

令和 2 年 6 月 20 日現在

機関番号：34406

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06069

研究課題名(和文)ハイブリッドクラスターフィラーによる新構造強化コンポジットレジンの開発

研究課題名(英文)Development of New Style Resin Composites Using Hybrid Cluster Fillers

研究代表者

西川 出(NISHIKAWA, Izuru)

大阪工業大学・工学部・教授

研究者番号：90189267

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：クラスターフィラーの配合割合が疲労強度や摩耗特性に及ぼす影響を調査した。クラスターフィラー10 $\mu$ mを80mass%配合したコンポジットレジンとクラスターフィラー2 $\mu$ mを80mass%配合したコンポジットレジンが高い疲労強度を示すことがわかった。前者のコンポジットレジンでは、き裂が多く配合している大粒径のクラスターフィラーの内部を進展することで、き裂抵抗が向上したため、疲労強度が高くなったものと考えられた。後者のコンポジットレジンでは、比表面積が広いため、接着面積も広くなり、高いアンカー効果がレジンとの接着が他の配合割合のそれよりも強固となったため、疲労強度が高くなったものと考えられた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られた成果は現在臨床で応用されている代表的歯科修復材料であるコンポジットレジンの品質を飛躍的に向上させたものである。ポイントはクラスターフィラーというあまり手のかからない特殊なフィラーを用いるところにあるが、このクラスターフィラーの特性を最大限生かせる配合比率を見出した点が学術的意義と社会的意義の大きいところである。

研究成果の概要(英文)：The effects of content ratio of fillers on fatigue strength and wear property were investigated in this study. It was found that a resin composite with 10micron cluster fillers of 80mass% showed the highest fatigue strength, and resin composite with 2micron cluster filler of 80mass% also showed a better fatigue property. The reason why a resin composite with 10micron fillers had the highest strength was that a big sized filler played as a crack arrester, and the reason why a resin composite with 2micron filler had a higher strength was that cluster fillers behaved as an anchor with resin material.

研究分野：材料強度学

キーワード：コンポジットレジン 疲労強度 摩耗特性 フィラー

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

自然歯には再生力がないため、虫歯などの疾患が生じた場合の治療はその部分を除去し、人工材料で置換するしか方法がない。ここで用いられる歯科修復用材料としては金属材料や樹脂系、無機材料など数多くの種類の材料が開発されてきた。

そのような歯科修復用材料の中で現在主流となっているのがコンポジットレジンである。コンポジットレジンには、操作性や可搬性に優れ、比較的安価であることや、着色も可能であることから歯科分野で特に求められている審美性にも優れている。しかしその反面、コンポジットレジンには硬度や強度が低く、割れや摩耗が生じやすい欠点もある。そこで、口腔内使用時のコンポジットレジン強度確保や耐摩耗性確保が重要となっている。

### 2. 研究の目的

本研究では歯科用コンポジットレジンの疲労強度の向上とともに、耐摩耗性の向上を探ることとした。コンポジットレジン特性向上の手段として、レジんに配合させるフィラーに着目した。フィラーには不定形フィラーが多く用いられているが、本研究ではこれを工夫しさらに特性の良いフィラーの作成から取り組んだ。具体的にはなのフィラーを焼結圧せることにより、なのフィラーの集合(クラスター)を作成することにより、外表面形状の凹凸が極めて激しいフィラーの政策に取り組んだ。本研究ではクラスターフィラー粒径  $10\mu\text{m}$ 、 $3.5\mu\text{m}$ 、 $2\mu\text{m}$  の3種類のクラスターフィラーを製作し、これら3種類のフィラーの配合割合を変化させることにより、機械的性質を調べ、強度特性を向上させるに最適な配合割合を見出すことを目指した。

さらに従来から用いられている不定形フィラーをも混在させることにより、さらなる特性向上についても検討した。また別の角度からの検討として、極小粒径のフィラー混入が強度に及ぼす影響についても調べることにより、最終的には強度、摩耗特性を総合して最も強度が優れるフィラー配合割合の決定を行うこととした。

### 3. 研究の方法

#### (1) コンポジットレジン

本研究に使用したモノマーの組成を Table 1 に、フィラーを Table 2 に示す。

モノマーの主成分は高粘度のウレタンジメタクリレートとその希釈材としてトリエチレングリコールジメタクリレートを用いた。また光硬化剤にはカンファークイノンを用い、重合反応促進剤には4-(ジメチルアミノ)安息香酸エチルを用いた。

ここでは約  $0.2\sim 0.6[\mu\text{m}]$  の粒径の微小フィラーを焼結させることにより約  $2\sim 10[\mu\text{m}]$  のクラスターフィラーを製作した。また現在臨床でもよく使用されている粒径  $0.7[\mu\text{m}]$  の微小不定形フィラーも用いた。

Table 1 Monomer used in this study.

Material	Designation	Content ratio [mass%]
Urethane Dimethacrylate Polymers	UDMA	69.5
Tetraethyleneglycol dimethacrylate	TEGDMA	29.5
Camphoroquinone	CQ	0.5
Ethyl 4-(Dimethylamino) benzoate	EDB	0.5

Table 2 Fillers used in this study.

Material	Size [ $\mu\text{m}$ ]	Configuration
Cluster filler (CF10)	10	Cluster
Cluster filler (CF3.5)	3.5	
Cluster filler (CF2)	2	
Micro filler (IF0.7)	0.7	Irregular

(2) 試験片

試験片作製には金型を用いた。作製した未重合コンポジットレジンに金型に充填し、これを光重合器 (LIGHT N:株式会社モリタ)にて 2 分間重合硬化させた。試験片は  $2 \times 2 \times 25[\text{mm}^3]$  の矩形のものを用いた。

(3) 3点曲げ疲労試験

3点曲げ疲労試験には島津製作所製電磁力式微小材料試験機 (MMT-100N, MMT-250N)を用いた。負荷波形を正弦波、繰り返し速度を  $2[\text{Hz}]$ 、支点間距離を  $20[\text{mm}]$ 、応力比を  $0.1$  とした。

(4) 摩耗試験

摩耗試験にはスガ摩耗試験機 (NUS-ISO-3)を用いた。摩耗相手材には#800 の耐水エメリー研磨紙を使用した。負荷荷重  $29.4\text{N}$  の下で摩耗試験を実施した。

4. 研究成果

(1) 疲労強度・摩耗特性に及ぼすフィラー粒径の影響

本節では粒径  $10\mu\text{m}$ ,  $3.5\mu\text{m}$ ,  $2\mu\text{m}$  の 3 種類のクラスターフィラーを準備し、これらの配合割合を変えることにより作成したコンポジットレジンの疲労強度を調べ、強度向上に寄与する影響因子の調査を行った。

フィラー配合割合

フィラー配合割合を Table 3 に示す。3 種類のフィラー配合割合の比が  $2:2:6$  と  $1:1:8$  となる配合組合せを考え、合計 6 種類の配合条件を決定した。これらのフィラーを用いて作成したコンポジットレジン試験片について強度試験を行った。フィラーの充填率はすべて  $60\text{mass}\%$ とした。

Table 3 Materials used in this study.

Designation	CF10	CF3.5	CF2
TriA	10	10	80
TriB	10	80	10
TriC	80	10	10
TriD	20	20	60
TriE	20	60	20
TriF	60	20	20

疲労試験結果

疲労試験により得られた負荷応力幅と破断繰返し数の関係 ( $S-N$  線図) を Fig.1 に示す。図中の矢印を付記したデータは試験片が未破断であったことを示している。

疲労試験結果, TriA ならびに TriC の疲労強度が他の試験片の疲労強度よりも高い値を示すこ

とがわかった。TriAには小粒径のフィラーが80mass%も配合されていることから、先行研究と同様、小粒径フィラーが強度向上に強く寄与するといった理由により、疲労強度が高くなったものと考えられる。しかし、大粒径フィラーの割合が多いTriCも高い強度を示すこともわかった。

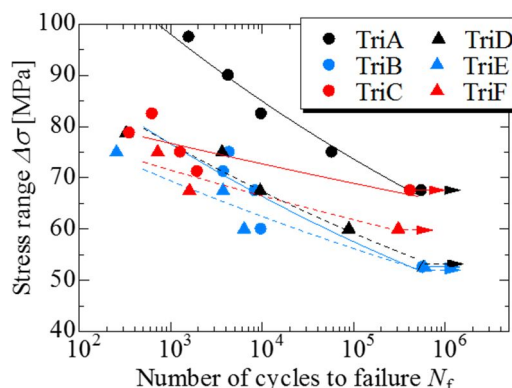


Fig.1 S-N curves of resin composites.

### 摩耗試験結果

摩耗試験を行った結果、得られた総摩耗量と繰返し数の関係を Fig.2 に示す。

摩耗試験の結果、総摩耗量が最も少なかったのは TriC の試験片であり、次に少なかったのは TriA の試験片となった。また、フィラー配合比率 2:2:6 の供試材の耐摩耗性よりも配合比率 1:1:8 の供試材の耐摩耗性の方が幾分向上することもわかった。

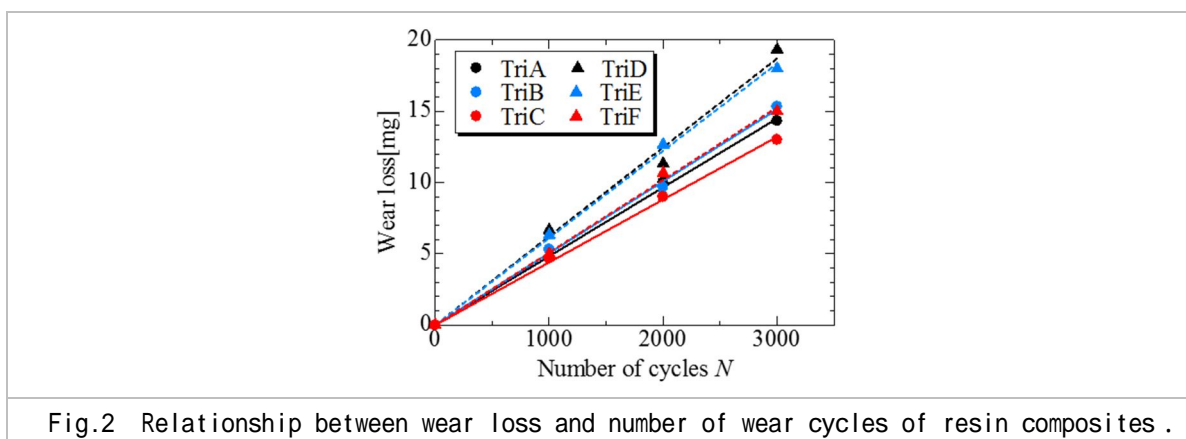


Fig.2 Relationship between wear loss and number of wear cycles of resin composites .

## (2) 疲労強度・摩耗特性に及ぼす極小粒径フィラーの影響

### フィラー配合割合

本節で採用したフィラー配合割合を Table 4 に示す。ここで考えたフィラー配合割合は TriA , TriC で採用したフィラー比率 1:1:8 の配合割合であるが、これら比率のうち 1 割に相当する比率部分を不定形フィラーに置き換えることとした。

Table 4 Materials used in this study .

Designation	CF10	CF3.5	CF2	IF0.7
TriA1	10	0	80	10
TriA2	0	10	80	10
TriC1	80	0	10	10
TriC2	80	10	0	10

### 疲労試験結果

疲労試験により得られた負荷応力幅と破断繰返し数の関係( $S-N$ 線図)を Fig.3 に示す。図中の矢印は未破断データであることを示している。

Fig.3よりわかるように, TriA2とTriC1の疲労強度が他の試験片のそれより高い値を示した。しかし, 前節で最も高い強度を示したTriAやTriCの疲労強度と比べると, これらの疲労強度はほぼ同様の値となった。このことより, 一部のクラスターフィラーに換えて不定形フィラーを配合させても疲労強度の向上にはあまり寄与しないことがわかった。このことからフィラー表面の凹凸形状の激しいクラスターフィラーを用いることによる疲労強度向上効果は不定形状のそれよりも大きいことがわかった。

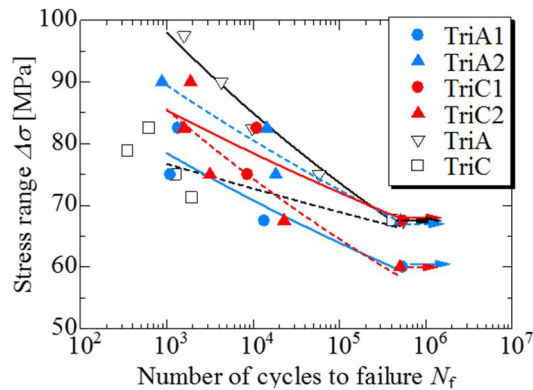


Fig.3  $S-N$  curves of resin composites.

### 摩耗試験結果

摩耗試験を行って得られた総摩耗量と繰返し数の関係を Fig.4 に示す。

摩耗試験の結果, 最も総摩耗量が少なくなったのはTriC2の試験片で, 次にTriC1の試験片となった。また, 不定形フィラーを配合させることにより耐摩耗性が向上することも分かった。

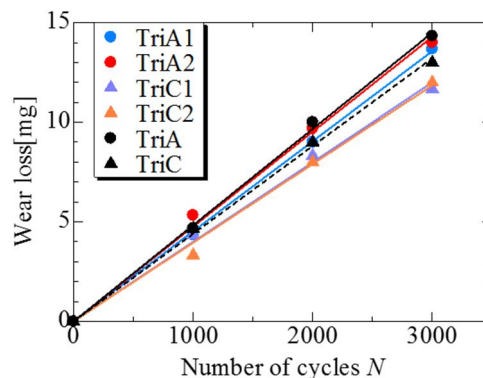


Fig.4 Relationship between wear loss and number of wear cycles of resin composites.

### (5) 結論

疲労強度に及ぼすクラスターフィラーの配合割合の影響を調査した。その結果, クラスターフィラー $10\mu\text{m}$ を80mass%配合したコンポジットレジンとクラスターフィラー $2\mu\text{m}$ を80mass%配合したコンポジットレジンが高い疲労強度を示すことがわかった。

耐摩耗性に及ぼすクラスターフィラーの配合割合の影響を調査した。その結果, 最も高い耐摩耗性を示したコンポジットレジンはクラスターフィラー $10\mu\text{m}$ を80mass%配合したものであった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 西川出
2. 発表標題 デジタル画像関連法を用いた切欠き部における応力集中情報の評価
3. 学会等名 日本非破壊検査協会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 西川 出
2. 発表標題 応力特異場対応デジタル画像関連法による斜めき裂の力学量評価法に関する研究
3. 学会等名 日本実験力学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 ジョトウヨウ、西川 出
2. 発表標題 デジタル画像関連法による混合モード条件下き裂の破壊力学量評価に関する検討
3. 学会等名 日本機械学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 西川 出、加藤喬大、安楽照男
2. 発表標題 クラスターフィラーによるコンポジットレジンの疲労強度・耐摩耗性向上に関する研究
3. 学会等名 日本歯科理工学会学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 西川 出、徐トウヨウ
2. 発表標題 弾塑性変形を考慮したデジタル画像相関法によるき裂力学量評価の検討
3. 学会等名 日本非破壊検査協会関西支部
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 西川 出、徐トウヨウ
2. 発表標題 デジタル画像相関法によるき裂背面からの力学量推定に関する研究
3. 学会等名 日本実験力学会年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 徐トウヨウ、西川 出
2. 発表標題 デジタル画像相関法を用いた混合モードき裂の力学量評価法の検討
3. 学会等名 日本機械学会M&M2017材料力学カンファレンス
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 徐トウヨウ、西川 出
2. 発表標題 容器内き裂検査のためのデジタル画像相関法援用き裂検出手法の検討
3. 学会等名 日本材料学会第15回機械・構造物の強度設計、安全性評価に関するシンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 西川 出、徐トウヨウ
2. 発表標題 デジタル画像相関法によるき裂力学量の評価に関する研究
3. 学会等名 日本材料学会第18回破壊力学シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 徐トウヨウ、西川 出
2. 発表標題 デジタル画像相関法による混合モード条件下き裂の破壊力学量評価に関する検討
3. 学会等名 日本機械学会 関西支部第93期定時総会講演会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	脇 裕之  (WAKI Hiroyuki)  (30324825)	岩手大学・理工学部・教授    (11201)	
研究 分担者	高橋 英和  (TAKAHASHI Hidekazu)  (90175430)	東京医科歯科大学・大学院医歯学総合研究科・教授    (12602)	