

機能性修復材

鳥居 光男

鹿児島大学大学院医歯学総合研究科歯科保存学分野

Functional Restorative Materials

TORII Mitsuo

Department of Restorative Dentistry and Endodontology
Kagoshima University
Graduate School of Medical and Dental Sciences

ABSTRACT

The restorative materials have been developed on the basis of the idea that they should be tough and stable. They must bear the bite pressure and oral environment. We have tried to realize it by making restorative materials tough and inert. Fundamentally, restorative materials are not influenced by and do not work upon surrounding environment.

On the other hand, researchers have tried to give some functions to restorative materials for example antibacterial activity. They tried to reconcile material's stability and functional activity by using various methods.

This article reviewed trials to give several functions to restorative materials.

Key words: restorative materials, antibacterial activity, antiplaque activity, whitening activity

I はじめに

保存修復学は「歯の硬組織の疾患および異常による実質欠損の人工材料による修復法を考究することにより歯の形態、機能、審美性の回復を図り、さらにそれにより歯質、歯髄、歯周組織疾患の継発を防止し、全身の健康増進に寄与する学問」と定義されている。従って保存修復に使用される人工材料（修復材）は、歯の硬組織実質つまりエナメル質や象牙質の代替材料として咬合力や、口腔環境に耐えるため強靱な機械的強度と、物理的ならびに化学的な安定性を求められる。これらの要求を満たすために修復材料は強靱で inert、外部からの影響を受けない代わり、外部に対しても働きかけをせずじっとその場に居続けることを目標に開発が進められてきた。

しかし、旧来の修復材料に外部に対して何らかの働

きかけをするものがなかったかというところでもない。代表的なものとして古くに使われていたケイ酸セメントが挙げられる。本セメントは粉末にフッ化物を含有しており、充填後セメント硬化物から溶出したフッ化物が歯質に取り込まれることにより歯質が強化され、抗う蝕性が高まることが知られている¹⁾。また、ケイ酸セメントの改良型ともいえるグラスイオノマーセメントでも同様の機序で歯質強化作用があることが知られている^{2,3)}。しかし、このフッ化物は歯質強化を狙って加えられたものではなく、これらのセメントの粉末が基本的にガラス質であり、製造時に材料を加熱融解する際にフラックスとして加えられる氷晶石 (Na_3AlF_6) や蛍石 (CaF_2) に由来するものである。従って意図的に歯質強化機能を付与したのではない。

意図的に修復材に機能性を付与するために添加さ

れ、成功を取めたものとしては、HY剤（タンニン・フッ化物合剤）が挙げられる⁴⁾。本剤は大阪大学の山賀らによって開発されたもので、日本古来の“お歯黒”を施した歯にはう蝕がすくないところから着想された⁵⁾。タンニンは獣皮のなめし加工にも用いられ、生皮タンパク質のコラーゲン分子に橋かけ結合をおこし革に変える。このようなタンニンとフッ化物を合剤で使い、歯の有機質と無機質の両方を強化しようとした。本材を配合したセメントを充填すると周囲歯質の無機質は耐酸性が上昇し、象牙質コラーゲンはコラゲナーゼに対する抵抗性が上昇する⁶⁾。細菌に対しては抗菌作用を発揮する⁷⁾。HY剤は株式会社松風が製造販売する充填用ハイボンド グラスアイオノマーセメントをはじめハイボンドシリーズとして合着用グラスアイオノマーセメント、カルボキシレートセメント、リン酸セメント、ユージオールセメント、テンポラリーセメント、ライナー等多くのセメント類に添加され広く使われている。HY剤の作用にはエビデンスがあり、日本歯科保存学会編の「う蝕治療ガイドライン」⁸⁾においても、暫間的間接覆髄法（深在性う蝕を有するが歯髄が健康あるいは可逆性歯髄炎と判断され、軟化象牙質を完全除去すると露髄の可能性がある場合、意図的に軟化象牙質を一部残して覆髄し再石灰化や修復象牙質の生成を促したのちに完全除去する）に使用する覆髄材として水酸化カルシウム製剤とならんでタンニン・フッ化物合剤配合カルボキシレートセメントがう蝕関連細菌を減少させ、う蝕象牙質を硬化させるとして推奨されている。

II レジン系材料への機能性の付与の意義

コンポジットレジンはその機械的強度と歯質接着性の改良により非常に優れた修復材料となり、前歯部・臼歯部を問わずまた、部位も含め適用範囲が広がり、今日では保存修復に使用される材料の大部分を占めるまでになっている。しかし、歯質接着性の向上とともに二次う蝕の頻度は減少してきてはいるが、まだ完全ではなく接着性も永久的なものではないので、いずれは次第に破壊されると思われる。二次う蝕は、修復物と窩壁の間に生じる微少漏洩（マイクロリーケージ）にう蝕原性菌が侵入して生じる。したがって、いずれは生じるであろうマイクロリーケージに備え、あらかじめ抗菌剤を配置しておくことは二次う蝕抑制の観点から意義あることと考えられる。

さらに、健全な歯面と修復物上の細菌の付着量を比較した研究によると、咬合面を除いて健全歯面より修

復物上の方が細菌の量が多いことが報告されている⁹⁾。これは、ある意味当然といえる。言うまでもなく、う蝕は感染症であり特に平滑面う蝕の発症には細菌の定着およびプラークの蓄積が必要である。したがって、平滑面う蝕のある場所はもともとプラークの蓄積しやすい部位といえる。そのため、修復後も細菌付着が多くなると考えられる。しかし、修復材料間で比較すると、他の材料よりコンポジットレジンの方が多くの細菌が付着している^{10,11)}。これは、マトリックスレジンから溶出する未重合モノマーが、ミュータンス連鎖球菌が産生するグルカン合成酵素（グルコシルトランスフェラーゼ）の活性を増強することが一因と考えられている¹²⁾。表面にプラークが蓄積することは、コンポジットレジン自体の劣化を引き起こすのみならず、二次う蝕の原因ともなりうる。

以上のことから、コンポジットレジンに抗菌性や抗プラーク性の機能を付与することは有効な二次う蝕予防措置となりうると思われる。

また、う蝕が歯面に定着した細菌の産生する酸による脱灰が原因というところから、歯面やコンポジットレジン修復物の表面を抗菌性レジンでコーティングし、細菌の定着と酸の歯質への拡散を防止することは、う蝕ならびに二次う蝕の防止の観点から有効な手段であると考えられる。

III 抗菌剤添加による抗菌性付与

修復材料に抗菌性を付与することにより修復物表面へのプラークの付着を抑制するというアイデアは以前よりあり、多くの試みがなされている¹³⁻¹⁹⁾。特にコンポジットレジンに関してはクロールヘキシジンを用いた研究が多く報告されている。しかし、これらの研究はすべて単に薬剤をコンポジットレジンに練り込んだだけの物で、修復物から周囲に溶出して来る薬剤によって抗菌性が発揮される。従って、当初は強い抗菌性を示すが、徐々に抗菌性は低下し薬剤の溶出が止まると当然抗菌性もなくなる。しかも、薬剤の抜けた後はvoidとなり水などが浸入し、物性の低下を来し変色の原因ともなる。さらに、溶出した薬剤はプラーク細菌叢のみならず周囲の口腔細菌叢ひいては他部の消化管細菌叢にまで影響をおよぼす可能性がある。このような薬剤溶出型の欠点を克服した抗菌性の付与を考えた場合、薬剤非溶出型あるいは薬剤溶出型でも薬剤が一方向的に溶出するのではなく、必要な時にのみ薬剤が溶出し、しかもできれば抗菌剤をリチャージできるような新たなドラッグデリバリーシステムを構築する

必要がある。

IV グルカン分解酵素固定化による抗プラーク性の付与

主要なう蝕原性菌であるミュータンスレンサ球菌は、グルカン合成酵素を産生し食餌中のスクロースより非水溶性・粘着性のグルカンを合成し、それにより歯面に定着してプラークを形成する。この性質が同球菌のう蝕原性因子のひとつとされている²⁰⁾。このグルカン合成を阻害あるいは産生されたグルカンを分解すれば、プラーク形成が阻害されると考えられ、グルカン分解酵素を配合した歯磨材が市販されている。また、ベースレジンにグルカン分解酵素を固定化して抗プラーク性を付与することが報告されている。

安永らは、Bis-GMA-TEGDMA系ベースレジンに重合可能でカルボキシル基を持つ化合物としてメタクリル酸を加えて重合硬化物を作成し、縮合試薬であるN-エチル-5-フェニルイソキサゾリウム-3'-スルホナート(ウッドワード試薬K)でカルボキシル基を活性化した後、デキストラナーゼを加え、レジンのカルボキシル基とデキストラナーゼのアミノ基とをペプチド結合させることにより固定化した。このデキストラナーゼ固定化レジンの表面では*S. mutans*のグルコシルトランスフェラーゼによるグルカン合成が70%阻害され、また人工プラークの付着も抑制された。メタクリル酸添加レジンを微粉砕しデキストラナーゼを固定化した物をフィラーとして用いることにより、コンポジットレジンに抗プラーク性を付与できると考えられる²¹⁾。

V 非溶出型抗菌性の付与

充填用コンポジットレジンのシステムは、コンポジットレジン本体の他に、歯質接着性に欠かすことのできない歯面処理材(セルフエッチングプライマー、ボンディングレジン等)で構成されている。前述のようにレジン硬化後に溶出してくる未重合モノマーには、グルカン合成の促進作用があるが、その他の酸性の強いエッチング材や重合触媒として含まれる3級アミン等抗菌性を有する成分が含まれている²²⁾。しかし、それらの抗菌性は重合が完了すると消失する。また、操作の上からも未重合状態で歯面に接する時間はせいぜい1分前後である。従って、重合後も抗菌性を保持させるには、積極的な抗菌剤の配合が必要となる。しかも、前述のように単に抗菌剤を添加するのではなく非溶出型にするデザインが必須になる。

今里らはレジンに非溶出型の抗菌性を実現させる方

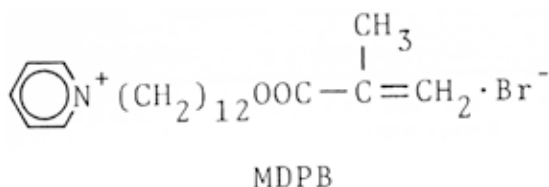


図1 抗菌性モノマー 12-methacryloyloxy-dodecylpyridinium bromide (MDPB)の構造式

策として、抗菌剤にベースレジンと同様の重合性基(メタクリル基)を導入することにより重合性を持った抗菌剤(抗菌性モノマー)を作成した。これにより抗菌剤がベースレジンに共有結合し、それにより非溶出すなわち接触型の抗菌性レジンを得ることができた。12-methacryloyloxy-dodecylpyridinium bromide (MDPB)が得られた抗菌性モノマーで(図1)、MDPBは単独でミュータンス連鎖球菌に対し高い抗菌性を発揮した。MDPBをフィラーとしてシラン処理した石英粉末を83w/w%含む試作Bis-GMA-TEGDMA系光重合レジンに添加して重合すると、98%以上の高率でベースレジンに化学結合し、蒸留水やn-heptane、エタノール等に長期間浸漬してもほとんど溶出してこなかった。しかも、長期間浸漬後も表面における接触型の抗菌性は保持されていた^{23,24)}。また、MDPBを添加してもベースレジンの重合には影響がなかった²⁵⁾。

MDPBについては、さらに広範な研究がなされており、例えばMDPBの殺菌作用が迅速に効果を発揮するうえ、組織為害性がないこと^{26,27)}。また、MDPB配合ボンディング材がヒトの脱灰根面象牙質に浸透して行くこと²⁸⁾。MDPBをプライマーに配合すると*in vivo*において、象牙質内に残存する細菌に対して抗菌効果を発揮することなどが証明されている²⁹⁾。

このようにMDPBの配合によりレジン系材料に非溶出型の抗菌性を付与できることが明らかになったが、コンポジットレジンシステムのどの部分にMDPBを配合することが最も効果的であるかを考えると、表面はともかくコンポジットレジン充填物の内部に非溶出型の抗菌性を与える意義はあまりないと考えられる。また現在、う蝕の修復に際して除去すべき軟化象牙質は細菌感染が生じている部分のみで良いということになっている。それを臨床的に鑑別する方法としてう蝕検知液の使用が推奨されている⁸⁾。しかし、う蝕検知液は細菌そのものを染色するわけではなく、マクロには鑑別できるがミクロな象牙細管ごとの検知はで

きない。したがって検知液を使用しても完全に細菌が除去できているかは保証の限りでない。これらのことを考え合わせると、コンポジットレジン本体よりも、接着のための歯面処理システム（セルフエッチングプライマー、ボンディング材）に組み込むことが最も効果的と考えられる。それによりエッチングの進行と同時に象牙質へ侵入し、取り残されているかもしれない細菌を殺菌することができる。さらに抗菌性ボンディング材を用いることにより二次う蝕の発生で最初の細菌侵入路になるコンポジットレジンと歯質の界面に抗菌剤を配置しておくことができる。これによりいずれは生じるであろうマイクロリーケージに起因する二次う蝕の発生を遅らせ、修復物の寿命の延長に寄与できると考えられる。この考えに基づきクラレメディカル（株）よりセルフエッチングプライマーにMDPBを配合した歯科用象牙質接着材“クリアフィル メガボンFA”が製造販売されている。将来的にはレジンセメントへの配合も有効なのではないかと考えられている。

この項ではレジン系材料に非溶出型の抗菌性を付与することについて述べてきたが、コンポジットレジンはその成分として85w/w%前後と大量のフィラーを含み表面積ではフィラーの占める部分の方が大きい。したがって、ベースレジンだけではなくフィラーにも抗菌性を付与する意義は大きい。たとえば、MDPBを利用した例としていわゆる有機質フィラー（ベースレジンに高密度で無機質フィラーを充填・硬化させた物を微粉碎しコンポジットレジンのフィラーとして用いる）を作成するベースレジンにMDPBを配合して非溶出の抗菌性フィラーを作成することが報告されている³⁰⁾。

MDPB以外にもフィラーに非溶出の抗菌性を付与する試みが報告されている。銀を用いるもので、銀を保持したリン酸ジルコニウム³¹⁾あるいはシリカゲル³²⁾をフィラーとして用いると充填物表面で銀の触媒作用で周囲の酸素が活性化され、それにより殺菌効果が生じるとされている。この作用は銀イオンの溶出によるものではなく、銀は非溶出のまま表面で触媒作用を発揮することから、非溶出型の抗菌性付与と考えられる。

VI 溶出型抗菌性の付与

これまでレジンあるいはフィラーに非溶出型の抗菌性を付与することを中心に述べてきた。非溶出型は抗菌効果や物性の低下を抑え、充填物としての永続性を

表1 試作溶出型抗菌性レジンの組成 (w/w %)

メタクリル酸	8.6
トリエチレングリコールジメタクリレート (TEGDMA)	85.5
塩化セチルピジニウム (CPC)	1.7
エタノール	1.7
メタクリル酸-2-ジメチルアミノエチル	1.5
カンファーキノン	1.0

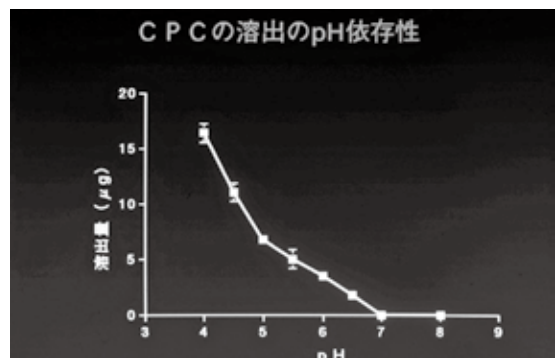


図2 試作溶出型抗菌性レジンからのCPC溶出のpH依存性

保つことには大きく寄与する。しかし、非溶出型はすなわち接触型であり、その抗菌効果は表面あるいはごく近傍に限られる。また、MDPBは重合性であり、レジン全体の重合を考えた場合、配合量には限度がある。従って、抗菌性の強度や有効範囲を考慮した場合、溶出型の方が勝っている場合も多いと考えられる。もし、溶出型における効果の永続性の点を解決できれば溶出型も利用できる³³⁾。

江原らは³⁴⁻³⁶⁾、溶出型ではあるが抗菌剤が一方向的に溶出するのではなく、必要な時にのみ抗菌剤が溶出し、しかも抗菌剤をリチャージすることが可能な新しいドラッグデリバリーシステムを考案した。すなわち、レジンにイオン交換性基を導入し、イオン性抗菌剤を保持させたのである。表1にその組成を示す。ベースレジンとしてTEGDMAを用い、それに重合可能でカルボキシル基を持つメタクリル酸を加えた。さらに陽イオン性抗菌剤として塩化セチルピジニウム(CPC)を加え光重合化している。この材料を光硬化させたものは、図2に示すように中性ないしアルカリ性の溶液に浸漬してもCPCを溶出しないが、酸性の溶液に浸漬するとpHの低下に従ってより多くのCPCを溶出してくる。さらに、中性溶液でも塩化ナトリウムを添加して溶液のイオン強度を上げると、上昇に従ってより多くのCPCが溶出されることから、CPC

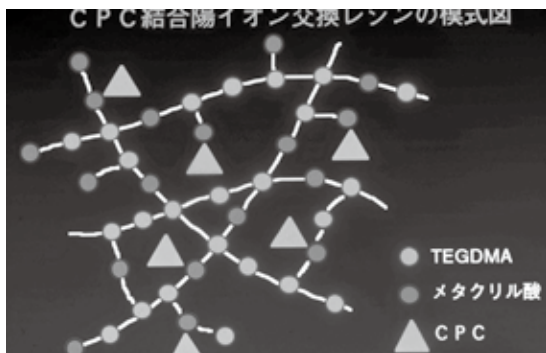


図3 硬化した試作溶出型抗菌性レジンの模式図

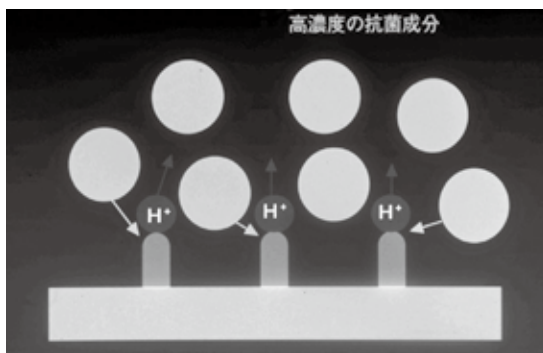


図4-3 試作溶出型抗菌性レジンのCPC 溶出・再吸着の機構
抗菌剤が遊離して減少しても、高濃度の抗菌剤で処理すると、酸と抗菌剤が交換する。

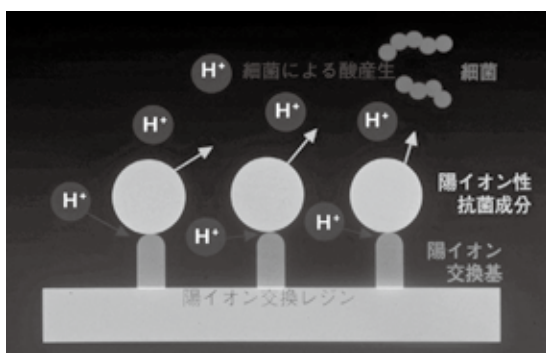


図4-1 試作溶出型抗菌性レジンCPC 溶出・再吸着の機構
ベースレジンに重合した陽イオン交換基に、陽イオン性抗菌剤がイオン結合で保持されている。そこに細菌が来て酸産生する。

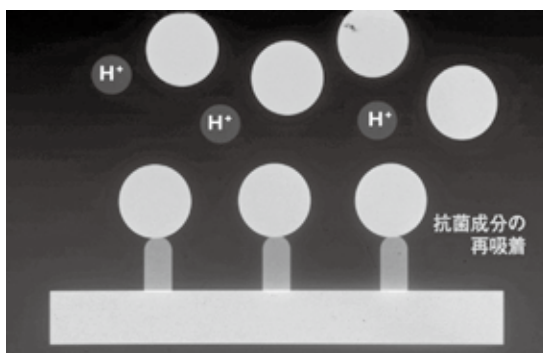


図4-4 試作溶出型抗菌性レジンCPC 溶出・再吸着の機構
抗菌性を回復。

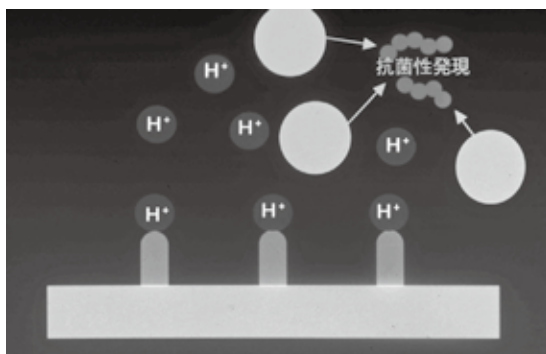


図4-2 試作溶出型抗菌性レジンCPC 溶出・再吸着の機構
陽イオン性抗菌剤が産生された酸と交換して遊離し抗菌作用を発揮する。

がイオン結合で保持されていることが明らかになった。本レジン表面で *S. mutans* を培養しても全く増殖は観察されず、人工プラークの付着もほとんど観察されなかった。また、CPCを添加していないコントロールレジンの中性のCPC溶液に浸漬するとCPCを保持するようになった。

本レジン硬化物の模式図を図3にしめすが、2官能性であるTEGDMAが3次元網目構造で硬化している所々にメタクリル酸が共重合し、そのカルボキシル基が陽イオン交換基として働きCPCをイオン結合で保持している。そこに細菌が接近し酸産生をおこさう(図4-1)。周囲のpHが6.5以下になると保持されていたCPCが水素イオンと交換し溶出して抗菌効果を発揮する(図4-2)。この抗菌剤の溶出は細菌からの酸産生が停止し周囲の環境が中性にもどると、停止する。抗菌剤が溶出しても、高濃度のCPC溶液を作用させ

るとCPCがイオン結合で保持されていた水素イオンと交換し(図4-3), 抗菌効果が回復する(図4-4)。歯質の脱灰における臨界pHは, エナメル質で5.5~5.7, 象牙質で5.7~6.2とされているため, 細菌の酸産生によってプラーク内のpHが臨界pHにまで低下するまでにCPCの溶出が始まり, 抗菌作用が発揮されると考えられる。

この溶出型抗菌性レジン, 塗布剤の形で歯面特に露出根面などのう蝕抑制あるいはデンチャープラークの抑制。即時重合レジンで作成され長期間用いられる歯周治療用装置やプロビジョナルレストレーションのプラーク蓄積の抑制などの用途が期待される。

Ⅶ 漂白作用を備えた変色歯表面塗布材

歯の変色を改善する方法として, 従来からベニア修復や全部被覆冠による補綴処置などが行われているが, MI (Minimal Intervention) の考え³⁷⁾が浸透してきて, 歯質を削らずに歯の変色を改善する方法として歯の漂白法が多く用いられている³⁸⁾。その他, 迅速に変色歯の審美性を回復する方法として歯の色を持ったコーティングレジン, 変色をマスクするいわゆる歯のマニキュア法がある。本法は, 非常に容易かつ即時に審美性を回復することができるが, その耐久性は低く, おおむね数週間程度である。しかも, 単にコーティングしたものであるため, 脱落すると元の変色歯のままである。そこで, このコーティング材に漂白機能を付与することが考えられた。そうすると, 即時に審美性を回復し, しかも脱落までの間に変色歯の漂白を行うことができる。

江本らは³⁹⁻⁴¹⁾市販の変色歯コーティング材と歯面の間に漂白機能を組み込んだ下地レジン, 置く形の漂白作用を備えた変色歯コーティングシステムを考案した。すなわち, ベースレジン, Bis-GMA:TEGDMA=1:1とし, 過炭酸ナトリウムを漂白剤として添加した後, 光重合化した。本レジン, セルフエッチングプライマー処理したエナメル質に適度に接着し, 表面を過炭酸ナトリウム非添加のベースレジンでカバーした状態で水に浸漬すると, エナメル質表面を漂白した。水に浸漬することで, レジンが吸水しその水分によって過炭酸ナトリウムが分解し, 過酸化水素が発生したためと考えられる。さらに, 本システムは表面に接するであろう粘膜に有害作用は及ぼさず, また歯髄側への過酸化水素の拡散も見られなかった。以上のことから, 本システムは漂白作用を備えた変色歯コーティングシステムとして, 使用できると考えられる。

Ⅷ おわりに

従来はinertで安定であることを主眼として開発されてきた修復材料であるが, 安定性はもちろん確保した上で, 周囲環境へ積極的に働きかけをする作用を付与できるようになってきた。

文献リスト

- 1) 三浦維四, 林 一郎, 川上道夫, 塩川延洋, 浜中人史 共訳: (8th ed.) スキンナー歯科材料学(下), 第5版, 第30章 充填用セメント, 窩洞パニシ, 裏装・ベース用材料, 475-481, 医歯薬出版(東京), 1985.
- 2) 山本洋子: フッ素徐放性の歯科材料から窩壁歯質へ取り込まれたフッ素の二次元分布—波長分散型X線分析装置(WDX)による解析—, 阪大歯学誌, 40(1), 50-71, 1995.
- 3) Momoi Y., McCabe J. F.: Fluoride release from light-activated glass ionomer restorative cements. Dent Mater, 9, 151-154, 1993.
- 4) 山賀禮一: H Y 剤の基礎的効果とその適用, 日本歯内療法協会雑誌, 1, 17-24, 1980.
- 5) 山賀禮一, 森脇 豊: 先人の英知 —お歯黒予防歯科材料の立場から—, 歯界展望, 45, 928-933, 1975.
- 6) 谷崎幸司: タンニン・フッ化物合剤による二次う蝕の抑制に関する基礎的研究, 日歯保存誌, 21(2), 279-296, 1978.
- 7) 松村和良, 内海信子, 和田ゆかり, 青山光徳, 風呂川 彰, 永峰道博, 遠藤 亨, 井上 清: タンニン・フッ化物合剤配合カルボキシレートセメントの深部う蝕中の細菌に及ぼす影響, 日歯保存誌, 31(4), 1033-1041, 1988.
- 8) 特定非営利活動法人 日本歯科保存学会編: MI (Minimal Intervention) を理念としたエビデンス(根拠)とコンセンサス(合意)に基づくう蝕治療ガイドライン, 永末書店(京都), 2009.
- 9) Lindquist B., Emilson C. G.: Distribution and Prevalence of Mutans Streptococci in the Human Dentition. J Dent Res, 69, 1160-1166, 1990.
- 10) Svanberg M., Mjor I. A., Orstavik D.: Mutans Streptococci in Plaque from Margins of Amalgam, Composite and Glass-ionomer Restorations. J Dent Res, 69, 861-864, 1990.
- 11) Skjorland, K. K., Plaque accumulation on different

- dental materials. Scand J Dent Res, 81, 538-542, 1973.
- 12) 河合啓治：複合レジン構成物が *Streptococcus mutans* の不溶性グルカン合成および増殖に及ぼす影響, 日歯保存誌, 31, 322-351, 1973.
 - 13) 竹村金造, 阪本有三, Staninec M., 小林新吾, 末広和彦, 土谷裕彦：一種の Bis-GMA 系複合レジンの抗菌性とクロールヘキシジン配合による抗菌効果, 日歯保存誌, 26, 540-547, 1983.
 - 14) 小林新吾, 土谷裕彦：抗プラーク性付与を目的とした修復用レジンに関する研究 (1) 抗菌剤を組込んだレジンの抗菌性, 日歯保存誌, 24, 1074-1075, 1981.
 - 15) Ribeiro J., Ericson D.: In vitro antibacterial effect of chlorhexidine added to glass-ionomer cements. Scand J Dent Res, 99, 533-540, 1991.
 - 16) Jedrychowski J. R., Caputo A. A., Kepper S.: Antibacterial and mechanical properties of restorative materials combined with chlorhexidines, J Oral Rehabil, 10, 373-381, 1983.
 - 17) 熱田 充：抗プラーク付着性補綴物に関する研究, 昭和61年度科学研究費補助金研究成果報告書(60480424), 1987.
 - 18) Bapna M. S., Murphy R., Mukherjee S.: Inhibition of bacteria colonization by antimicrobial agents incorporated into dental resins, J Oral Rehabil, 15, 405-411, 1988.
 - 19) 平石典子, 田上順次：クロールヘキシジン含有歯科メチルメタクリレートセメントの長期性抗菌作用, 特定非営利活動法人 日本歯科保存学会2010年度秋季学術大会 (第133回) プログラムおよび講演抄録集, 57, 2010.
 - 20) Newbrun E. 著, 浜田茂幸, 長谷川 清, 井上昌一, 水野 純, 大嶋 隆, 鳥居光男, 梅本俊夫 共訳：う蝕の科学(Cariology), 医歯薬出版 (東京), 1980.
 - 21) 安永哲也, 浦野昌明, 鳥居光男, 土谷裕彦：Dexstranase 固定化による抗プラーク性レジンの開発に関する研究, 日歯保存誌, 35, 春季特別号, 13, 1992.
 - 22) Imazato S.: Antibacterial properties of resin composites and dentin bonding systems, Dent Mater, 19(6), 449-457, 2003.
 - 23) 今里 聡：薬剤非溶出型抗菌性コンポジットレジンの開発に関する研究, 日歯保存誌, 35(5), 1109-1129, 1992.
 - 24) Imazato S., Torii M., Tsuchitani Y., McCabe J. F., Russell R. R. B.: Incorporation of bacterial inhibitor into resin composite, J Dent Res, 73(8), 1437-1443, 1994.
 - 25) Imazato S., McCabe J. F.: Influence of incorporation of antibacterial monomer on curing behavior of a dental composite, J Dent Res, 73(10), 1641-1645, 1994.
 - 26) Imazato S., Ebi N., Tarumi H., Russell R. R. B., Kaneko T., Ebisu S.: Bactericidal activity and cytotoxicity of antibacterial monomer MDPB, Biomaterials, 20(9), 899-903, 1999.
 - 27) Imazato S., Ohmori K., Russell R. R. B., McCabe J. F., Momoi Y., Maeda N.: Determination of Bactericidal Activity of Antibacterial Monomer MDPB by a Viability Staining Method, Dent Mater J, 27(1), 145-148, 2008.
 - 28) Imazato S., Walls A. W. G., Kuramoto A., Ebisu S.: Penetration of an antibacterial dentin-bonding system into demineralized human root dentine *in vitro*, European J Oral Sci, 110(2), 168-174, 2002.
 - 29) Imazato S., Kaneko T., Takahashi Y., Noiri Y., Ebisu S.: In vivo antibacterial effects of dentin primer incorporating MDPB, Oper Dent, 29(4), 369-375, 2004.
 - 30) Imazato S., Ebi N., Takahashi Y., Kaneko T., Ebisu S., Russell R. R. B.: Antibacterial activity of bactericid-immobilized filler for resin-base restoratives, Biomaterials, 24(220), 3605-3609, 2003.
 - 31) Yoshida K., Tanagawa M., Atsuta M.: Characterization and inhibitory effect of antibacterial dental resin composites incorporating silver-supported materials, J Biomed Mater Res, 47, 516-522, 1999.
 - 32) Tanagawa M., Yoshida K., Matsumoto S., Yamada T., Atsuta M.: Inhibitory effect of antibacterial resin composite against *Streptococcus mutans*, Caries Res, 33, 366-371, 1999.
 - 33) 鳥居光男：イオン交換機構による可逆性溶出型抗菌性歯面塗布剤の開発, 平成8年度～平成10年度科学研究費補助金基盤研究(B)(2)研究成果報告書(0845750), 1999.
 - 34) 江原 篤, 鳥居光男, 恵比須繁之：イオン交換機序による抗菌成分の吸脱着に基づく抗菌性歯面塗布材の開発, 日歯保存誌, 39 (秋季特別号),

- 98, 1996.
- 35) 江原 篤, 鳥居光男, 恵比須繁之: イオン交換機序を利用した抗菌性歯面塗布材の開発—抗菌性の評価について—, 日歯保存誌, 40 (秋季特別号), 16, 1997.
 - 36) Ehara A., Torii M., Imazato S., Ebisu S.: Antibacterial Activities and Release kinetics of a Newly-Developed Recoverable Controlled Agent-release System, J Dent Res, 79(3), 824-828, 2000.
 - 37) Tyas M. J. , Anusavice K. J., Frencken J. E., Mount G. J.: Minimal Intervention Dentistry — A review, FDI Commission Project 1-97, Int Dent J, 50, 1-12, 2000.
 - 38) 千田 彰, 寺下正道, 寺中敏夫, 宮崎真至 編: 保存修復学, 第6版, 第4章③-C変色歯の処置, 82-88, 医歯薬出版, 東京.
 - 39) 江本真規子, 徳田雅行, 鳥居光男: 漂白作用を備えた変色歯面塗布材の開発—漂白剤の選択—, 特定非営利活動法人 日本歯科保存学会2011年度春季学術大会 (第134回) プログラムおよび講演抄録集, 78, 2011.
 - 40) Emoto M., Tomita K., Kanemaru N., Tokuda M., Torii M.: Development of surface coating material for discolored tooth equipped with bleaching effect, Dent Mater J, 31(5), 797-805, 2012.
 - 41) 江本真規子, 川上克子, 徳田雅行, 鳥居光男: 漂白作用を備えた変色歯面塗布材の開発, 特定非営利活動法人 日本歯科保存学会2013年度春季学術大会 (第138回) プログラムおよび講演抄録集, 179, 2013.