

平成22年6月1日現在

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2007～2009

課題番号：19592252

研究課題名(和文)：微小表面接触疲労にもとづく修復用材料の表面劣化とその耐久性の改善

研究課題名(英文)：Improvement in its durability and surface deterioration of dental restorative materials due to surface-contact fatigue

研究代表者

藤井 孝一 (FUJII KOUICHI)

鹿児島大学・大学院医歯学総合研究科・准教授

研究者番号：60156817

研究成果の概要(和文)：本研究では2種類のコンポジットレジン(ESとSD)およびアクリル系レジン(ACとSU)、3種類の人工歯材料(LPとSPとAT)に加え、3種類の歯科用貴金属系合金(T-1とT-4と12GS)を用い、比較的口腔内に近似した条件で各試料の表面接触疲労を調べた。ACとESとSDとSUの、本研究で定義した疲労限界は $5.88 \times 10^3 \sim 8.82 \times 10^4$ 回の範囲であり、LPとSPとATのそれは $3.1 \times 10^4 \sim 5.88 \times 10^4$ 回の範囲であった。陶歯(LP)を含む以上の7材料では、硬さが硬く、比較的流動性の悪い材料の疲労限界が短い傾向を示した。一方、溶体化処理後の3種の貴金属系合金の疲労限界は $10^3 \sim 10^4$ 回の範囲であり、それらの二次元断面形状は、前述した7材料では全く認められなかった延性的性質が顕著に現れた。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this paper was to investigate the surface contact fatigue of two PMMAs (AC and SU), two composite resins (ES and SD), three artificial tooth (LP, SP and AT) and three noble metal alloys (T-1, T-4 and 12GS) in an atmosphere of dripped distilled-water at 37°C. Disk specimen 15 mm diameter by 2.0 mm thick were set into cavity cut in plate of PMMA, and were ground and polished down using water-proof sandpaper followed by 1.0 μm alumina and then stored for 24 h in distilled water at 37°C. Test was carried out under 200 gf through a ruby ball 2 mm diameter, which was rotated at 500 rpm, using a rolling-ball device. A surface profile was determined directly on the test specimen at regular intervals. Fatigue life was defined as the number of cycles to produce a track 5 μm deep and was determined by interpolation. The fatigue life of AC, ES, SD and SU was ranged from $5.88 \times 10^3 \sim 8.82 \times 10^4$ cycles. AC and SU without inorganic filler are very much more resistant to contact fatigue than ES containing inorganic filler more. On the other hand, the fatigue life of three artificial tooth (LP, SP and AT) was ranged from $3.1 \times 10^4 \sim 5.88 \times 10^4$ cycles and LP is lower resistant to contact fatigue than SP and AT. Furthermore three noble metal alloys was ranged from $10^3 \sim 10^4$ cycles and the two-dimensional profile had a ductility characteristic that is different from two composite resin and artificial tooth.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2005年度			
2006年度			
2007年度	2,900,000	870,000	3,770,000
2008年度	500,000	150,000	650,000
2009年度	500,000	150,000	650,000
総計	3,900,000	1,170,000	5,070,000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学・補綴理工系歯学

キーワード：表面疲労、コンポジットレジン、人工歯、歯科用貴金属系合金、硬さ、粘弾性

1. 研究開始当初の背景

口腔内で用いられる修復用材料は、咬合により天然歯と修復材料とが、あるいは修復材料同士が対合関係にある咬合面において、例えば、下顎第一大臼歯の遠心側咬頭は上顎第一大臼歯の中心窩に、遠心咬頭は遠心小窩にそれぞれ嵌合する。その場合の咬合は咬頭頂の豊隆部や三角隆線および副隆線部での接触となり、その接触状態は面接触というよりも、むしろ点あるいは線接触に近い。咬合面における修復材料は、このような咬合圧による繰返し接触（疲労的要素）に加えて、口腔液や温度の変化を伴う苛酷な条件下に長期間にわたって晒される。現在、修復材料の歯科理工学的性質は、単純な引張あるいは曲げ強さなどの機械的性質や、摩耗や衝撃試験などにより、比較的大きなバルク試験片を用いて比較し検討されることが多い。しかしながら、上述したように口腔内に装着された補綴物・修復材料は、複雑で苛酷な口腔内環境の下におかれるため、臨床的な条件下でその材料の微小接触部での耐久性が検討されるべきである。表面接触疲労の観点から耐久性を検討した研究は、国内外でも数少ない。その中で、J.F. McCabeらの研究があり、申請者との共同研究が最も新しい(K. FUJII, T.E. CARRIK, R.B. BICKER and J.F. McCABE, Effect of the applied load on surface contact fatigue of dental filling materials, Dent Mater 20, 931-938 (2004))。

本研究はこれまでの基礎研究をふまえ、臨床的な口腔内環境に極力近似させた条件のもとで、修復用材料として用いられる歯科材料について、接触表面部分の劣化機構を調べ、修復材料の耐久性を向上させる表面改質に結びつくパラメータを検討する。

2. 研究の目的

口腔内で使用される修復材料（有機系、無機系、金属系材料）は、咀嚼時の咬合力のもとで口腔という特殊な雰囲気中で長期間使用され、過酷な環境のもとに置かれる。したがって、口腔内でこれらの材料が十分に機能するためには、物理的・化学的・機械的な所要性質はもとより、長期にわたってその性質が低下することのない耐久性が求められる。本研究ではこの耐久性を十分に検討できる微小表面接触疲労試験装置の改良を行い、口腔内で修復材料として用いられる有機、無機、金属材料、複合材料などについて、咬合力が加わるような点接触あるいは線接触で発生する

高面圧下の条件を考慮し、口腔内で想定される雰囲気中で、繰返し外力が作用する場合の修復材料表面における接触疲労に基づく微小破壊、劣化挙動を詳しく調べ、その劣化機構を検討する。本研究での試験条件は、従来の歯科材料の評価基準に比べてより厳しい条件設定になる。そこで耐久性に優れた修復用材の開発を行うための修復材料の表面改質に結びつく検討を行う。

3. 研究の方法

本研究の遂行には、修復材料に対して、口腔内に近似した雰囲気中で咬合圧相当の面圧を加えながら、同一面上を繰返し接触する微小表面接触疲労試験機が用いられた。装置は37℃の空気中で、500rpmで回転するモーター軸に取り付けたV溝板のV溝と測定試料表面上間に、直径2mmφのルビーボールを介在させ、200gfの一定荷重を加えながら、その両者の接触面間に37℃蒸留水を0.5～0.7 mL/minで滴下させる中で、ルビーボールが測定試料面上の直径3mmφの円周を転がり摩擦により繰返し接触する。接触部に生じた表面損傷は測定の開始から一定の繰返し回数毎に、そのWear trackの深さを断面形状測定機（Surfcom 130A, Tokyo Seimitsu）、および3次元形状測定機（Surfpass TS10, Taniyama Technos）を用いて評価した。硬さ試験機（HM-102, Akashi）により、200gfで15s間の負荷によりビッカース硬さを測定した。動的粘弾性測定は捩れ自由減衰型粘弾性測定装置（Torsion pender TPA-10, RHESCA, Tokyo）を用いて、試料形状5×35×0.5mm（幅×長さ×厚）の各試料をチャック間距離15mmで、比例限度内の捩れ角0.2～0.5°を試料に加え、1℃/minの昇温速度により、室温から190℃の温度範囲内の動的ずり弾性率（G'）および動的損失率（tanδ）を測定した。コンポジットレジンのフィラー含有率は200mgの試料を電気炉中で600℃で30min間の保持を繰返し行い、測定値に変化が認められない場合に、加熱前後の重量変化（%）を求めた。接触疲労面の観察には、金属顕微鏡（Optihot, Nikon）および走査型電子顕微鏡（JSM-5510LV, JEOL, Tokyo）を用いた。

本研究で用いた材料は、

- (1) 2種類のコンポジットレジンと2種類のアクリルレジン
- (2) 3種類の人工歯（アクリル、硬質レジン、陶歯）

(3) 歯科用貴金属系合金(タイプ I、IV 金合金、12% 金銀パラジウム合金)

である。各試料(面積 $>100\text{mm}^2$)はアクリル板面と同一平面になるように埋入し、耐水研磨紙で#1500の粗さまで仕上げた後、 $1\mu\text{m}$ の Al_2O_3 を用いてバフ研磨したものを測定に用いた。

4. 研究成果

測定試料は工業用アクリルレジン(SU)、歯科用加熱重合型アクリルレジン(AC)、歯冠用硬質レジン(2種類: ESとSD)の4種を用いた。ボールのころがり接触による試料表面の劣化の開始を、各試料の表面粗さを考慮して、 $5\mu\text{m}$ のくぼみが生じた回数とすれば、ES, SD, SUおよびACでは、 $5.88 \times 10^3 \sim 8.82 \times 10^4$ 回の範囲であった。その後、繰返し接触回数の増加により、 $100\mu\text{m}$ のくぼみを生じるまでに、各試料ではそれぞれ $2.94 \times 10^5 \sim 4.10 \times 10^6$ 回を要した(図1)。

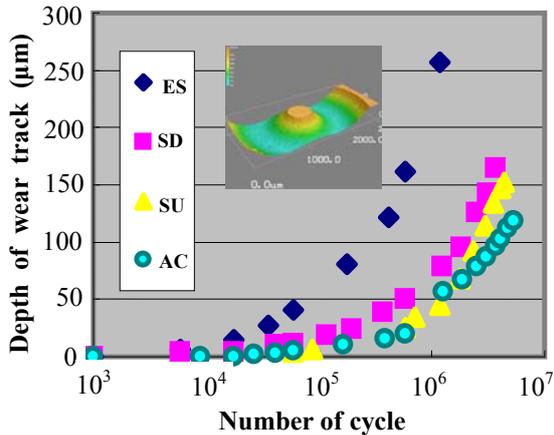


図1 Wear track の深さと繰返し回数

各試料の 37°C における G' の値は、それぞれ $1.41 \sim 11.2\text{GPa}$ の範囲であった。また、その $\tan\delta$ 値は $0.032 \sim 0.090$ の範囲であり、 G' の値が大きいものほどその $\tan\delta$ 値は低い傾向を

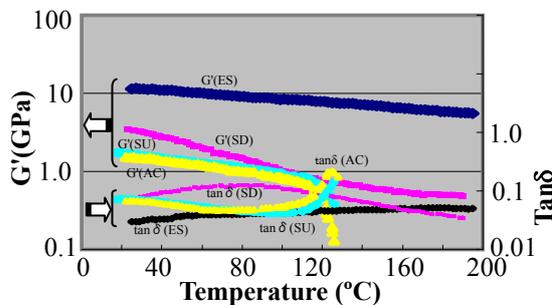


図2 動的ずり弾性率(G')および動的損失率($\tan\delta$)と温度

示した(図2)。他方、 37°C 蒸留水中で保管した各試料のHvの値は、 $19.8 \sim 184$ の範囲であった。各材料の無機質含有量は、2種類の歯冠用レジンで 54.7 ± 0.11 (ES)と 88.8 ± 0.06 (SD)であった(図3)。本実験の結果、表面接触疲労により、4種の材料中で G' およびHvが最大値を示すESの損傷が激しく、今回、評価の基準とした同一繰返し接触回数で比較したくぼみも最大値を示した(図4)。

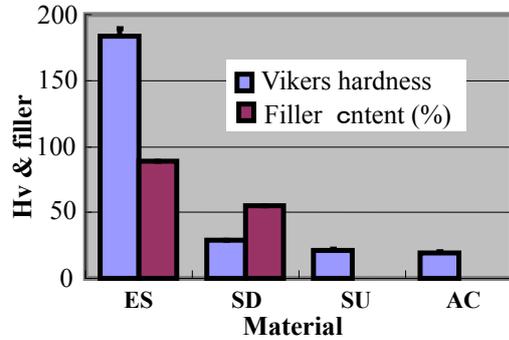


図3 硬さ (Hv) およびフィラー含有率(%)

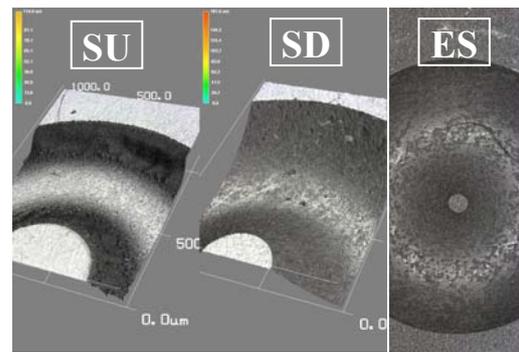


図4 ES, SD, SUのWear trackの拡大図(ACはSUと同様な表面性状を示す)

測定に3種の人工歯(Livdent porcelain 略号 LP; Surpass 略号 SP; Acrylic teeth 略号 AT, GC)試料を使用した場合、 $5\mu\text{m}$ のくぼみを生じる接触回数は、上記で述べたようなES, SD, ACでは $5.88 \times 10^3 \sim 8.82 \times 10^4$ 回であったのに対して、各人工

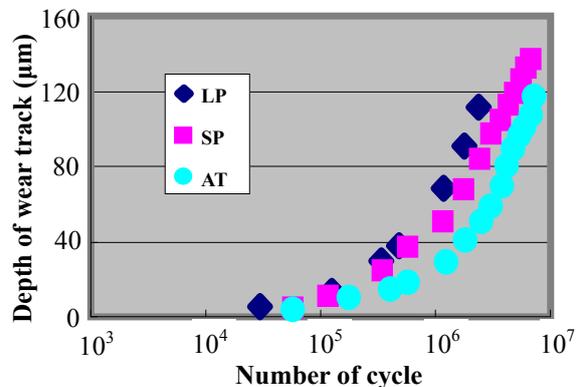


図5 Wear track の深さと繰返し回数

歯試料では $3.1 \times 10^4 \sim 5.88 \times 10^4$ 回であった(図5)。結果より、歯冠用レジンと同様に人工歯でも微小表面接触疲労により、硬さ値(LP: 377; SP: 16.8; AT: 18.6)が大きいものほどWear trackは深く、表面劣化の大きいことが示唆された。

また、3種類の歯科用貴金属系合金(Casting gold M.C. Type 1 & 4, Castwell M.C.12% gold, GC; 略号 T-1 & T-4, 12GS)を溶体化処理(700°C、30min)したものを試料として用いた場合(図6)、5 μmのくぼみが生じた回数、T-1、T-4、および12GSでは $10^3 \sim 10^4$ 回の範囲であった(図7)。その後、繰返し接触回数の増加により、疲労摩耗によると考えられる損傷は増大した。なお、用いた3種類の材料とも、Wear trackの断面形状は上記で述べた歯冠用レジン、アクリルレジン、人工歯などの有機系材料、コンポジットレジン、陶歯等と明らかに異なり(図4)、金属材料特有の延性的性質が認められた(図8&9&10)。

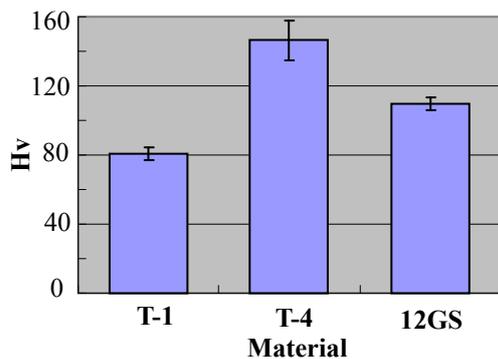


図6 溶体化処理後の3種類の貴金属系合金の硬さ(Hv)

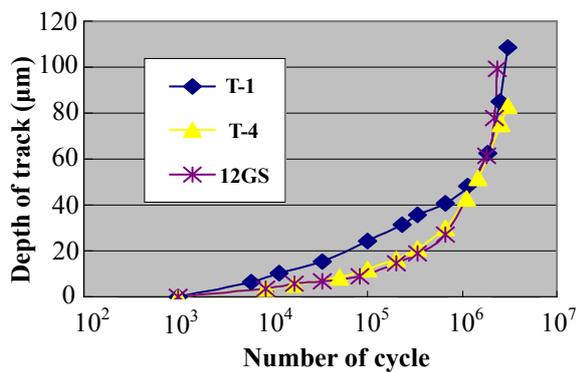


図7 Wear trackの深さと繰返し回数

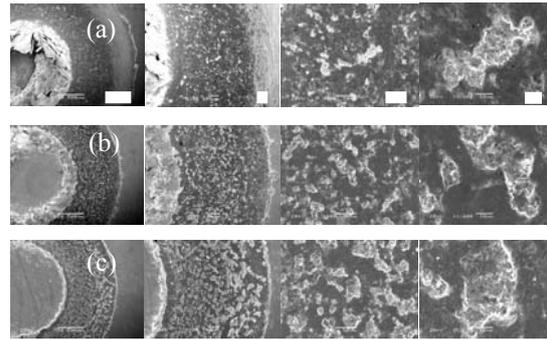


図8 Wear track surfaceの拡大図(左から50、100、200、400倍)
(a) T-1: 1.14×10^6 回後
(b) T-4: 3.02×10^6 回後
(c) 12GS: 2.33×10^6 回後

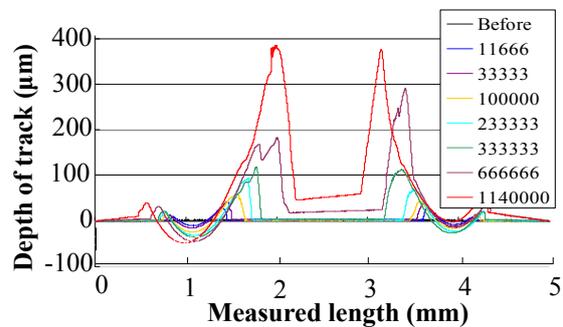


図9 断面形状の繰返回数に伴う変化(T-1)

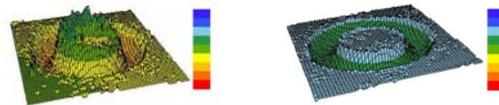


図10 Wear trackの三次元形状(左側(T-4): 繰返回数 3.02×10^6 回後; 右側(12GS): 繰返回数 2.33×10^6 回後)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

- ① Arikawa H, Shinohara N, Hideo Takahashi H, Kanie T, Fujii K and Ban S. Light transmittance characteristics and refractive indices of light-activated pit and fissure sealants, Dent Mater J 2010; 29(1):89-96. (査読有)
- ② Arikawa H, Kanie T, Fujii K, Takahashi H, and Ban S. Effect of inhomogeneity of light from light curing units on the surface hardness of composite resin. Dent Mater J

2008; 27 (1):21-28. (査読有)

〔学会発表〕(計 12 件)

- ① 藤井孝一、南 弘之、有川裕之、井上勝一郎、歯科用材料の微小表面接触疲労の検討、平成 21 年度(社)日本補綴歯科学会九州支部学術大会：抄録集：P31、平成 21 年 10 月 11 日(日)、福岡県歯科医師会館
- ② 藤井孝一、南 弘之、有川裕之、蟹江隆人、伴 清治、市販商用レジンの動的粘弾性によるガラス転移の評価、平成 21 年度第 54 回日本歯科理工学会：歯科材料・器械 28 (5)：246、2009、平成 21 年 10 月 1 日、(鹿児島市：かごしま県民交流センター)
- ③ 野田誠、奥田祐司、有川裕之、蟹江隆人、藤井孝一、伴清治、ジルコニアの耐酸性、平成 21 年度第 53 回日本歯科理工学会：歯科材料・器械 28 (2)：114、2009、平成 21 年 4 月 11 日、(東京都：タワーホール船堀)
- ④ 藤井孝一、南 弘之、有川裕之、蟹江隆人、伴清治、歯科用修復材料の表面接触疲労の一評価法、平成 21 年度第 53 回日本歯科理工学会：歯科材料・器械 28 (2)：59、2009、平成 21 年 4 月 11 日、(東京都：タワーホール船堀)
- ⑤ 有川裕之、篠原直幸、蟹江隆人、藤井孝二、伴清治、歯科用光照射器の照射特性に関する研究—光量班の軽減とその効果について—、平成 21 年度第 53 回日本歯科理工学会：歯科材料・器械 28 (2)：52、2009、平成 21 年 4 月 11 日、(東京都：タワーホール船堀)
- ⑥ 有川裕之、篠原直幸、蟹江隆人、藤井孝二、伴清治、高効率光増感剤が光重合型レジンの色調に及ぼす影響、平成 20 年度第 52 回日本歯科理工学会：歯科材料・器械 27 (5)：366、2008、平成 20 年 9 月 20 日、(豊中市：千里ライフサイエンスセンター)
- ⑦ Minami H, Kurashige H, Fujii K, Suzuki S and Tanaka T. Effect of irradiation period on toothbrush wear of restorative materials, 86th GENERAL Session & Exhibition of the IADR 32nd Annual Meeting of the CADR, Metro Toronto Convention Centre, Canada, JULY 2-5, 2008.
- ⑧ 有川裕之、蟹江隆人、藤井孝一、伴清治、光重合型フィッシャーシーラントの光学的性質、平成 20 年度第 51 回日本歯科理工学会：歯科材料・器械 27 (2)：213、2008、平成 20 年 4 月 26 日、(横浜市：鶴見大学)
- ⑨ 藤井孝一、南 弘之、有川裕之、蟹江隆人、伴清治、歯冠用硬質レジンの動的粘弾性に及ぼす光照射時間の影響、平成 20 年度第 51 回日本歯科理工学会：歯科材料・器械 27 (2)：156、2008、平成 20 年 4 月 26 日、(横浜市：鶴見大学)
- ⑩ Minami H, Kurashige H, Fujii K, Suzuki S and Tanaka T. Use of powered toothbrush with oscillating-rotating brush head to evaluate wear behavior of resin composites. International Dental Materials Congress 2007, Nov. 24, 2007, Bangkok.
- ⑪ Fujii K, Minami H, Arikawa H, Kanie T and Ban S. Dynamic viscoelastic properties and Degree of conversion of resin-based restorative materials. International Dental Materials Congress 2007, Nov. 23, 2007, Bangkok.
- ⑫ Arikawa H, Kanie T, Fujii K and Ban S. Effect of the inhomogeneity of light from light-curing units on the surface hardness of composite resin. International Dental Materials Congress 2007, Nov. 23, 2007, Bangkok.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤井 孝一 (FUJII KOUICHI)
鹿児島大学・大学院医歯学総合研究科・准教授
研究者番号：60156817

(2) 研究分担者

有川 裕之 (ARIKAWA HIROYUKI)
鹿児島大学・大学院医歯学総合研究科・助教
研究者番号：90128405

南 弘之 (MINAMI HIROYUKI)
鹿児島大学・医学部・歯学部附属病院・講師
研究者番号：50244257