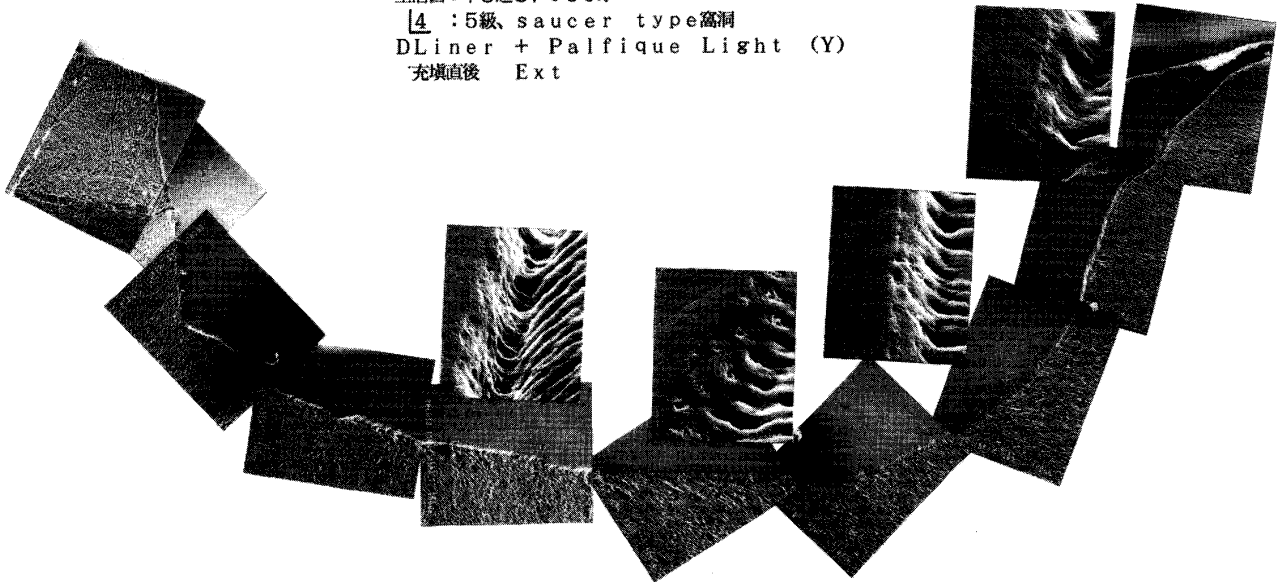


図16 ヒト生活歯皿型窩洞での Super Bond D-Liner をボンディング材とし Palfique Light を充填した場合の接合状態

### 3. 窩壁適合状態と接着強さ

コンポジットレジン象牙質面に対する接合状態を

評価する方法として光学顕微鏡で観察する方法や SEM 観察する方法がとられている。観察部位も窩縁のコントラクションギャップを測定する方法や、窩壁

表5 WSD, 5級窩洞脱落症例

	WSD	Class V
Super Bond C & B	19/28	3/8
Super Bond D Liner	10/23	6/9

全面を観察する方法が報告されている。

1) 窩縁観察

人抜去歯を #600 カーボランダムペーパーで研磨し、象牙質を露出させた後、分割式テフロンモールドをセットし市販ボンディングエージェントおよびコンポジットレジンを充填した。15分後に剪断および引張接着強さを測定した。さらに、同様の条件で保管した人抜去歯をカーボランダムペーパーにて研磨し平坦な象牙質面を露出させ同面に直径約 3.0 mm、深さ 1.5 mm の円柱状窩洞を形成し、接着強さ測定時と同様の組み合わせでコンポジットレジン充填を行った。15分間生理的食塩水に浸漬後、窩縁部のコントラクションギャップを光学顕微鏡にて測定した<sup>73-76)</sup>。

GLUMA は調べた5つの Dentin Bonding Agent

のうちで最も効果的で、接着強さが改善され、ギャップ形成が抑制された。ギャップの対数値と剪断接着強さ間には負の相関関係がみられた( $r = -0.88$ )。しかし 95% prediction line の幅が広いことから剪断接着強さからだけでは、必ずしも接合状態を予見し得ず、逆にギャップ幅から接着強さを予見し得ないように思われた<sup>76)</sup> (図 20)。しかし接着直後の接着強さや、窩縁部のコントラクションギャップの測定は臨床における当該材料の評価法として適しているものと思われる。

(2) 窩壁全面観察

(i) 新鮮抜去歯に、各種ボンディングシステムを用いてコンポジットレジン充填を行い 37°C 水中保管 24 時間後、断面の精密レプリカを作成して象牙質との接合状態を SEM 観察した。接合程度により以下に示すように 0~6 までスコア分類し引張接着強さとの相関を調べた(0: 接合面の長さのうち、窩洞象牙質面とコンポジットレジンが全く接合していないもの, 1: 接合部が 0~20% 未満のもの, 2: 20~40% 未満のもの, 3: 40~60% 未満のもの, 4: 60~80% 未満のもの, 5: 80~100% 未満のもの, 6: 100%)。窩壁適合状態と接着

Freshly extracted human tooth  
 • Y. S. : Female, Age22  
 • Tooth number(FDI) : 38

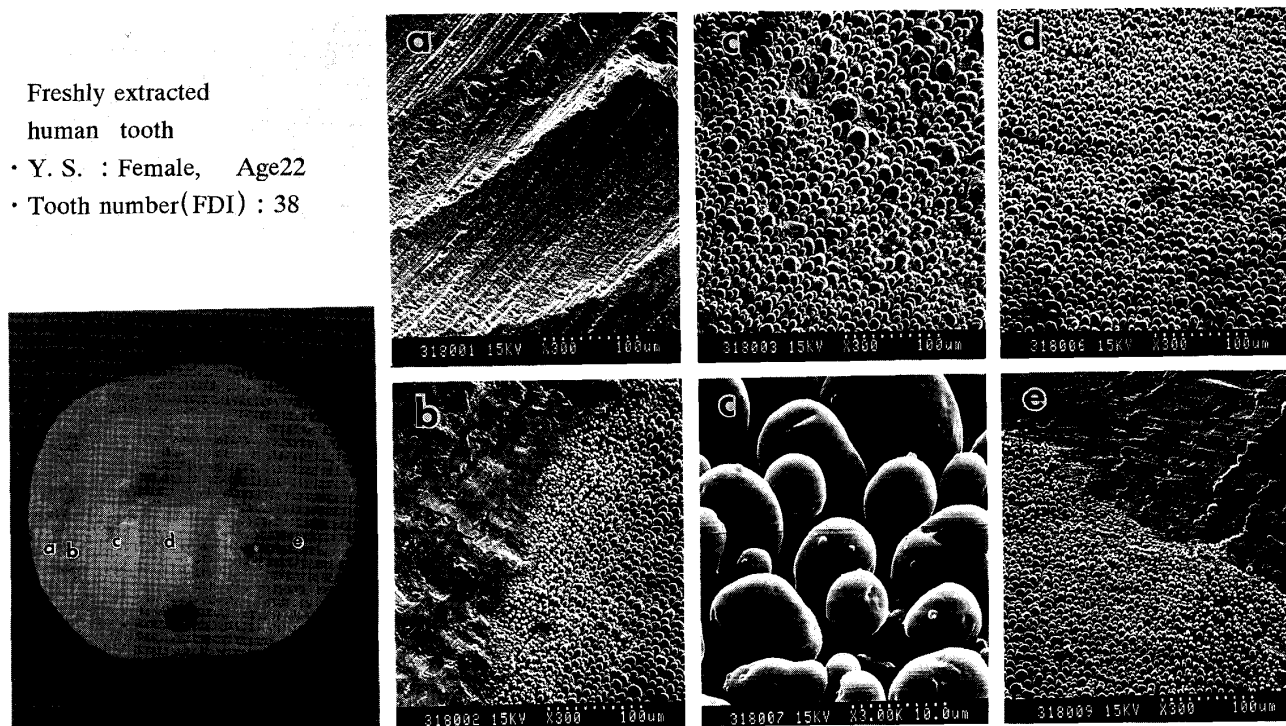


図 17 ヒト新鮮抜去歯における象牙細管内液の滲出状況

- a: エナメル質
- b, e: エナメル-象牙境付近
- c, d: 象牙質面

エナメル質面からは象牙細管内液の滲出はみられないが、象牙質面からは象牙細管内液の滲出がみられる。

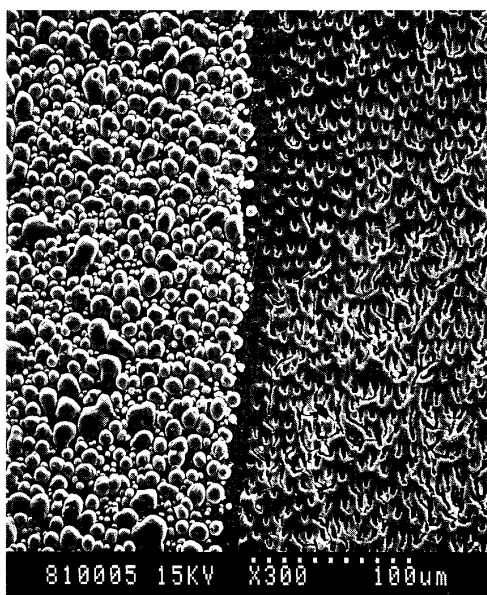


図18 酸処理面と未処理面の境界付近のSEM像  
右半分：37%リン酸60秒処理面  
左半分；非処理面  
酸処理面では象牙細管内液の滲出はみられないが、非処理面では象牙細管内液の滲出がみられる。

強さの対数値間には有意の相関が見られた ( $R=0.66 \sim 0.88, P<0.005$ ) が、これのみでは説明しきれない部分もあった。

窩洞では重合収縮の影響をより強く受ける可能性があること、各ボンディングシステムと組み合わせて使用したコンポジットレジンの種類にバラツキがあったため重合収縮による応力、重合収縮率、吸水膨張量、重合収縮のパターン、重合時のフロー、弾性係数等が異なっていること等が要因として考えられる<sup>77)</sup>。

(ii) 精密レプリカのSEM観察においてコンポジットレジンの窩壁適合状態を数値化し各種ボンディングシステムの接合指数を求め、接合システムの有効

性を比較検討した。

接合指数 (Adaptation Index)

=断面における接合部の長さにしめるスコア1の割合 (%) × 1 + スコア0.5の占める割合 (%) × 0.5 + スコア0の占める割合 (%) × 0

但しスコア1：隙間(-)，スコア0.5：亀裂程度の隙間，スコア0：すきま(+)

UDMA系コンポジットレジンの接合指数と接着強さ間には、表6に示すように相関はみられなかったが、Imperva Fluoro Bond, Super Bond C & B, Super Bond D Liner 2, Super Bond D Liner Dual はいずれも14 MPa以上の接着強さを示し、Imperva Bond, Imperva Fluoro Bond, Super Bond C & Bでは、Adaptation Indexは88%以上の値で、優れた適合状態を示していた<sup>78)</sup>。

UDMA系コンポジットレジン以外の接着システムについても検討した結果、本法は一度に多くの試料を客観的に評価でき、接合システムの良否、優劣の判定に有効な方法であることが判明した<sup>79)</sup>。

## ビスフェノール A 問題

ビスフェノール A (BPA) などの外因性内分泌攪乱物質が生物の生殖と発育に関する基本的条件に影響する可能性のあることが知られるようになり、ワニ生殖器の奇形、野生動物の脱雄性等が報告されている。ヒトの健康に対しては、女性に対する乳ガンの増加、男性に対する精子数の減少等に影響があるのではないかの諸説がある。

1996年にOlea N.ら<sup>14)</sup>は、シーラントの一製品を填塞した患者の唾液中からBPAが1時間後に検出されたとの報告を行い、これ以来にわかに歯科材料の生物学的安全性が議論されてきた。これに対して、BPAは

表6 Adptation Index と接着強さ

Bonding System	Composite Resin	Adaptation Index	Bond Strength (MPa)
Imperva Fluoro Bond	Litefil IIA	95.6 ( 2.5)	14.3 (6.0)
Super Bond C & B	EPIC-TMPT	89.0 ( 9.6)	25.9 (4.0)
Imperva Bond	Litefil IIA	88.4 (19.8)	8.5 (3.5)
Super Bond D-Liner 2	EPIC-TMPT	50.0 (14.4)	14.1 (3.6)
Super Bond D-Liner dual + polymer	EPIC-TMPT	44.2 ( 6.8)	20.3 (5.2)
Super Bond D-Liner Dual	EPIC-TMPT	29.6 ( 3.6)	12.3 (2.3)

( ): S.D.

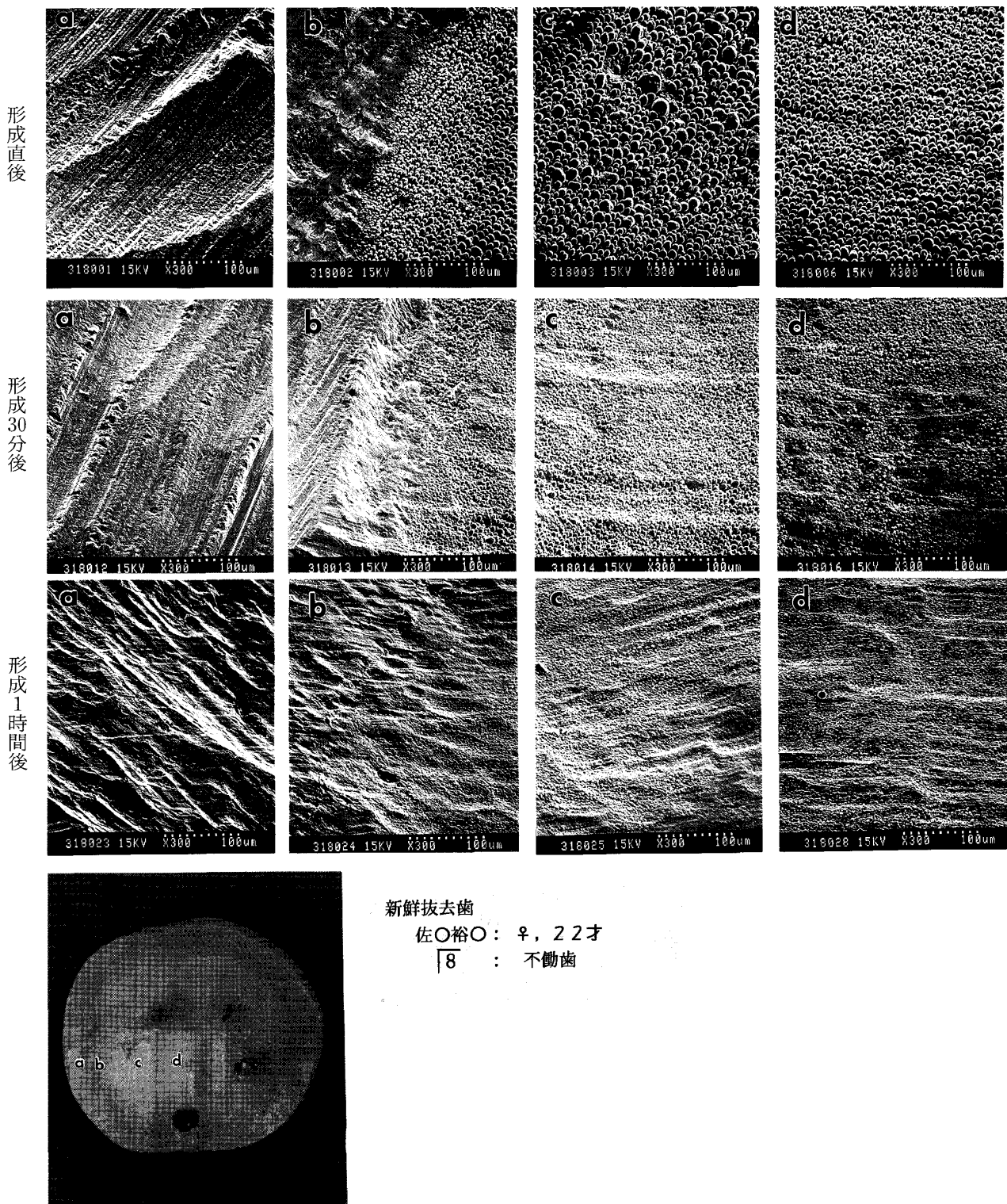


図19 ヒト新鮮抜去歯における象牙細管内液滲出の経時的変化  
 形成直後に象牙質にみられた象牙細管内液の滲出は時間の経過とともに減少する  
 a: エナメル質  
 b: エナメル-象牙境付近  
 c, d: 象牙質面



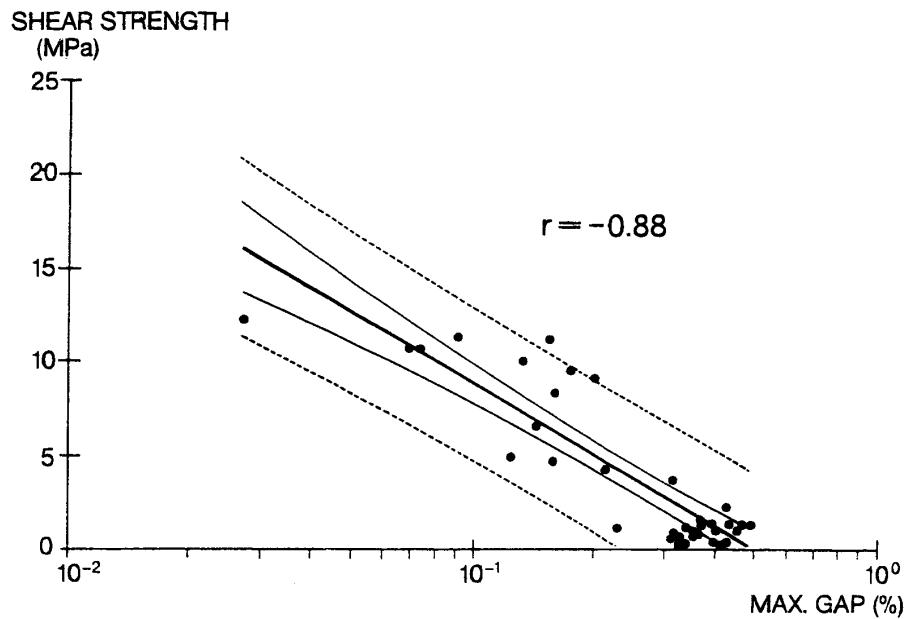


図 20 剪断接着強さと Marginal Contraction Gap  
 太実線: Regression line  
 細実線: 95% Confidence interval  
 点線: 95% prediction interval

検出されなかったという報告<sup>15,16,18,19,21)</sup> や, Olea N. らの報告自体に本来含まれている量以上の BPA が検出されているとして疑問を投げかけている報告も成されている<sup>13)</sup>。

米国歯科医師会では, そのインターネットホームページ上で, その時点での情報を開示し見解を示している。それによると承認済みの市販 12 種のシーラント材の組成分析を行って, 11 製品からは BPA が検出されなかったが 1 製品から微量の BPA が検出され, それは指導の結果改善されたとしている。さらに, シーラントを充填している 30 名の歯科医師と, していない 10 名の歯科医師の血液中の BPA の有無を調べ, いずれの歯科医師からも, BPA は検出されなかったことを報告している。歯科用シーラント材からごく微量の BPA が溶出したとしても, 血液中から検出されなかったということは, それによるエストロゲン様障害は存在しない事を意味し, 健康への影響を否定し, シーラント材の歯科診療上での使用は差し支えないという見解をとっている。

しかし, 検出限界濃度 2.0~2.5 ng/ml の高感度で分析すると, 微量ではあり, 経時的に減少はするが BPA が溶出し, 検出されることが報告されている<sup>20,22,23)</sup>。

日本歯科理工学会<sup>13)</sup> では, Bis-GMA がこのように

BPA 骨格を有する高分子歯科材料である以上, 製品によっては BPA が不純物として残存する場合があります, それが BPA 溶出につながる可能性は否定できないとしている。今後, 分析機器の検出感度や測定技術の向上により, BPA 検出の精度が高まり, これまでの溶出像とは異なったデータの公表される可能性も考えられる。さらに生体内における生理的, あるいは使用条件下特に長時間にわたる BPA 溶出挙動に関するデータとその生体への影響に関する研究が必要であるとしている。

## おわりに

これまでコンポジットレジンとその周辺の材料に関する開発改良は, 他の歯科材料に類をみない早いスピードで進行してきている。今後は歯面処理を行わなくても歯質と化学的に接着し, 重合収縮が現在のものよりさらに小さく, 熱膨張係数が歯質と同じコンポジットレジンの開発<sup>80,81)</sup> が期待される。メーカー指示通りの操作だけでなく, エナメル質に対してリン酸エッチング処理を追加することにより 3 年後でも接着強さの低下が認められなかったシステムがある。このような場合には, 処理ステップ数が増加しても, 追加

操作を行った方がより良い臨床予後成績が得られるものと思われる。これからも、BPA 溶出问题も含めて製品の動向に注目しメーカーの説明をうのみにすることなく、独自にその物性、接着性等をチェックしてゆくことが必要であろう。

## 謝 辞

稿を終えるにあたり総説をまとめる機会を与えていただいた東北大学歯学会の皆様、御指導いただいた奥田禮一教授ならびに教室の笹崎弘己、遠藤達雄両講師をはじめとする接着関連の研究に携われた諸先生に深く感謝致します。

**内容要旨：**コンポジットレジン修復を行う際に、良好な臨床成績を得るためには、歯質と高い接着性、良好な接合状態を有することが望ましい。ここでは、臨床成績に影響を及ぼす修復材、技法、環境ホルモン Bis-Phenol A (BPA) 問題について検討した。

まず、臨床にできるだけ近い条件で接着強さを測定するためには、成牛の新鮮抜去下顎前歯 I<sub>1</sub> あるいは I<sub>2</sub> の象牙質を使用すべきであることを明らかにした。

次いで、多数の市販ボンディングシステムの接着強さ測定を行うとともに、精密レプリカ法による歯質に対する接合状態の SEM 観察を行った。

試作 Self Etching Dentin Bonding Agent では、EDTA、マレイン酸、タンニン酸、チオシアン酸カリウム等にグルタルアルデヒド、塩化第二鉄、HEMA を加えた処理液が効果的で、象牙質と 15 MPa 以上の接着強さを示した。

市販ボンディングシステムでは、3 年までの接着強さを測定した。Imperva Fluoro Bond (株) 松風、Mac Bond (株) トクヤマ、Super Bond D-Liner (サンメディカル (株))、Clearfil Liner Bond 2 (株) クラレ、Scotch Bond Multipurpose (スリーエムヘルスケア (株)) 等が特に大きな接着強さを示した。接着強さは経時的に減少したが、2 年経過しても低下しないボンディングシステムもあった。しかしこれらも 3 年後には低下した。グルマシステム (ヘルスデンタルマテリアル (株)) も象牙質に対して優れた接合状態と臨床成績を示した。

SEM 観察からは、エッチング、プライマー処理、ボンディング材塗布処理を行った群のほうが接合状態が優れていた。また、リン酸エステル系より 4-META/MMA-TBB のほうが一般に接合状態が優れており、人歯でも同様の傾向がみられた。ボンディング材を 3 回塗布、コンポジットレジン積層 3 回分割充填すると、接合状態は 1 回充填法にくらべ明らかに優れていた。

形成面精密レプリカの SEM 観察により、新鮮抜去歯切削象牙質面から、接着・接合性に大きな影響を及ぼす細管内液の滲出を認めた。37% リン酸あるいは 3% 塩化第二鉄含有 10% クエン酸処理を行うとこの滲出はみられなくなり、経時的に減少し、1 時間後にはほとんどみられなくなった。

また、窩壁適合状態と接着強さについても検討し、両者には高い相関が見られることを明らかにした。

ベースレジンとして用いられている高分子量の Bis-GMA は BPA 骨格を有しているため、BPA が不純物として残存する場合があります、それが BPA 溶出につながる可能性がある。分析機器の検出感度や測定技術の向上により、ごく微量の BPA が検出できるようになってきており、溶出成分に関する種々の測定値が報告されている。

良好な臨床成績を得るためには、BPA 溶出が無く、歯質に対する接着・接合性に優れた接着性コンポジットレジンを用いて修復を行うことが望ましい。

## 文 献

- 1) 久保田稔, 志摩修一, 加藤清子, 石川 宏, 涌井オーロラルーカス, 奥田禮一: コンポジットレジンの臨床成績. 日歯保存誌 **23**: 73-77, 1980.
- 2) 坂田多喜雄: コンポジットレジンの辺縁部適合性について. 歯材器誌 **33**: 1-10, 1976.
- 3) 久保田稔: コンポジットレジンの辺縁部適合性に関する臨床的研究 その 1. 走査型電顕による観察のための各種レプリカ法の比較. 歯材器誌 **34**: 257-268, 1977.
- 4) 久保田稔: コンポジットレジンの辺縁部適合性に

- 関する臨床的研究 その2. 修復直後および1年以上経過した症例の辺縁適合状態について. 歯材器誌 **34**: 253-264, 1977.
- 5) 総山孝雄: 新レジン充填. 永末書店, 京都, 1977, pp. 165-181.
  - 6) Bowen, R.L.: Properties of Silica Reinforced Polymer for Dental Restorations. J. Am. Dent. Assoc. **66**: 57-64, 1963.
  - 7) Bowen, R.L.: Adhesive Bonding Various Materials to Hard Tooth Tissues I. Method of Determining Bond Strength. J. Dent. Res. **44**: 690-695, 1965.
  - 8) Bowen, R.L.: Adhesive Bonding Various Materials to Hard Tooth Tissues II. Bonding to Dentin Promoted by a Surface-active Comonomer. J. Dent. Res. **44**: 895-902, 1965.
  - 9) Bowen, R.L.: Adhesive Bonding Various Materials to Hard Tooth Tissues III. Bonding to Dentin Improved by Pretreatment and the Use of a Surface-active Comonomer. J. Dent. Res. **44**: 903-905, 1965.
  - 10) Bowen, R.L.: Adhesive Bonding Various Materials to Hard Tooth Tissues IV. Bonding to Dentin, Enamel and Fluoroapatite Improved by the Use of a Surface-active Comonomer. J. Dent. Res. **44**: 906-911, 1965.
  - 11) 細田裕康: 保存修復学各論. 永末書店, 京都, 1989, pp. 65-75.
  - 12) 岩久正明, 河野 篤, 千田 彰, 田上順次: 保存修復学 **21**. 永末書店, 京都, 1998, pp. 115-116.
  - 13) 歯科器材調査研究委員会: 内分泌攪乱作用が疑われる, ビスフェノール A を主とする化学物質と歯科材料との関わりについて. 歯材器誌 **18**: 302-331, 1999.
  - 14) Olea, N., Pulger, R., Perez, P., Olea-Serano, F., Rivas, A., Novillo-Fertrell, A., Pedraza, V., Soto, A.M. and Sonnenschein, C.: Estrogenicity of Resin-based Composite and Sealants Used in Dentistry. Environmental Health Perspective **104**: 298-305, 1996.
  - 15) Nathanson, D., Lertpitayakun, P., Lamkin, M.S., Edalaptour, M. and Chou, L.L.: In Vitro Elution of Leachable Components from Dental Sealants. J. Am. Dent. Assoc. **128**: 1517-1523, 1997.
  - 16) Hamid, A. and Hume, W.R.: A Study of Component Release from Resin Pit and Fissure Sealants in Vivo. Dental Materials **13**: 98-102, 1997.
  - 17) 日本歯科医学界医療環境問題検討委員会: 歯科材料における“ビスフェノール A”問題についての見解. 歯材器誌 **17**: 261, 1998.
  - 18) 駒林 卓, 今井庸二: コンポジットレジン中のビスフェノール A について. 歯材器誌 **17 Special Issue 32**: 117, 1998.
  - 19) 日野憲一: 歯科材料とビスフェノール A. 歯材器誌 **17 Special Issue 32**: 118, 1998.
  - 20) 本郷敏雄, 佐藤温重, 一條秀憲: 蛍光による歯科用レジンの高感度分析法. 歯材器誌 **17 Special Issue**: 119, 1998.
  - 21) 野本理恵, 平澤 忠: フィッシャーシーラントにおけるビスフェノール A 含有量. 歯材器誌 **17 Special Issue 32**: 65, 1998.
  - 22) 金子祥子, 佐藤昌史, 井上美津子, 佐々竜二, 伊藤和雄, 真鍋厚史, 久光 久, 和久本貞雄, 沼澤 聡, 吉田武美: 歯科材料からの bisphenol-A 溶出の可能性 第1報 市販 dentin bonding agent と fissure sealant を用いた溶出試験. 日歯保存誌 **41** 秋季特別号: 35, 1998.
  - 23) 本郷敏雄, 大槻昌幸, 稲井紀通, 田上順次: プライマー, ボンディング材成分の HPLC による同定. 日歯保存誌 **41** 秋季特別号: 36, 1998.
  - 24) 樽味 寿, 今里 聡, 成松雅博, 江原 篤, 加藤節子, 恵比寿繁之, 日野憲一: レポーター遺伝子法によるレジン材料のエストロゲン様活性の検討. 日歯保存誌 **42** 春季特別号: 34, 1999.
  - 25) 金子祥子, 佐藤昌史, 井上美津子, 佐々竜二, 伊藤和雄, 真鍋厚史, 久光 久, 和久本貞雄, 沼澤 聡, 吉田武美. Fissure sealant から溶出される bisphenol-A の定性と定量. 日歯保存誌 **42** 春季特別号: 35, 1999.
  - 26) 畑中豊美: 「Bisphenol-A」溶出問題の検討. みちのく歯学誌 **29**: 26-27, 1998.
  - 27) 高橋重雄: 国際標準化機構/技術報告書 11405 歯科材料—歯質の接着試験に関する指針と発表の経過. 接着歯学 **13**: 48-52, 1995.
  - 28) 中道 勇: 各種修復材料の人歯と牛歯に対する接着力. 口病誌 **49**: 31-40, 1982.
  - 29) 中道 勇: 各種修復材料の人歯と牛歯に対する接着力 (補遺). 歯材器誌 **3**: 85-94, 1984.
  - 30) 浅沼 慎, 小松正志, 奥田禮一: 象牙質に対する MMA-TBB レジンの接着強さ—グルタルアル

- デヒド, 塩化第二鉄含有 EDTA 溶液による前処理効果一. 日歯保存誌 **31**: 533-542, 1988.
- 31) 工藤義之, 小菅 玲, 遠藤達雄, 小松正志, 奥田禮一: 象牙質に対する MMA-TBB レジンの接着強さ 第2報 FeCl<sub>2</sub>, GA, EDTA 溶液による前処理効果補遺. 日歯保存誌 **32**: 899-909, 1989.
- 32) 安倍 敏, 小菅 玲, 工藤義之, 遠藤達雄, 奥田禮一: 牛歯の凍結保存と樹脂包埋が象牙質とレジン材料の接着強さに与える影響. 日歯保存誌 **35**: 1412-1421, 1992.
- 33) 小菅 玲, 工藤義之, 遠藤達雄, 小松正志, 奥田禮一: 牛歯の加齢ならびに歯種が象牙質とレジン材料の接着強さに与える影響. 日歯保存誌 **34**: 203-208, 1991.
- 34) 高倉ひな子, マイケル F. バロウ, 中島正俊, 稲井紀通, 田上順次, 高津寿夫: 象牙質の加齢と歯髄からの被着面距離がコンポジットレジンの接着に与える影響について. 日歯保存誌 **38**: 172-179, 1995.
- 35) Suzuki, T. and Finger, W.J.: Dentin Adhesive: Site of Dentin vs Bonding of Composite Resins. *Dent. Mater.* **4**: 379-383, 1998.
- 36) 中島正俊, 高田恒彦, 田上順次, 細田裕康: 歯種および歯面の異なる象牙質に対するレジンの接着性に関する研究. 日歯保存誌 **34**: 266-274, 1991.
- 37) Tagami, J., Tao, L. and Pashley, D.H.: Correlation among Dentin Depth, Permeability and Bond Strength of Adhesive Resins. *Dent. Mater.* **6**: 45-50, 1990.
- 38) 小松正志, 西村有子, 安倍 敏, 工藤義之, 遠藤達雄, 奥田禮一: Self Etching Dentin Primer に関する研究—タンニン酸, マレイン酸あるいはチオシアン酸カリウム混合水溶液による前処理の効果一. 日歯保存誌 **35** 秋季特別号: 107, 1992.
- 39) Komatsu, M., Abe, S., Kudou, Y., Endou, T. and Okuda, R.: Tensile Bond Strength of Experimental Self Etching Dentin Primer to Freshly Extracted Bovine Dentin. *Transactions Second International Congress on Dental Materials*: 252, 1993.
- 40) 遠藤達雄, 安倍 敏, 工藤義之, 小松正志, 奥田禮一: ボンディングシステムの象牙質およびエナメル質に対する接着効果—2年間までの測定結果一. 日歯保存誌 **37** 秋季特別号: 92, 1994.
- 41) 遠藤達雄, 安倍 敏, 工藤義之, 小松正志, 奥田禮一: ボンディングシステムの象牙質およびエナメル質に対する接着効果—2年間までの測定結果(その2)—. 日歯保存誌 **39** 秋季特別号: 140, 1996.
- 42) 遠藤達雄, 宮本弘平, 高田昌樹, 高橋世紀, 安倍敏, 工藤義之, 小松正志, 奥田禮一: ボンディングシステムの象牙質およびエナメル質に対する接着効果—3年間までの測定結果一. 日歯保存誌 **42** 春季特別号: 114, 1999.
- 43) 高橋世紀, 安倍 敏, 遠藤達雄, 小松正志, 奥田禮一: 牛歯象牙質面とレジン系修復材の接着強さ—剪断接着強さと引張り接着強さの比較一. 日歯保存誌 **39** 秋季特別号: 139, 1996.
- 44) Takahashi, S., Abe, S., Endou, T., Komatsu, M. and Okuda, R.: Measurement of Shear Bond Strength Using Non-embedded Bovine Teeth. *Transactions Third International Congress on Dental Materials*: 158, 1997.
- 45) Al-Salehi, S.K. and Burke, F.J.T.: Methods Used in Dentin Bonding Tests: An Analysis of 50 Investigations on Bond Strength. *Quintessence International* **28**: 717-723, 1997.
- 46) 岡本 修, 中林宣男: 象牙質接着試料の剪断強さおよび破断面の観察. 歯材器誌 **14**: 445-453, 1995.
- 47) Kitasato, Y., Burrow, M.F., Nikaido, T., Harada, N., Inokoshi, S., Yamada, T. and Takatsu, T.: Shear and Tensile Bond Testing for Resin Cement Evaluation. *Dent. Mater.* **11**: 298-304, 1995.
- 48) 笹崎弘己, 小野 喬, 奥田禮一: 各種象牙質処理法によるレジン系修復材料の適合精度 (1). 日歯保存誌 **25**: 45-54, 1982.
- 49) 瀬戸文子, 新藤佳子, 梅津雅永, 笹崎弘己, 小野 喬, 奥田禮一: 前歯修復用レジンの象牙質壁に対する適合状態—光重合レジンにおけるレプリカ SEM 観察一. 日歯保存誌 **26**: 473-483, 1983.
- 50) 笹崎弘己: 象牙質と接着性複合レジンの適合状態 1. 接着強さと隙間の発生. 日歯保存誌 **28**: 452-478, 1985.
- 51) 笹崎弘己: 象牙質と接着性複合レジンの適合状態 2. 象牙質の構造と適合状態. 日歯保存誌 **28**: 479-491, 1985.
- 52) 笹崎弘己, 奥田禮一: 象牙質と接着性複合レジンの適合状態 3. 6ヶ月および12ヶ月後の適合状態. 日歯保存誌 **30**: 152-171, 1987.
- 53) Nakabayashi, N. and Pashley, D.H.: Hybridi-

- zation of Dental Hard Tissues. Quintessence Publishing Co., Ltd, Tokyo, 1998, pp. 70-71.
- 54) 坂本裕子, 笹崎弘己, 奥田禮一: 象牙質と接着性複合レジンの適合状態 4. clearfil new bondとGLUMAの効果について. 日歯保存誌 **30**: 462-474, 1987.
- 55) 青柳紀子, 安倍 敏, 笹崎弘己, 奥田禮一: 複合レジン修復物の象牙質壁に対する適合状態—牛歯窩洞における各種ボンディング材と複合レジンとの組み合わせによる影響—. 日歯保存 **34**: 116-126, 1991.
- 56) 兼平正史, 山中 仁, 奥田禮一: GLUMA法を用いたコンポジットレジン修復法 第1報 ビーグル犬による歯髄刺激試験成績. 日歯保存誌 **30**: 1588-1599, 1987.
- 57) 小松正志, 斉藤 修, 兼平正史, 涌井オーロラールカス, 笹崎弘己, 奥田禮一: GLUMA法を用いたコンポジットレジン修復法 第2報 短期臨床試験成績. 東北歯学誌 **6**: 121-131, 1987.
- 58) Komatsu, M., Wakui, O.L., Obara, M., Kubota, M. and Okuda, R.: Two-year Clinical Observations of Light-cured Composite Resin Restorations Placed with a Dentinal Bonding Agent. *Quintessence International* **21**: 1001-1006, 1990.
- 59) 笹崎弘己, 奥田禮一: 牛歯象牙質と接着性複合レジン適合状態—ボンディング材塗布法あるいは充填材の充填法が接合状態に与える影響—. 日接着誌 **10**: 301-310, 1992.
- 60) 笹崎弘己, 奥田禮一: 象牙質壁と接着性複合レジン適合状態 第6報 光重型レジンにおける積層充填法と適合状態. 日歯保存誌 **32**: 1561-1572, 1989.
- 61) 笹崎弘己, 奥田禮一: 象牙質壁と接着性複合レジン適合状態 第5報 繰り返し荷重負荷後の適合状態 その1. 日歯保存誌 **31**: 1550-1558, 1988.
- 62) 笹崎弘己, 奥田禮一: 象牙質壁と接着性複合レジン適合状態 第8報 4-META/MMA-TBB系など各種ボンディング材の効果. 日歯保存誌 **38**: 375-395, 1995.
- 63) 笹崎弘己, 奥田禮一: 象牙質壁と接着性複合レジン適合状態 第9報 象牙質接着剤として用いた Super Bond C & B と Super Bond D Liner の効果. 日歯保存誌 **38**: 396-408, 1995.
- 64) 笹崎弘己, 奥田禮一: 象牙質壁と接着性複合レジン適合状態 第10報 4-META/MMA-TBBをボンディング材とする歯型部レジン修復例の長期予後観察. 日歯保存誌 **42**: 27-35, 1999.
- 65) Brännström, M.: Communication between the Oral Cavity and the Dental Pulp Associated with Restorative Treatment. *Operative Dentistry* **9**: 57-68, 1984.
- 66) 笹崎弘己, 奥田禮一: 象牙細管内液の観察. 日歯保存誌 **37**: 1164-1171, 1994.
- 67) 笹崎弘己, 奥田禮一: ヒト象牙質面における象牙細管内液の観察. 日歯保存誌 **37**: 1172-1185, 1994.
- 68) 笹崎弘己, 奥田禮一: 象牙細管内液の滲出に対する酸処理の効果. 日歯保存誌 **37**: 1224-1233, 1994.
- 69) 笹崎弘己, 奥田禮一: 象牙細管内液滲出の経時的観察. 日歯保存誌 **37**: 1708-1718, 1994.
- 70) 笹崎弘己: 象牙細管内液の滲出と酸処理の効果. *DE* **113**: 1-7, 1995.
- 71) 笹崎弘己: SEMで捉えた象牙細管からの組織液の滲出. *日本歯科評論* **629**: 102-111, 1995.
- 72) Sasazaki, H. and Okuda, R.: Effect of Etching on the Exudation of Internal Fluid. *Proceedings of the International Congress on Dentin/Pulp Complex 1995 and International Meeting on Clinical Topics of Dentin/Pulp Complex*: 280-282, 1995.
- 73) Jørgensen, K.D., Itoh, K., Munksgaard, E.C. and Asmussen, E.: Composite Wall-to-wall Polymerization Contraction in Dentin Cavities Treated with Various Bonding Agents. *Scand. J. Dent. Res.* **93**: 276-279, 1985.
- 74) Chigira, H., Itoh, K. and Wakumoto, S.: Marginal Adaptation of Nine Commercial Intermediate Resins. *Dent. Mater.* **7**: 103-106, 1991.
- 75) Chigira, H., Manabe, A., Hasegawa, T., Yuki-tani, W., Fujimitu, T., Itoh, K., Hisamitsu, H. and Wakumoto, S.: Efficacy of Various Commercial Dentin Bonding Systems. *Dent. Mater.* **10**: 363-368, 1994.
- 76) Komatsu, M. and Finger, W.: Dentin Bonding Agents: Correlation of Early Bond Strength with Margin Gaps. *Dent. Mater.* **2**: 257-262, 1986.
- 77) 遠藤達雄, 安倍 敏, 笹崎弘己, 小松正志, 奥田禮一: コンポジットレジン充填の窩壁適合状態と接着強さ. 日歯保存誌 **38** 秋季特別号: 67, 1995.
- 78) 高橋世紀, 高田昌樹, 安倍 敏, 遠藤達雄, 笹崎弘

- 己, 小松正志, 奥田禮一: UDMA 系コンポジットレジンの窩壁適合状態. 日歯保存誌 **41** 秋季特別号: 124, 1998.
- 79) 笹崎弘己, 奥田禮一: コンポジットレジンの修復物の接合指数による各種ボンディングシステムの評価. 日歯保存誌 **42**: 712-721, 1999.
- 80) Eick, J.D., Robinson, S.J., Byerley, T.J. and Chappelow, C.C.: Adhesives and Nonshrinking Dental Resins of the Future. *Quintessence International* **24**: 632-640, 1993.
- 81) Millich, F., Eick, J.D., Jeang, L. and Byerley, T.J.: Design of Monomers for Nonshrinking Polymerizations and Synthesis of Some N, S, -analogs of Spiroorthocarbonates. *J. Polymer. Sci.* **31**: 1667-1673, 1993.