

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：13101

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2021

課題番号：19K24114

研究課題名(和文) ロングスパンブリッジ用新規CAD/CAM用レジンの開発およびその臨床応用

研究課題名(英文) Development and clinical application of short SiC fiber reinforced composite resin for dental CAD/CAM which can be used for long span bridges.

研究代表者

高 昇将 (Taka, Norimasa)

新潟大学・医歯学総合病院・助教

研究者番号：00846082

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、優れた機械的強さおよび化学的安定性を持つ炭化ケイ素(SiC)繊維の短繊維を強化材として用い、CAD/CAMシステムで利用可能かつガラス繊維強化型レジンより高い機械的強さを持つ繊維強化型レジンの開発を行った。
SiC短繊維を繊維強化材として用いる場合、適切な繊維長は2.0 mmであること、SiC短繊維強化型レジンの機械的強さを向上させるために市販シランカップリング処理剤が有効であること、100℃温水中に28日保管した後も機械的強さは減少しないことが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で試作したSiC短繊維強化型レジンには、ガラス繊維強化型レジンより少ない繊維含有量で同等以上の曲げ強さを確保できること、口腔内の使用に耐えうる長期耐久性を有することが示唆された。これらの結果から、補強効果に優れるSiC長繊維と力学的等方性を発揮するSiC短繊維を組み合わせることで、力学的等方性および化学的安定性を持ち、更に高い機械的強さを発揮する高分子複合材料の開発が可能であると考えられる。これにより、歯の欠損が広範囲に及んだ場合でも、歯科用合金を使用しない固定性補綴装置による欠損補綴治療が安価に、かつCAD/CAMシステムを用いて簡便に実現できるようになる可能性が示唆された。

研究成果の概要(英文)：Experimental silicon carbide (SiC) short fiber reinforced dental resin indicated superior mechanical properties to glass-fiber reinforced dental resin. It was effective that commercial silane coupling agent to adhere SiC short fiber to dental resin. Furthermore, due to results of long-term durability tests by hot water storage for 28 days, it was suggested that SiC short fiber reinforced dental resin has long-term durability and it could be applied to clinical use.

研究分野：歯科理工学

キーワード：SiC繊維 短繊維強化型レジン

1. 研究開始当初の背景

近年、保険診療において用いられている歯科用合金の価格高騰が著しく(図1)国の医療費を圧迫している。このため、歯科用合金の代替としてガラス繊維強化型レジンを用いた、高強度硬質レジブリッジによる欠損補綴治療が2018年に保険適用となった。しかしながら、機械的強さが充分でないため、下顎第二小臼歯欠損に対する3ユニットブリッジに適用範囲が限定されている。また、歯科診療のデジタル化が進んでおり、CAD/CAMシステムに

(\$/トロイオンス)

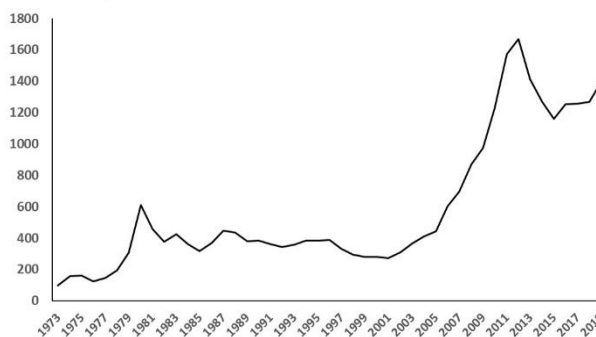


図1. 金の取引価格推移

よる歯冠補綴物や歯冠修復物の作製が推進されている中、高強度硬質レジブリッジは構成要素であるガラス繊維の長繊維の配向を考慮する必要があることから、歯科技工士がハンドメイドで製作する必要がある。このことから、CAD/CAMシステムで利用可能かつガラス繊維強化型レジンよりも高い機械的強さを持つ材料の開発が必要である。

CAD/CAMシステムで利用可能かつ高い機械的強度を持つ材料としてはセラミックスがあり、生体親和性、機械的強さ、耐久性、審美性が優れているため、歯科臨床において用いられている。具体例としてはジルコニアが挙げられるが、焼結体の状態では高い硬度から加工に難があるため、半焼結体の状態で加工し、その後焼結する必要がある。ジルコニアは焼結する際の体積収縮が約20%と大きいこと、高温で焼成する必要があることから専用の設備が必要であり、設備投資および維持費に多額のコストが必要な点が問題である。また、ジルコニアはその高い硬度から、歯冠補綴物調整後の研磨が不十分な場合、対合歯を著しく摩耗させてしまう。口腔内は日々状態が変化していくため、咬合調整が必要になってくる事がある。しかしながら、ジルコニアの場合口腔内で咬合調整を行った後の仕上げ研磨ができないため、口腔内での咬合調整ができない点も問題点として挙げられる。

他にCAD/CAMシステムで用いられている材料として、コンポジットレジブロック(以下CAD/CAMブロック)が挙げられる。CAD/CAMブロックは、焼成する必要がないため体積収縮を考慮する必要がないものの、補強材として用いられているガラス球状フィラーが、酸により劣化、もしくは加水分解してしまうため、長期耐久性に問題がある。また、現状では機械的強さが充分でないため、欠損補綴治療には用いられず、単冠での使用に限定されている。

一方、現在歯科臨床で用いられているガラス繊維強化型レジンの主な補強材はガラス長繊維である。繊維強化材は一般に長繊維の方が短繊維よりも補強効果に優れるが、長繊維は力学的異方性を持つため、種々の方向から力のかかる口腔内の使用には問題があると言える。他にも、力学的異方性があるため設計上の制約が生じてしまい、CAD/CAMシステムでの利用は困難である。このため、力学的等方性を確保できる短繊維を繊維強化材として使用したいが、ガラス繊維の短繊維は補強効果が不十分であるため、ガラス短繊維を補強材として用いた歯科用高分子材料はほとんど実用化されていない。

そこで申請者は、ガラス繊維より引張弾性率が高く(ガラス繊維が75 GPa、炭化ケイ素繊維が200 GPa)、化学的安定性に優れる炭化ケイ素繊維(以下SiC繊維)であれば、短繊維として使用してもガラス長繊維と同程度以上の補強効果を発揮することができ、CAD/CAMシステムで使用可能な新規繊維強化型レジンが開発可能なのではないかと考えた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、ガラス繊維強化型レジンより優れた機械的強さを持ち、歯科診療のデジタル化に対応可能な高い機械的強さと力学的等方性を両立した、CAD/CAMシステム用SiC短繊維強化型レジンの開発である。

3. 研究の方法

材料

繊維強化材として酸素を10 mass%含有するSiC繊維(Nicalon)を実験に供した。SiC繊維の直径は1本あたり約10 μmで、500本1で束になるようポリビニルアルコールでサイジングされている。SiC繊維表面にサイジング剤が付着しているとSiC繊維の表面処理をすることができないため、約100の湯を流してポリビニルアルコールをSiC繊維表面から除去した。表面に残存した水分はペーパータオルを用いて大まかに拭き取った後、室温大気中で1日風乾した。

マトリックスレジンには主成分としてウレタンジメタクリレート(UDMA)、UDMA単体では粘性が

高く、繊維間に浸透していかないことから希釈剤としてトリエチレングリコールジメタクリレートを提供し、それぞれ70:30 mass%で混合した。これに重合促進剤としてN,N-ジメチルアミノエチルメタクリレート(1.0 mass%)、光増感剤としてカンファーキノン(0.5 mass%)を加えて攪拌し、光重合型として、試作SiC繊維強化型レジンのマトリックスレジンとした。

SiC繊維とマトリックスレジンとを化学的に接着させるためには、SiC繊維の表面に存在するシラノール基に対するシランカップリング処理が有効であることが予備研究にて明らかになっている。本研究では歯科臨床で用いられている市販シランカップリング処理剤(セラミックプライマー、ジーシー)をシランカップリング処理に用いた。SiC繊維表面のポリビニルアルコールを除去した後、SiC繊維を短繊維に切断し、その後メーカー指示に従い、セラミックプライマーをSiC繊維に塗布して風乾し、シランカップリング処理した。

試験片作製

まずガラス板を用意し、その上にプラスチックマトリックスを配置した。マトリックスの上にISO4049:2009に準拠した形状の2.00×2.00×25.0 mmの金型を乗せ、金型内にSiC繊維を配置し、その上からマトリックスレジンを注入した。更にこの上に気泡が混入しないよう、プラスチックマトリックスおよびガラス板を乗せ、技工用光重合器を用いて金型の開口部からそれぞれ3分ずつ、計6分光照射した。照射後、#600の研磨紙にて乾式研磨したものを試験片とした。

機械的強さの計測

万能試験機を用い、ISO4049:2009に準拠した条件で3点曲げ試験を行った。

統計解析

得られた試験結果は一元配置分散分析後、有意差が認められた場合にTukey's HSD testを行った($p < 0.05$)。

破断面観察

SiC繊維とマトリックスレジンが接着していることを確認するため、3点曲げ試験後の破断面をSEM画像にて観察した。

4. 研究成果

SiC短繊維の適切な繊維長の決定

SiC短繊維の適切な繊維長を決定するため、繊維長を0.5 mm、1.0 mm、2.0 mm、3.0 mmとし、3点曲げ試験により機械的強さを計測した。結果を図2に示す。同一アルファベット間では統計学的有意差が認められなかった。SiC短繊維の繊維長が2.0 mmおよび3.0 mmの場合、3点曲げ強さおよび曲げ弾性係数が有意に高値を示した。また、破断面観察よりSiC短繊維にマトリックスレジンが接着している像が観察された。

繊維長が長くなると補強効果は上がるが力学的等方性は失われてしまう。上記の結果より、2.0 mmと3.0 mmでは機械的強さに有意差は認められなかったため、機械的強さと力学的等方性を両立するためには繊維長2.0 mmが適切であることが示唆された。

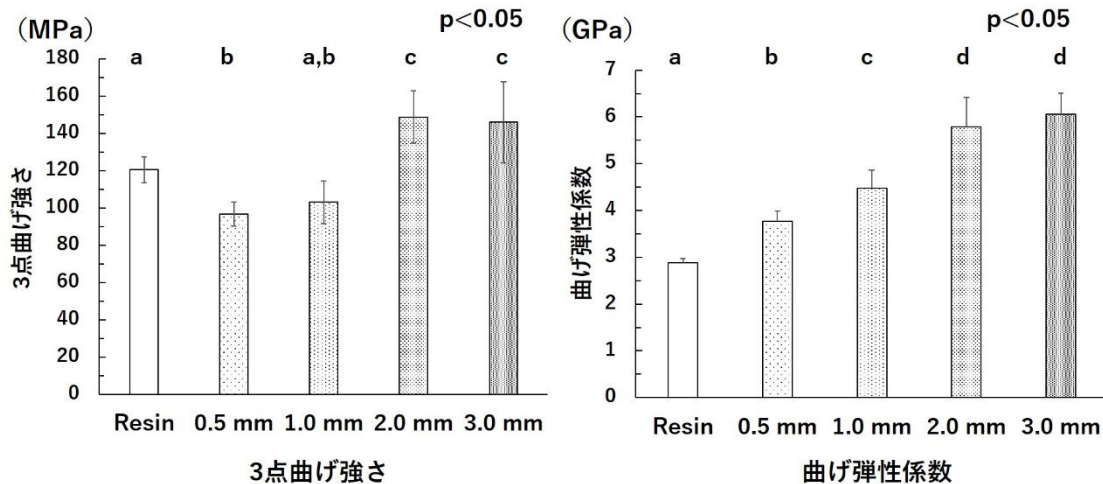


図2. SiC短繊維強化型レジンの機械的強さ

長期耐久性の評価

長期耐久性評価のため、マトリックスレジンおよびSiC繊維強化型レジン(100水中)に0, 1, 7, 14, 28日間保管し、機械的強さの変化を検証した。結果を図3および図4に示す。

図2より、マトリックスレジン(0日保管群-28日保管群の間、1日保管群-28日保管群の間)に有意差が認められた。図3より、SiC繊維強化型レジン(0日保管と1日、7日、14日および28日保管の間)にそれぞれ有意差が認められた。1日、7日、14日および28日間保管の間には有意差は認められなかった。マトリックスレジン(0日保管群-28日保管群の間)の曲げ強さが温水保管により有意に高くなったのは、温水保管によりマトリックスレジン中の未重合レジン(未重合レジン)の重合度が上昇したことによるもの

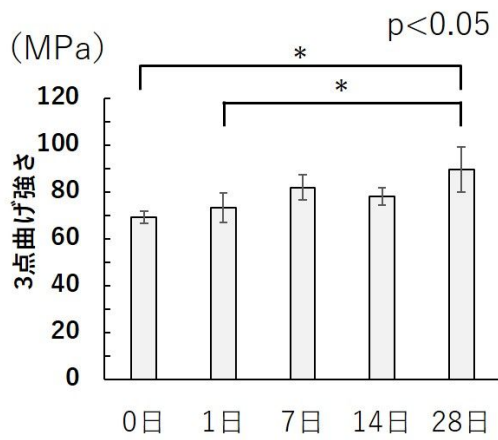


図3. 100°C水中保管後の

マトリックスレジンの曲げ強さ

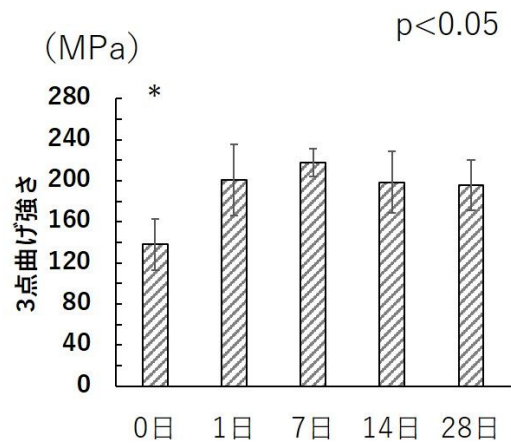


図4. 100°C水中保管後の

試作SiC繊維強化型レジンの曲げ強さ

のと考えられる。SiC 繊維強化型レジンは 28 日間 100 °C 水中に保管しても機械的強さが有意に低下しなかったことから、SiC 繊維強化型レジンは口腔内での使用に耐えうる長期耐久性を有することが示唆された。

本研究において試作した SiC 短繊維強化型レジンは市販歯科用コンポジットレジンより優れた機械的強さを発揮した。また、少ない繊維含有量で優れた補強効果を発揮したことから、今後、より繊維含有量を増加させる方法を検討する、あるいは SiC 長繊維と SiC 短繊維を組み合わせることにより、より高い機械的強さと力学的等方性を両立する材料の開発を予定している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 高 昇将, 三井田慶斗, 木村龍弥, 青柳裕仁, 金谷 貢, 魚島勝美
2. 発表標題 歯科用高分子材料を強化するために必要な炭化ケイ素短繊維の繊維長の検討
3. 学会等名 令和2年度(公社)日本補綴歯科学会関東支部学術大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高 昇将, 木村龍弥, 三井田慶斗, 青柳裕仁, 金谷 貢, 小川祐司
2. 発表標題 炭化ケイ素の短繊維による歯科用高分子材料の補強効果についての検討
3. 学会等名 日本歯科理工学会第76回学術講演会（関東・中部地方会 合同学術講演会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高 昇将, 木村龍弥, 三井田慶斗, 青柳裕仁, 金谷 貢
2. 発表標題 炭化ケイ素繊維への市販シランカップリング処理剤を用いたシランカップリング処理が繊維強化型レジンの曲げ強さに及ぼす影響について
3. 学会等名 第39回日本接着歯学会学術大会
4. 発表年 2020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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------