象牙質のコンポジットレジンからの未反応物質遮断性

九州歯科大学保存学第1講座（指導：長野三代太教授）

河 野 直 博

昭和63年12月23日受付

Potentiality of Dentin to Block Residual Substances from Composite Resins

Naohiro Kawano

Department of Operative Dentistry (Director: Prof. Miyota Nagano)
Kyushu Dental College, Kitakyushu, Japan

Composite resins have been preferably used as the esthetic restorations. However, they sometimes produce certain pulpal irritation. It may be partly attributed to the presence of irritants involving unreacted substances such as residual monomers in the resin restoration. In this study, therefore, the permeability of those substances through dentin structure into pulpal chamber was investigated using sound extracted teeth.

The high speed liquid chromatography revealed that Bis-GMA and Tri-EDMA monomers and a substance having a molecular weight of about 140 were eluted in distilled water from the composite resin used. These residual substances could easily pass through the dentin when the resin was placed in the prepared cavity without removing the smear layer. There could be found no significant increase in the permeability by the acid treatment of the dentinal wall although it has been considered so far that the treatment would result in the increased permeability.

When a light-chemical-curing bonding agent was applied to the acid-etched dentin, the penetration of Tri-EDMA was markedly decreased and that of the unidentified substance was entirely inhibited. A chemical-curing bonding agent, on the other hand, showed no significant effects on the permeability. Furthermore, the 3%FeCl₃ treatment of the dentin prior to applying the bonding agent showed much better ability to block the penetration of these substances, permitting only a small amount of Tri-EDMA to pass.

It was found from SEM observations that the composite resins exhibited fairly tight bonding to the dentinal wall with the aid of the light-chemical-curing bonding agent while the chemical-curing bonding agent produced large interfacial gaps between them. No gaps were observed in the combined use of the light-chemical-curing bonding agent and chemical-curing composite resin on the 3%FeCl₃-pretreated dentin.

Thus the permeability of the residual substances through dentin was well correlated with the presence of the interfacial gaps between the composite resin and dentinal wall. In addition, it was also suggested that the deposits resulting from 3%FeCl₃ treatment

might play an important role to block the permeation of the residual substances by sealing the dentin tubules.

Key words: *Composite resin/Residual substance/Dentin/Permeability*

緒 言

審美的で歯質の切削量が少なく、また操作性に優れたコンポジットレジン、種々の物性の改良によって広範囲の修復に用いられるようになった。しかしながら、コンポジットレジンで修復した後にレジン特有の歯髄症状が発現することが多く、これらの原因を解明するために数多くの基礎的ならび臨床的研究がなされている¹⁻⁹⁾。

コンポジットレジン修復による歯髄刺激の原因としては、レジン材料そのものの為害作用がまず取り上げられ、Langelandら(1966)¹⁾、藤沢ら(1978)²⁾、Stanleyら(1979)³⁾、Cottonら(1979)⁴⁾は、レジン成分の歯髄刺激性を指摘している。一方では、レジンの窩洞不適合による辺縁漏洩や細菌の侵入がその原因として注目され、レジンの窩洞適合性と歯髄刺激との間には少なからず関係があることが明らかになってきた⁵⁻⁹⁾。彼らはレジンを歯質と接着させることによって、歯髄刺激が防止できる可能性を示唆している。

レジンと歯質を接着させることは、裏装を行わず直接レジンが象牙質に触れることを意味している。さらにレジンと象牙質との接着を強固にするために、象牙質をもエッチングする方向へと研究が進んできている¹⁰⁾。エッチングを行うと種々の刺激が象牙質を通過して歯髄へ伝わりやすくなることが指摘されている^{3,4,11)}。このような状況下においても、窩洞に充填したレジンの成分が歯髄を刺激する機序に関しては明らかにされておらず、この点に関して早急な解明が必要となってきた。

窩洞に充填されたレジンには、硬化後も刺激性の強い未反応物質が多く残存しており¹²⁻¹⁴⁾、これらが象牙細

管を通過し、歯髄に達するとなんらかの障害を与えることが予想される。しかしながら、象牙質が未反応物質の通過を遮断することも考えられ、この点は明らかではない。そこで、ヒトの新鮮抜去歯牙と市販のコンポジットレジンを用い、象牙質を通過してくるコンポジットレジンの未反応物質を分析し、レジンの成分による歯髄刺激発現の可能性について検討した。

実 験 材 料

実験に使用した歯牙は、蒸留水中に保存した抜去後3日以内の健全なヒト抜去大白歯である。コンポジットレジン、Table 1に示したようにClearfil F II (以下F IIと略)、Photo Clearfil A (以下PAと略)の2種類で、エッチング剤、ボンディング材はそれぞれ付属のものを使用した。なおPAはユニバーサルペーストのみを使用した。また象牙質専用の処理剤として3% FeCl₃溶液を用いた。さらにボンディング材からの成分の象牙質通過をみるために、コンポジットレジンの代りにアマルガム(松風社製 Spherical-D)を用いた実験も行った。

実 験 方 法

I. 未反応物質の分析

各コンポジットレジン0.1gを内径2.5mmのテフロン製モールドの中に填塞し、重合硬化させた。F IIはユニバーサルペーストとキャタリストペースト各0.05gを採取、練和し、一括で填塞した。PAは2回積層法を用い、各填塞ごとに30秒間光照射した。照射器にはDay Light (松風社製)を使用した。硬化後ただちに各コン

Table 1 Materials used

Code	Material	Curing type	Manufacturer
F II	Clearfil F II	Chemical	Kuraray
PA	Photo Clearfil A	Light	Kuraray
NB	Clearfil New Bond	Chemical	Kuraray
PB	Clearfil Photo Bond	Light & Chemical	Kuraray

Etching agent : Clearfil etching agent

Pretreating agent : 3% FeCl₃ solution

ポジットレジンに5 mlの蒸留水中に浸漬し、37°C 湿度100%の暗所に保存した。2週間後、蒸留水中に含まれているレジンから溶出してきた未反応物質を慶田(1982)¹³⁾の方法で抽出し、高速液体クロマトグラフ LC-3 A (以下液クロと略)で分析した。カラムはWB-G-20 (和光社製) 2本を直列に連結して使用した。移動相にはテトラヒドロフラン (以下 THF と略) を用い、分析条件は Absorbance : 0.08 mV, Pressure limit : 100kg/cm², Flow rate : 1 ml/min, UV wave length : 254nm, Chart speed : 5 mm/min とした。

Ⅰ. 未反応物質遮断性

実験に用いた試験片の模式図を Fig. 1 に示す。ヒトの抜去大白歯を、解剖学的歯頸線付近で切断して、歯髄側から天蓋部分をダイヤモンドポイントにて平坦にした。形成面をエッチング剤で60秒間処理し、歯髄側の象牙細管を開放状態にした。その後、咬合面から残存象牙質が2.0mm となるように、直径2.5mm の窩洞を形成した。この窩洞に以下の5通りの方法で修復を行った。

Fig. 1 Schematic representation of permeability test.

- 1) 窩洞をエッチングせず、ボンディング材なしに直接コンポジットレジンを充填
- 2) 窩洞を60秒間リン酸エッチング、水洗、乾燥した後ボンディング材なしに直接コンポジットレジンを充填
- 3) 窩洞を60秒間リン酸エッチング、水洗、乾燥し、ボンディング材を塗布した後、コンポジットレジンを充填
- 4) 窩洞を60秒間リン酸エッチング、水洗、乾燥し、さらに3% FeCl₃溶液で60秒間処理、水洗、乾燥し、ボンディング材を塗布した。コンポジットレジン (FⅡ) を充填
- 5) 窩洞を60秒間リン酸エッチング、水洗、乾燥し、ボ

ンディング材を塗布した後、アマルガムを充填

化学重合型ボンディング材クリアフィルニューボンド (以下 NB と略) は、塗布後軽くエアーをかけるだけとした。光化学重合型ボンディング材クリアフィルフォトボンド (以下 PB と略) の場合は、エアーをかけた後、10秒間光照射した。コンポジットレジンの量は0.1g とし、化学重合型の FⅡ は練和後一括で充填を終了した。光重合型の PA は2回積層法により、各30秒間光照射を行って、重合硬化させた。アマルガムの混汞比はメーカー指示とし、アマルガムミキサー “DELUXE” (松風社製) を用いて15秒間練和を行い、窩洞に充填した。それぞれの試験片は、蒸留水5 ml で満たされた試料ビン中に歯髄腔側が蒸留水に接するように取り付け (Fig. 1), 37°C 湿度100%の暗所に保存した。2週間後、蒸留水中の未反応物質を前述の方法で分析し、修復物から象牙質を通過して歯髄腔側に達した物質およびその量を求めた。

Ⅲ. 象牙質処理面およびレジンと窩底との接合状態の SEM 観察

修復する前の窩底象牙質、すなわち窩洞形成後、60秒間リン酸エッチング後、ならびに3% FeCl₃ 処理後の各窩底の表面と歯牙の頬舌の方向の断面の状態を、走査型電子顕微鏡 (日本電子社製 JSM-T 300) により観察した。

未反応物質遮断性の実験後の試験片を低速精密切断機アイソメット (Buehler 社製) で頬舌の方向に切断し、コンポジットレジンと窩底との接合状態について SEM 観察を行った。なお SEM 観察用試験片作製時の乾燥および減圧の影響を考慮して、レプリカ法も併用した。

結 果

Ⅰ. 未反応物質の分析

コンポジットレジンの各ペーストを直接 THF に溶解させたもののクロマトグラムを Fig. 2 に示す。Fig. 2 の上は FⅡ のユニバーサルペースト、中は FⅡ のキャタリストペースト、下は PA のユニバーサルペーストについてである。

FⅡ と PA の硬化物を蒸留水中に浸漬し、溶出してきた未反応物質のクロマトグラムを Fig. 3 に示す。また、Bis-GMA, Tri-EDMA, Di-EDMA, EDMA および THF の標準試料を用い、逆相分配クロマトグラフィー (以下 GPC と略) における分子量と保持時間との関係を Fig. 4 に示す。Fig. 4 をもとに Fig. 3 で得られたピークを同定すると、硬化した FⅡ の中に含ま

Fig. 2 Chromatogram for components of composite resins.

れる主な未反応物質は Bis-GMA, Tri-EDMA とその他 1 種類の未反応物質であった。同様に、硬化した

Fig. 3 Chromatogram for residual substances of composite resins.

① Bis-GMA ② Tri-EDMA ③ Un-identified substance ④ THF

PA からは Tri-EDMA と F II の場合と同じ未知物質 1 種類が検出された。F II, PA の未知物質は、分子量が 140 付近のものであった。なお、組成分析には液クロの分析条件をカラム：シリカの ODS-C-5, 移動相：メタノール 80%, UV wave length : 214nm として行ったクロマトグラムと赤外分光分析の結果も参考とした。

I. 未反応物質遮断性

Bis-GMA, Tri-EDMA および分子量が 140 付近の未反応物質について、修復物から象牙質を通過して歯髄腔側に達した量を定量分析した。Bis-GMA, Tri-EDMA はそれぞれのクロマトグラムのピークの高さと THF に溶解しているモノマーの量が比例することを確認し、その検量線に従って、通過量の定量を行った。未知物質については同量の硬化物を蒸留水中に浸漬させ、同期間で蒸留水中に拡散してきた場合と比較し、ピーク面積の百分率で求めた。なお、統計的な有意差の判定には各未反応物質ごとに、試験片の種類による一元配置分散分析を行い、水準間の検定には t 検定を用いた。

象牙質をリン酸でエッチングした場合の影響を Fig.

Fig. 4 Relation of molecular weight with retention time.

5に示す。Bis-GMA と Tri-EDMA は重量で、未知物質は百分率で示している。コントロールは、硬化物を直接蒸留水中に浸漬した時に溶出してきた未反応物質である。象牙質を通過してきた物質の中で、Tri-EDMA の通過量はコントロールのほぼ半分程度であった ($P < 0.01$)。Bis-GMA と未知物質は、コントロールと大きな差はなかった。象牙質をエッチングしても、未反応物質の通過量に差は生じなかった。

ボンディング材の影響を Fig. 6 に示す。ボンディング材 NB を使用すると、PA 中の Tri-EDMA の通過が減少した ($P < 0.01$)。F II に関しては有意な差はなかった。ボンディング材 PB を使用した場合、F II、PA とともに Tri-EDMA の通過が減少し ($P < 0.05$)、未知物質の通過が全く認められなくなった。また F II 中の Bis-GMA の通過量には、ボンディング材を使用した場合としない場合との間で有意な差はみられなかった。

象牙質処理剤 FeCl_3 の影響を Fig. 7 に示す。今回、条件を統一するために FeCl_3 処理は、リン酸エッチングの後に行った。コンポジットレジンは、F II のみである。 FeCl_3 処理すると Bis-GMA の通過が認められなくなった。

Tri-EDMA と未知物質の通過量は、処理しなかった

Fig. 5 Effects of etching of dentin on the penetration of residual substances through dentin from composite resin.

■ Bis-GMA ▨ Tri-EDMA □ Unidentified substance

Fig. 6 Effects of bonding agent on the penetration of residual substances through dentin from composite resin.

■ Bis-GMA ▨ Tri-EDMA □ Unidentified substance

Fig. 7 Effects of 3% FeCl₃ treatment on the penetration of residual substances through dentin from composite resin.

■ Bis-GMA ▨ Tri-EDMA
□ Unidentified substance

場合より減少した ($P < 0.01$). さらにボンディング材 PB を使用した場合, 象牙質を通過してきた未反応物質は, Tri-EDMA のみであった.

なお, ボンディング材を塗布し, その上にアマルガムを充填した場合, 象牙質を通過するボンディング材の未反応物質は全く認められなかった.

Ⅱ. 象牙質処理面およびレジンと窩底との接合状態の SEM 観察

窩洞形成後の窩底象牙質ならびにその断面を Fig. 8 に示す. 表層はスマー層でおおわれ, 象牙細管はスマー層で大部分閉鎖された状態であった. 細管内にも切切片と思われる微細な粒状物が認められた.

リン酸で60秒間エッチングした窩底象牙質ならびにその断面を Fig. 9 に示す. スマー層は, 完全に除去され, 細管がロート状に拡大した像として見られた.

リン酸でエッチングした後, 3% FeCl₃溶液で60秒間

Fig. 8 Surface and cross section of dentin after cavity preparation. (SEM, $\times 2,000$)

Fig. 9 Surface and cross section of dentin after treated with phosphoric acid. (SEM, $\times 2,000$)

Fig.10 Surface and cross section of dentin after treated with 3%FeCl₃ solution. (SEM, $\times 2,000$)

処理した窩底象牙質ならびにその切断面を Fig. 10に示す。表層には新しい析出物が形成されており、これは細管内にも存在していた。

レジンと窩底象牙質との接合状態を Fig.11~13 に示す。NB と FⅠ (Fig.11左), NB と PA (Fig.12左)

の組み合わせでは、幅広いギャップが認められた。PB と PA (Fig. 12右) の組み合わせでは、部分的にギャップが存在していた。PB と FⅠ (Fig. 11右) および 3% FeCl₃ 処理をした場合 (Fig. 13), ギャップは認められなかった。

Fig.11 Cross-sectional view of the interface between composite resin and acid-etched dentin.
left : NB and FⅠ right : PB and FⅠ (SEM, $\times 350$)

Fig.12 Cross-sectional view of the interface between composite resin and acid-etched dentin.
left : NB and PA right : PB and PA (SEM, $\times 350$)

Fig.13 Cross-sectional view of the interface between acid- and 3 %FeCl₃- treated dentin.
left : NB and FII right : PB and FII (SEM, $\times 350$)

考 察

コンポジットレジン修復を施した後、レジン特有の歯髄症状を起こすことがあり、临床上大きな問題となっている。この原因については種々の考えが出されているが^{1,6,7,9)}、明確に特定されるまでにはいたっていない。

コンポジットレジン材料は、生体に対して為害作用を持つことが種々の研究で明らかである¹⁵⁻¹⁷⁾。成分中の刺激物としてはベースレジン、希釈材、触媒などがあり、レジン硬化後もこれらの一部が未反応のまま残留している。刺激物である未反応物質が象牙質を通過し、歯髄を刺激することは十分考えられ、この点について明らかにすることがこの研究の目的である。

化学重合型コンポジットレジン FII を蒸留水に浸漬すると、主成分である Bis-GMA, Tri-EDMA の残留モノマーと分子量 140 付近の物質の溶出が認められた。一方、光重合型コンポジットレジン PA の場合は、溶

出した未反応物質は Tri-EDMA と分子量140付近の物質のみであり、Bis-GMA の溶出は認められなかった。PA の重合前のペーストには Bis-GMA は含まれている (Fig. 2) が、その量は少なかった。したがって、重合後蒸留水に溶出するほど多量にはモノマーは残留しないものと思われる。分子量 140 付近の物質は同定できなかったが、分子量から考えて、モノマーとは考えにくい。重合禁止剤やモノマーが解離したものなどが考えられる。しかしこの物質が歯髄に達しても刺激物とならないという保証はない。

形成した窩洞にコンポジットレジンを経前処理なしに直接填塞した場合、いずれの未反応物質も象牙質を通過し、歯髄腔側に達することが確認された。

窩洞形成を行うと窩底象牙質表面には、スミアー層が形成される。Fig. 8 にみられるように、窩底表層にある象牙細管はこの層におおわれて開口部は非常に細くなっている。それにもかかわらず、未反応物質の通過量

はかなり多く、**Bis-GMA** および未知物質についてはレジン試験片を水中に浸漬した場合の溶出量とほぼ同程度であった。**Tri-EDMA** のみ、通過量は水中に浸漬した場合の溶出量の半分程度にすぎなかったが、長期的にも少ないかどうかは疑問である。一方、スマー層はレジンと象牙質との接着を阻害する因子と言われ、レジン修復を行う前に前処理剤を使用して除去することが勧められている^{10,18-20)}。前処理をすることによって、スマー層は除去され、種々の刺激が象牙質を通過して歯髄へ伝わりやすくなると言われている^{3,4,11)}。リン酸でエッチングした象牙質は、スマー層が除去されているばかりでなく、象牙細管の開口部も拡大する (**Fig. 9**)。当然、レジンの成分がより通過しやすくなることが予想されたが、2種類のコンポジットレジンの未反応物質の象牙質を通過する量には、リン酸処理の有無による差は認められなかった (**Fig. 5**)。これらの結果から、象牙細管が完全に封鎖されていない限り、未反応物質は容易に通過し得ることがわかった。このように象牙細管がスマー層におおわれていても未反応物質は容易に象牙質を通過したことは注目すべきことであり、スマー層にモノマーのような未反応物質を遮断する効果を期待することはできない。

ボンディング材として化学重合型 **NB** と光化学重合型 **PB** の2種類を用いて、レジン修復物からの未反応物質遮断性を検討したところ、**PB** の方がやや有効であった。ボンディング材を塗布し、その上にアマルガムを充填した試験片においては、象牙質を通過した物質は全く認められず、ボンディング材自体からの成分の通過はないことが確認された。**NB** と **PB** の主成分は同じであり、両者でレジン修復物からの象牙質通過量に差が生じた原因としては、**Fig. 11, 12** にみられるようなレジン

と窩壁との間に生じたギャップの大きさの違いが考えられる。**PB** の場合、レジンを充填する前にすでに光照射により重合して歯質と接着しているため、レジンの重合収縮に伴う窩底との間のギャップが生じにくくなるものと思われる。したがって、レジン修復物が歯髄腔側から浸透してきた水と触れる機会が **NB** の場合より少なく、そのため未反応物質の象牙質通過量が少なくなったと考えられる。また、**NB** は塗布後、エアーをかけるだけであり、成分中のエタノールが十分飛散せず、これが溶剤となって未反応物質の溶出を増大させた可能性も無視できない。

富士谷 (1986)⁹⁾ はニホンザルの歯を用いレジン修復における歯髄刺激を組織学的に検索した結果、レジンと象牙質窩壁間に生じたギャップの存在が歯髄刺激を惹起させる可能性があるとして述べている。その機序については、温度的、機械的刺激によるギャップの容積変化が象牙細管内組織液に何らかの影響を及ぼし、歯髄に刺激が加わるのではないかと推測している。しかし、本実験からギャップが存在するとレジンの未反応物質が歯髄へ達する可能性が高くなると考えられ、単なる物理的刺激だけではなく、未反応物質が歯髄を刺激した疑いも大きいのではないかとと思われる。

象牙質を **FeCl₃** で処理した場合、未反応物質の通過量が減少し、**Bis-GMA** は全く通過しなかった。象牙質の成分である **HAp** を **FeCl₃** で処理すると、**HAp** の表面に微細な析出物が付着する (**Fig. 14**)。蕭ら (1987)²¹⁾ は **HAp** とボンディング材との化学的接着は認められるが、水中浸漬によって両者間にギャップが生じ、ボンディング材と **HAp** の接着は不十分であると述べている。同様な方法で3% **FeCl₃** 処理した **HAp** とボンディング材を反応させ、2週間水中に浸漬させたところ、ギ

Fig. 14 Synthetic hydroxyapatite.

left : untreated

right : after treated with 3 % **FeCl₃** solution

(SEM, ×2,000)

Fig.15 Fracture surface of NB-HAP specimen after it was fractured and stored in water for 2 weeks.

left : untreated HAP used right : 3 % FeCl_3 solution treated HAP used (SEM, $\times 2,000$)

ギャップは生じなかった (Fig.15). このような接着力の改善が微細な析出物による機械的なものなのか化学的なものなのかは不明である. また, 中林ら (1987)²²⁾ は FeCl_3 がコラーゲンに作用し, レジンと象牙質との接着を高めると述べている. いずれにせよ象牙質を FeCl_3 で前処理することにより, レジンと窩壁とのギャップはほぼ消失し, 未反応物質の通過が少なくなったものと考えられる. また, 微細な析出物は象牙細管内にも存在しており, 細管の物理的な封鎖性を増加させたとも考えられる. さらに, 通過してきた未反応物質の中でやや親水性のある Bis-GMA は, この析出物に吸着し, 歯髄側へ通過しなかった可能性もあると推察している. 門磨ら (1988)²³⁾ は第2鉄イオンが MMA の重合の助触媒となりうることを示唆している. 通過してきたコンポジットレジンの未反応モノマーに第2鉄イオンが関与し何らかの変化が起ったとも考えられるが, この点は明らかではない.

FI, PA 付属のボンディング材 NB, PB を, コンポジットレジンと併用せずに象牙質に応用した場合, その成分が象牙質を通過することは全く認められなかった. これは象牙質知覚過敏症の治療にボンディング材単独使用で, かなりの効果をあげていること²⁴⁾ の裏付けとなる結果であると考えられる. すなわち, ボンディング材は歯髄を刺激せずに象牙細管を封鎖し, 外来刺激を遮断することによって知覚過敏が減弱あるいは消退したのであろうと推察される.

今回実験に用いたヒト健全抜去歯の象牙質は, コンポジットレジンの未反応物質を完全には遮断しなかった. 臨床でのレジン修復の適応はう蝕歯がほとんどである. 黒崎ら (1987)²⁵⁾ が指摘しているように, う蝕歯の窩底

象牙質は象牙芽細胞突起や結晶で満たされており, 健全象牙質より残留モノマー等の通過性ははるかに低いと考えられている. 今回実験に用いた被験歯はう蝕のない健全新鮮抜去歯であり, 厚さを一定にするため歯髄腔の天蓋部分を削合し, また削合した歯髄腔側の象牙質のスマー層を除去する目的でリン酸処理を行っている. レジンと象牙質との接着を臨床状態により近づけるため, 歯を固定せずに実験に供した. このため2週間という実験期間中に, 象牙細管中のコラーゲンの一部が変性, 溶解した可能性がある. したがって, う蝕歯の窩底象牙質より通過性が強いことが予想される. しかしながら, コンポジットレジンの臨床症例は多種多様であり, 今回の被験歯に近い症例も少なからずあることは十分予想でき, このような場合レジンの未反応物質が歯髄に達して障害を起こしている可能性は十分あると考えてよく, レジン修復に際しては, セメントによる裏装を行うことが良策である. しかしながら, Tri-EDMA のような疎水性で侵食性が強いモノマーの使用を避けることにより, 臨床操作上わずらわしいセメント裏装を行わずにすむ可能性も示唆された.

結 論

コンポジットレジンの未反応物質が象牙質を通過することによって歯髄を刺激する可能性を調べるために, 象牙質を通過してくる未反応物質量を求めた. 実験にはヒト抜去大白歯の象牙質を用い, 窩底象牙質に種々の処理を施してコンポジットレジンを充填した. 2週間後象牙質を通過し, 歯髄側へ達するコンポジットレジンの未反応物質量を高速液体クロマトグラフィーにて分析した.

さらにコンポジットレジンと窩底象牙質との接合状態を SEM で観察した。

コンポジットレジンの未反応物質は、象牙質を通過し歯髄側へ達することが確認され、この通過量は窩底象牙質をリン酸エッチングしても、差は生じなかった。

化学重合型のボンディング材を使用した場合、ボンディング材を使用しなかった場合と比べてコンポジットレジンからの未反応物質の通過量に大きな差はなかった。光化学重合型のボンディング材を使用した場合は未知物質の通過は認められず、他のモノマーの通過量も減少した。また、ボンディング材をコンポジットレジンと併用せずに象牙質に適用した場合、その未反応物質は象牙質を通過しなかった。

窩壁を FeCl_3 で処理すると Bis-GMA の通過が認められなくなり、他の物質の通過量も減少した。

レジンと窩壁とのギャップは、光化学重合型のボンディング材を使用した場合と窩壁を FeCl_3 で処理した場合に減少あるいは消失した。

未反応物質の通過量はレジンと窩壁とのギャップの存在、窩洞に残されたアルコールなどの溶剤の存在、象牙細管の物理的な封鎖性に左右されることが示唆された。すなわち、光化学重合型のボンディング材を使用することによりギャップを少なくし、象牙細管を物理的に封鎖させしきも接着の助けとなる FeCl_3 のような象牙質処理剤を使用することにより、未反応物質の通過を減少させることが可能である。

謝 辞

稿を終えるにあたり、本研究に懇切なご指導、ご校閲を賜った恩師長野三代太教授に深甚なる謝意を捧げます。またご校閲を賜った歯科理工学講座小園凱夫教授に深く謝意を表するとともに、終始熱心なご指導と数多くのご教示をいただいた寺下正道助教授ならびに蕭庸雄助手に心からお礼申しあげます。あわせて数多くのご助言ならびにご協力いただいた保存学第1講座各位に感謝致します。また、分析上の御助言をいただいた福岡歯科大学理工学講座宮崎光治助教授に深謝致します。

引 用 文 献

- 1) Langeland, L.K., Guttuso, J., Jerome, D.R. and Langeland, K.: Histological and clinical comparison of Addent with silicate cements and coldcuring resin. *J.A.D.A.* **72**: 373—384, 1966.
- 2) 藤沢盛一郎: 歯科用レジン充填材料の溶血性および溶出性からみた *in vitro* の生物学的評価方法について. 日歯保誌 **21**: 137—146, 1978.
- 3) Stanley, H.R., Bowen, R.L. and Folio, J.: Compatibility of various materials with oral tissues. II: Pulp responses to composite ingredients. *J. Dent. Res.* **58**: 1507—1517, 1979.
- 4) Cotton, W.R.: Comments on Dr. Stanley's presentation. *J. Dent. Res.* **58**: 1518—1521, 1979.
- 5) Eriksen, H.M. and Leidal, T.I.: Monkey pulpal response to composite resin restorations in cavities treated with various cleansing agents. *Scand. J. Dent. Res.* **87**: 309—317, 1979.
- 6) 猪越重久: 新接着性レジンの歯髄刺激性について. 口病誌 **47**: 410—426, 1980.
- 7) Brännström, M.: Communication between the oral cavity and the dental pulp associated with restorative treatment. *Oper. Dent.* **9**: 57—68, 1984.
- 8) 兼平正史: レジン系修復材の適合状態と歯髄反応. 日歯保誌 **27**: 516—533, 1984.
- 9) 富士谷盛興: 接着性レジン修復における酸蝕および窩洞適合性の歯髄に及ぼす影響. 日歯保誌 **29**: 228—253, 1986.
- 10) 総山孝雄・細田裕康・和久本貞雄・岩久生明: 新保存修復術. ウ蝕治療革命の補遺整備. クインテッセンス出版, 東京, 1985, 85—93.
- 11) Brännström, M.: Smear layer: Pathological and treatment considerations. *Oper. Dent. Suppl.* **3**: 35—42, 1984.
- 12) 藤沢盛一郎・増原英一: 高速液体クロマトグラフィー (HPLC) による歯科用レジン充填材料の溶出物の分析. 歯科理工誌 **20**: 121—131, 1979.
- 13) 慶田安弘: 裏層材のレジンモノマー遮断性に関する研究. 九州歯会誌 **36**: 82—99, 1982.

- 14) Fujii, K., Ginya, K., Arikawa, H., Kanie, T., Jyoshin, K., Inoue, K., Kuroki, K. and Uchiyama, C.: Composite restorative resins. Part 2 Physical and mechanical properties of UV and visible light activated composite resins. *Dent. Mater. J.* **5**: 252—259, 1986.
- 15) 川原春幸・西田堯吉・菱田 稔・磯村寿賀人・三浦豊胤: コンポジットレジン of 細胞刺激性. 歯界展望 **47**: 669—676, 1976.
- 16) 加藤雅之・西田堯吉・片岡喜平・横山正憲・扇谷義郎・中村正明・川原春幸: 新しい充填用レジンの細胞毒性に関する実験的研究 (in vivo). 歯科理工誌 **2**: 20—26, 1979.
- 17) Inoue, K., Arikawa, H., Fujii, K., Niihara, A., Fujita, R., Tsukada, G., Kuroki, K., Oka, T. and Uchiyama, C.: Composite restorative resins. Part 3 Cytotoxicity test to mouse fibroblasts in culture of UV and visible light-activated composite resins. *Dent. Mater. J.* **7**: 55—61, 1988.
- 18) Brännström, M., Nordenvall, K.J. and Glantz, P.O.: The effect of EDTA containing surface active solutions on the morphology of prepared dentin: An in vivo study. *J. Dent. Res.* **59**: 1127—1131, 1980.
- 19) 清村正弥・阿部義人・中林宜雄: 4-META-TBB 系レジンの象牙質への接着. 日歯保誌 **28**: 277—284, 1985.
- 20) 千葉幹男・長谷川篤司・伊藤和雄・和久本貞雄: 歯面処理法がレジンの接着性に与える影響について 第2報 エナメルおよび象牙質処理法についての検討. 日歯保誌 **29**: 219—227, 1986.
- 21) 蕭 庸雄・河野直博・小川孝雄・寺下正道・長野三代太・小園凱夫: Dentin Bonding Agent の象牙質接着性—ハイドロキシアパタイトおよびコラーゲンとの接着状態の観察. 日歯保誌 **30**: 520—526, 1987.
- 22) 中林宜雄・神田和郷: 2-メタクリロキシエチル *p*-メトキシフェニル リン酸を含むボンディング剤と象牙質前処理剤の検討. 歯材器 **6**: 396—402, 1987.
- 23) 門磨義則・今井庸二: コラーゲンシート存在下における TBBO による MMA の重合に及ぼす第2鉄塩の効果. 歯材器 **7**: 817—823, 1988.
- 24) Doering, J. and Jensen, M.E.: A new photocuring dentin bonding material: Six month clinical results. *J. Dent. Res.* **64**: 276, 1985.
- 25) 黒崎紀正・窪田 稔・清水チエ・山本由美子・藤原 勲・鶴田夫美: 接着性レジン修復用窩洞の窩底象牙質の特性. 日歯保誌 **30**: 404—408, 1987.