

光照射および温度が自己接着性レジンセメントの硬化挙動に及ぼす影響

三 富 朝 子

日本大学歯学部保存学教室修復学講座

Influence of Light Irradiation and Temperature on the Polymerization Behavior  
of Self-adhesive Resin Cements

MITOMI Asako

Department of Operative Dentistry, Nihon University School of Dentistry

日本歯科保存学雑誌 第 56 卷 第 5 号

平成 25 年 10 月発行 別刷

*Reprinted from*

The Japanese Journal of Conservative Dentistry

Vol. 56, No. 5 (2013)

## 光照射および温度が自己接着性レジンセメントの硬化挙動に及ぼす影響

三 富 朝 子

日本大学歯学部保存学教室修復学講座

### 抄録

目的：レジンセメントに機能性モノマーを含有させることで、歯質とともに修復物の前処理を不要とした自己接着性レジンセメント（以後、自己接着セメント）の臨床使用頻度が増加している。これらの自己接着セメントの硬化挙動を知ることは、臨床的にも重要であると考えられるものの、その初期における硬化挙動については不明な点が多い。そこで、光照射および温度が自己接着セメントの硬化挙動に及ぼす影響について、試片を透過する超音波の縦波音速の変化を測定することによって検討した。

材料と方法：供試した自己接着セメントは、クリアフィル SA セメントオートミックス (SA)、リライエック スユニセム 2 オートミックス (UC) およびビューティセム SA (BC) の 3 製品である。超音波測定装置としてパルサーレーザ、縦波用トランスデューサーおよびオシロスコープから構成されるシステムを用い、伝播時間と試片の厚さとの関係から縦波音速を求めた。硬化挙動の測定は、光線照射を行わない、あるいは  $600 \text{ mW/cm}^2$  の条件で光線照射を行う 2 条件で、その各条件に試片温度を  $23^\circ\text{C}$  および  $37^\circ\text{C}$  とし、合計 4 条件で行った。測定は、照射を行わない条件では、赤色ランプ照明下で 30 秒ごとに 15 分間行った。照射を行う条件では、試片の両側面から 30 秒間照射を行い、照射開始から 5 秒ごと 15 分間測定した。また、練和から 1, 6, 12 時間および 24 時間経過した試片についても同様に測定を行った。

成績：供試したいずれの自己接着セメントにおいても照射を行わなかった条件では、これを行った条件に比較して音速の上昇傾向が遅延し、その傾向は特に SA および UC で顕著であった。また、試片温度の違いでは、いずれの製品においてもこれが高い条件で音速の上昇程度が大きくなる傾向を示し、特にこの傾向は BC において顕著であった。一方、UC においては照射を行った条件では試片温度の影響は認められなかった。

結論：自己接着セメントは照射が不足する条件においては、製品によっては初期の重合硬化反応が遅延するとともに、試片温度の影響を受けることが明らかとなった。したがって、これらの自己接着セメントの臨床使用にあたっては、照射条件および試片温度における硬化特性を十分に考慮して製品を選択することが重要であることが示された。

キーワード：自己接着性レジンセメント、硬化挙動、超音波測定

責任著者連絡先：三富朝子

〒101-8310 東京都千代田区神田駿河台 1-8-13 日本大学歯学部保存学教室修復学講座

TEL : 03-3219-8141, FAX : 03-3219-8347

受付：平成 25 年 7 月 15 日/受理：平成 25 年 7 月 26 日

## 緒言

近年、歯冠色を有するコンポジットレジンやセラミックスを用いた間接修復処置を行う頻度が増加している。これら審美性歯冠修復物の装着には、歯質とともに修復物にも接着性を有するレジンセメントが用いられる頻度は高い。レジンセメントによる接着操作においては、歯質あるいは修復物などの各被着体に適した前処理が必要とされる。しかし、前処理を行うことは臨床操作を煩雑にさせるとともに、操作ステップ数の増加によって接着阻害因子の影響を受ける可能性がある<sup>1,2)</sup>。そこで、レジンセメントに機能性モノマーを含有させることで歯質とともに修復物の前処理を不要とした、自己接着性レジンセメント（以後、自己接着セメント）が開発された<sup>3,4)</sup>。

これまで、自己接着セメントの機械的性質あるいは硬化挙動に関しては、試験片製作後 24 時間以上経過した後には評価しているものがほとんどである<sup>5-7)</sup>。しかし、臨床においては修復物の装着直後から、余剰セメントの除去あるいは研磨などさまざまな外力が自己接着セメントに加わっている。したがって、自己接着セメントの硬化状態の経時変化を知ることが、臨床上重要であるとともに製品選択の根拠となるものの、その初期硬化挙動に関する検討はほとんどなされていないのが現状である<sup>8,9)</sup>。

そこで著者は、材料を透過する超音波の縦波音速を非破壊的に測定する超音波測定法<sup>10-13)</sup>を用いて、光照射および温度が自己接着セメントの硬化挙動に及ぼす影響について検討した。

## 材料および方法

### 1. 供試材料、照射器および照射条件

供試した自己接着セメントは、クリアフィル SA セメントオートミックス (SA, クラレノリタケデンタル)、リライエックスユニセム 2 オートミックス (UC, 3M ESPE, USA) およびビューティセム SA (BC, 松風) の 3 製品である (Table 1)。

可視光線照射器としては、オブティラックス 400 (Kerr, USA) を、供給電圧を調節することによって光強度を調整して用いた。自己接着セメントに対する照射は、その光強度を  $600 \text{ mW/cm}^2$  および照射を行わない ( $0 \text{ mW/cm}^2$ ) という 2 条件とした。

### 2. 超音波測定

本実験に用いた超音波測定装置は、パルサーレーザー (Model 5900, パナメトリクス)、縦波用トランスデューサー (V112, パナメトリクス) およびオシロスコー

プ (Wave Runner LT584, レクロイ) から構成されるシステムである (Fig. 1, 2)。

超音波測定では、パルサーレーザーを周波数 500 Hz、出力  $16 \mu\text{J}$  に設定し、高周波電圧をトランスデューサー内部の水晶振動子に送ることによって 10 MHz の超音波を発生させた。探触子をセメント試片に接触させ、試片内を伝播する超音波の変化を、オシロスコープを用いて電氣的に増幅することによって波形を検出した。この波形から、1 ns 単位でセメントを透過する超音波の伝播時間を求め、試片の厚さとの関係から音速を求めた。

製造者指示に従って練和したセメント泥を、内径 4 mm、高さ 2 mm の円筒形ビニル型に填塞し、これを試料台に静置した。次いで、透明ストリップを介してトランスデューサーを試片に接触させ、セメント練和開始の 60 秒後から測定を開始し、照射を行わない条件では、30 秒ごとに 15 分間測定を行った。照射を行う条件では、試片の両側面から 30 秒間照射を行い、照射開始から 5 秒ごとに 15 分間測定した。また、練和から 1, 6, 12 時間および 24 時間経過した試片についても同様に測定を行った。これに、試片の温度を  $23^\circ\text{C}$  および  $37^\circ\text{C}$  に設定した条件を加え、合計 4 条件について検討した。

なお、試片の数は各条件につき 6 個とし、測定は  $23 \pm 1^\circ\text{C}$ 、相対湿度  $50 \pm 5\%$  の恒温恒湿室で赤色ランプ照明下に行った。

### 3. 走査電子顕微鏡観察

製造者指示に従ってセメントを練和し、硬化した試片の表面をダイヤモンドペーストの  $1.0 \mu\text{m}$  まで順次研磨して観察面とした。試片は、デシケータに 24 時間保管して乾燥させた後、イオンコーター (Quick Coater Type SC-201, サンユー電子) で金蒸着を施し、加速電圧 10 kV の条件でフィールドエミッション走査電子顕微鏡 (SEM, ERA-8800FE, エリオニクス) を用いて観察を行った。

### 4. 統計処理

各試片で得られた縦波音速については、分散分析を行うとともに Tukey HSD test によって有意水準 5% の条件で統計学的検定を行った。

## 成績

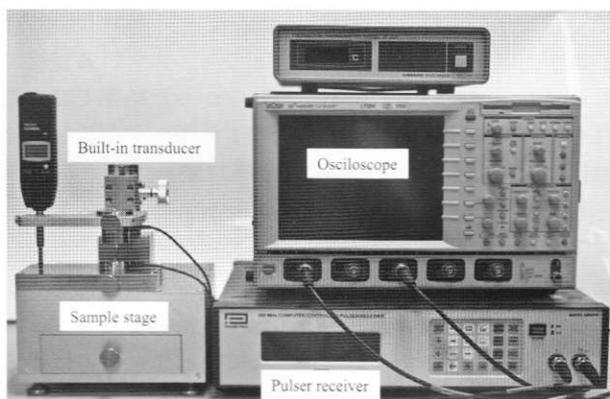
供試した自己接着セメントの各条件における縦波音速の初期変化を Fig. 3~5 に、各測定時点における縦波音速を Tables 2~4 に示した。供試したいずれの自己接着セメントにおいても、音速は照射の有無にかかわらず経時的に上昇したが、その上昇傾向は製品によって異なるものであった。

SA では、試片温度が  $23^\circ\text{C}$  の場合、照射を行わない条

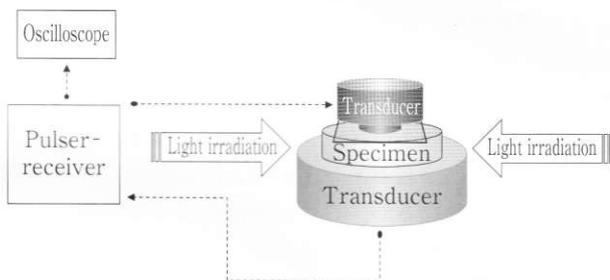
**Table 1** Self-adhesive cements used and their main components

Code	Material	Manufacturer	Shade	Lot No.	Main component
SA	Clearfil SA Cement Automix	Kuraray Noritake Dental	Universal	0055aa	MDP, Bis-GMA, TEGDMA, dimethacrylate, barium glass, colloidal silica, sodium fluoride, <i>dl</i> -camphorquinone, BPO, initiator
UC	RelyX Unicem 2 Automix	3M ESPE	Translucent	497681	methacrylated phosphoric ester, dimethacrylate, glass filler, silica, acetate, calcium hydroxide, stabilizer, self-curing and light curing initiator
BC	BeautiCem SA	Shofu	Clear	111111	phosphoric and carboxylic acid monomer, UDMA, HEMA, fluoroaluminosilicate glass, S-PRG filler, initiator, stabilizer

MDP : 10-methacryloyloxydecyl dihydrogen phosphate, Bis-GMA : 2,2bis [4-(2-hydroxy-3-methacryloyloxy propoxy) phenyl] propane, TEGDMA : triethylene glycol dimethacrylate, BPO : benzoyl peroxide, UDMA : urethane dimethacrylate, HEMA : hydroxyethyl methacrylate, S-PRG : surface pre-reacted glass-ionomer



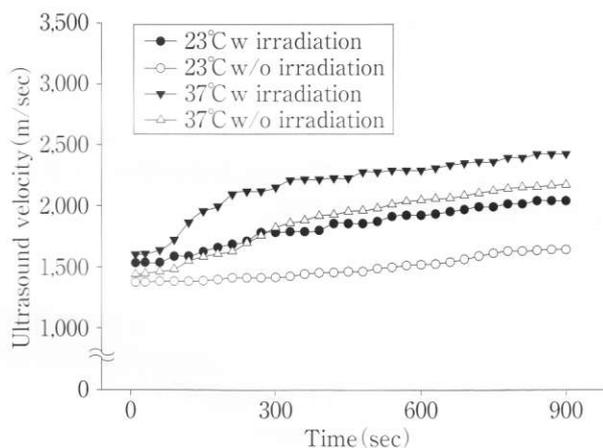
**Fig. 1** Ultrasound measurement system used in this study



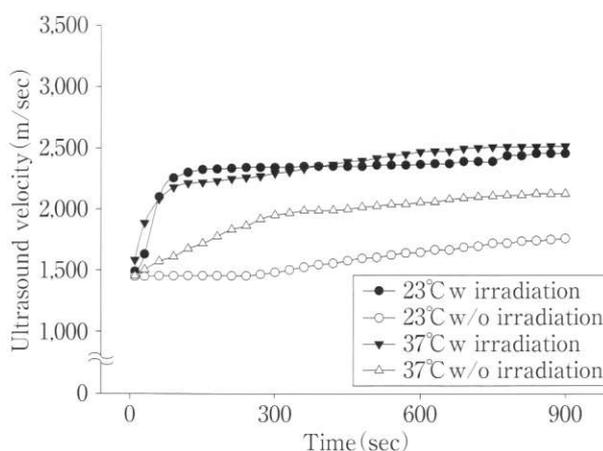
**Fig. 2** Schematic illustration of ultrasound measurement system

件では初期の音速にほとんど変化が認められなかったのに対し、照射を行う条件では、測定開始から 900 秒までの間、緩徐に上昇する傾向を示した。一方、試片温度が 37 °C で照射を行う条件では、これを行わない条件と比較して上昇開始時間が早くなるとともに、約 800 秒経過後でプラトーに達した。

UC では、試片温度が 23°C の場合、照射を行わない条件では約 300 秒経過後から音速が上昇するものの、その



**Fig. 3** Changes in ultrasound velocity as a function of time (SA)



**Fig. 4** Changes in ultrasound velocity as a function of time (UC)

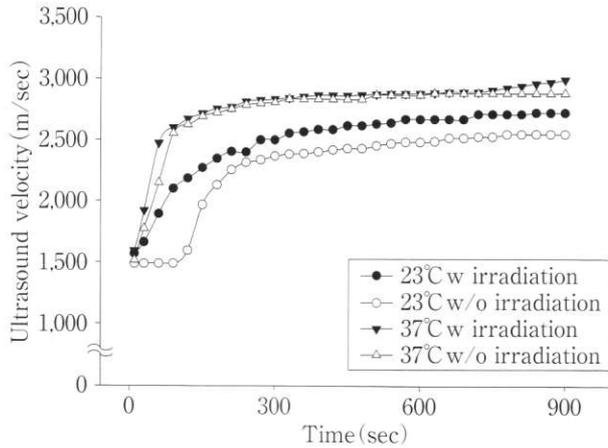


Fig. 5 Changes in ultrasound velocity as a function of time (BC)

上昇傾向は緩徐であり、測定開始から900秒までの間にプラトーに達することはなかった。しかし、照射を行う条件では照射開始から音速が急激に上昇し、それ以降でプラトーに達した。一方、試片温度が37°Cの場合、照射を行わない条件では、照射開始から音速が緩徐に上昇し、約300秒経過後でプラトーに達したのに対し、照射を行う条件では、音速の急激な上昇が認められ、90秒経過後でプラトーに達した。

BCでは、試片温度が23°Cの場合、照射を行う条件では照射開始から音速が上昇し、それ以降でプラトーに達したのに対して、照射を行わない条件では音速の上昇は遅延した。一方、試片温度が37°Cの場合、いずれの照射条件においても照射開始から急激な上昇を示し、それ以降でプラトーに達した。

照射の有無で比較すると、いずれの製品においても900秒経過後の音速は、照射を行わない条件と比較して照射を行う条件で有意に高い値を示した。また、各測定時期における音速を比較すると、いずれの製品においても照射の有無にかかわらず、試片温度が37°Cの条件で、23°Cと比較して有意に高い値を示した。また、各測定時期における音速を24時間経過後の値と比較すると、いずれの製品においても試片温度が高い条件で、照射の有無にかかわらず有意差が認められなくなるまでの時間が短縮した。

自己接着セメントを硬化させた試片のSEM像をFig. 6に示した。SAでは0.5~5 $\mu$ mの、UCでは0.5~10 $\mu$ mの不定形フィラーが密に充填された像として観察された。BCでは、0.5~2 $\mu$ mの不定形フィラーとともに、5~10 $\mu$ mの球状フィラーが散在した像として観察された。

## 考 察

歯冠修復物の装着に用いられるレジンセメントは、一連の操作をスムーズに行うために、適切な硬化特性を有する必要がある。被着面に対する前処理を不要とした自己接着セメントにおいても、その特性を引き出すとともに、効果的に臨床応用するためには、初期における硬化挙動を知ることが重要である。しかし、自己接着セメントの硬化反応はデュアルキュアであるため複雑で<sup>14,15)</sup>、セメントの硬化挙動を連続して測定するとともに、光線照射条件あるいは環境温度などの影響を把握することは困難とされてきた。そこで著者は、非破壊で物質の状態変化を測定可能な超音波測定法<sup>10-13)</sup>に着目し、自己接着セメントの硬化挙動について、試片中を透過する超音波の音速変化を指標として検討した。

まず、照射の影響を検討したところ、いずれの自己接着セメントにおいても照射を行わなかった条件では、これを行った条件と比較して音速の上昇傾向が遅延し、その傾向は特にSAおよびUCで顕著であった。この理由としては、自己接着セメント中に含有されている光重合および化学重合開始剤、あるいは機能的モノマーの違いなどが考えられた。自己接着セメントは、前処理することなく歯質あるいは修復物との化学的接着を獲得するために、機能的モノマーが含有されている<sup>3,4)</sup>。この機能的モノマーが水によって解離して酸性を示し、歯質表層を脱灰しながら接着性を発揮する<sup>16)</sup>。一方、自己接着セメントは、操作時間が経過した後はすみやかに硬化することが望まれる。したがって、自己接着セメントが高い接着性と機械的強度を示すためには、機能的モノマーと被着体との接着系形成に要する時間と、自己接着セメント自体の硬化時間とのバランスが重要となる。そこで、各製造者は自己接着セメントの重合開始剤系に独自の配合をすることになるが、これが製品による重合硬化反応の違いとなったものと考えられた。

さらに、機能的モノマーは、自己接着セメント中の3級アミンと反応する可能性があり、光重合および化学重合反応の両者において還元剤が不足し、結果として自己接着セメントの重合反応が不十分になる可能性がある<sup>17-19)</sup>。そこで、これを回避するために三元系重合開始剤がそれぞれの製品で採用されている<sup>20,21)</sup>。このように、各製品に採用されている微量添加成分の違いによって、自己接着セメントの硬化反応に差が認められたものと考えられた。

自己接着セメント中に含有されるフィラーは、SEM観察からも製品によって違いが認められた。SAおよびUCでは、5~10 $\mu$ mの不定形フィラーの間隙を埋めるように

**Table 2** Changes in the ultrasound velocity transmitted through SA

		Storage time				
		15 min	1 h	6 h	12 h	24 h
With irradiation	23°C	2,038 (47) a, A	2,519 (28) b, A	2,631 (18) c, A	2,692 (30) d, A	2,725 (34) d, A
	37°C	2,420 (53) a, B	2,847 (25) b, B	2,966 (30) c, B	2,997 (46) c, B	3,029 (22) c, B
Without irradiation	23°C	1,640 (43) a, A	2,409 (30) b, A	2,600 (41) c, A	2,676 (36) d, A	2,718 (44) d, A
	37°C	2,168 (60) a, B	2,597 (50) b, B	2,757 (34) c, B	2,789 (19) c, B	2,830 (54) c, B

Unit : m/s, n=6, Values in parenthesis indicate standard deviations.

Within groups, means with the same lower-case letter are not significantly different ( $p>0.05$ ).

Between groups at the same storage times, means with the same upper-case letter are not significantly different ( $p>0.05$ ).

**Table 3** Changes in the ultrasound velocity transmitted through UC

		Storage time				
		15 min	1 h	6 h	12 h	24 h
With irradiation	23°C	2,455 (53) a, A	2,557 (40) b, A	2,813 (64) c, A	3,003 (46) d, A	3,080 (54) d, A
	37°C	2,530 (60) a, B	3,094 (32) b, B	3,111 (24) b, B	3,132 (28) b, B	3,142 (24) b, B
Without irradiation	23°C	1,755 (37) a, A	2,473 (10) b, A	2,645 (14) c, A	2,774 (24) d, A	2,805 (14) d, A
	37°C	2,327 (63) a, B	2,712 (49) b, B	2,923 (50) c, B	2,943 (27) c, B	2,999 (24) c, B

Unit : m/s, n=6, Values in parenthesis indicate standard deviations.

Within groups, means with the same lower-case letter are not significantly different ( $p>0.05$ ).

Between groups at the same storage times, means with the same upper-case letter are not significantly different ( $p>0.05$ ).

**Table 4** Changes in the ultrasound velocity transmitted through BC

		Storage time				
		15 min	1 h	6 h	12 h	24 h
With irradiation	23°C	2,730 (33) a, A	3,047 (38) b, A	3,172 (34) c, A	3,200 (22) c, A	3,222 (34) c, A
	37°C	3,000 (59) a, B	3,373 (29) b, B	3,385 (34) b, B	3,385 (30) b, B	3,393 (30) b, B
Without irradiation	23°C	2,503 (53) a, A	2,564 (33) a, A	2,686 (51) b, A	2,730 (16) b, A	2,841 (30) c, A
	37°C	2,889 (51) a, B	3,069 (38) b, B	3,320 (42) c, B	3,369 (44) c, B	3,386 (20) c, B

Unit : m/s, n=6, Values in parenthesis indicate standard deviations.

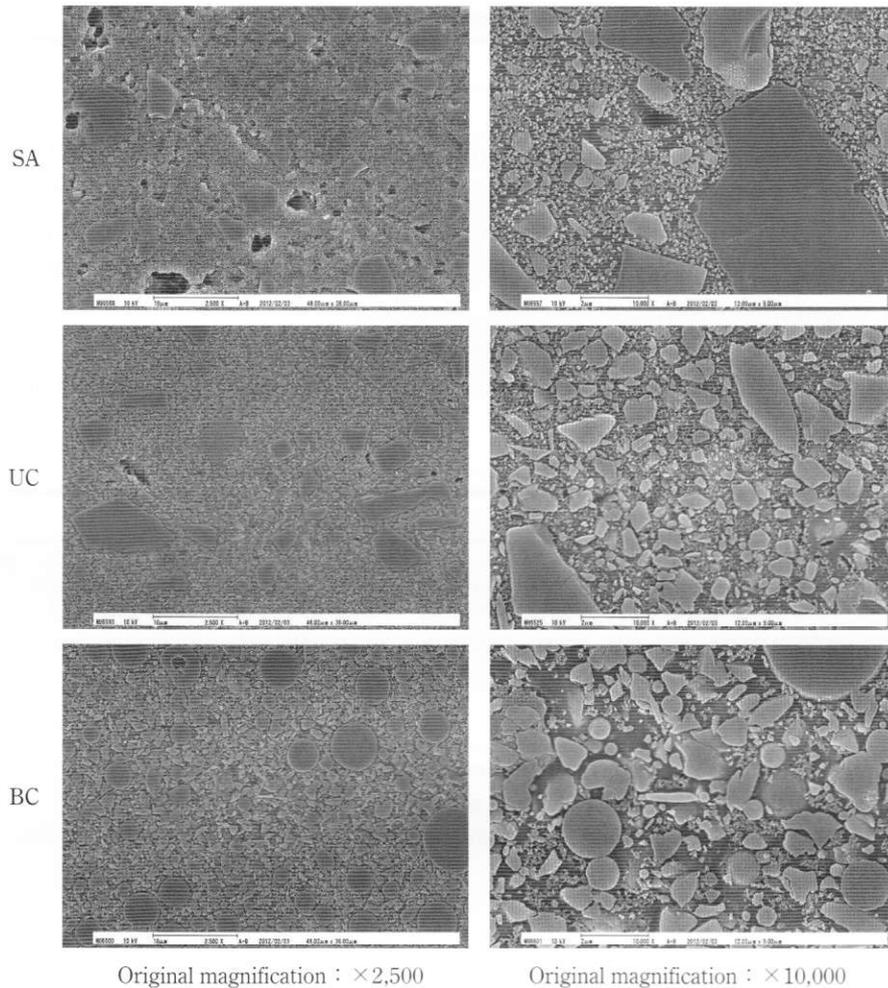
Within groups, means with the same lower-case letter are not significantly different ( $p>0.05$ ).

Between groups at the same storage times, means with the same upper-case letter are not significantly different ( $p>0.05$ ).

微細な不定形フィラーが分散されているのに対して、BCにおいては不定形のS-PRGフィラーの中に球状フィラーが混在している像として観察された。S-PRGフィラーは、表層のガラスコアが光線を透過させるのに対し、内部のガラスアイオノマー層では光線が拡散するよう設計されており<sup>22)</sup>、このようなフィラーの光拡散性の違いが、照射に伴うレジンモノマーの硬化反応に影響を及ぼした可能性がある。さらに、これら自己接着セメントに含有されている無機質フィラーは塩基としての性質を示し、機能性モノマーと一部が反応する<sup>23)</sup>ために、自己接着セメントの硬化挙動に影響を及ぼす可能性も考

えられた。

試片温度条件で音速の変化を比較すると、いずれの製品においてもこれが高い条件で音速の上昇傾向が大きく、その変化は製品によって異なるものであった。すなわち、SAおよびBCにおいては、照射条件が同じであれば試片温度が高い条件で音速も高い値を示した。一方、UCにおいては照射を行わない条件では同様の傾向を示したものの、照射を行った条件では試片温度の影響は認められなかった。このように、SAおよびBCで試片温度が高い条件で音速が高い値を示した理由としては、3級アミンと重合開始剤の反応が加速され、結果としてラジ



Original magnification :  $\times 2,500$       Original magnification :  $\times 10,000$   
 Fig. 6 SEM observations of polished surface of self-adhesive cements

カルの発生率が向上したためと考えられた。一方、UCの硬化反応としては、照射により機能性モノマーの有するメタクリロイルオキシ基がモノマー間で反応するだけでなく、含有されているガラスアイオノマーフィラーとリン酸基による架橋反応も生じるとされている<sup>23)</sup>。したがって、照射を行った条件では、硬化反応が十分に進行することで試片温度の影響を受けないものの、照射が不足する条件では、高い温度に置かれたことによって未反応モノマーの硬化反応が進行したものと考えられた。

本実験の結果から、照射が不足する条件においては、製品によっては初期の重合硬化反応が遅延するとともに、試片温度の影響を受けることが明らかとなった。したがって、これらの自己接着セメントの臨床使用にあたっては、照射条件および試片温度における硬化特性を十分に考慮して製品を選択することが重要であることが示された。

## 結 論

超音波測定法を用いて、自己接着セメントの重合硬化挙動の経時的变化を測定した結果、以下の結論を得た。

1. クリアフィル SA セメントオートミックスの音速は、試片温度が  $23^{\circ}\text{C}$  の場合、照射を行わない条件で変化が認められなかったのに対し、照射を行う条件では緩徐に上昇した。一方、試片温度が  $37^{\circ}\text{C}$  の場合、照射を行う条件では、照射を行わない条件と比較して上昇開始時間が早くなった。

2. リライエックスユニセム 2 オートミックスの音速は、試片温度が  $23^{\circ}\text{C}$  および  $37^{\circ}\text{C}$  のいずれの場合においても、照射を行わない条件での上昇傾向は緩徐であったのに対し、照射を行う条件では照射開始から急激に上昇した。

3. ビューティセム SA の音速は、試片温度が  $23^{\circ}\text{C}$  の場合、照射を行わない条件では、照射を行う条件と比較

して上昇が遅延した。一方、試片温度が37°Cの場合、いずれの照射条件においても照射開始から急激に上昇した。

## 文 献

- 1) Mak YF, Lai SCN, Cheung GSP, Chan AWK, Tay FR, Pashley DH. Micro-tensile bond testing of resin cements to dentin and an indirect resin composite. *Dent Mater* 2002; 18: 609-621.
- 2) De Munck J, Vargas M, Van Landuyt K, Hikita K, Lambrechts P, Van Meerbeek B. Bonding of an auto-adhesive luting material to enamel and dentin. *Dent Mater* 2004; 20: 963-971.
- 3) Radovic I, Monticelli F, Goracci C, Vulicevic ZR, Ferrari M. Self-adhesive resin cements: A literature review. *J Adhes Dent* 2008; 10: 251-258.
- 4) Ferracane JL, Stansbury JW, Burke FJT. Self-adhesive resin cements—Chemistry, properties and clinical considerations. *J Oral Rehabil* 2011; 38: 295-314.
- 5) Nakamura T, Wakabayashi K, Kinuta S, Nishida H, Miyamae M, Yatani H. Mechanical properties of new self-adhesive resin-based cement. *J Prosthodont Res* 2010; 54: 59-64.
- 6) Ilie N, Simon A. Effect of curing mode on the micro-mechanical properties of dual-cured self-adhesive resin cements. *Clin Oral Invest* 2012; 16: 505-512.
- 7) Moosavi H, Hariri I, Sadr A, Thitthaweerat S, Tagami J. Effects of curing mode and moisture on nanoindentation mechanical properties and bonding of a self-adhesive resin cement to pulp chamber floor. *Dent Mater* 2013; 29: 708-717.
- 8) Vrochari AD, Eliades G, Hellwig E, Wrbas KT. Curing efficiency of four self-etching, self-adhesive resin cements. *Dent Mater* 2009; 25: 1104-1108.
- 9) Frassetto A, Navarra CO, Marchesi G, Turco G, Di Lenarda R, Breschi L, Ferracane JL, Cadenaro M. Kinetics of polymerization and contraction stress development in self-adhesive resin cements. *Dent Mater* 2012; 28: 1032-1039.
- 10) Mori K, Inage H, Kawamoto R, Tonegawa M, Kurokawa H, Tsubota K, Takamizawa T, Miyazaki M. Ultrasonic monitoring of the setting of glass-ionomer luting cements. *Eur J Oral Sci* 2008; 116: 72-76.
- 11) Tonegawa M, Yasuda G, Takubo C, Tamura Y, Yoshida T, Kurokawa H, Miyazaki M. Influence of power density on the setting behaviour of light-cured glass-ionomer cements monitored by ultrasound measurements. *J Dent* 2009; 37: 535-540.
- 12) Takubo C, Yasuda G, Murayama R, Ogura Y, Tonegawa M, Kurokawa H, Miyazaki M. Influence of power density and primer application on polymerization of dual-cured resin cements monitored by ultrasonic measurement. *Eur J Oral Sci* 2010; 118: 417-422.
- 13) Sunada A, Ishii R, Shiratsuchi K, Shimizu Y, Tsubota K, Kurokawa H, Miyazaki M. Ultrasonic measurement of the effects of adhesive application and power density on the polymerization behavior of core build-up resins. *Acta Odontol Scand* 2013; 71: 137-143.
- 14) Meng X, Yoshida K, Atsuta M. Influence of light irradiation condition on microshear bond strength of dual-cured resin luting agents. *Dent Mater J* 2007; 26: 575-581.
- 15) Arrais CAG, Giannini M, Rueggeberg FA. Kinetic analysis of monomer conversion in auto- and dual-polymerizing modes of commercial resin luting cements. *J Prosthet Dent* 2009; 101: 128-136.
- 16) Al-Assaf K, Chakmakchi M, Palaghias G, Karanika-Kouma A, Eliades G. Interfacial characteristics of adhesive luting resins and composites with dentine. *Dent Mater* 2007; 23: 829-839.
- 17) Sanares AM, Itthagarun A, King NM, Tay FR, Pashley DH. Adverse surface interactions between one-bottle light-cured adhesives and chemical-cured composites. *Dent Mater* 2001; 17: 542-556.
- 18) Suh BI, Feng L, Pashley DH, Tay FR. Factors contributing to the incompatibility between simplified-step adhesives and chemically-cured or dual-cured composites. Part III. Effect of acidic resin monomers. *J Adhes Dent* 2003; 5: 267-282.
- 19) Zorzin J, Petschelt A, Ebert J, Lohbauer U. pH neutralization and influence on mechanical strength in self-adhesive resin luting agents. *Dent Mater* 2012; 28: 672-679.
- 20) Ikemura K, Endo T. A review of our development of dental adhesives-effects of radical polymerization initiators and adhesive monomers on adhesion. *Dent Mater J* 2010; 29: 109-121.
- 21) Ikemura K, Endo T. A review of the development of radical photopolymerization initiators used for designing light-curing dental adhesives and resin composites. *Dent Mater J* 2010; 29: 481-501.
- 22) Murayama R, Furuichi T, Yokokawa M, Takahashi F, Kawamoto R, Takamizawa T, Kurokawa H, Miyazaki M. Ultrasonic investigation of the effect of S-PRG filler-containing coating material on bovine tooth demineralization. *Dent Mater J* 2012; 31: 954-959.
- 23) 清水一慶. セルフアドヒーシブルレジンセメント リライエックス™ユニセム 2 オートミックス. *接着歯学* 2012; 30: 44-47.