

[原著] 松本歯学 31 : 241~255, 2005

**key words** : 軟質裏装材 — 付加型シリコン — 吸水性 — 変色 — 硬さ変化

## 新しい付加型シリコン系軟質裏装材の諸性質

鷹股 哲也<sup>1</sup>, 永澤 栄<sup>2</sup>, 伊藤 充雄<sup>2</sup>,  
サンドラ・パーカー<sup>3</sup>, シッド・カラチャンドラ<sup>4</sup>

<sup>1</sup>松本歯科大学 口腔診断科

<sup>2</sup>松本歯科大学 歯科理工学講座

<sup>3</sup>ロンドン大学 クイーン・メアリー・アンド・ウエストフィールド・カレッジ 生体材料

<sup>4</sup>ノースカロライナ大学歯学部 口腔全身疾患管理センター 歯周病学部門

Laboratory evaluation of novel addition silicone based soft lining materials

TETSUYA TAKAMATA<sup>1</sup>, SAKAE NAGASAWA<sup>2</sup>, MICHIO ITO<sup>2</sup>,  
SANDRA PARKER<sup>3</sup> and SID KALACHANDRA<sup>4</sup>

<sup>1</sup>*Department of Dental Diagnostic Sciences, School of Dentistry, Matsumoto Dental University*

<sup>2</sup>*Department of Dental Materials, School of Dentistry, Matsumoto Dental University*

<sup>3</sup>*Department of Biomaterials in relation to Dentistry, St. Bartholomew's and Royal London,  
School of Medicine and Dentistry, Queen Mary and Westfield College*

<sup>4</sup>*Center for Oral and Systematic Disease, Periodontics Department, University of North Carolina*

### Summary

The purposes of this study were to investigate the water uptake characteristics, color change and Shore-A hardness of new kinds of addition-silicone-based soft liners and two another commercial silicone based soft liners. Seven specimens were made using specially constructed plaster molds. Water sorption measurements were determined gravimetrically at 37°C in distilled water and were compared after 1 day and 14 days. Color changes were evaluated on specimens that were stored in testing solutions (saline, instant coffee and olive oil mix with  $\beta$ -carotene). The color was measured with a Spectrophotometer CM 1000 and hardness was evaluated using a Durometer Shore-A hardness instrument DD 2-A. These measurements were done after 1, 2, 3, 4 and 12 weeks, with the materials stored in temperature controlled water bath at 37°C. Mean values and standard deviations were calculated for each experiment and material. The water sorption was compared statistically with a Student's *t*-test for each material and compared statistically with a one-way analysis of variance and Student's *t*-test. Bartlett's test for homogeneity of variance was applied to the data for color change and hardness, and multiple comparisons using Tukey's test were performed. For the new developed addition-silicone-based soft liners, the water up-

take was quite small as the days, and color change was also quite small in three solutions. Severe color change was observed in instant coffee and olive oil mix for another two commercial soft liners. In the hardness test, there were no significant differences from 1 week to 12 weeks in each solution for the new materials. Although water uptake was limited, color changes were observed in the two commercialized materials, particularly with the instant coffee and oil mix. Among several factors responsible for color change, staining characteristics of the surrounding medium seems to be the most important factor for the observed color change. Hardness was increased in fluoride contained soft liners. The novel silicone soft liners tested in this study are available for clinical use.

## 緒 言

装着時に極めて適合の良い有床義歯でも、年月の経過と共に次第に不適合となり、維持・安定が悪くなっていろいろな障害を引き起こして来ることを日常の臨床で経験する。この不適合の主な原因は加齢に伴う義歯床下粘膜の菲薄化、歯槽骨の吸収などにより顎堤の形態が変化し、その結果、義歯床と顎堤粘膜との間に隙間が生じるものと考えられる。義歯床と顎堤粘膜とが不適合で義歯の維持・安定が損なわれている症例では新しく義歯を作り替えることが原則である。しかし実際の臨床においては、咬合関係や審美性に大きな問題のない症例では、義歯床粘膜面を新しい材料を用いて裏打ちし、形態変化した顎堤粘膜面に再適合を図る方法が有効な症例も少なくない。特に再適合と同時に顎堤粘膜の疼痛を回避する目的で軟質裏装材を用いる場合には、その適応症例を誤らなければ十分な効果が期待できると考えられる<sup>1)</sup>。しかし、従来の市販軟質裏装材は口腔内での化学的・機械的性質の安定性に欠け<sup>2-14)</sup>、長期間の使用に耐えることができなかった。そこで本稿では新しく開発製作された付加型シリコン系軟質裏装材について吸水性、変色、硬さ変化を検討し、また既に市販されている同系の軟質裏装材についても検討を加え、若干の知見を得たので報告する。

## 材料と方法

### 1. 材料

材料は新しく開発製作された付加型シリコン系軟質裏装材「エヴァタッチ・スーパーノーマル<sup>®</sup> (以下：EVA・SN : Lot No. 031211)」「エヴァタッチ・スーパースロー<sup>®</sup> (以下：EVA・SS : Lot

No. 031215)」「(ネオ製薬工業社製)、ならびに既に市販されている「リライン・ソフト<sup>®</sup> (以下：GC・RS : Lot No. 0309031)」「(ジーシー社製)」「トクヤマ・ソフリライナー (MS)<sup>®</sup> (以下：TOKU・SR・MS : Lot No. 474)」「(トクヤマデンタル社製)でいずれも付加型シリコン系軟質裏装材である。

試料は吸水試験、変色試験、硬さ変化の3項目測定用にそれぞれ作製し、変色試験と硬さ試験は同一試料を共用した。各試料の大きさは変色試験に使用する大きさに統一した。すなわち使用する純硬質ガラス製試験管(日電理硝子社製)の内径(直径18 mm)に一致するように縦・横をそれぞれ、20 mm, 18 mmとし、また臨床で実際に使用される軟質裏装材の厚さを考慮して、厚さを1.5 mmとした。厚さ約1.5 mmのパラフィンワックス板(ジーシー社製)から、7片の試料作製用パラフィンワックスを切り出し、義歯床重合用フラスクを用いて硬石膏(ニュープラストーン, W/P 0.28, ジーシー社製)にて埋没し、硬化後流蠟し、試料作製用石膏陰型を作製した。カートリッジディスプレイを用いて各材料を石膏陰型に注入し、上部フラスクを重ね合わせ油圧プレスにてプレスした後、室温(22°C ± 1°C)にて、各材料の取扱説明書を参考にEVA・SN, GC・RS, TOKU・SR・MSはそれぞれ約20分間、EVA・SSは約30分間加圧を保持しながら確実に加硫するよう心がけた。

### 2. 方法

#### 1) 吸水試験

37°C蒸留水を使用し、重量測定法により計量した。作製した7片の試料を溶液に浸漬する前の乾燥試料とするために、無水硫酸カルシウムを主成

分とした乾燥剤入りのデシケータ中に設置し保管した。24時間後、乾燥試料7片をそれぞれ電子天秤 A-200 (Denver Instrument 社製) にて重量を測定し、蒸留過程を2回繰り返して作製した蒸留水 (double distilled water) が満たされたガラス容器に浸漬した後、37°C振盪恒温槽 TAITEC Personal 10 (大洋科学工業社製) に設置した。浸漬終了後、試料表面に付着している水分を市販のティッシュペーパーにて完全に拭き取り表面乾燥飽水状態を確認した後、計量した。計量は1日後、14日後の2回行い、浸漬前乾燥試料7片の値から吸水率を次式により算出した。

$$Wt(\%) = \frac{\text{weight(saturated)} - \text{weight(dry)}}{\text{weight(dry)}} \times 100$$

2) 変色試験

浸漬溶液は生理食塩液 (日本薬局方, 大塚製薬工業社製), インスタントコーヒー液 (上島コーヒー社製), β-カロテン溶解オリーブオイル液 (β-カロテン: ナカライテスク社製, オリーブオイル: シオエ製薬社製) を使用し、混合比をインスタントコーヒー液は粉末2.0g に対して蒸留水100 ml, β-カロテン溶解オリーブオイル液は粉末0.1g に対してオリーブオイル100 ml の割合とした。7片の試料を純硬質ガラス試験管内で互いに重なり合わないよう交互に設置し、溶液面に浮き上がらないように留意した。試験管にそれぞれ

約70 ml の溶液を入れ、パラフィルム M (American National Can. Co.) にて密栓した後、37°C振盪恒温槽 TAITEC Personal 10 (大洋科学工業社製) に設置した。

色差測定には分光測色計 CM 1000 (ミノルタカメラ社製) を用い、溶液浸漬前の試料の色を初期値 (コントロール値) として、1976年 CIE 規定の L\*a\*b\* を測定し、ΔE\*ab を求めた。測定に際しては背景の色を白色とし、陶器製の測定用白色校正板 (No. 16133368, ミノルタカメラ社製) を使用した。また各溶液から取り出した試料は蒸留水にて十分洗浄し、暗室にて自然乾燥させた後、直ちに測定に供した。測定は JIS・Z・8722 拡散照明/垂直受光方式に準拠し、光源は標準光 D<sub>65</sub>, 分光感度 2°視野, 測定波長範囲は400~700 nm で行った。

測定は浸漬から1ヶ月を経過するまでは1週間ごとに、それ以降は3ヵ月後に行った。また溶液は24時間ごとに取り換え、溶液の変質による色調への影響をなくすように努めた。

3) 硬さ試験

測定は室温22°C (± 1°C), 湿度55% (± 1%) で行い、JIS K 6253に準拠し、定圧荷重器 CL-150型 (高分子計器社製) にデジタル式硬度計 DD 2-A型 (押針形状35°円錐台形, 端面直径0.79 mm, スプリング荷重56.0 g) を取り付け、演算

Table 1 : Classification of color change by National Bureau of Standards (NBS)

Week	Saline				Inst. Coffee				Olive oil + β-carotene			
	EVA/SN	EVA/SS	GC/RS	TOKU/SR	EVA/SN	EVA/SS	GC/RS	TOKU/SR	EVA/SN	EVA/SS	GC/RS	TOKU/SR
1	B	B	C	D	C	B	D	E	F	F	F	F
2	B	B	C	D	D	D	E	F	E	E	F	F
3	B	B	C	D	E	E	E	F	F	E	F	F
4	C	B	C	D	E	E	E	F	F	E	F	F
12	C	C	C	E	E	E	F	F	E	E	F	F

ΔE*ab	標語
0~0.5	きわめてわずかに異なる (A)
0.5~1.5	わずかに異なる (B)
1.5~3.0	感知しうるほど異なる (C)
3.0~6.0	著しく異なる (D)
6.0~12.0	きわめて著しく異なる (E)
12.0以上	別の色系統になる (F)

処理機能付きプリンタ DIGIMATIC MINI-PROCESSOR DP-1 DX (高分子計器社製) を接続した。測定は試料を4枚重ね、厚さ約6mmとして任意の計測点5ヶ所を、また測定時期は色差測定と同様に1ヶ月経過までは1週間ごとに、それ以降は3ヵ月後に測定した。試験は色差測定後、できるだけ速やかに行い、室内の温度、湿度に影響されないように配慮した。

3. 統計分析

統計処理は、まず分散の均等性 (homogeneity of variance) を調べるために Bartlett's Test を行い、この値がカイ2乗検定値の0.10以下であったとき、分散分析 (Analysis of variance : ANOVA) を行った。吸水試験の1日後、2週間後の比較は Student's *t*-test (有意水準  $p \leq 0.05$ ,  $p \leq 0.01$ ) を用いた。変色試験と硬さ試験の経日的変化は2元配置分散分析 (有意水準5%) を行い、各平均値間に有意差があったとき、Tukey's Test による多重比較を行った。また、吸水率と変色との関連を調べるために、得られた4材料の生理食塩液とインスタントコーヒー液 (両溶液共に水性溶液) における2週間後の  $\Delta E$  値と吸水率とから一元配置分散分析を行い、相関関係を調べた。F分布表の近似式により相関係数の有意性の検定 ( $p \leq 0.05$ ) を行った後、有意差があったとき回帰分析を行った。

結 果

吸水試験結果を Fig. 1, 変色試験結果を Fig. 2 ~ 5, 硬さ試験結果を Fig. 6 ~ 9 に示す。吸水率

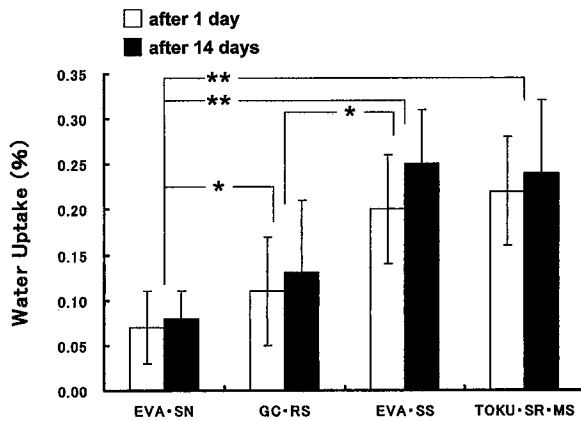


Fig.1: Comparison with water uptake (%) for four materials (\* $p \leq 0.05$ , \*\* $p \leq 0.01$ )

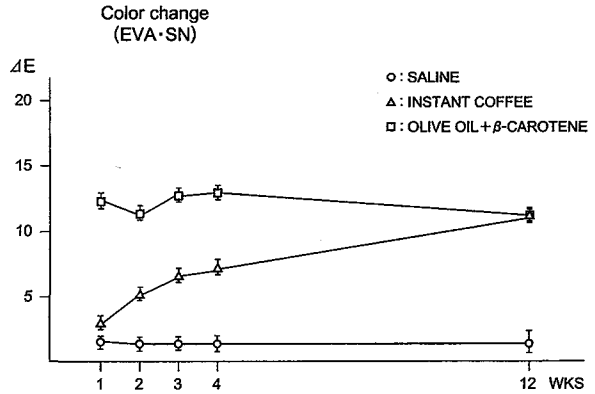


Fig.2: Color change of EVA-SN in three solutions

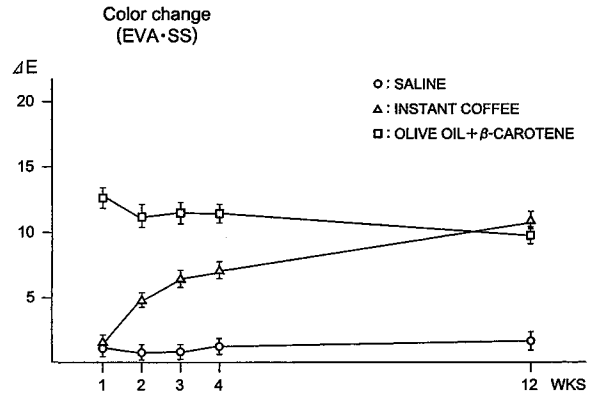


Fig.3: Color change of EVA-SS in three solutions

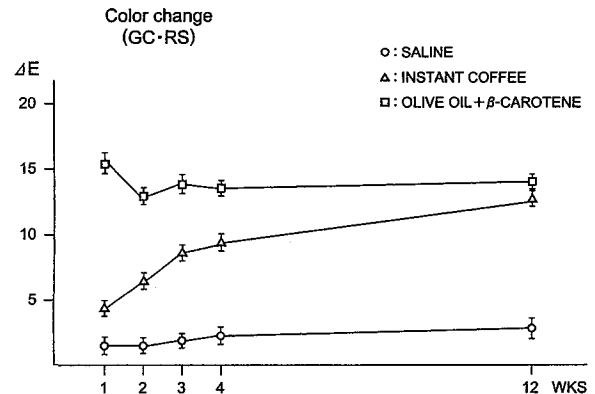


Fig.4: Color change of GC-RS in three solutions

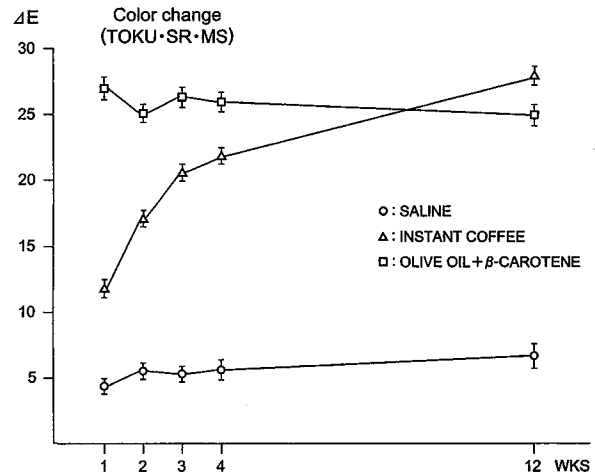


Fig.5: Color change of TOKU-SR-MS in three solutions

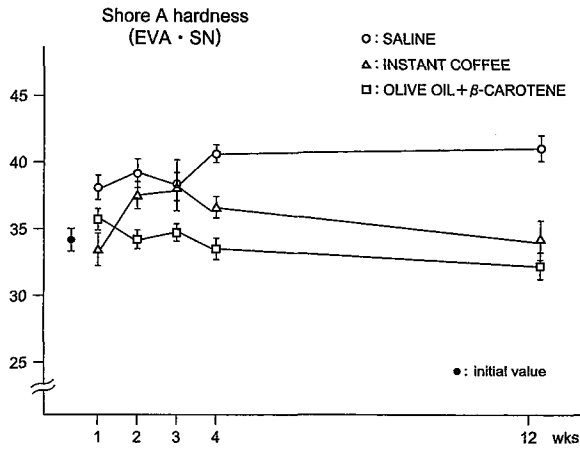


Fig. 6 : Shore-A hardness of EVA · SN in three solutions

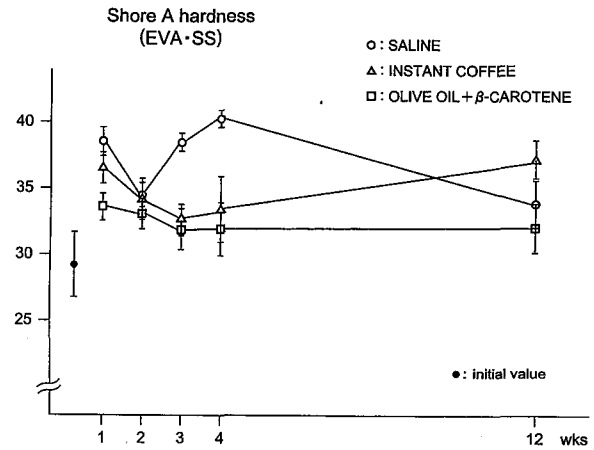


Fig. 8 : Shore-A hardness of EVA · SS in three solutions

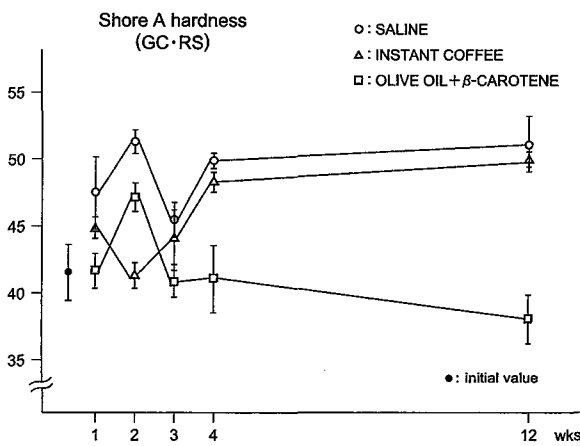


Fig. 7 : Shore-A hardness of GC · RS in three solutions

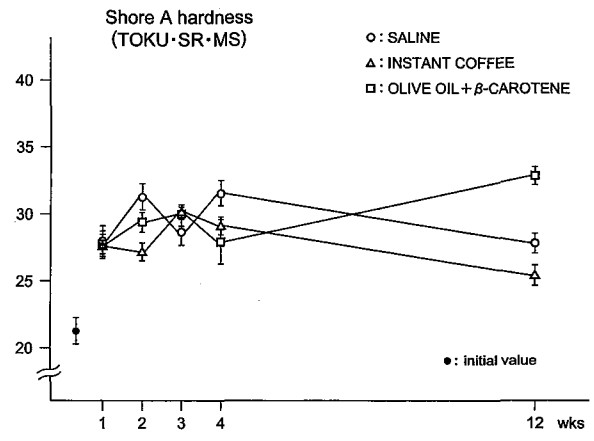


Fig. 9 : Shore-A hardness of TOKU · SR · MS in three solutions

は4材料共に1日後と14日後との差はなく ( $p \leq 0.05$ ), 4材料間では新材料である EVA · SN が1日後, 14日後共に GC · RS, EVA · SS, TOKU · SR · MS ( $p \leq 0.05$ ) とに差が見られた. 統計処理の結果, 変色試験では3溶液ともに経時的変化と材料間に差が見られ, 硬さ試験では各溶液において材料間に差が見られたため (二元配置分散分析,  $p \leq 0.05$ ), 溶液の種類別に1, 2, 3, 4, 12週間目における材料間の比較を行ったところ (Tukey's 多重比較), Table 2~Table 11

の結果を得た.

各溶液別に見ると, 生理食塩液の変色は TOKU · SR · MS 以外は変化が少なく, インスタントコーヒー液では EVA · SN, EVA · SS は差が少なかった. 特に TOKU · SR · MS は他の3材料と比較して大きな差が見られた. またオリーブオイル液では EVA · SN, EVA · SS には差は見られず, GC · RS と TOKU · SR · MS に差が見られた.

硬さ変化では各溶液共に EVA · SN, EVA ·

Table 2 : Mean and standard deviation of color change ( $\Delta E$ ) after 1 week

	Saline	Inst. Coffee	Olive oil mix
EVA/SN	1.49 ± 0.37 (a) *	3.00 ± 0.57 (a)	12.23 ± 0.40 (a)
EVA/SS	1.16 ± 0.40 (a)	1.43 ± 0.65 (b)	12.64 ± 1.37 (a)
GC/RS	1.51 ± 0.76 (a)	4.36 ± 0.40 (c)	15.31 ± 0.81 (b)
TOKU/SR/MS	4.45 ± 0.81 (b)	11.93 ± 0.77 (d)	27.19 ± 1.14 (c)

\* Multiple comparisons using Tukey's procedure. At  $p \leq 0.05$ , groups means designated by the same letter are not statistically different

**Table 3** : Mean and standard deviation of color change ( $\Delta E$ ) after 2 weeks

	Saline	Inst. Coffee	Olive oil mix
EVA/SN	1.35 $\pm$ 0.93 (a) *	5.03 $\pm$ 0.50 (a)	11.48 $\pm$ 0.33 (a)
EVA/SS	1.41 $\pm$ 0.55 (a)	4.96 $\pm$ 0.60 (a)	11.08 $\pm$ 1.03 (a)
GC/RS	1.85 $\pm$ 0.88 (a)	6.68 $\pm$ 0.58 (b)	13.27 $\pm$ 0.62 (b)
TOKU/SR/MS	5.31 $\pm$ 1.09 (b)	16.95 $\pm$ 0.34 (c)	25.01 $\pm$ 0.97 (c)

\* Multiple comparisons using Tukey's procedure. At  $p \leq 0.05$ , groups means designated by the same letter are not statistically different

**Table 4** : Mean and standard deviation of color change ( $\Delta E$ ) after 3 weeks

	Saline	Inst. Coffee	Olive oil mix
EVA/SN	1.40 $\pm$ 1.33 (a) *	6.48 $\pm$ 0.54 (a)	12.47 $\pm$ 0.54 (a)
EVA/SS	1.41 $\pm$ 0.55 (a)	6.35 $\pm$ 0.97 (a)	11.31 $\pm$ 0.82 (a)
GC/RS	2.00 $\pm$ 0.66 (a,b)	8.47 $\pm$ 0.61 (b)	13.95 $\pm$ 0.77 (a,b)
TOKU/SR/MS	5.06 $\pm$ 1.38 (c)	20.25 $\pm$ 0.48 (c)	26.33 $\pm$ 0.84 (c)

\* Multiple comparisons using Tukey's procedure. At  $p \leq 0.05$ , groups means designated by the same letter are not statistically different

**Table 5** : Mean and standard deviation of color change ( $\Delta E$ ) after 4 weeks

	Saline	Inst. Coffee	Olive oil mix
EVA/SN	1.63 $\pm$ 1.43 (a) *	7.02 $\pm$ 0.88 (a)	12.93 $\pm$ 0.47 (a)
EVA/SS	1.47 $\pm$ 0.54 (a)	7.18 $\pm$ 0.49 (a)	11.22 $\pm$ 0.72 (a)
GC/RS	2.24 $\pm$ 0.97 (a,b)	9.46 $\pm$ 0.76 (b)	13.54 $\pm$ 0.60 (a)
TOKU/SR/MS	5.51 $\pm$ 1.37 (c)	21.80 $\pm$ 0.48 (c)	25.93 $\pm$ 0.82 (b)

\* Multiple comparisons using Tukey's procedure. At  $p \leq 0.05$ , groups means designated by the same letter are not statistically different

**Table 6** : Mean and standard deviation of color change ( $\Delta E$ ) after 12 weeks

	Saline	Inst. Coffee	Olive oil mix
EVA/SN	1.58 $\pm$ 1.28 (a) *	11.16 $\pm$ 0.56 (a)	11.26 $\pm$ 0.22 (a)
EVA/SS	1.77 $\pm$ 0.66 (a)	10.86 $\pm$ 0.76 (a)	9.86 $\pm$ 0.78 (a,b)
GC/RS	2.71 $\pm$ 0.81 (a)	13.84 $\pm$ 0.54 (b)	12.73 $\pm$ 0.86 (a,b)
TOKU/SR/MS	6.13 $\pm$ 1.22 (b)	27.50 $\pm$ 0.14 (c)	24.55 $\pm$ 1.19 (c)

\* Multiple comparisons using Tukey's procedure. At  $p \leq 0.05$ , groups means designated by the same letter are not statistically different

**Table 7** : Mean and standard deviation of Shore-A hardness after 1 week

	Saline	Inst. Coffee	Olive oil mix
EVA/SN	38.08 $\pm$ 0.95 (a) *	33.68 $\pm$ 1.35 (a)	35.68 $\pm$ 1.24 (a)
EVA/SS	38.56 $\pm$ 1.12 (a)	36.52 $\pm$ 2.06 (a)	33.76 $\pm$ 4.82 (a)
GC/RS	47.68 $\pm$ 2.75 (b)	45.72 $\pm$ 0.45 (b)	41.60 $\pm$ 1.61 (b)
TOKU/SR/MS	27.08 $\pm$ 1.52 (c)	27.56 $\pm$ 1.22 (c)	28.08 $\pm$ 1.42 (c)

\* Multiple comparisons using Tukey's procedure. At  $p \leq 0.05$ , groups means designated by the same letter are not statistically different

Table 8 : Mean and standard deviation of Shore-A hardness after 2 weeks

	Saline	Inst. Coffee	Olive oil mix
EVA/SN	39.24 ± 1.63 (a)*	37.56 ± 1.08 (a)	34.16 ± 0.66 (a)
EVA/SS	34.80 ± 2.13 (a,b)	34.04 ± 1.93 (a)	32.92 ± 2.55 (a)
GC/RS	51.44 ± 1.03 (c)	41.20 ± 1.02 (b)	47.12 ± 1.43 (b)
TOKU/SR/MS	31.36 ± 0.80 (b)	27.20 ± 0.87 (c)	29.48 ± 1.40 (a)

\* Multiple comparisons using Tukey's procedure. At  $p \leq 0.05$ , groups means designated by the same letter are not statistically different

Table 9 : Mean and standard deviation of Shore-A hardness after 3 weeks

	Saline	Inst. Coffee	Olive oil mix
EVA/SN	38.16 ± 2.47 (a)*	38.20 ± 0.13 (a)	34.63 ± 0.44 (a)
EVA/SS	38.52 ± 0.55 (a)	32.68 ± 1.72 (b)	31.76 ± 1.20 (b)
GC/RS	45.48 ± 1.61 (b)	44.40 ± 2.56 (c)	40.80 ± 1.31 (c)
TOKU/SR/MS	28.80 ± 1.40 (c)	30.68 ± 0.28 (b)	30.48 ± 0.56 (b)

\* Multiple comparisons using Tukey's procedure. At  $p \leq 0.05$ , groups means designated by the same letter are not statistically different

Table 10 : Mean and standard deviation of Shore-A hardness after 4 weeks

	Saline	Inst. Coffee	Olive oil mix
EVA/SN	40.70 ± 0.50 (a)*	36.88 ± 0.95 (a)	33.44 ± 0.84 (a)
EVA/SS	40.28 ± 0.28 (a)	38.52 ± 2.50 (a)	32.00 ± 2.09 (a)
GC/RS	49.72 ± 0.53 (b)	48.32 ± 0.82 (b)	41.08 ± 2.70 (b)
TOKU/SR/MS	31.80 ± 0.90 (c)	28.92 ± 0.46 (c)	28.04 ± 1.85 (c)

\* Multiple comparisons using Tukey's procedure. At  $p \leq 0.05$ , groups means designated by the same letter are not statistically different

Table 11 : Mean and standard deviation of Shore-A hardness after 12 weeks

	Saline	Inst. Coffee	Olive oil mix
EVA/SN	40.88 ± 1.21 (a)*	34.16 ± 1.56 (a)	31.52 ± 0.87 (a)
EVA/SS	34.08 ± 2.22 (b)	37.00 ± 1.88 (a)	32.36 ± 2.00 (a)
GC/RS	51.20 ± 2.26 (c)	49.36 ± 1.52 (b)	37.96 ± 1.98 (b)
TOKU/SR/MS	27.16 ± 0.96 (d)	25.64 ± 1.10 (c)	33.20 ± 0.19 (a)

\* Multiple comparisons using Tukey's procedure. At  $p \leq 0.05$ , groups means designated by the same letter are not statistically different

SSは大きな差はなく、GC・RS、TOKU・SR・MSにはそれぞれ差が見られた。12週間後のTOKU・SR・MSはEVA・SN、EVA・SSと差がなく、その様相は様々であった。

吸水率と変色の回帰分析結果をFig. 10に示す。回帰式の係数は全て正の値となり、吸水率が高い材料は変色の程度も大きいことが分かり、因果関係が成立していることが明らかである。また

F検定における回帰式全体の検定では、有意水準5%、1%ともに帰無仮説は棄却され、回帰式が有効であることが確認できた。

#### 考 察

軟質裏装材の適応症例には、1. 顎堤の吸収が著しく、かつ粘膜が菲薄なため、咀嚼時に疼痛が生じる症例、2. 歯槽骨の吸収が不規則であった

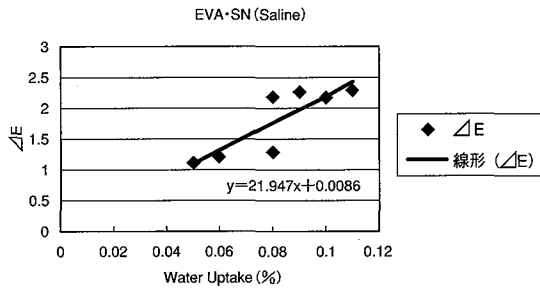
**Fig.10** : Linear regression analysis of water uptake (%) vs color change ( $\Delta E^*ab$ ) of four different addition-silicone-based soft lining materials

EVA/SN (Saline)	
回帰統計	
重相関 R	0.842571
重決定 R <sup>2</sup>	0.709926
補正 R <sup>2</sup>	0.651912
標準誤差	0.926769
観測数	7

分散分析表					
	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	1	1.2936076	1.293608	12.23700456	0.017319
残差	5	0.5285638	0.105713		
合計	6	1.8221714			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限95%	上限95%	下限95.0%	上限95.0%
切片	0.008617	0.5254429	0.0164	0.987549921	-1.34208	1.359311	-1.34208	1.359311
W.Up. (%)	21.94681	6.2738454	3.498143	0.017318804	5.819375	38.07424	5.819375	38.074242

F 境界値 5% 3.938111  
 F 境界値 1% 6.900767

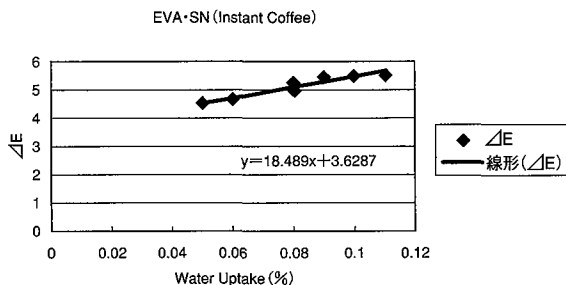


EVA/SN (Inst. Cof.)	
回帰統計	
重相関 R	0.959548
重決定 R <sup>2</sup>	0.920733
補正 R <sup>2</sup>	0.90488
標準誤差	0.495732
観測数	7

分散分析表					
	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	1	0.9181289	0.918129	58.07813882	0.000618
残差	5	0.0790426	0.015809		
合計	6	0.9971714			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限95%	上限95%	下限95.0%	上限95.0%
切片	3.628723	0.2031923	17.85857	1.01063E-05	3.106401	4.151046	3.1064009	4.1510459
W.Up. (%)	18.48936	2.4261384	7.620901	0.000618464	12.25277	24.72595	12.252774	24.725949

F 境界値 5% 3.938111  
 F 境界値 1% 6.900767





EVA/SS (Saline)

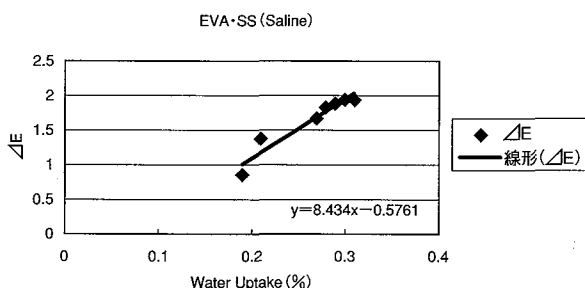
回帰統計	
重相関 R	0.963034
重決定 R <sup>2</sup>	0.927435
補正 R <sup>2</sup>	0.912923
標準誤差	0.549676
観測数	7

分散分析表

	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	1	0.9084628	0.908463	63.90416601	0.000495
残差	5	0.0710801	0.014216		
合計	6	0.9795429			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限95%	上限95%	下限95.0%	上限95.0%
切片	-0.57613	0.2824505	-2.03976	0.096898997	-1.30219	0.149932	-1.302192	0.1499322
W.Up. (%)	8.434004	1.0550408	7.994008	0.000494641	5.721936	11.14607	5.7219358	11.146073

F 境界値 5% 3.938111  
 F 境界値 1% 6.900767



EVA/SS (Inst. Cof.)

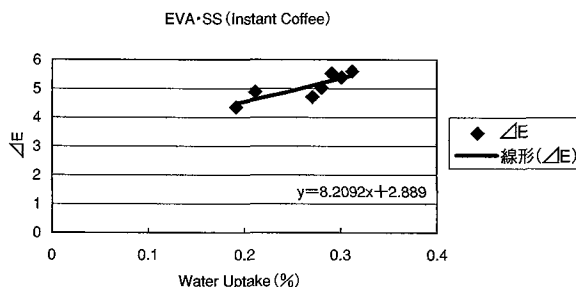
回帰統計	
重相関 R	0.847286
重決定 R <sup>2</sup>	0.717894
補正 R <sup>2</sup>	0.661473
標準誤差	0.600082
観測数	7

分散分析表

	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	1	0.8606731	0.860673	12.72384549	0.016094
残差	5	0.3382126	0.067643		
合計	6	1.1988857			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限95%	上限95%	下限95.0%	上限95.0%
切片	2.889004	0.616117	4.689052	0.005389673	1.305225	4.472784	1.3052253	4.4727837
W.Up. (%)	8.209172	2.3013898	3.56705	0.016093882	2.293262	14.12508	2.2932616	14.125083

F 境界値 5% 3.938111  
 F 境界値 1% 6.900767



GC/RS (Saline)

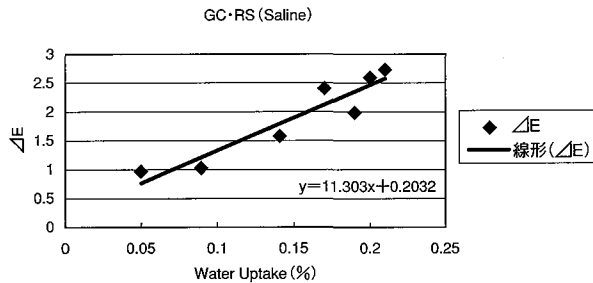
回帰統計	
重相関 R	0.9388674
重決定 R <sup>2</sup>	0.881472
補正 R <sup>2</sup>	0.8577664
標準誤差	0.8796741
観測数	7

分散分析表

	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	1	2.7849982	2.784998	37.1841223	0.001717
残差	5	0.3744875	0.074898		
合計	6	3.1594857			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限95%	上限95%	下限95.0%	上限95.0%
切片	0.2031586	0.2966515	0.684839	0.523894454	-0.55941	0.965726	-0.559408	0.9657256
W.Up. (%)	11.302752	1.8535549	6.097879	0.00171697	6.538038	16.06747	6.5380379	16.067467

F境界値 5% 3.938111  
 F境界値 1% 6.900767



GC/RS (Inst. Cof.)

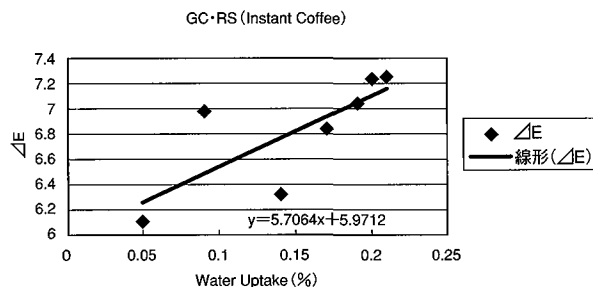
回帰統計	
重相関 R	0.7637602
重決定 R <sup>2</sup>	0.5833297
補正 R <sup>2</sup>	0.4999956
標準誤差	0.5784538
観測数	7

分散分析表

	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	1	0.7098789	0.709879	6.999895061	0.04566
残差	5	0.507064	0.101413		
合計	6	1.2169429			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限95%	上限95%	下限95.0%	上限95.0%
切片	5.9711796	0.3451908	17.2982	1.1827E-05	5.083838	6.858521	5.0838383	6.8585208
W.Up. (%)	5.706422	2.156841	2.645731	0.045660213	0.162086	11.25076	0.1620858	11.250758

F境界値 5% 3.938111  
 F境界値 1% 6.900767



TOKU/SR/MS (Saline)

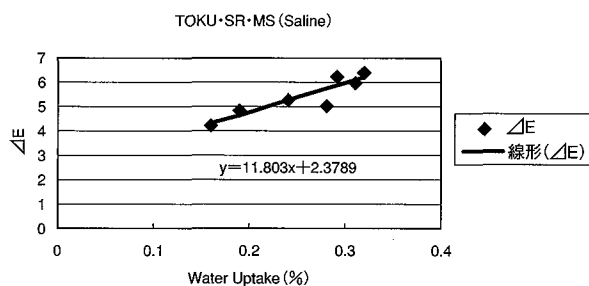
回帰統計	
重相関 R	0.8979202
重決定 R <sup>2</sup>	0.8062606
補正 R <sup>2</sup>	0.7675128
標準誤差	1.0887444
観測数	7

分散分析表

	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	1	3.1445317	3.144532	20.80786815	0.006048
残差	5	0.7556112	0.151122		
合計	6	3.9001429			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限95%	上限95%	下限95.0%	上限95.0%
切片	2.3789051	0.677785	3.509823	0.017103905	0.636603	4.121207	0.6366033	4.1212068
W.Up. (%)	11.803165	2.5875257	4.561564	0.006048267	5.151718	18.45461	5.1517181	18.454611

F境界値 5% 3.938111  
 F境界値 1% 6.900767



TOKU/SR/MS (Inst. Cof.)

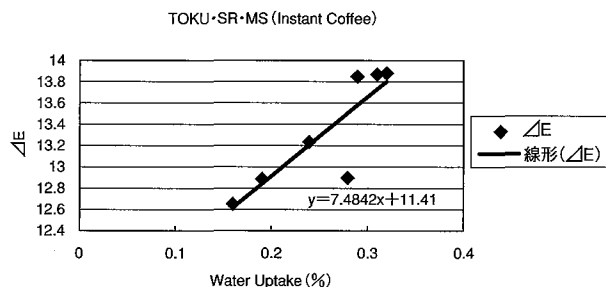
回帰統計	
重相関 R	0.853596
重決定 R <sup>2</sup>	0.728626
補正 R <sup>2</sup>	0.674351
標準誤差	0.336881
観測数	7

分散分析表

	自由度	変動	分散	観測された分散比	有意 F
回帰	1	1.2642914	1.264291	13.42477059	0.014534
残差	5	0.4708801	0.094176		
合計	6	1.7351714			

	係数	標準誤差	t	P-値	下限95%	上限95%	下限95.0%	上限95.0%
切片	11.41047	0.5350544	21.32582	4.20337E-06	10.03507	12.78588	10.035074	12.785876
W.Up. (%)	7.484177	2.0426343	3.663983	0.014534331	2.233419	12.73494	2.2334185	12.734936

F境界値 5% 3.938111  
 F境界値 1% 6.900767



り、鋭利な骨縁があり、咀嚼時に疼痛が生じる症例，3. 歯槽骨に著明なアンダーカットが存在する症例，4. 顎堤の咀嚼圧負担能が弱く、咬合圧を分散・緩衝したい症例，5. 顎補綴のオブチュレーター作製への応用などがある。しかし臨床では不適合となった義歯床の再適合を図るためのみ使用されたり，顎堤の疼痛を回避するためのみ使用されることもあり，安易に使用されている向きもある。材料によっては経日に伴う変色<sup>2~9)</sup>，表面の粗造化<sup>2)</sup>，レジン床からの剥離<sup>2)</sup>，弾力性の低下などがあり，また材料疲労のためクラックが生じ<sup>15)</sup>，細菌汚染による材料の劣化・耐久性の低下も考えられ，臨床的には問題が多いと考えられる。これまで市販されてきた軟質裏装材にはポリオレフィン系，シリコン系，フッ素樹脂系，アクリル系などがあり，これらの系に属する各材料はそれぞれにさまざまな変色傾向<sup>3,4,6,7,9,10,15,16)</sup>と物理・機械的性質を持ち<sup>8,17,18)</sup>，また多くの細菌学的な検討<sup>20~27)</sup>からも口腔内細菌による影響も指摘され，いまだに臨床的に満足する材料は見当たらない。

そこで本研究はシリコン系軟質裏装材に焦点を絞り，従来問題の多かった縮合型シリコン系軟質裏装材<sup>3)</sup>に替わる新しい付加型シリコン系軟質裏装材を開発し，吸水性，色調変化，硬さ変化について，すでに市販されている同系の数種の材料と比較し，その有用性を *in vitro* で検討した。

## 1. 実験方法

### 1) 実験材料について

材料は新しく開発された付加型シリコン系軟質裏装材 (EVA・SN) と (EVA・SS) を用い，またこの材料の持つ性質をすでに市販されている同系の軟質裏装材と対比するために2種類の材料 (GC・RS)，(TOKU・SR・MS) を用いた。これらの材料は一般臨床家に多く使用され，汎用性が高いと思われるものである。

シリコン系軟質裏装材は早くから臨床に応用され古くは1958年，Lammie and Shorter<sup>28)</sup>の報告にみることができる。耐オゾン性，耐候性，耐油性に優れているが機械的強度は弱く，研削・研磨ができないこととレジンとの接着性がないことが欠点である。吸水性についてはアクリル系に比

較して耐水性は良いものの実際は若干の吸水性はあり，ポリマーの網目が粗いことと，増粘材に含まれる不活性フィラーのためにマトリックス界面での吸水性が考えられるといわれている<sup>1)</sup>。

### 2) 浸漬溶液と浸漬期間について

浸漬溶液については生理食塩液の他に人工唾液，SALIVA OIL，ワセリン剤，オリーブオイルなど<sup>19~21)</sup>が使用されているが，本実験では無着色溶液として生理食塩液を，着色溶液としてインスタントコーヒー液とβ-カロテン溶解オリーブオイル液を用いた。この溶液を使用した理由は縮合型シリコン系軟質裏装材の変色試験の結果<sup>3)</sup>からシリコン材料の変色にきわめて大きく影響すること，また実際の食物摂取を考慮すると水溶性着色溶液と油性着色溶液との両者の影響を調査することに意義があると考えたからである。

浸漬期間は1週間<sup>29)</sup>，4週間<sup>30,31)</sup>とする報告が多いが，本実験ではできる限り長期間にわたる経日的な影響をみるために12週間（3ヶ月間）とし，溶液の温度は口腔内温度を考慮して37℃とした。しかし，実際の口腔内では摂取された飲み物あるいは食物は唾液により希釈，嚥下され，口腔内に長時間留まっているわけではなく，また温度も一定温度を保っているわけではない。したがって，溶液の濃度も温度も一定の条件を保っていることにはならず口腔内環境とはかなり異なることが懸念される。今回は基礎的実験として *in vitro* における一種の過酷試験として行った。

### 3) 測定方法について

吸水試験には通常用いられる蒸留水を再度蒸留して得られた，いわゆる“double distilled water”を用いた。この蒸留水は軟質裏装材からの溶出成分以外はいかなる不純物をも含まないことを目的として使用したものである。

色差 $\Delta E$ の測定方法には分光測色法と刺激値直読法とがあり，前者は分光測色計により，後者は光電色彩計により測定する。両者共にJIS Z 8722—物体色の測定方法—<sup>32)</sup>に準拠し，いずれの方法でも色差 $\Delta E$ を求めることができる。著者らは分光反射率の測定<sup>4,6)</sup>をも試みていることから今回は測定受光部が直径8 mmの分光測色計を用いた。色差 $\Delta E$ はL\*a\*b\*表色系による色差式で求

められ、試験片7片の平均値、最大値、最小値、標準偏差値は測色計に内蔵されているコンピュータ機能で計算され、画面表示と共にプリントアウトされる。測色時、試料の色は試料をおく背景の色に左右されるため、最も標準と思われる白色を背景色としたが、その材質が経日的に色の変化が予想されるもの、たとえば薄い紙、プラスチックなどは不適当と考え、陶器製の測定用白色校正板 (CALIBRATION PLATE, NO. 16133368, ミノルタカメラ社製) を使用した。

硬さ試験は新 JIS 規格 (JIS 6253) に従ったが、この規格は ASTM D 2240, ISO 868 などの外国諸規格にも準拠している。試料測定時、手押しで行う場合の押し付け圧力の不均一化、押し付け速度の不同などによるバラつきを防止するために定圧・定速荷重器を使用し、繰り返し測定による誤差を少なくして再現性の高い測定が行えるように工夫した。ゴム硬さ試験は本来、湿潤した環境下で行うべきだとする説がある<sup>33)</sup>。確かに口腔内における軟質裏装材の環境を考慮すると 37°C 前後の温度を保ち、湿潤した状態で測定することに意義はある。今後著者らも口腔内環境を考慮した各種測定装置を開発し、実験に寄与する予定である。

## 2. 実験結果について

吸水率は新規開発材料を含む 4 材料共に極めて少なく、1 週間後、14 週間後の比較でも有意な差は認められなかった ( $p \leq 0.05$ )。材料別の比較では、EVA・SN が最も吸水率が低く、EVA・SS, TOKU・SR・MS が最も吸水率が高かった。EVA・SN の前身である縮合型シリコーン系軟質裏装材エヴァタッチ® (ネオ製薬工業社製) の吸水量は 37°C 蒸留水中、21 日後の測定で 2.53 mg/cm<sup>2</sup> と報告され<sup>34)</sup>、EVA・SN の 14 日後の吸水率と対比しても吸水量は多く、新規開発材料である本材料はかなり改良されているように思える。付加型シリコーンは水素とビニル末端を持つ 2 種類のシリコーンポリマーが反応し新しい高分子を生成する。一方、縮合型シリコーンでは反応過程においてアルコール基等が外れて結合し、その際シラノール基と水素が反応して H<sub>2</sub> ガスを発生し、このガスが気泡としてシリコーン生成物に若干残留することによって、吸水を助長し、あるい

は寸法変化が大きくなると考えられる。

$\Delta E$  による変色の程度は、無着色溶液である生理食塩液では EVA・SN, EVA・SS, GC・RS はきわめて小さく、TOKU・SR・MS は 1 週間後から大きく変化し、14 週間後には 2~3 倍の値を示した。水溶性着色溶液であるインスタントコーヒー液、油性着色溶液である  $\beta$ -カロテン溶解オリーブオイル液では 4 材料ともに経日に伴い大きく変化し、中でも TOKU・SR・MS の 12 週間後では両液共に他材料の約 2 倍の値を示した。色差  $\Delta E$  を感覚的な色の差と対応するように考えられた NBS (National Bureau of Standards) 単位<sup>35)</sup> で 12 週間後の変化に当てはめると、Table 1 のようになる。TOKU・SR・MS が他の 3 材料に比較して大きく変化したのは、シリコーンに加えてフッ素樹脂が混合されており、加硫剤として配合されている過酸化物の影響が大きいと考えられる。

今回の新規開発材料 EVA・SN に焦点を合わせてみると、その変色の程度は市販されている縮合型シリコーン系軟質裏装材よりもはるかに少なく<sup>3)</sup>、特に 12 週間後の比較では無着色溶液である生理食塩液では  $\Delta E = 1.58 (\pm 1.28)$  (縮合型  $\Delta E = 5.2 (\pm 3.66)$ <sup>3)</sup>,  $p \leq 0.05$ , Student's *t*-test), インスタントコーヒー液では  $\Delta E = 11.16 (\pm 0.56)$  (縮合型  $\Delta E = 44.6 (\pm 0.80)$ <sup>3)</sup>,  $p \leq 0.05$ ) であった。 $\beta$ -カロテン溶解オリーブオイル液では有意な差はなく、今回の変色に関する調査では油性溶液では付加型、縮合型に大きな変化はみられなかった。

変色の程度は吸水性と関連すると思われることから<sup>35)</sup>、回帰分析により回帰式を求めてその因果関係を調べた (Fig. 10)。回帰分析を用いた理由は相関が強い、弱いだけでは 2 変数の原因と結果を明確に表しているとは言えず、さらに考察を進めて「吸水量が多い」という原因で「変色の程度は大きい」という結果の因果関係を明確にしたからである。回帰分析の結果、実験に供した 4 材料全てに吸水量が多ければ変色の程度も大きいという共通した現象が観察された。このように吸水性と変色の程度とは深い因果関係にあるが、軟質裏装材のように多孔質でスポンジ様材料では止むを得ない性質であろうと考える。

硬さの変化に関しては、縮合型シリコーン系軟

質裏装材ではインスタントコーヒー液の酸性度に影響されていたが<sup>36)</sup>、新規開発材料である EVA・SN, EVA・SS はその影響は少なく, GC・RS のみが硬くなる傾向を示した (Fig. 8)。一般にシリコンゴムは強酸, 強アルカリに対してはポリマーの解重合を起こして分解する傾向にあるといわれ<sup>36)</sup>、5%酢酸では硬さ変化はむしろプラスに現れ<sup>37)</sup>、硬くなる傾向にあり、酸の種類, 酸性度によってその様相は異なるものと考えられた。オリーブオイル液では、油性成分の化学反応、特に酸化が懸念され、一般にゴム・エラストマー材料では外観の変化とともに、寸法変化, 重量変化, 物理的性質の低下, 機械的性質の低下などが生じるといわれている<sup>38)</sup>。本実験結果から油性成分による硬さ変化を見ると経日に伴う差は EVA・SN, EVA・SS は少なく, TOKU・SR・MS が大きく観察された。TOKU・SR・MS にはフッ化物が含有され, 加硫剤としての過酸化物が硬さに影響を与えているものと考えられる。

以上, 新規開発材料である EVA・SN, EVA・SS は他の市販付加型シリコン系軟質裏装材よりも吸水性は少なく, 色調の安定性があり, また経日に伴う硬さ変化も少ないことが分かり, 臨床に十分適応できるものと考えられる。

### 結 論

新しく開発した付加型シリコン系軟質裏装材について, 吸水性, 色調変化, 硬さ変化を検討したところ以下の結論を得た。

1. EVA・SN の吸水量は極めて少なく, 2週間後の吸水量では GC・RS の1.6分の1, TOKU・SR・MS の3分の1であった。
2. EVA・SN, EVA・SS ともに変色の程度は少なく, インスタントコーヒー液では若干の変色は認められたものの, GC・RS, TOKU・SR・MS に比べ, その程度はきわめて少なかった。
3. 3溶液における硬さ変化は EVA・SN, EVA・SS には大きな変化は見られず, GC・RS がインスタントコーヒー液でやや硬くなる傾向にあり, TOKU・SR・MS はβ-カロテン溶解オリーブ溶液で硬くなる傾向が見られた。

### 謝 辞

本研究を遂行するにあたり, 材料の提供, ご助言をいただいたネオ製薬工業株式会社, 木瀬俊彦氏に深甚なる感謝の意を表します。

本論文の要旨は2004年第112回日本補綴歯科学会学術大会 (神奈川), 2004年 Academy of Dental Materials (Geneva), 2005年第83回国際歯科研究学会 (IADR) (Baltimore) にてそれぞれ発表した。

### 文 献

- 1) 平澤 忠, 平林 茂 (1987) 市販各種リベース材料の現況とその材料学的な整理として, *Quintessence Dent Technol* **27**: 53-66.
- 2) 鷹股哲也, 倉澤郁文, 舛田篤之, 井上義久 (1992) 軟質裏装材の術後経過観察-ポリオレフィン系軟質裏装材について-, *松本歯学* **18**: 64-70.
- 3) 鷹股哲也, 落合公昭, 倉澤郁文, 舛田篤之, 杉藤庄平, 井上義久 (1991) 最近の軟質裏装材3種類の変色について. *補綴誌* **35**: 542-55.
- 4) 鷹股哲也, 倉澤郁文, 落合公昭, 各務篤彦, 井上義久 (1992) 最近の軟質裏装材の3種類の変色について 第2報 分光反射率特性による経日的変化. *補綴誌* **36**: 7-14.
- 5) Shortwell, J.L., Razzoog, M.E. and Koran, A. (1993) Stain resistance of aged soft denture liners. *J Dent Res. Special Issue* **72**: 128.
- 6) 鷹股哲也, 黒岩昭弘, 落合公昭, 各務篤彦, 湯本光希子 (1993) 光重合型軟質裏装材の変色について. *補綴誌* **37**: 308-17.
- 7) Takamata, T., Kuroiwa, A., Kurasawa, I and Setcos, J.C. (1994) Color change of five resilient lining materials for denture base. *J Dent Res. Special Issue* **73**: 122.
- 8) 落合公昭, 鷹股哲也 (1994) 市販軟質裏装材の物理・機械的性質に関する基礎的検討-初期物性について-, *補綴誌* **38**: 383-90.
- 9) Takamata, T., Parker, S. and Kalachandra, S. (1995) Color change and degradation of a condensation RTV silicone soft liner. *J Dent Res. Special Issue* **74**: 484.
- 10) Kalachandra, S., Minton, R.J., Takamata, T. and Taylor, D.F. (1994) Characterization of commercial soft liners by dynamic mechanical analysis. *J Dent Res. Special Issue* **73**: 275.
- 11) 廣瀬秀晴, 井上豊仁, 山中信幸, 林 純子, 大木

- 裕玄, 西山 實 (1999) 新規シリコンラバー系軟質裏装材デンチャーライニングと各種床用材料の接着強さ. 補綴誌 **43**: 335-43.
- 12) 河野文昭, 松本直之, 市川哲雄 (2001) 軟質裏装材の粘弾性. 四国歯誌 **13**: 231-40.
- 13) 服部克彦 (2002) シリコン系軟質裏装材ライニング面の表面粗さに関する検討. 補綴誌 **46**: 738-47.
- 14) McCabe, J.F., Carrick, T.E. and Kamohara H. (2002) Adhesive bond strength and compliance for denture soft lining materials. *Biomaterials* **23**: 1347-52.
- 15) 早川 巖 (1991) 軟質裏装材の適応と材料の特性. 東京都歯科医師会誌 **39**: 13-20.
- 16) 井上義久, 鷹股哲也, 橋本京一, 荒川仁志, 舛田篤之, 栗田和弘, 田村利政, 百瀬義信 (1991) 新しいフッ素樹脂系軟質裏装材「NOVUS」の臨床. 松本歯学 **17**: 93-100.
- 17) 日高里史 (1981) 軟質裏装材の物性に関する研究. 九州歯会誌 **34**: 678-95.
- 18) Dootz, E.R., Koran, A. and Craig, R.G. Comparison of the physical properties of 11 soft denture liners. (1992) *J Prosthet Dent* **67**: 707-12.
- 19) Gruber, R.G., Lucatorto, F.M. and Eugene, J. M. (1966) Fungus growth on tissue conditioners and soft liners. *J Am Dent. Assoc* **73**: 641-3.
- 20) Baker, C.R. (1967) Occlusal reactive prosthodontics. *J Prosthet Dent* **17**: 566-9.
- 21) Williamson, J.J. (1968) The effect of denture lining materials on the growth of *Candida albicans*. *Br Dent J* **125**: 106-10.
- 22) Frish, J., Levin, M.P. and Surindar, N.B. (1969) Clinical study on fungal growth on tissue conditioners. *J Am Dent Assoc* **76**: 591-2.
- 23) 笠原克彦, 佐藤重臣, 野本種邦 (1970) 弾性印象材 Silastic 390 Soft Liner 使用中に発生した White nodule とその対策について (会). 補綴誌 **14**: 215-6.
- 24) Roger, P.M., Charles, T.D. and William, R.L. (1975) The preventions on growth of *Candida* on Silastic 390 Soft Liner for denture. *J Prosthet Dent* **33**: 250-7.
- 25) Thomas, C.J. and Nutt, G.M. (1978) The in vitro fungicidal properties of Viscogel, alone and combined with nystatin and amphotericin B. *J Oral Rehabil* **5**: 167-72.
- 26) Nikawa, H., Jin, C. and Hamada, T. (2001) *Candida albicans* growth on the thermal cycled materials for maxillofacial prostheses *in vitro*. *J Oral Rehabil* **28**: 755-65.
- 27) 石本崇子 (2004) シリコン系軟質裏装材に対する *Candida albicans* の付着に関する研究. 補綴誌 **48**: 91-103.
- 28) Lammie, G.A. and Shorter, R. (1958) A preliminary report on residual denture plastics. *J Prosthet Dent* **8**: 411-24.
- 29) 柳沢治之, 石渡寿夫, 戸田雅也, 赤松俊也, 佐野晴男, 大山喬史 (1988) 軟質プラスチックの顎顔面補綴応用に関する研究. 顎顔面補綴 **11**: 19-20.
- 30) 福井敬和 (1981) コンポジットレジンの色調に関する研究. 日歯保誌 **24**: 381-402.
- 31) 植田耕一郎, 武田友孝, 一和多寿樹, 小林 公, 中村隆之, 森田栄一, 後藤ひろみ, 宇美隆生, 佐藤吉則, 大木一三 (1985) 義歯床の着色に関する研究 第1報 表面粗さおよび嗜好品が及ぼす影響について. 補綴誌 **29**: 85-93.
- 32) 日本規格協会編 (1982) JIS ハンドブック, 色彩. 231-44. 日本規格協会, 東京.
- 33) Kalachandra, S., Minton, R.J., Takamata, T. and Taylor, D.F. (1995) Characterization of commercial soft liners by dynamic mechanical analysis. *J Mater Sci Mater Med* **6**: 218-22.
- 34) ネオ製薬工業研究所編 (1990) エヴァタッチセット, 物理試験データ. 1-30.
- 35) 鷹股哲也, 野村寿男, 内田昌治, 永沢 栄, 矢島芳明, 伊藤正明 (1995) 重縮合型シリコン系軟質裏装材の変色と物理的性質の変化について. 補綴誌 **39**: 388-95.
- 36) 伊藤邦男 (1990) シリコンハンドブック, 第1版, 297-311. 日刊工業新聞社, 東京.
- 37) Swanson, J.W. and Lebeau, J.E. (1974) The effect of implantation on the physical properties of silicone rubber. *J Biomed Mater Res* **6**: 193-9.
- 38) 秋葉光雄 (2003) 熱可塑性エラストマーのすべて, 第1版, 311, 工業調査会, 東京.