

令和 6 年 6 月 20 日現在

機関番号：13101

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K17019

研究課題名（和文）SiC長繊維と短繊維を組み合わせた力学的等方性を持つ新規繊維強化型レジンの開発

研究課題名（英文）Development of isotropic fiber reinforced resin containing silicon carbide long and short fiber.

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） 2,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究の目的は高分子複合材料を修復物の材料として用いる欠損補綴治療の適応範囲拡大のため、ガラス繊維より機械的強度に優れた炭化ケイ素繊維を用いた新規高分子複合材料（SiCFRP）の開発である。

本研究を通して、1)長繊維は引張側、短繊維は圧縮側に配置するとSiCFRPの機械的強度を保ちつつ力学的等方性を付与できる可能性があること、2)SiCFRPは臨床応用に耐えうる長期耐久性を持つこと、3)現在歯科治療で金属の色を遮蔽するために用いられているオパークレジンにより、SiCFRPの黒色は遮蔽可能であること、を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で試作した炭化ケイ素（SiC）の長繊維と短繊維を歯科用高分子材料と複合化したSiC繊維強化型レジン（SiCFRP）は、ガラス繊維強化型レジンよりも少ない繊維含有率で同程度の3点曲げ強さを示し、さらに、沸騰水中で優れた長期耐久性を示した。

また、現在歯科治療に用いられている前装金属冠を製作する場合と同程度のオパークレジン（OP）の厚みで、SiCFRP繊維強化型レジン（SiCFRP）の色が遮蔽可能であった。

以上より、本研究で試作したSiCFRP繊維強化型レジン（SiCFRP）は、ガラス繊維強化型レジン（GRF）の代替として、繊維強化型レジン（FR）を修復物の材料に用いた欠損補綴治療の適応範囲の拡大に寄与することが示唆された。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study was to develop a new fiber reinforced resin containing silicon carbide fibers, which have superior mechanical properties to glass fibers, in order to expand the range of application in which polymer composite materials are used as materials for restorations in prosthetic treatment.

Through this research, the following findings were obtained: 1) long fibers should be placed on the tensile side and short fibers on the compressive side to give high mechanical isotropy while maintaining the mechanical strength of SiCFRP, 2) SiCFRP has long-term durability to withstand clinical applications, 3) The black color of SiCFRP can be masked by opaque resin, which is currently used to mask the color of metal in dentistry.

研究分野：歯科理工学分野

キーワード：炭化ケイ素繊維 短繊維 長繊維 繊維強化型レジン

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

本邦では健康保険制度の兼ね合いから、歯科治療における金属修復物の材料として金銀パラジウム合金が広く使用されている。しかしながら、近年貴金属の価格高騰や歯科治療のデジタル化の推進に伴い、金銀パラジウム合金をはじめとした金属に代わる材料の使用が拡大しつつある。

具体的には、各種フィラーを歯科用高分子材料と複合

化し、それを高圧高温下で重合して作製される CAD/CAM レジンブロック、ガラス繊維と歯科用高分子材料を複合化したガラス繊維強化型レジンを用いて作製されるファイバーポストや高強度硬質レジンブリッジなどがある。高強度硬質レジンブリッジは欠損補綴治療に利用可能だが、ガラス繊維強化型レジンの機械的強度の限界から、その適用範囲は、第二小臼歯を失った場合の第一小臼歯と第一大臼歯を支台歯としたブリッジ(上下左右の第二大臼歯が残存している場合)に限られている。また、高強度硬質レジンブリッジはガラス繊維の長繊維とガラス繊維を網目状に編んだものを組み合わせて補強材としているが、長繊維を補強材として用いた場合の問題点として力学的異方性がある。ガラス繊維やカーボンファイバーなどの長繊維を補強材として用いた場合の力学的異方性とは、繊維と直交する方向からの力には優れた補強効果を発揮するが、繊維と平行な方向からの力には補強効果をほとんど発揮しない性質のことである。口腔内では修復物や補綴物に対し、様々な方向から咬合力が加わるため、力学的異方性の有る材料では、修復物の偶発的な破損のリスクが高くなってしまふ。このため、力学的等方性のある材料が望ましい。

繊維強化型レジンにおいて力学的等方性を確保するためには、長繊維ではなく短繊維を補強材として用いれば良い。しかしながら、短繊維は長繊維より補強効果が劣るため、ガラス繊維の短繊維を補強材として含む繊維強化型レジン、充填用材料および築造用材料として主に用いられている。

そこで、ガラス繊維よりも機械的性質および化学的安定性に優れた炭化ケイ素繊維(以下 SiC 繊維)の長繊維と短繊維を歯科用高分子材料と複合化することにより、優れた機械的強度、化学的安定性および力学的等方性を兼ね備えた新規複合材料の開発が可能であると考えた。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、現在歯科臨床で用いられているガラス長繊維強化型レジンの代替として利用可能な、SiC 長繊維と SiC 短繊維を補強材として含む、優れた機械的強度、化学的安定性および力学的等方性を兼ね備えた新規繊維強化型レジン開発である。

### 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 繊維が酸素を含有することで、繊維に対するシランカップリング処理が可能になり、繊維-マトリックスレジン間の化学結合を得ることができる。

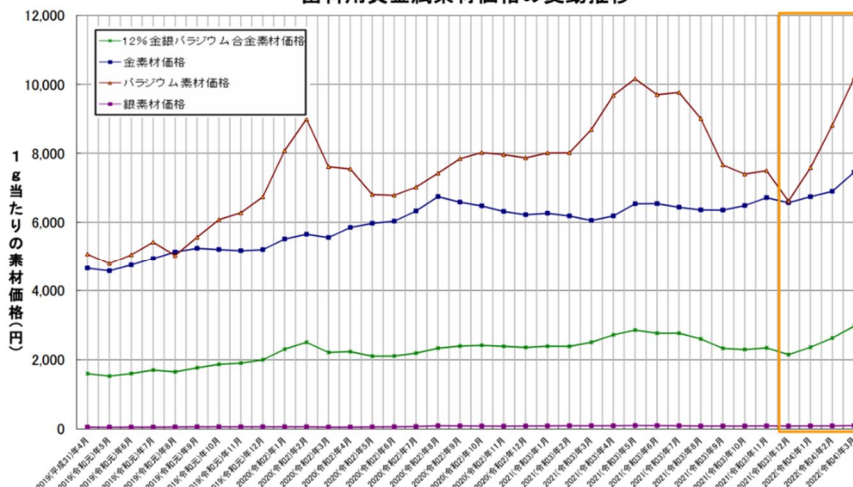
マトリックスレジンには、主成分としてウレタンジメタクリレート(UDMA)を供し、UDMA 単体では粘性が高く繊維間に浸透していかないことから希釈剤としてトリエチレングリコールジメタクリレートを添加し、それぞれ 70:30 mass%で混合した。これに重合促進剤として N,N'-ジメチルアミノエチルメタクリレートを 1.0 mass%、光増感剤としてカンファーキノン を 0.5 mass% 加えて攪拌し、光重合型として、試作 SiC 繊維強化型レジンのマトリックスレジンに供した。

試作 SiC 繊維強化型レジンの色調遮蔽に必要なオパークレジンの厚みの評価においては、市販オパークレジンであるクリアフィルオパーカー US を供した。

#### 試験片作製(機械的性質の評価)

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。その上に JIS T 6517:2011 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

歯科用貴金属素材価格の変動推移



<https://www.mhlw.go.jp/content/12404000/000928336.pdf>より引用

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分照射した。照射後、#600の研磨紙にて乾式研磨して形態修正し、37℃水中に24±1時間浸漬したものを試験片として実験に供した。

#### 機械的性質の測定

万能試験機を用い、JIS T 6517:2011に準拠した条件（支点間距離 20.0mm、クロスヘッドスピード 1 mm/min）で3点曲げ試験を行った。

#### 試験片作製（色調遮蔽に必要なオパークレジンの厚みの評価）

引張側にSiC長繊維を、圧縮側にSiC短繊維を配置した厚み2.0 mmの試作SiC繊維強化型レジンを用意した。この上にクリアフィルオパーカーUSを厚み2.0 mmで築盛した後、技工用光重合器を用いて3分間照射、5分間加熱して重合し、色調評価の試験片として供した。

色調の基準として厚み2.0 mmのクリアフィルオパーカーUSの重合体を用意し、これを標準色板とした。

#### 色調の測定および色調遮蔽に必要なオパークレジンの厚みの評価

基準となる標準色板の色調(L\*, a\*, b\*)を、分光測色計(Nix Spectro 2)を用いて、D55光源、視野角2°の条件下にて測定した。続いて試験片のクリアフィルオパーカーUS層を研磨により2.0 mmから0.1 mmずつ減じ、各々の厚みにおける色調を標準色板と同様の条件下で測定した。得られた値の差から色差E\*abを算出し、色調遮蔽に必要なオパークレジンの厚みを評価した。

#### 統計解析

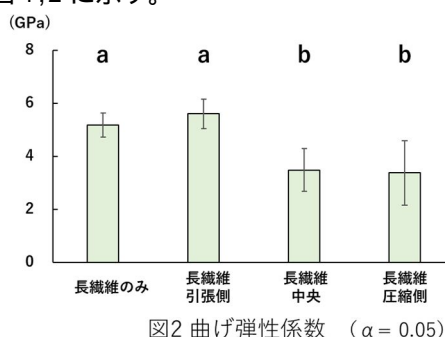
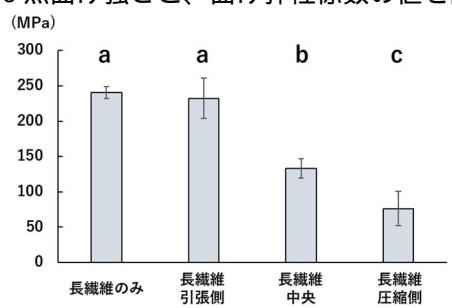
機械的性質および長期耐久性の評価に関する実験において、得られた試験結果は一元配置分散分析後、有意差が認められた場合にTukey's HSD testを行った(p<0.05)。

## 4. 研究成果

### 長繊維と短繊維の配置による機械的性質の変化

SiC長繊維とSiC短繊維の配置について検討するため、補強効果に優れる長繊維を1)圧縮側、2)引張側、3)圧縮側と引張側の中間、にそれぞれ配置し、SiC長繊維を配置していない空間にはSiC短繊維を配置したSiC繊維強化型レジンを用いて試験片を試作し、3点曲げ試験に供した。

繊維含有量はSiC長繊維とSiC短繊維の合計が3vol%となるようにし、SiC長繊維のみを繊維強化材として用いた繊維強化型レジンの機械的強度について検討した先行研究と同一条件とした。3点曲げ強さと、曲げ弾性係数の値を図1,2に示す。



同じアルファベット間には統計学的有意差なし

3点曲げ強さは長繊維を引張側に配置した場合に最も高く、圧縮側に配置した際に最も低かった。弾性係数についても同様にSiC長繊維を引張側に配置した場合に最も高かった。また、先行研究で得られたSiC長繊維のみを繊維強化材として用いた試験片の機械的強さと、本研究で試作したSiC長繊維を引張側に配置した試験片のそれは同等であった。

### 長期耐久性の評価

リービヒ冷却管を用いた沸騰水中への試験片の長期浸漬により、試作SiC繊維強化型レジンの長期耐久性を評価した。シランカップリング処理したSiC繊維を含む試作SiC繊維強化型レジンを用いて作製した試験片を、沸騰水中に0, 1, 7, 14, 28日浸漬した後に3点曲げ強さを測定し、得られた値の変化から長期耐久性を評価した。結果を図3に示す。試験片を28日間沸騰水中に浸漬した後も3点曲げ強さの減少は認められなかった。このことから、試作SiC繊維強化型レジンが口腔内での使用に耐えうる長期耐久性を持つことが示唆された。

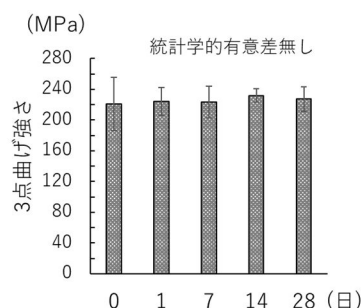


図3 沸騰水中に浸漬した後の試作SiC繊維強化型レジンの3点曲げ強さ

### 色調遮蔽について

試作SiC繊維強化型レジンにSiC繊維の色である黒色を呈するため、臨床応用にあたり黒色を

遮蔽し歯冠色に近づける必要がある。そこで、歯科臨床において前装金属冠の製作の際、金属色を遮蔽するために使用されているオパークレジンを用いて試作 SiC 繊維強化型レジンの色の遮蔽に必要なオパークレジン の厚みについて検討した。

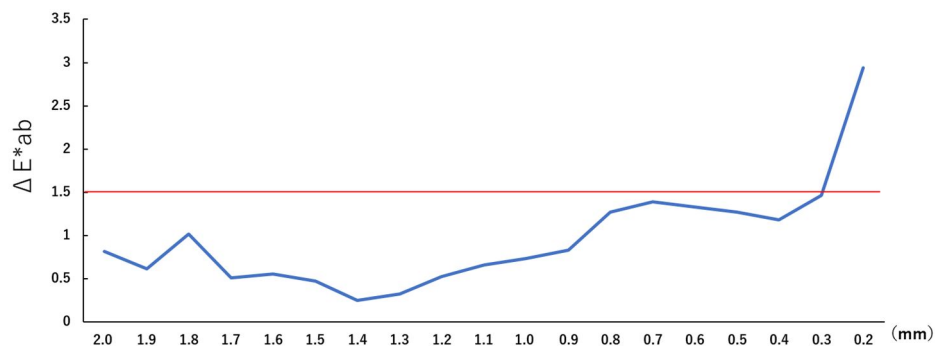


図4 オパークレジン (US) の厚さ毎の標準色板との色差

“色調に差が有る”と判断する色差  $E^*ab$  の値は、先行研究をもとに色差  $E^*ab = 1.5$  とした。結果を図4に示す。オパークレジン の厚さを研磨により減じていき、厚みが0.2mmとなったところで色差  $E^*ab$  が1.5を上回った。これより、クリアフィルオパーカーUSを使用して試作SiC繊維強化型レジンの色調を遮蔽するには0.3mm以上の厚みが必要であることが示唆された。これは先行研究で得られていたレジン前装金属冠の金属色の遮蔽に必要な厚みと同等であった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Taka Norimasa, Aoyagi Yujin, Miida Keito, Kanatani Mitsugu, Ogawa Hiroshi	4. 巻 15
2. 論文標題 Effect of Silicon Carbide Fiber Length on the Flexural Strength and Flexural Modulus of Short Silicon Carbide Fiber-Reinforced Resin	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of Functional Biomaterials	6. 最初と最後の頁 30 ~ 30
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/jfb15020030	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1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, 小川祐司
2. 発表標題 炭化ケイ素繊維強化型レジンの長期耐久性の評価
3. 学会等名 日本歯科理工学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Norimasa TAKA, Yujin AOYAGI, Keito MIIDA, Tatsuya KIMURA, Mitsugu KANATANI, Hiroshi OGAWA
2. 発表標題 Effect of silanization of durability of experimental SiC-fiber reinforced resin after hot water storage
3. 学会等名 Proceedings of International Dental Materials Congress (国際学会)
4. 発表年 2022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 炭化ケイ素繊維の短繊維と長繊維を同時に用いた際の補強効果の検討.
3. 学会等名 日本歯科理工学会 令和3年度秋期第78回学術講演会
4. 発表年 2021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
---------	---------