

[学位論文] 松本歯学 35 : 261~269, 2009

key words : フィッシャーシーラント—抗菌性モノマー配合ボンディング材—光触媒—酸化チタン

抗菌性モノマー配合ボンディング材のフィッシャーシーラントへの応用

蓮見 秀樹

大学院歯学独立研究科 健康増進口腔科学講座
(主指導教員：宮沢 裕夫 教授)

松本歯科大学大学院歯学独立研究科博士（歯学）学位申請論文

Application to the fissure sealant of antibacterial monomer combined bonding materials

HIDEKI HASUMI

Department of Oral Health Promotion, Graduate School of Oral Medicine
(Chief Academic Advisor : Professor Hiroo Miyazawa)

The thesis submitted to the Graduate School of Oral Medicine,
Matsumoto Dental University, for the degree Ph.D. (in Dentistry)

要 旨

フィッシャーシーラントは、小窩裂溝の齲蝕予防や初期齲蝕進行抑制手段として临床上極めて有用である。しかし、予後不良例も認められ、その原因として、ブラシと酸処理による小窩裂溝内有機性残遺物の清掃が困難、シーラント材の破折による微細漏洩などがあげられ、二次齲蝕の原因となりうる。また、最近ではレジン系シーラントの前処理に用いるリン酸エッチングが未成熟エナメル質に対してダメージを与えることが指摘されている。したがって、このような状態を回避するために、広い抗菌スペクトルを有する第四アンモニウム塩の一種であるアルキルピリジニウム (12-Methacryloyloxydodecylpyridinium bromide : 以下 MDPB) をプライマーに配合したボンディング材が開発されたことに着目した。この MDPB 配合ボンディング材は、プライミングと

同時に殺菌作用が発揮され、硬化後は接着界面からの抗菌成分の溶出が生じず、経時的な接着界面の劣化が起こらないとされているため、シーラント材として用いることにより、予後向上に寄与できる可能性がある。

本研究では、MDPB 配合ボンディング材のプライミング時の殺菌作用だけでなく、硬化後も抗菌力を持続させるために、光触媒作用により抗菌性が期待できる酸化チタンを添加して、プライミング時とシーラント後の二段階の抗菌性を付与させた試作シーラント材を作製した。この試作シーラント材を用いた場合、酸化チタンが白色顔料にもなるため、シーラント後に発生する辺縁破折等の異常が容易に確認できると考えられる。

そこで本研究では、二段階の抗菌性と白色着色による識別性を付与させた試作シーラント材について材料学的検討および細菌学的検討をおこなった結果、以下の結論を得た。

1. MDPB 配合ボンディング材 (以下 PB) を酸化チタンにより白色着色した場合、重量比 0.001% 配合が適切であった (以下 0.001% WPB)。
2. 0.001% WPB の白色は、市販シーラント材 2 種の白色に比較して明るい白緑黄色であった。
3. 0.001% WPB は、EPMA による面分析をした結果、酸化チタンの粒子がほぼ均一に分布するのが観察された。
4. 0.001% WPB は、サーマルサイクリング負荷後の填塞状態や微細漏洩は PB と同等で、シーラント材 (以下 FS) に比較して良好であった。
5. 0.001% WPB のサーマルサイクリング負荷後の微小硬度は、PB よりも若干低値を示したが、FS よりも高値であった。
6. 酸化チタンの光触媒作用による *Streptococcus mutans* に対する抗菌性の評価をおこなった結果、10 分間の 350 nm の紫外線照射により生菌数の減少が認められた。

以上より、0.001% WPB は歯面処理時と填塞後の二段階の抗菌性を有したシーラント材として臨床応用が可能であり、耐齶蝕性の向上と白色着色による良好な識別性により、フィッシャーシーラントの予後向上に寄与することが判明した。

緒 言

フィッシャーシーラントは 1966 年に竹内¹⁾によってメチルメタクリレートとエチル 2 シアノアクリレートの混和物で小窩裂溝部を封鎖したところ、シーラント後の 9 か月間は裂溝部の封鎖性があり、さらにこの間の小窩裂溝部の齶蝕は完全に抑制されたと報告されたのが原点とされている。しかしながらシアノアクリレートは親水性で、長期間湿潤環境におかれると吸水・膨潤し、接着力を失うという問題を克服できず広く普及しなかった。しかし、1967 年に Buonocore ら²⁾によって、より確実に強固な接着性を発揮するリン酸エッチングによる接着技法とシーラント材が発表され、高分子化合物の発展によるシーラント材料の改良もあり、現在、乳歯および幼若永久歯の小窩裂溝齶蝕の予防や進行抑制手段として日常臨床で頻繁に施術されている。

フィッシャーシーラントの第一大臼歯に対する臨床的効果については、施術しなかった場合には 85.1% が齶蝕に罹患しているのに対して、シーラント処置をおこなった場合は 64.2% にまで減少させることが可能であることが報告されている³⁾。また、上顎に比較して下顎に効果が大きく、第一大臼歯の萌出開始から齶蝕発生による修復治療に至るまでの平均期間は、シーラントをおこなっていない場合、上下顎合計で 20 か月以内であるのに対して、シーラント施術群では 40 か月まで修復処置を遅らせる効果があることが報告されている³⁾。

このように、フィッシャーシーラントは、小窩裂溝の齶蝕予防や初期齶蝕進行抑制手段として臨床上極めて有用であるが、二次齶蝕の発生など予後不良例も認められる。この原因として、ブラシと酸処理による小窩裂溝内有機性残遺物の清掃が困難なこと、シーラント材の破折による微細漏洩などがあげられる。また、最近ではレジン系シーラント前処理に用いるリン酸エッチングによる未成熟エナメル質へのダメージが指摘されている⁴⁾。

一方、広い抗菌スペクトルを有する第四アンモニウム塩の一種であるアルキルピリジニウム (12-Methacryloyloxydodecylpyridinium-umbromide: 以下 MDPB) をプライマーに配合したボンディング材が近年開発された。この MDPB 配合ボンディング材は、プライミングと同時に殺菌作用が発揮され、硬化後は接着界面からの抗菌成分の溶出が生じず、経時的な接着界面の劣化が起こらないとされている⁵⁾。したがって、この MDPB 配合ボンディング材をシーラント材として用いることにより、予後向上に寄与できる可能性がある。

本研究では、MDPB 配合ボンディング材のプライミング時の殺菌作用だけでなく、硬化後にも抗菌力を持続させるために、光触媒作用により抗菌性が期待できる酸化チタンを添加して、プライミング時とシーラント後の二段階の抗菌性を付与させた試作シーラント材を作製した。この試作シーラント材を用いた場合、酸化チタンが白色顔料にもなるため、填塞後に発生する辺縁破折等の異常が容易に確認できると考えられる。

そこで本研究では、二段階の抗菌性と白色着色

による識別性を付与させた試作シーラント材について材料学的検討と細菌学的検討をおこない、臨床応用が可能かを検討した。

材料および方法

1. MDPB 配合ボンディング材の組成

図1にMDPBの構造式、表1にMDPB配合ボンディング材と市販シーラント材の成分比較を示した。

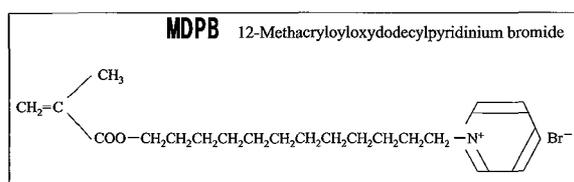


図1：MDPBの構造式

表1：PBとFSの成分比較

PB MDPB 配合ボンディング材 CLEARFIL®MEGA BOND®FA		FS フィッシャーシーラント材 TEETHMATE®F-1 2.0
セルフエッチングプライマー	ボンド	
MDP	MDP	MDP
MDPB	HEMA	HEMA
HEMA	Bis-GMA	TEGDMA
光重合触媒	フィラー	MMA-MF
水	NaF フィラー	共重合体
着色剤	光重合触媒	光重合触媒
他	その他	その他

2. 試作シーラント材の作製

MDPB 配合ボンディング材である CLERFIL® MEGA BOND®FA (クラレメディカル) のボンディング液に、重量比0.001%の酸化チタンアナターゼ型 (ナカライテスク) を添加したものをメーカー指示どおりの使用方法にしたがって、照射で重合させたものとした (以下0.001% WPB)。

3. 試験片の作製方法

実験群は0.001% WPBとした。対照群はMDPB 配合ボンディング材である CLERFIL® MEGA BOND®FA (クラレメディカル) (以下PB)、市販シーラント材の THEETH MATE® F-1 2.0白色 (クラレメディカル) (以下FS) を用いた。

各材料は縦5mm×横5mm×厚さ1mmの規格で、メーカー指示どおりの使用方法にしたがって、照射で重合させたものを7.を除く以下の測定項目の試験片とした。

4. 肉眼所見

3.の各試験片にMDPB 配合ボンディング材のボンディング液に重量比0.01%の酸化チタンIVを添加したもの (以下0.01% WPB)、市販シーラント材の Concise (3M ESPE) (以下3MFS) を試験片として加えた。各試験片は、人工光線下で実体顕微鏡 (OLYMPUS SZ-PT) により表面の観察をおこなった。

5. 色特性と色差の検討

白色色調の比較は色彩情報分析システムカラーセンサー MCR-A (コアサイエンス) を用いて L*a*b* 表色系を測定し、L*値による明度、a*値およびb*値による色相の検討をおこない、色差値dEを評価した。

6. EPMAによる表面の面分析

各試験片にカーボン蒸着をおこない、EPMA (エックス線マイクロアナライザー JXA 8200: 日本電子) による面分析でTiおよびOの元素マッピングをおこなった。

7. 微小硬度の測定

作製した各試験片は、口腔内環境を想定し、4℃水中と60℃温水中に交互に1分間の浸漬負荷をおこなったものを1サイクルとして、4000回のサーマルサイクリング負荷をサーマルサイクリング試験機 (東京技研) にておこなった。サーマルサイクル後の試料は、ビッカース硬度計 (島津 HMV-2000) を用いてビッカース硬さの測定をおこない統計学的有意差 (Student's t-test) を検討した。

8. 接着界面の填塞状態と微細漏洩の観察

矯正治療により便宜抜歯されたヒト小白歯を用いて、FG用ダイヤモンドポイント FS 104にて裂溝形態を可及的に均質化した裂溝モデルを作製した。試料は、PBとWPBはメーカー指示方法にしたがって、プライマー処理とボンディング材の填塞を裂溝モデル内におこなったもの、FSは赤色のものを用いて、通法にしたがい20秒間の37%リン酸処理後、裂溝モデル内に填塞をおこなったものとした (図2)。

作製した試料は、口腔内環境を想定して4℃水

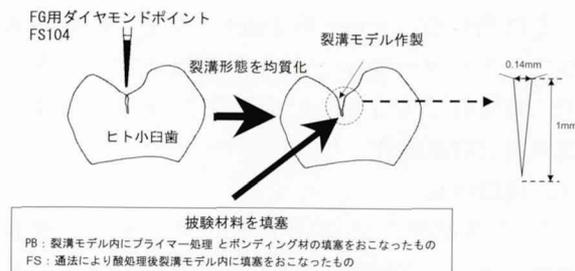


図2：試料作製方法

中と60℃温水中に、交互に1分間の浸漬負荷をおこなったものを1サイクルとして、4000回のサーマルサイクリング負荷をサーマルサイクリング試験機（東京技研）にておこなった。

サーマルサイクル後、試料は1%メチレンブルー水溶液に浸漬して染色をおこない、染色後の試料は歯冠部を頬舌方向に切断して、実体顕微鏡（OLYMPUS SZ-PT）にて接着界面からの填塞状態と微細漏洩の有無の観察をおこなった。

9. 酸化チタンの光触媒作用による抗菌性の評価

抗菌性の評価対象菌は、*Streptococcus mutans* Ingbritt株を用いた。接種菌液は、Tryptic soy agar 培地（Merck）に35℃で48時間培養した直径1mm以上のコロニー5個を採取して、5mlの滅菌生理食塩水に懸濁した。懸濁液はミキサーにて15分間の攪拌後、滅菌生理食塩水にて透過度をMcFarland 0.5に調整した。その後、*Streptococcus mutans*の密度をPBS中に1/1000量加え1000CFU/mlに調整した菌液を試験片に各々5μl滴下し、350nmの紫外線を10分間照射した後、生菌数測定用のレシチン・ポリソルベート80加ソイビーン・カゼイン・ダイジェスト・カンテン培地（SCDLP寒天培地）で試験片上の残存菌を洗い出した。残存菌は10倍希釈ずつ段階希釈し、Tryptic soy agar 培地を用いて37℃で48時間の培養後にコロニー数を計測した。

結 果

1. 肉眼所見

重量比0.01% WPBおよび0.001% WPBともに肉眼所見（図3-1）では十分な白色を呈していた。また、実体顕微鏡下での観察（図3-2）により、対照群のFSと3MFSの色調に近似するのは0.001% WPBであった。

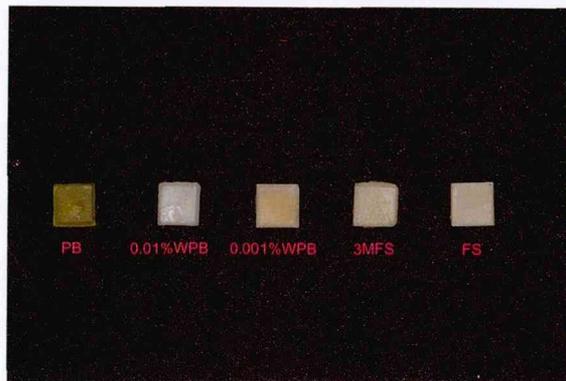


図3-1：白色着色の比較

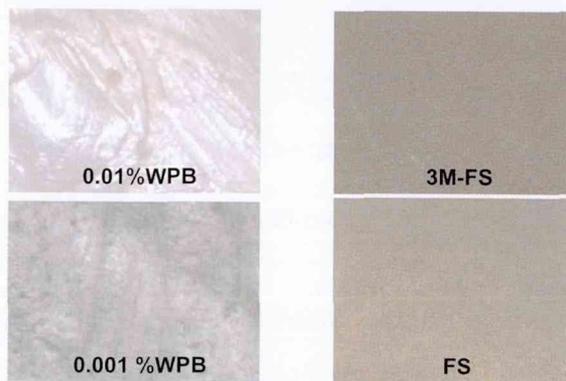


図3-2：白色着色の比較（実体顕微鏡像 ×30）

2. 色特性と色差の検討の検討

表2に測定結果を示した。0.001% WPBとFSとの色差値dEは6.46で白色の色特性に差異があった。また、L*値より0.001% WPBの明度はFSに比べて明るく、a*値より若干緑色の色相で、b*値より黄色が若干強い色相であったことから、0.001% WPBはFSに比べて明るい白緑黄色であることが判明した。

表2：L*a*b*表色系の測定

	PB	0.001% WPB	FS	dE* 6.46
L*	47.6	89.6	85.0	
a*	-0.7	-3.3	-3.9	
b*	-2.0	12.4	7.9	

3. EPMAによる表面の面分析

元素マッピングにより、PBの表面にはTiを認めなかった。また、Oは表面全般に認められた（図4-1）。これに対して、0.001% WPBの表面はTiがほぼ均一に分布するのが認められ、OはPBとほぼ同様に認められた（図4-2）。また、FSにもTiが認められたが、0.001% WPB

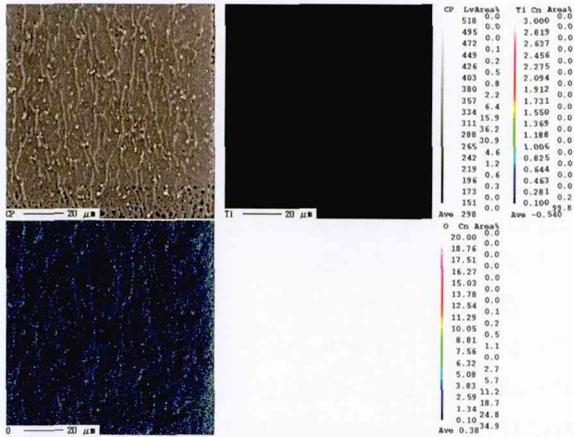


図4-1：EPMAによる面分析（PB）

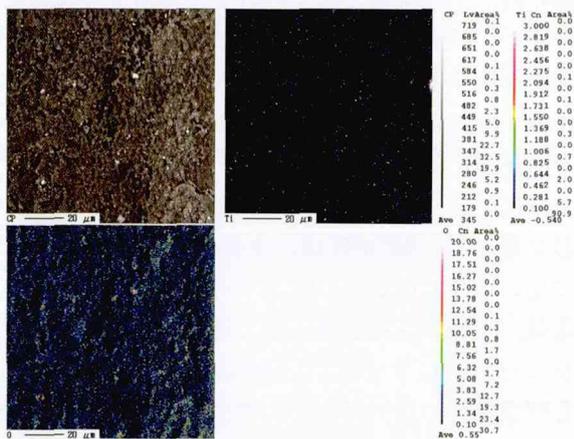


図4-2：EPMAによる面分析（0.001% WPB）

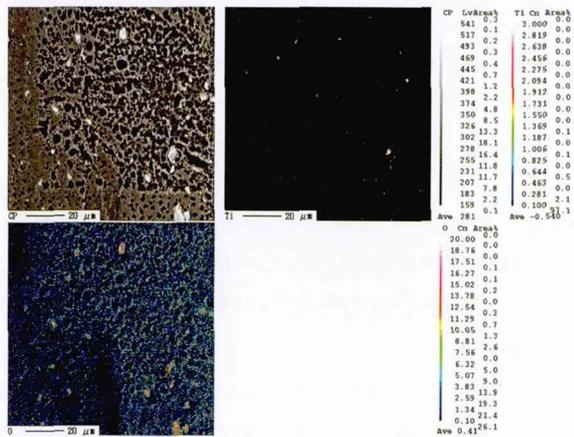


図4-3：EPMAによる面分析（FS）

に比較して分布量は不均一で少量であった。さらにOもPBや0.001% WPBに比較して多く認められた（図4-3）。

4. 微小硬度の測定

サーマルサイクル前と4000回サーマルサイクル後の微小硬度の測定値を図5に示した。サーマル

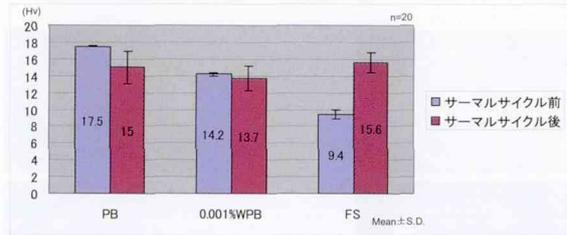


図5：サーマルサイクル前後の微小硬度

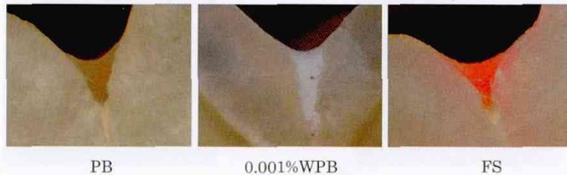


図6：填塞状態

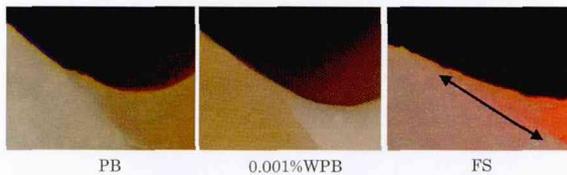


図7：接着界面からの微細漏洩
矢印の範囲にメチレンブルーの浸透を認める。

サイクル前では、PBは17.5Hvであったのに対して0.001% WPBは14.2Hvと若干低い値を示したが、両試料間に統計学的有意差は認められなかった。また、FSは9.4Hvとさらに低い値を示した。さらに、サーマルサイクル後の微小硬度はPBが15.0Hvで0.001% WPBは13.7Hvとサーマルサイクル前に比べて若干低い値を示したが、統計学的有意差は認めなかった。しかし、FSはサーマルサイクル後に9.4Hvから13.7Hvと硬度の増加がみられた。

5. 接着界面の填塞状態と微細漏洩の観察

サーマルサイクル後のFSおよびPBの填塞状態は、歯質との移行部が滑沢であり、到達深度に関しても裂溝モデル内に十分に填塞されていた。また、0.001% WPBも同様の所見が認められた（図6）。

サーマルサイクル4000回後の接着界面からの微細漏洩は、FSにおいてメチレンブルーの浸透が認められたのに対し、PBや0.001% WPBにはメチレンブルーの浸透は認められなかった（図7）。

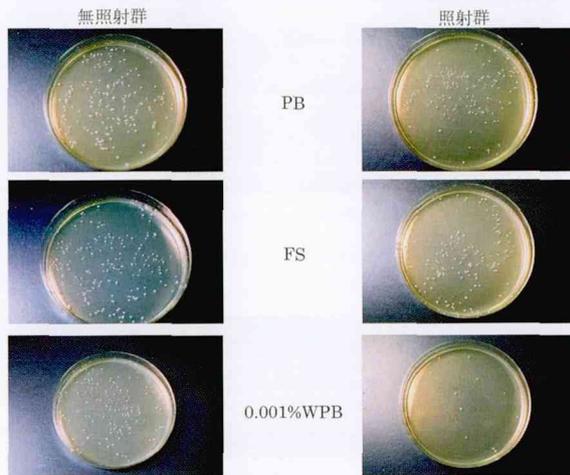


図8：350 nm 紫外線10分間照射後の光触媒作用の評価

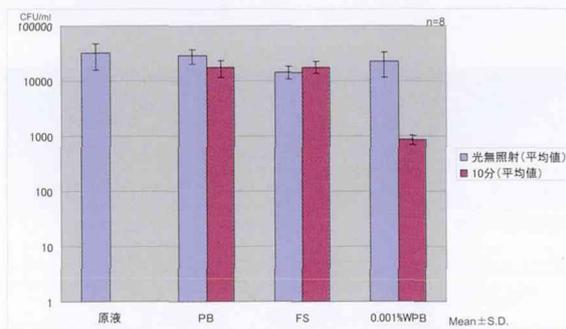


図9：*Streptococcus mutans* に対する殺菌効果

6. 酸化チタンの光触媒作用による抗菌性の評価

Streptococcus mutans 原液では 3.18×10^4 CFU/mlであった。これに対し、無照射群はPBで 2.90×10^4 CFU/ml, FSは 1.44×10^4 CFU/ml, 0.001% WPBは 2.27×10^4 CFU/mlであった。また、10分間の350nm 紫外線照射群は、PBで 1.75×10^4 CFU/ml, FSは 1.79×10^4 CFU/ml, 0.001% WPBは867CFU/mlであり、0.001% WPBにおいて350nm 紫外線照射による生菌数の減少が顕著に認められた。(図8, 9)。

考 察

エナメル質をリン酸処理により、エナメルタグを生成させてレジンとエナメル質を接着させる方法は Buonocore⁶⁾により1955年に報告されて以来、様々な歯科処置に応用されており、レジン系フィッシャーシーラントは同様の方法にておこなわれている。また、フィッシャーシーラントは、ガラスイオノマー系シーラント材よりレジン系シーラント材の方が物性および接着力にすぐれ、

予後が良いとされている⁷⁾。しかし、レジン系シーラント材を用いる場合、未成熟エナメル質に対するリン酸エッチングを必要とし、健全な歯質を育成させるという観点からは矛盾した術式となりうる。また、酸処理されたエナメル質表面層は約10 μm 脱灰され⁸⁾、2年経っても回復しないということが報告されている⁹⁾。

一方、近年開発されたセルフエッチングプライマーシステムやオールインワンアドヒーズシステムは、リン酸エッチングがpH 0.6程度であるのに対し、pH 1.2~2.8程度とエナメル質に対する脱灰が軽減されており¹⁰⁾、未成熟エナメル質保護の観点から有用と考えられる。本研究では、この新しい接着システムのなかで、広い抗菌スペクトルを有する第四アンモニウム塩の一種であるアルキルピリジニウム (12-Methacryloyloxydodecylpyridinium bromide: 以下 MDPB) をプライマーに配合したボンディング材に着目し、改良をおこなった。MDPBは、歯科領域で洗口剤などに用いられている広い抗菌スペクトルを有する抗菌剤、4級アンモニウム塩である塩化セチルピリジニウム (以下 CPC) の類似化合物であり、重合部位をもつ以外は極めて類似した構造をしている。このMDPBはCPC同様に細胞の電気的バランスを変化させることにより、細胞壁を破壊することで *Streptococcus mutans*, *Streptococcus sobrinus*, *Lactobacillus casei*, *Lactobacillus plantarum* や *Lactobacillus fermentum* を代表とする広い種類の口腔細菌を死滅させると考えられている¹¹⁾。さらに、MDPB配合ボンディング材は、プライミングと同時に殺菌作用が発揮され、硬化後は接着界面からの抗菌成分の溶出が生じず、経時的な接着界面の劣化が起こらないとされている¹²⁾。

ボンディング材をシーラント材として用いる試みは、複数の研究者により報告されており、シーラント材として用いられたボンディング材は良好な臨床成績を示している¹³⁻¹⁵⁾。また、シーラント材の充填前にボンディング材を一層置く試みもされており、その際には微小漏洩が減少し、シーラント材の保持率が向上したとする報告もある¹⁶⁻²⁰⁾。本研究に用いた0.001% WPBやPBも、サーマルサイクル後の充填状態は歯質との移行部が滑沢であり、到達深度に関しても裂溝モデル内

に十分に填塞されており、接着界面からの微細漏洩も認められなかった。したがって、これらの結果より0.001% WPBやPBは、歯質との接着力が良好で、接着界面からの抗菌成分の溶出や経時的な接着界面の劣化もほとんどなく、シーラント材として口腔内に露出した際にも問題がないと考えられた。

また、レジン重合収縮はフィラーの含有率や粒子径により左右されることが広く知られているが、レジン系シーラント材にはフィラーが含有されていないほうが良いと考えられているため²¹⁾、現在のレジン系シーラント材は、フィラーが含有されていないものがほとんどである。しかし、本実験で用いたFS、0.001% WPBおよびPBには、2-メタクリロイルオキシデシルリン酸(MDP)が共通して含まれており、ハイドロキシアパタイトと短時間の化学的反応で水中安定性に優れた塩形成による接着があるといわれているが²²⁾、FSでは微細漏洩が認められた。この要因として、FSの微小硬度がサーマルサイクル前よりサーマルサイクル後に増加していたことから、FSは填塞直後には未重合層が多く存在しており、経時的に重合することが推測され、長期の重合収縮によるエナメル質界面剥離によって微細漏洩が生じることが強く示唆された。これに対し0.001% WPBおよびPBでは、エナメル質に対するプライマーの酸処理能力がリン酸処理に比較して若干劣るにもかかわらず、微細漏洩が認められなかった理由として、含有されるフィラーにより重合収縮が抑制されることで、エナメル質界面剥離が起こりにくいと考えられ、0.001% WPBでは酸化チタンによる重合収縮の抑制に相乗効果があることが示唆された。さらに、リン酸エッチング材を用いた場合、本来の作用部位である小窩裂溝部だけでなく周囲エナメル質も脱灰することが多く、その場合、健全エナメル質に比較して耐酸性が低下し、齲蝕感受性が増加すると報告されているため^{23,24)}、リン酸エッチングを用いないでエナメル質に接着する0.001% WPBおよびPBの優位性が本研究結果からも示唆された。

本研究で用いた酸化チタンは、白色顔料や紫外線吸収料としてペンキ、化粧品などの原料に広く使われ、食品添加物としても認められ、安全性が確保されている。本研究ではこの酸化チタンによ

り白色に着色された0.001% WPBの白色色調は、市販シーラント材のFSに比較して明るい白緑黄色であった。この色調の要因は、基材であるPBの黄色かかった透明色が反映されていると示唆されたが、臨床上の識別には影響がないと考えられた。

また、酸化チタンには、アナターゼ(Anatase: 鋭錐石)、ルチル(Rutile: 金紅石)、ブルカイト(Brookite: 板チタン石)の3種の結晶形態がある。このうち、工業的に利用されているのはルチルとアナターゼで、ブルカイトは学術的に取り上げるのみで、工業面の利用はないため、本研究では光触媒反応が強いアナターゼを用いた。

近年、酸化チタンは光電極や光触媒の材料として、太陽エネルギー変換材料への応用が注目されており、酸化チタン薄膜をコーティングした材料は、特別な光源を用意しなくても防汚効果や殺菌・抗菌効果、消臭・分解効果などを示すことが報告されている²⁵⁾。この酸化チタンは、3.2eVのバンドギャップをもっており、410~380nm以下の波長の光励起によって電子・正孔対が生成して表面に拡散し、電子は吸着酸素に移行して、 $\cdot O_2^-$ (スーパーオキシドアニオン) が生成して、正孔は格子酸素にトラップされる。さらに、格子にトラップされた正孔が吸着水に移行すると、活性酸素である $\cdot OH$ (ヒドロキシラジカル) を生成する。また、 $\cdot O_2^-$ はプロトンと反応し、高い反応活性を有する $HO_2\cdot$ になり、酸化チタン表面に吸着した有機物は構成元素の最終酸化状態である二酸化炭素、水、硫酸、硝酸にまで酸化されると考えられている²⁵⁻²⁷⁾。

本研究でも0.001% WPBの表面は、EPMAにより酸化チタン粒子がほぼ均一に分布しており光触媒としても適した様相であったこと、350 nmの紫外線照射による生菌数の減少が顕著に認められたことより、シーラント材として用いた場合、歯質と0.001% WPBの界面において抗菌性が期待され、MDPBとの二段階の抗菌性により耐齲蝕性を向上させることが明らかとなり、フィッシャーシーラントの予後向上に寄与できると考えられた。

結 論

フィッシャーシーラントのシーラント材とし

て、MDPB 配合ボンディング材に光触媒作用による抗菌性と白色着色性のある酸化チタンを添加させて、プライミング時と填塞後の二段階の抗菌性と白色を付与させることにより、耐齶蝕性と識別性を向上させた試作シーラント材を作製した。この試作シーラント材の材料学的検討と細菌学的検討をおこなった結果、以下の知見を得た。

1. MDPB 配合ボンディング材を酸化チタンにより白色着色する場合、重量比0.001%配合が適切であった。
2. 0.001% WPB の白色は、市販シーラント材の白色に比較して明るい白緑黄色であった
3. 0.001% WPB は、EPMA により酸化チタンの粒子がほぼ均一に分布するのが観察された。
4. 0.001% WPB は、サーマルサイクリング負荷後の填塞状態や微細漏洩は PB と同等で、FS に比較して良好であった。
5. 0.001% WPB のサーマルサイクリング負荷後の微小硬度は、PB よりも若干低値を示したが、FS よりも高値であった。
6. 酸化チタンの光触媒作用による *Streptococcus mutans* に対する抗菌性の評価をおこなった結果、10分間の350nm の紫外線照射により生菌数の減少が認められた。

以上より、0.001% WPB は歯面処理時と填塞後の二段階の抗菌性を有したシーラント材として臨床応用が可能であり、耐齶蝕性の向上と白色着色による良好な識別性により、フィッシャーシーラントの予後向上に寄与することが判明した。

謝 辞

稿を終えるにあたり、御懇切なる御指導と御校閲を賜りました松本歯科大学大学院健康増進口腔科学講座 宮沢裕夫教授に深甚なる感謝の意を表します。

また、本研究に対し多くの御教示と御校閲を戴きました松本歯科大学大学院硬組織疾患制御再建学講座 伊藤充雄教授、永澤 栄准教授、健康増進口腔科学講座 藤村節夫教授、山本昭夫教授に深謝致します。

最後に本研究の遂行にあたり、多大なる御助言と御協力を賜りました松本歯科大学大学院健康増

進口腔科学講座 平井 要准教授、中山 聡講師、竹内瑞穂助教、硬組織疾患制御再建学講座 吉田貴光講師、電子顕微鏡室 赤羽章司主任に厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1) 竹内光春 (1964) 合成樹脂接着剤によるう蝕予防填塞法について. 口腔衛生会誌 **16**: 155-68.
- 2) Cueto EI and Buonocore MG (1967) Sealing of pits and fissures with an adhesive resin its use in caries prevention. JADA **75**: 121-8.
- 3) 寺本幸代, 吉武陽子, 林 于昉, 宮沢裕夫 (1997) 第1大白歯のフィッシャーシーラントの予後について. 松本歯学 **23**: 178-83.
- 4) 斎藤孝夫 (2002) 未成熟エナメル質酸処理への警鐘. DE **140**: 33-4.
- 5) Imazato S, Torii Y, Takatsuka T, Inoue K, Ebi N and Ebisu S (2001) Bactericidal effect of dentin primer containing antibacterial monomer methacryloyloxydodecylpyridinium bromide (MDPB) against bacteria in human carious dentin. J Oral Rehabil **28**: 314-9.
- 6) Buonocore MG (1955) A simple method of increasing the adhesion of acrylic filling materials to enamel surfaces. J Dent Res **34**: 849-53.
- 7) 松根健介, 黒瀬絵里菜, 北川博恵, 山崎道子, 松永利恵, 生田剛史, 早川 徹, 根本君也, 前田隆秀 (2003) 市販シーラント材の牛歯エナメル質表面への引張り接着強さの検討-レジ系とガラスイオノマー系の比較-. 小児歯誌 **41**: 823-9.
- 8) Silverstone LM (1974) Fissure sealants: laboratory studies. Caries Res **8**: 2-26.
- 9) Jemt T, Stalblom PA and Olsson G (1986) Adhesion of polycarboxylate-based dental cements to enamel: an in vivo study. J Dent Res **65**: 885-7.
- 10) 平井義人編 (2007) 保存修復学, 第5版, 159-63, 医歯薬出版, 東京.
- 11) Kitasako Y, Senpuku H, Foxton RM, Hanada N and Tagami J (2004) Growth-inhibitory effect of antibacterial self-etching primer on mutans streptococci obtained from arrested carious lesions. J Esthet Restor Dent **16**: 176-84.
- 12) Imazato S, Russell RR and McCabe JF (1995) Antibacterial activity of MDPB polymer incorporated in dental resin. J Dent **23**: 177-81.
- 13) 堀 稔 (2004) All-in-one-adhesive の小窩裂溝填塞材への応用に関する研究. 小児歯誌 **42**: 653-60.

- 14) Grande RH, Ballester R, Singer Jda M and Santos JF (1998) Microleakage of a universal adhesive used as a fissure sealant. *Am J Dent* **11** : 109-13.
- 15) Grande RH, de Lima AC, Rodrigues Filho LE and Witzel MF (2000) Clinical evaluation of an adhesive used as a fissure sealant. *Am J Dent* **13** : 167-70.
- 16) Hitt JC and Feigal RJ (1992) Use of a bonding agent to reduce sealant sensitivity to moisture contamination : an in vitro study. *Pediatr Dent* **14** : 41-6.
- 17) Feigal RJ, Hitt J and Splieth C (1993) Retaining sealant on salivary contaminated enamel. *J Am Dent Assoc* **124** : 88-97.
- 18) Feigal RJ, Musherure P, Gillespie B, Levy-Polack M, Quelhas I and Hebling J (2000) Improved sealant retention with bonding agents : a clinical study of two-bottle and single-bottle systems. *J Dent Res* **79** : 1850-6.
- 19) Borem LM and Feigal RJ (1994) Reducing microleakage of sealants under salivary contamination : digital - image analysis evaluation. *Quintessence Int* **25** : 283-9.
- 20) Hebling J and Feigal RJ (2000) Use of one-bottle adhesive as an intermediate bonding layer to reduce sealant microleakage on saliva-contaminated enamel. *Am J Dent* **13** : 187-91.
- 21) 大森郁朗 (2002) シーラントとコート材の臨床テクニック, 初版, 40-1, クインテッセンス出版, 東京.
- 22) Yoshida Y, Nagakane K, Fukuda R, Nakayama Y, Okazaki M, Shintani H, Inoue S, Tagawa Y, Suzuki K, De Munck J and Van Meerbeek B (2004) Comparative study on adhesive performance of functional monomers. *J Dent Res* **83** : 454-8.
- 23) Silverstone LM (1977) Fissure sealants. The susceptibility of dissolution of acid-etched and subsequently abraded enamel in vitro. *Caries Res* **11** : 46-51.
- 24) Hicks MJ and Silverstone LM (1982) The effect of sealant application and sealant loss on caries-like lesion formation in vitro. *Pediatr Dent* **4** : 111-4.
- 25) (社)日本化学会 (2003) 先端化学シリーズII電気化学/光化学/無機固体/環境ケミカルサイエンス, 初版, 74-83, 丸善, 東京.
- 26) (社)日本化学会 (2003) 先端化学シリーズII電気化学/光化学/無機固体/環境ケミカルサイエンス, 初版, 170-5, 丸善, 東京.
- 27) (社)日本化学会 (1983) 化学総説 No. 39無機光化学, 初版, 118-35, 学会出版センター, 東京.