原	著
---	---

レジン充填窩洞のシアノアクリレート処理について

福 士 良 雄

東京医科歯科大学第1 歯科保存学教室（主任指導：総山孝雄教授）

（1978年3月24日受付）

Cyanoacrylate Treatment of Cavity Walls for Composite Resin Restoration

Yoshio Fukushi

Dept. of Operative Dentistry, School of Dentistry, Tokyo Medical and Dental University
(Director: Prof. Takao Fusayama)

要旨：複合レジン充填窩洞のシアノアクリレート処理の効果を検討するために、処理をした場合としなかった場合につき、複合レジンの歯質面に対する接着力を測定し、また抜去歯牙および口内の歯牙に施した複合充填の漏洩度を墨汁法により検討した。また、シアノアクリレート処理の歯髄刺激についても臨床的に検討し、次のような知見を得た。

1. 乾燥した歯質には、シアノアクリレートはかなり強力な接着力を示したものの、水中に保管した場合にはほとんど零に近くなった。
2. 窩洞をシアノアクリレート処理して複合レジンで充填した場合には、無処理の場合に比べて漏洩が著しく防止され、温度変化を与えた場合にも、やはり漏洩防止効果には変わりなかった。
3. シアノアクリレート処理は歯髄刺激をわずかに増加したが、4週後には全く消失した。
4. エチルシアノアクリレートはメチルシアノアクリレートよりも、接着力が勝り、漏洩が少なく、歯髄刺激も少なかった。

結 論

う蝕の保存修復にあたって、歯質に化学的に強固に接着する材料の開発が、長年歯科界で望まれてきた。しかし未だ完全な材料は出現せず、このため窩洞形成は従来の原則に従い健全歯質の一部を削除して、機械的な保持形態を求めているのが現状である。

しかし、近年この種の研究が広く行われるようになり、Buonocoreは歯質を酸により処理し、レジンの接着力を高めることを試みた^{1,2)}。

これは歯質表面に極性を生じ、化学的な結合力を、強化するという考えもあるが^{3,4)}、やはりその大部分は、酸蝕された凹部にレジンが浸入してできるタグによる、機械的な嵌合抗力によるものである³⁾。しかも酸の使用については、歯髄刺激や^{5,6)}、必要以上の歯質の破壊を伴う危険についての報告が多く⁷⁾、決して理想的な方法であるとはいえない。

そこでBowenは、酸による前処理なしに歯質と充填物との接着力を増加させるために、歯質とも複合レジンとも化学的に結合するカップリング

剤を用いることを提唱した^{8~12)}。この考えに基づいて作られた材料の実験を行った大串らは、その成績が臨床上決して満足しうる値ではなかったと報告している¹³⁾。

一方 Smith は、ポリカルボキシレートセメントを考案した¹⁴⁾。この材料は、酸化亜鉛の粉末とポリアクリル酸の液を練和するもので、従来のリン酸亜鉛セメントに比較して、歯髄刺激が少なく¹⁵⁾、キレーションにより歯質に対する化学的接着性を有する点¹⁶⁾など、きわめてすぐれた性質を示すユニークな材料であるが、色調は白く不透明であり、外観にふれるところの単独修復物としては用いられない¹⁷⁾。

また Wilson らは、カルボキシレートセメントと同様キレーションにより歯質と化学的に反応し接着するグラスアイオノマーセメントを考案した¹⁸⁾。このセメントは、粉末にカルシウムアルミノシリケートガラスを用い、液にはポリアクリル酸を用いるもので、カルボキシレートセメントと比較して、透明度はあるものの、単独修復物としては臨床上しばしば起こる表面の白濁¹⁹⁾や崩壊率^{20, 21)}、合着力としては被膜厚の点で問題が多い^{20, 21)}。

近年合成化学の進歩とともに、一般工業界では各種の接着剤が生産され広く用いられており、その中から歯科保存修復に適したものを、接着力強化のために用いようとする試みがなされるようになった。Beech はシアノアクリレートを接着力強化のために用い、かなりの接着力を示し有望であると報告した²²⁾。

レジン充填に関するもう一つの重要な問題点は、歯質との間の隙間発生による漏洩である。現在臨床で用いられている修復物には化学的な接着力がないために、重合収縮²³⁾、口腔内の温度変化²³⁾、填塞時の操作法²⁴⁾、などにより、隙間を生じることが多い。このような隙間の存在は、細菌、酸または酵素を含む口腔液が浸入し、歯髄刺激を起こしたり、二次う蝕の原因となるといわれている²⁵⁾。またこのような隙間への色素の浸入は、充填物全体に変色状の様相を示し、審美的に

問題となることがしばしば認められる²⁶⁾。

そこで本研究は、歯質を酸処理することなく、化学的に歯質に接着し修復物の保持を強化すると同時に漏洩を防ぐ目的でシアノアクリレートを用い、その効果について基礎的ならびに臨床の実験を行い、興味ある知見を得たので、ここに報告する。

材料および方法

I. 接着力試験

1. 被接着面の作製

人の抜去歯を用い、エナメル質面としては、う蝕のない中切歯8本の唇面を、象牙質面としては大白歯8本の咬合面を、注水下で丸本工業社製の湿式研磨紙#240~#600まで研磨し、超音波洗浄後アルコールで清掃し、手用気銃で乾燥して被接着面とした。

2. 接着試片の作製

清掃乾燥した研磨歯面に、シアノアクリレートを、市販の容器から1滴滴下し、膜状に広がったその上に、内径5mm、高さ3mmの切り口の平坦なテフロンチューブを置き、位置がずれないようにひし型のテフロン板と輪ゴムで固定した後(図1)、練和した複合レジンを填入し、その中に引っ張り試験に利用するために、釣り用樽型サルカンをさし込んで、温度 $23 \pm 2^{\circ}\text{C}$ 相対湿度 $50 \pm 10\%$ の室内に15分放置して硬化させた。

シアノアクリレートとしては、メチルシアノアクリレート(セメダイン3000, セメダイン株式会社, 東京)とエチルシアノアクリレート(セメダイ

図1 接着試片の側視断面図(左)と正面図(右)

- A テフロンチューブ
- B テフロン板
- C 輪ゴム

図2 実験に使用したメチルシノアクリレート（左）とエチルシノアクリレート（右）

図3 実験に使用した複合レジン Prestige（左）と Adaptic（右）

ン3000Rs, セメダイン株式会社, 東京) の2種を(図2), 複合レジンとしては Adaptic (Johnson & Johnson, East Windsor, N. J., U. S. A., B. N. A13JF) と Prestige (Lee pharmaceutical, South Elmonte, Calif., U. S. A., B. N. 061876HP-1) の2種を用いた(図3)。15分後, 鋭利な外科用メスでテフロンチューブを切断し, 歯面に膜状に広がっているシノアクリレートの溢出部とともに除去した。接着試片は2つのグループに分け, それぞれ温度 $23 \pm 2^{\circ}\text{C}$, 相対湿度 $50 \pm 10\%$ の室内, もしくは温度 37°C の蒸留水中に14日間保管した。

3. 接着力の測定

オートグラフ S-500 (島津製作所, 京都) に,

総山の考案した接着力測定用装置(図4)をセットして測定した。本装置は, 図のおもりにより初期荷重がバランスするように設計されており, そのため荷重0の状態から接着力が測定できるという特徴を持つものである。測定はクロスヘッドスピード 0.8 mm/min. 。フルスケール 20 kg で各群10例ずつ行い, 歯質とレジンが剥離した時の荷重を, 単位面積あたりの荷重に換算して接着力とした。

II. 漏洩試験

1. 抜去歯による実験

a. 試片調整

う蝕のない人の抜去上顎中切歯40本を用い, マネキンに固定したプラスチック製顎模型の上顎中切歯部に一度に2本ずつ植立固定し, 通法に従ってタービンに付けた #70 のカーパイドバーで唇面

図4 無圧接着力の引張り試験装置

バランスウェイトによって引張り部の重量が消去してあるので, 接着力は零のオーダーから測定しうる。

に 5 級窩洞を形成し、マイクロモーターに付けた #1/2 のラウンドバーにより円形穿下を付与した。20 本はそのまま Adaptic (B. N. A13JF) を充填し、残りの 20 本は窩洞に数滴シアノアクリレートを滴下した後、手用気銃で過剰部を吹き飛ばし、Adaptic (B. N. A13JF) を充填し、両者とも 37°C の蒸留水中に保管した。48 時間後にとり出し、仕上げ研磨後、シアノアクリレート処理をほどこした試片 10 本と無処理の試片 10 本を一群とし、一群は 37°C の墨汁 (カイメン墨汁 12 号) に 24 時間浸漬し、もう一群は墨汁を用いたサーマルサイクル装置により各々漏洩試験を行った。サーマルサイクルは教室で新たに考案した装置 (図 5) により、4°C, 37°C, 60°C の三段階の温度の墨汁を用い、浸漬時間各 1 分、浸漬と浸漬のインターバルは 30 秒で、240 サイクル行った。

図 5 3 温 (4, 37, 60°C) 式サーマルサイクル装置

b. 漏洩度の測定

浸漬またはサーマルサイクル終了後、流水下で 30 秒洗浄し、試片を観察写真撮影後、硬組織薄切機を用い、充填物のほぼ中心を通るように歯軸に沿って切断し、その断面を顕微鏡下で観察し、歯肉側および歯頂側のエナメル壁、象牙質側壁、窩底穿下部および窩底中央部における墨汁浸入の有無ならびに隅角部気泡の有無を検索した。そして墨汁浸入の有無により +, - の 2 段階とし、それぞれ 1, 0 の指数に置きかえ、各群各観察部位の指数の合計を被検例数で割ることによって平均指

数を求め各群の成績を比較検討した。

c. 接着部断面の電子顕微鏡観察

抜去歯による漏洩試験と同じ方法で作製した、無処理またはエチルシアノアクリレート処理して、複合レジンを充填した試片各一本を 37°C の蒸留水中に 14 日間保管し、注水下で硬組織薄切機で縦断した。走査型電子顕微鏡観察のためには、表面張力が作用しないために、通常の乾燥法のような試料の収縮やひび割れが起こりにくいといわれている臨界点乾燥法を用いて²⁷⁾、試料の乾燥を行った。すなわち、縦断した切片を酢酸イソアミルに浸漬し、次に耐圧容器内で液体二酸化炭素で置換して酢酸イソアミルを除き、そして液体二酸化炭素を気化させて乾燥させた。そして、真空中で炭素および金を蒸着し、走査型電子顕微鏡により観察した。

2. 臨床試験

a. 試験症例の選択および準備

本学附属病院保存科外来を訪れた 16 人の患者を被験者とし、3 級、4 級、5 級および楔状欠損の症例を用いて臨床試験を行った。まず通法により窩洞形成し、清掃乾燥を行った。そのうち 19 例には、裏層せずに直接 Adaptic を充填し、残りの 38 例には、メチルシアノアクリレートとエチルシアノアクリレートとを 1~2 滴滴下後、フッ素樹脂のチップの付いた複合レジン充填器により窩洞全体に塗布し、気銃によって過剰部分を除いて、Adaptic を充填した。

b. 漏洩度の測定

充填 1 週間後、通法に従ってタングステンカーバイドの仕上げ用バー、スチールストリップス、ラバーカップにつけたポリペースト A, B およびプラスチックストリップスなどを、症例に応じて用いながら研磨を行った。その後墨汁を被検歯全面に塗布し、5 分間そのままにした後水銃により洗い流し、さらに水を含ませた小綿球を取り換えながら 3 回歯面を拭った。そして辺縁への墨汁の浸入による着色の様子を、明瞭な太い黒線のあるものを +, 若干着色があっても明瞭でないものや、全く着色のないものを - の基準で判定して記録し

た。なお参考のために写真撮影も行った。そして研磨時に墨汁の浸入のあった症例もそのまま帰宅させ、ブラッシングの影響による変化を観察した。各症例について同様の漏洩試験を、それぞれ充填後、1, 2, 4 週後に行った。

成 績

1. 接着試験成績

各群の歯質面に対する接着力を比較して(表1), 下記のような知見が得られた。

保管条件については、空気中のものは温水中のものに比べ、いずれの条件下でも、有意差をもって接着力が大きかった。

2 種のシアノアクリレートの間では、温水中に保管した場合には、いずれのレジンを填めた場合でも、エナメル質象牙質のいずれに対しても、エチルシアノアクリレート処理がメチルシアノアクリレート処理よりも、大きな接着力を示した。空气中に保管した場合には、エチルシアノアクリレート処理とメチルシアノアクリレート処理との間に統計学的に有意な接着力差を示さず、平均値による比較においても傾向は区々であった。

表1 シアノアクリレート処理歯質面への接着力 (kg/cm²)

接 着 面	面処理 シアノ アクリ レート	保 管	材 料	
			Adaptic	Prestige
エナメル質	メチル	空气中	7.03 (2.5)	7.39 (3.8)
		温水中	1.89 (0.8)	0.82 (0.6)
	エチル	空气中	14.93 (5.7)	5.85 (2.4)
		温水中	3.01 (1.2)	1.73 (1.1)
象牙質	メチル	空气中	48.96 (9.7)	45.09 (12.7)
		温水中	2.06 (0.8)	1.63 (0.6)
	エチル	空气中	52.78 (16.0)	37.09 (6.5)
		温水中	4.23 (1.7)	4.84 (2.6)

() 内は標準偏差

エナメル質と象牙質を比較すると、温水および空气中のいずれに保管した場合にも象牙質面への接着力がエナメル質面への接着力より大きく、その差は、温水中保管群のほうが大きかった。

複合レジン材料間で比較すると、温水中に保管した場合には、一般に Adaptic が Prestige より

大きな接着力を示した。ただし、象牙質をエチルシアノアクリレートで処理した場合には、Prestige が Adaptic より大きな接着力を示したが、統計的有意差はなかった。空气中に保管した場合も、一般に Adaptic が Prestige より大きな接着力を示した。ただし、エナメル質面をメチルシアノアクリレートで処理した場合には、Prestige は Adaptic より大きな接着力を示したが、統計的有意差はなかった。

2. 抜去歯による漏洩試験成績

a. 表面観察所見

墨汁により漏洩試験を行って抜去歯を表面から観察し、次のような所見が得られた(図6, 7)。

図6 研磨後の24時間墨汁処理による漏洩度の差

UNT : 無処理 37°C : 37°Cの墨汁に浸漬
CAT : シアノアクリレート処理 THC : 墨汁中で温度変化

UNT CAT UNT CAT
37°C 37°C THC THC

図7 図6の代表例

UNT : 無処理

37°C : 37°Cの墨汁に浸漬

CAT : シアノアクリレート処理

THC : 墨汁中で温度変化

温度変化を与えなかった群の無処理のグループでは、複合レジン充填物と窩縁との間に、ほぼ窩洞全周にわたり肉眼ではっきり認められる程強い黒線が発生したのみならず、充填物が全体的に強く黒ずんでいたが、エチルシアノアクリレート処理したグループでは、黒線は一部（主として歯肉側）にわずかに発生しているのみで、若干の表面着色例はあったが、全体が黒ずんでいるものはな

かった。

温度変化を与えた場合にも、無処理のグループでは、やはり複合レジン充填物と窩縁との間に、窩洞全周にわたる強い黒線が発生し、充填物全体が黒ずんでいたが、エチルシアノアクリレート処理したグループでは、黒線は一部にわずかに発生しているのみで、若干の表面着色例はあったが、充填物全体が黒ずんでいるものはなかった。このような変化の程度は、温度変化を与えなかった場合と与えた場合との間に、ほとんど差が見られなかった。

b. 断面観察所見

抜去歯の縦断面による観察により下記の所見が得られた（図8、9）。

温度変化を与えなかった場合には、無処理のグループでは窩底穿下部あるいは窩底中央部まで黒線が発生し、充填物全体が黒ずんでいたが、エチルシアノアクリレート処理したグループでは、一部にわずかに歯肉側に発生しているのみで、充填物全体が黒ずんでいるものはなかった。

温度変化を与えた場合でも、無処理のグループは窩底穿下部あるいは窩底中央部まで黒線が発生

図8 図6の歯牙の縦断面

CAT : 無処理, 37°C : 37°Cの墨汁に浸漬, CAT : シアノアクリレート処理, THC : 墨汁中で温度変化

UNT CAT UNT CAT
37°C 37°C THC THC

図9 図8の代表例

UNT: 無処理

37°C: 37°Cの墨汁に浸漬 CAT: シアノア

クリレート処理 THC: 墨汁中で温度変化

し、充填物全体が黒ずんでいたが、エチルシアノアクリレート処理したグループでは数例歯肉側象牙質内に黒線が認められたものの、やはり一部にわずかに歯肉側に発生している例が大部分を占めており、充填物全体が黒ずんでいるものではなく、温度変化の有無による差は無処理の場合にも、シアノアクリレート処理の場合にも確認できなかった。

その断面を顕微鏡下で観察し、墨汁浸入および隅角部気泡の有無により+と-の二段階とし、それぞれ1と0の指数を置きかえ、その漏洩指数に

表2 無処理窩洞に複合レジンで充填した抜去歯の断面で観察された墨汁漏洩度および隅角部気泡 (37°C 24時間後)

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	平均
エナメル壁	歯頂側	-	+	+	+	-	+	+	+	+	+	+	+	+	+	-	+	+	+	+	0.85
	歯肉側	+	+	+	+	+	-	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	0.95
象牙質側壁	歯頂側	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	-	+	+	+	+	0.95
	歯肉側	+	+	+	+	+	-	+	+	+	+	-	+	+	+	+	+	+	+	+	0.9
窩底穿下部	歯頂側	+	+	+	+	+	+	+	+	-	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	0.95
	歯肉側	+	+	+	+	+	-	+	+	+	+	-	+	+	+	+	+	+	+	+	0.9
窩底	中央部	+	+	+	+	+	-	+	+	-	+	-	+	+	+	+	+	-	+	+	0.8
隅角部気泡	歯頂側	-	-	+	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.05
	歯肉側	+	+	-	-	+	-	+	-	-	-	-	-	-	+	-	-	-	-	-	0.3
漏洩度 (+数集計)	歯頂側	2	3	4	3	2	3	3	3	2	3	3	3	3	3	1	3	3	3	3	2.8
	歯肉側	4	4	3	3	4	1	3	4	3	3	1	3	3	4	3	3	3	3	3	3.05
	全体	7	8	8	7	7	5	6	8	7	5	7	4	7	7	8	5	7	6	7	6.65

表3 エチルシアノアクリレート処理窩洞に複合レジンで充填した抜去歯の断面で観察された墨汁漏洩度および隅角部気泡 (37°C 24時間後)

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	平均
エナメル壁	歯頂側	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0
	歯肉側	-	-	+	-	-	-	-	-	+	-	-	-	-	+	-	-	-	-	-	0.15
象牙質側壁	歯頂側	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0
	歯肉側	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0
窩底穿下部	歯頂側	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0
	歯肉側	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0
窩底	中央部	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0
隅角部気泡	歯頂側	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0
	歯肉側	-	-	-	-	-	-	-	+	-	+	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.1
漏洩度 (+数集計)	歯頂側	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	歯肉側	0	0	1	0	0	0	0	1	1	1	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0.25
	全体	0	0	1	0	0	0	0	1	1	1	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0.25

表 4 無処理窩洞に複合レジンを充填した抜去歯の断面で観察された墨汁漏洩度および隅角部気泡（温度変化24時間後）

No.		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	平均
エナメル壁	歯頂側	+	+	+	+	+	+	—	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	—	+	0.9
	歯肉側	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	1.0
象牙質側壁	歯頂側	+	+	+	+	+	+	—	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	—	+	0.9
	歯肉側	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	1.0
窩底穿下部	歯頂側	+	+	+	+	+	—	—	+	+	+	—	+	+	+	+	—	+	+	—	+	0.8
	歯肉側	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	1.0
窩底	中央部	+	—	+	—	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	—	+	0.9
隅角部気泡	歯頂側	+	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	+	—	—	—	—	—	—	—	0.1
	歯肉側	+	+	+	—	+	—	—	+	—	—	—	—	—	—	—	—	—	+	+	+	0.45
漏洩度 (+数集計)	歯頂側	4	3	3	3	3	2	0	3	3	3	3	3	4	3	3	2	3	3	0	3	2.7
	歯肉側	4	4	4	3	4	4	3	4	3	3	3	3	3	3	3	3	3	4	4	4	3.45
	全 体	9	8	8	6	8	7	6	8	7	7	7	7	8	7	7	6	7	8	4	8	7.1

表 5 エチルシアノアクリレート処理窩洞に複合レジンを充填した抜去歯の断面で観察された墨汁漏洩度および隅角部気泡（温度変化24時間後）

No.																						平均
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	
エナメル壁	歯頂側	+	—	—	—	—	—	—	—	—	+	—	—	—	—	—	—	—	—	—	+	0.15
	歯肉側	—	+	+	+	—	+	—	—	+	—	+	+	—	+	+	—	+	—	—	—	0.5
象牙質側壁	歯頂側	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0
	歯肉側	—	+	—	—	—	+	—	—	+	—	+	—	—	—	+	—	—	—	—	—	0.25
窩底穿下部	歯頂側	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0
	歯肉側	—	—	—	—	—	+	—	—	+	—	—	+	—	—	+	—	—	—	—	—	0.2
窩底	中央部	—	—	—	—	—	—	—	—	+	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.05
隅角部気泡	歯頂側	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0
	歯肉側	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	+	—	—	—	—	—	—	—	0.05
漏洩度 (+数集計)	歯頂側	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0.15
	歯肉側	0	2	1	1	0	3	0	0	3	0	1	3	1	1	3	0	1	0	0	0	1.0
	全 体	1	2	1	1	0	3	0	0	4	0	2	3	1	1	3	0	1	0	0	1	1.2

より各群の成績を比較した結果（表 2～5），下記の知見が得られた。

それによると，温度変化を与えなかった場合には，無処理のグループでは全体の平均漏洩指数は 6.65 であるのに，シアノアクリレート処理したグループでは 0.25 であった。漏洩状態を具体的に述べると，無処理のグループは，全例で歯頂側，歯肉側の両側の窩底穿下部より深いところまで墨汁が浸入していたのに対し，シアノアクリレート処理したグループでは，4 例中 1 例にエナメル壁まで墨汁浸入がみられるという程度であった。

温度変化を与えた場合には，漏洩度は上昇し，無処理のグループでは全体の平均指数は 7.1 となり，シアノアクリレート処理したグループでは 1.2 となったが，やはりシアノアクリレート処理の有無による漏洩度の差は大きかった。

また，全例を通して歯頂側よりも歯肉側の方が，漏洩度が大きかった。

c. 接着部断面の電子顕微鏡所見

走査型電子顕微鏡による，歯質と複合レジ充填物との界面の観察から，次のような所見が得られた（図10）。

図10 接着部断面の電子顕微鏡像
D：象牙質 R：複合レジン

無処理充填では，歯質と複合レジン充填物との間に約6～7 μm の隙間を生じていたのに対し，シアノアクリレート処理充填では隙間を生じていなかった。

3. 漏洩に関する臨床試験成績

口腔内の墨汁による漏洩試験により，次のような知見が得られた（図11，12）。

墨汁の滲透による辺縁部の黒線は，填塞1週間後の研磨時には，無処理充填の大部分に発生したが，メチルシアノアクリレート処理充填では，ごく一部に限られ，エチルシアノアクリレート処理充填では全く認められなかった。このような状況は，填塞後2週間たっても変化なく，4週間たっても特別な変化を示さなかった（表6）。

図11 填塞1週間後研磨墨汁塗布の口内試験例
1：無処理，2：メチルシアノアクリレート処理，3：無処理

図12 填塞1週間研磨時（上）および2週間（下）の墨汁塗布試験例
1：メチルシアノアクリレート処理，2：エチルシアノアクリレート処理，3：無処理

表6 各種の窩洞処理による複合レジン充填の墨汁塗布による黒線発生例数

窩 洞 処 理	1 週 後	2 週 後	4 週 後	被 検 例 数
メチルシアノアクリレート	3	3	3	19
エチルシアノアクリレート	0	0	0	19
無 処 理	16	16	15	19

表 7 各種窩洞処理による複合レジン充填の
歯髄刺激発生状態

窩 洞 処 理	症 状	1 週 後			2 週 後			4 週 後			被検 例数
		—	±	+	—	±	+	—	±	+	
メチルシ アノアク リレート	冷水敏	7	4	8	9	10	0	19	0	0	19
	打診痛	17	0	2	19	0	0	19	0	0	
エチルシ アノアク リレート	冷水敏	10	6	3	17	2	0	19	0	0	19
	打診痛	19	0	0	19	0	0	19	0	0	
無 処 理	冷水敏	17	2	0	19	0	0	19	0	0	19
	打診痛	19	0	0	19	0	0	19	0	0	

4. 歯髄刺激に関する臨床試験成績

メチルシアノアクリレートあるいはエチルシアノアクリレートにより窩洞処理を行った充填と無処理充填との間には、歯髄刺激の発生状態に関して、下記のような差が認められた(表7)。

充塞1週間後の研磨時には、無処理充填では臨床的不快症状はほとんどみられなかったが、メチルシアノアクリレート処理充填の場合には、半数以上に冷水に対する知覚過敏が現れ、ごく少数には打診痛も現れた。エチルシアノアクリレート処理充填の場合には約半数に冷水過敏が現れたが、打診痛を示すものはなかった。これに対して、無処理群では、ごく少数にわずかな冷水過敏が認められるのみであった。

このような症状は填塞後2週間経過すると、ごく軽いもののみとなり、メチルシアノアクリレート処理充填の約半数、エチルシアノアクリレート処理充填のごく少数にのみ認められたが、無処理群では完全に消失していた。填塞後4週間経過すると、いずれの方法で窩洞処理を行った群でも、臨床的不快症状はすべて消失していた。

考 察

1. シアノアクリレート処理と接着力

シアノアクリレートは、電気・電子工業、カメラ時計などの精密工業、自動車工業など工業界でいろいろな方面に多用されており、現在では一般家庭でも、簡便な瞬間接着剤として用いられてい

る。

この接着剤は、瞬間的に重合し、強力な接着力を示すという点、無色透明であるという点など優れた特性をもつので、その特性を歯科医学、特に保存修復学に応用する可能性の追求のために、歯質をシアノアクリレートで処理し、複合レジンをその上に填塞し、接着力を測定した。

シアノアクリレートの接着力は、乾燥した歯質に対しては強力であるといわれ²²⁾、本研究においてもかなりの接着力を示し、特にエナメル質よりも象牙質に強い接着力を示したが、これは次のような理由によるものであろう。

シアノアクリレートは、強塩基、弱塩基、水またはアルコールなど OH^- を有する物質の存在下で主鎖のエチレン構造がアニオン重合して樹脂化し、強力な接着力を示すものと考えられている²⁸⁾。この場合重合の触媒となった基は、重合体の末端基となっているので²⁹⁾、歯質に触媒となる基があれば、シアノアクリレートと歯質は化学的に結合すると思われる。

歯質に含まれている物質の中で、シアノアクリレートの重合の触媒となると思われるものは、水分と有機質であるが²⁹⁾、これらはエナメル質には3%しか含まれていないのに、象牙質には31%含まれている³⁰⁾。象牙質への接着力が特に強かったのは、化学的な結合が象牙質の方が多くできるためであらう。

ところが、本研究において水中に保管すると、2週間後には接着力が零に近いものとなってしまった。これは、極性接着剤であるシアノアクリレートが無極性である歯質表面に接着すると、極性物質である水分が容易に両者間の界面に浸入することによるものと推測されている³¹⁾。また、シアノアクリレートの重合体は、加水分解をして重合を解き、ホルムアルデヒドを発生するが³²⁾、これも接着力の低下に関係あると思われる。したがって、唾液により常に湿潤した口腔内に施される修復物においては、シアノアクリレートの接着力に頼って窩洞に保持形態を付与することを省くことは、不可能であると考えられる。

2. シアノアクリレート処理の漏洩防止効果

上記のようにシアノアクリレートは歯質に対して永続的な接着力を有しないにも拘らず、これによる窩壁の処理は、明らかに複合レジン充填の漏洩を防止し、このことは温度変化を与えても変わらなかった。

そこで接着部断面を電子顕微鏡により観察したところ、シアノアクリレート処理した窩洞では、歯質と充填物とが密着していたが、無処理の窩洞では6~7 μ mの隙間が生じていた。無処理の窩洞中では、レジンが硬化時の重合収縮により、歯質との間に隙間を生じ³³⁾、そこに墨汁が浸入するのであるが、シアノアクリレート処理した場合には、シアノアクリレートの接着力が十分ある時期に、複合レジンが硬化するので、重合収縮による剝離が障げられて隙間が生じず、そのために漏洩が起こらないものと思われる。このような緊密な適合状態は、シアノアクリレートが水分によって接着力を失った後にも保たれ、また温度変化を与えられてもほとんど変わらないことが本実験で明らかになった。

3. 歯髄刺激

シアノアクリレート処理を行うと、複合レジン充填の歯髄刺激をわずかに増大した。シアノアクリレート処理を行った場合には、歯質と充填物とは良好に適合しており、口腔内から歯髄を刺激する物質が両者の間に入り込むとは考えにくく、したがってシアノアクリレート自体が起こした刺激であろうと思われる。

このような歯髄刺激の原因としては、シアノアクリレートが重合する際に歯細管内の水分が奪われてその内圧が変化し、それが刺激となり歯髄に対して影響を及ぼす可能性がある³⁴⁾。また重合体の加水分解により生じたホルムアルデヒドが歯髄を刺激する可能性がある³⁵⁾とされている。シアノアクリレートのメチルとエチルとではメチルのほうが強い歯髄刺激を生じたが、これはメチルのほうが加水分解を起こしやすいためと考えられる²⁹⁾。

しかし、このような刺激を生じ臨床的症状は、

充填後2週間で大部分消失し、4週間後には完全に消失していた。Bhaskar らの研究によると、シアノアクリレートを窩洞に用いた場合には、3週間で6例中全例に第2象牙質の形成をみた³⁶⁾と報告しているので、このような刺激症状の消失は第2象牙質形成に関係があるかも知れない。

4. シアノアクリレートの選択

本実験では2種のシアノアクリレート（メチルシアノアクリレートとエチルシアノアクリレート）を窩洞処理のため用いたが、両者間には下記のような差が認められた。すなわち接着力は、空气中保管では両者の間に大きな差は認められなかったが、温水中保管ではエチルシアノアクリレートのほうがやや強かった。漏洩もエチルシアノアクリレートのほうが少なかった。また歯髄に対する刺激もエチルシアノアクリレートのほうが少なかった。

以上のことから、複合レジン充填の窩洞処理には、メチルシアノアクリレートよりも、エチルシアノアクリレートのほうが適していると思われる。

総 括

シアノアクリレート処理のレジン充填へ及ぼす効果を調べるために、歯髄をシアノアクリレートにより処理した場合としなかった場合における複合レジン充填の接着力を測定比較した。また、抜去歯牙の5級窩洞の複合レジン充填について、その漏洩度を墨汁によって調べ、その接着断面を電子顕微鏡により観察した。また、臨床試験においても墨汁による漏洩試験と歯髄刺激の発生状態を調べた。

1. シアノアクリレートは空气中に保管した状態では、歯質に対しかかなりの接着力を示したが、温水中に保管した状態では、接着力は低下し、非常に微弱なものになってしまった。

2. シアノアクリレート処理した場合には、象牙質に対する接着力は、エナメル質に対する接着力より大きかった。

3. 空气中に保管した場合には、メチルシアノアクリレート処理の接着力もエチルシアノアクリ

レート処理の接着力も大きな差はなかったが、温水中に保管した場合には、エチルシアノアクリレートのほうが接着力が大きかった。

4. シアノアクリレート処理した上に填めた2種の複合レジンの間には、接着力の差はなかった。

5. シアノアクリレート処理した複合レジン充填と、無処理の複合レジン充填とでは、シアノアクリレート処理したものが、漏洩が少なかった。

6. 上記の試験を温度変化を与えながら行ったが、やはり無処理とシアノアクリレート処理とでは、その差は著しく、シアノアクリレート処理群では、漏洩が少なかった。

7. 電子顕微鏡による所見では、歯質と充填物との間にシアノアクリレート処理したものでは隙間はなかったが、無処理のものでは6~7 μ mの隙間があった。

8. 臨床試験でも、無処理のものは漏洩が大きかったが、シアノアクリレート処理したものでは漏洩は少なく、特にエチルシアノアクリレート処理したものでは、漏洩はなかった。

9. シアノアクリレート処理は歯髄刺激をわずかに増大したが、その程度はメチルシアノアクリレートよりも、エチルシアノアクリレートのほうが少なかった。

謝 辞

稿の終わりに際して、御指導、御校閲いただいた東京医科歯科大学第1保存学教室の総山孝雄教授、ならびに終始御指導御援助をいただいた岩久正明助教授、電子顕微鏡写真撮影に御協力下さった東京医科歯科大学医用器材研究所無機材料部の柴満生技官に心からの感謝の意を捧げます。

文 献

- 1) Buonocore, M. G.: A simple method of increasing the adhesion of acrylic filling materials to enamel surfaces. *J. Dent. Res.*, 34: 849-853, 1955.
- 2) Buonocore, M., Wileman, W. & Brudevold, E.: A report on a resin composition capable of bonding to human dentin surfaces. *J. Dent. Res.*, 35: 846-851, 1956.
- 3) Buonocore, M. G., Matsui, A. & Gwimett, A. J.: Penetration of resin dental materials into enamel surfaces with reference to bonding. *Archs. Oral Biol.*, 13: 61-70, 1968.
- 4) 谷 嘉明, 竹内正敏, 井田一夫: 複合レジン修復材における接着強化法の比較, その1 エナメル質への接着性. *器材学誌*, 33: 326, 328, 1976.
- 5) Vojinovic, O., Nyborg, H. & Bränström, M.: Acid treatment of cavities under resin fillings: Bacterial growth in dentinal tubules and pulpal reactions. *J. Dent. Res.*, 52: 1189-1193, 1973.
- 6) Olgart, L., Bränström, M. & Johnston, G.: Invasion of bacteria into dentinal tubules. *Acta Odont. Scand.*, 32: 61-70, 1974.
- 7) Liatukas, E. L. & Young: Scanning electron microscopy of enamel crack after etching: An in vitro study. *J. Prosthet. Dent.*, 33: 558-561, 1975.
- 8) Bowen, R. L.: Adhesive bonding of various materials to hard tooth tissues. I. Method of determining bond strength. *J. Dent. Res.*, 44: 690-695, 1965.
- 9) Bowen, R. L.: Adhesive bonding of various materials to hard tooth tissues. II. Bonding to dentin promoted by a surface-active comonomer. *J. Dent. Res.*, 44: 895-902, 1965.
- 10) Bowen, R. L.: Adhesive bonding of various materials to hard tooth tissues. III. Bonding to dentin improved by pretreatment and the use of surface-active comonomer. *J. Dent. Res.*, 44: 903-905, 1965.
- 11) Bowen, R. L.: Adhesive bonding of various materials to hard tooth tissues. IV. Bonding to dentin, enamel and fluoapatite improved by the use of a surface-active comonomer. *J. Dent. Res.*, 44: 906-911, 1965.
- 12) Bowen, R. L.: Adhesive bonding of various materials to hard tooth tissues, V. The effect of a surface-active comonomer on adhesion to diverse substrates. *J. Dent. Res.*, 44: 1369-1373, 1965.
- 13) 大串貫太郎, ほか: 第22回日本歯科保存学会総会, 東京, 1975.
- 14) Smith, D. C.: A new dental cement. *Brit. Dent. J.*, 125: 381-384, 1968.
- 15) 岩久正明, 齋藤允昭, 清水芳保, 的野良次: カルボキシレートセメントの歯髄刺激について. *日歯保誌*, 14: 254-259, 1972.
- 16) 岩久正明, 他 6 名: カルボキシレートセメントの研究, (その2) 接着について. *器材学誌*, 29: 35-39, 1973.
- 17) 総山孝雄: 歯質にキレートする新接着材—カル

- ボキシレートセメントについて, 歯界展望, 40: 225-229, 1972.
- 18) Wilson, A. D. & Kent, B. E.: A new translucent cement for dentistry. *Brit. Dent. J.*, 132: 133-135, 1972.
- 19) Mclean, J. W. & Wilson, A. D.: The clinical development of the glass-ionomer cement, III The erosion lesion. *Aus. Dent. J.*, 22: 190-197.
- 20) Mclean, J. W. & Wilson, A. D.: The clinical development of the glass-ionomer cement. I formulation and properties. *Aus. Dent. J.*, 22: 31-36, 1977.
- 21) 黒崎紀正, 他 7 名: カルボキシレートセメントの研究, (その 1) 物理化学的性質について. 器材学誌, 29: 31-34, 1973.
- 22) Beech, D. R.: Bonding of alkyl 2-cyanoacrylates to human dentin and enamel. *J. Dent. Res.*, 51: 1438-1442, 1972.
- 23) 総山孝雄: 新レジン充填. 京都, 1973, 永末書店, 24-28ページ.
- 24) 岩久正明: 複合レジン充填の臨床成績について. 日歯保誌, 16: 282, 1973.
- 25) 小林久紀: 複合レジン修復の辺縁封鎖性に関する研究. 歯科医学, 36: 33-59, 1973.
- 26) Jørgensen, K. D. & Asmussen, E.: Pseudo-discoloration of plastic fillings. *Acta Od. Sc.*, 29: 649-652, 1971.
- 27) 日本電子顕微鏡学会関東支部: 走査電子顕微鏡. 東京, 1976, 共立出版.
- 28) 太田和夫: 生体と接着剤. 接着, 12: 170-177, 1968.
- 29) Leonard, F., Hulkarni, R. K., Brandes, G., Nelson, J. and Cameron, J. J.: Synthesis and degradation of poly (alkyl α -cyanoacrylates). *J. Appl. Polym. Sci.*, 10: 259-272, 1966.
- 30) 押鐘 篤, ほか: 歯科生化学. 東京, 1976, 医歯薬出版社, 150ページ.
- 31) 山本昌雄, 中沢省三: 歯科用レジン系接着剤の最近の進歩. 広歯誌, 7: 1-17, 1975.
- 32) 杉山岩吉: シアノ系接着剤の耐久性と問題点. 接着, 13: 312-318, 1969.
- 33) Asmussen, E. & Jørgensen, K. D.: A microscopic investigation of the adaptation of some plastic filling materials to dental cavity walls. *Acta Odont. Scand.*, 30: 3-21, 1972.
- 34) 河村洋二郎: 象牙質知覚をめぐる諸問題. 歯界展望, 36: 197-204, 1970.
- 35) Matsui, A., Buonocore, M., Sarda, O. & Yamaki, M.: Tissue reactions to methyl-and Ethyl-2-cyanoacrylate adhesives. *J. Dent. Res.*, 46: 389-394, 1967.
- 36) Bhaskar, S. N., et al.: Pulpal response to four restorative materials. *O. S. O. M. & O. P.* 28: 126-133, 1969.