

鶴見大学大学院歯学研究科博士学位論文

内容の要旨および審査の結果の要旨

氏名(本籍) 岡田 浩一(岡山県)
博士の専攻分野 博士(歯学)
学位記番号 乙第251号
学位授与年月日 平成26年4月17日
学位授与の要件 学位規則第4条第2項該当
学位論文題目 A Novel Technique for Preparing Dental CAD/CAM Composite Resin Blocks using the Filler Press and Monomer Infiltration Method
(フィラープレス/モノマー含浸法によるCAD/CAM用コンポジットレジンブロックの新規な製造方法)
Dental Material Journal 第33巻 第2号 1~7頁掲載 平成26年3月31日発行
論文審査委員 主査 教授 桃井 保子
副査 教授 小川 匠 副査 教授 早川 徹

内容の要旨

【緒言】

近年、歯科補綴物の製作にCAD/CAM法が用いられており、コンポジットレジンの硬化物(CRブロック=CRB)を切削加工し、審美性の高いクラウンやインレー等の歯冠補綴物を作製することも行われるようになってきた。CRBの製造は、無機フィラーとモノマーを混練して得られたペースト状の組成物(コンポジットレジン)を重合硬化して、ブロック状に成型する方法が一般的である。しかしながらこの方法ではフィラーを高密度にかつ均一に充填することが困難である。本研究では、フィラープレス/モノマー含浸法(FPMI法)と言うCRBの新しい製造方法を開発した。これは、無機フィラー(粉末)をプレス成形して得たブロック状の成形体にモノマーを含浸させ、そのまま重合硬化を行ってCRBを製造する方法である。FPMI法で作製したCRBについて、粉末の加圧成形条件がブロック中のフィラーの分散状態や、曲げ強度に及ぼす影響を、従来の方法で作製したCRBと比較し検討した。

【材料と方法】

(1) 原材料

無機フィラーとして、 γ -メタクリロイロキシプロピルトリメトキシシランで表面処理した平均粒径40nmのシリカナノフィラーを用いた。モノマー組成物として、UDMA/TEGDMA/過酸化ベンゾイル/アシルホスフィンオキサイド化合物=49.48/49.48/0.99/0.05(wt%)を均一に溶解させた組成物を用いた。

(2) フィラーの加圧成形

24mm×33mmの容量を持つ一軸プレス用ステンレス金型に無機フィラーを充填し、テーブルプレス機で圧縮プレスを行った。プレス圧力は38MPaと76MPaの二水準で、プレス後に金型からフィラーのプレス成形体を取り出した。76MPaでプレスした成形体の一部は、冷間等方圧プレス機によりさらに170MPaで加圧した。

(3) フィラーのプレス成形体へのモノマーの含浸

無機フィラーのプレス成形体をモノマー組成物に浸漬した。室温で5日間経過後、モノマーがプレス成形体内部に浸透した半透明な含浸体を得られた。

(4) 重合硬化

含浸体を、歯科用光照射器で光硬化後、さらに120℃で2時間加熱し、半透明な板状硬化物(CRB)を作製した。38、76、170MPaのプレス圧力で得たCRBを、それぞれ、P1、P2、P3とする。

(5) 従来法によるペーストからのブロックの作成

比較対照として、無機フィラーを50重量%含むペースト状のコンポジットレジンを作製し、金型中で同様に重合硬化させてCRBを作成した(CP)。また、モノマー組成物だけを同様に重合硬化させたブロック(M)も作製した。

(6) 物性評価

得られたCRBに関して、曲げ強度(ISO4049に準拠)と強熱残分(600℃)による無機フィラー含有量を測定した。また、CPとP3のTEM観察を行った。

【結 果】

(1) 無機フィラー含有量とTEM観察

無機フィラー含有量は、CPで48.0重量%、P1、P2、P3はそれぞれ56.5、60.4、70.1重量%であり、従来法で得たCRBよりもFPMI法で得たCRBの方が無機フィラー含有量が高く、また、フィラーのプレス圧力が高いほどフィラー含有量が高くなった。CPとP3のTEM観察から、P3の方がシリカ粒子が著しく密に均一分散していることが認められた。

(2) 曲げ強度

Mは108 MPa、CPは143 MPa、P1、P2、P3はそれぞれ188、191、202 MPaであり、従来法で得たCRB(CP)よりも、FPMI法で得たCRBの方が有意に高い曲げ強度を示した($p < 0.05$)。また、P1、P2、P3の間に有意差は無かった($p > 0.05$)。曲げ弾性率はフィラー含有量と共に大きくなり、最も高いP3で10.1 GPaであった。

【考 察】

本研究では、フィラーのプレス成形体にモノマーを含浸させるFPMI法を用いてCRBを作製し、その物性について評価した。

フィラーのプレス成形体へのモノマーの浸透は、フィラー同士の隙間にモノマーが毛細管現象により染み込むことで達成されたと考えられる。モノマー含浸の前後でブロックのサイズは変わらなかったことから、モノマー含浸前後でフィラーのプレス成形体内部のマイクロ構造に変化は無かったことが推察される。モノマーが含浸した部分は見かけ上ほとんど透明で、これにより内部にモノマーが完全に浸透したことを目視で容易に確認できる。含浸体の重合は、クラックの発生を避けるために光重合を行った後に加熱重合を行うという二段階の重合を採用した。

従来の製造方法では、フィラーを配合するほどペーストの粘度が上昇して多量のフィラーを配合しにくくなる。特にフィラーの粒子径が小さくなるほどペーストの粘度上昇が著しく、本研究で用いたような平均粒径が40 nmという非常に粒子径の小さいフィラー、いわゆるナノフィラーを配合すると、フィラー含有量を上げることが非常に困難である。本研究でも、50重量%以上のフィラーを練りこむことはペーストの増粘のため困難であった。

一方、FPMI法ではペースト状のコンポジットを作製する必要が無いので、ペーストの増粘という問題は無く、従来よりもフィラー含有量が高いCRBを製造することが出来る。さらに、フィラーのプレス圧力が高いほど、フィラーが緻密に圧縮されてフィラー含有量が高いCRBを得ることができた。特に、170 MPaのプレス圧力で得たCRB(P3)は、フィラー含有量が70重量%を超え、これは、ナノフィラーだけを含む複合材料としては非常に高いフィラー含有量である。フィラーの分散性も良好であった。また、曲げ強度はFPMI法で得たCRBの方が従来法のCRBよりも有意に高く、機械的強度の面でもFPMI法は有用であると考えられる。

【結 論】

- ・無機フィラーをプレスして得たブロック状の成形体にモノマーを含浸させて、そのまま重合硬化を行うというCRBの新規な製造方法(FPMI法)を開発した。
- ・FPMI法で得たCRBは、ペースト状の組成物を重合硬化して得られたCRBよりもフィラー含有量が高く、曲げ強度にも優れていた。
- ・本研究では、無機フィラーとして粒径40 nmのナノフィラーを用いたが、170 MPaの圧力でフィラーをプレスして得たCRBは、フィラー含有量が70重量%に達し、曲げ強度も200 MPaを示した。
- ・本研究の方法で得られた、ナノフィラーが高密度に均一分散したCRBは、機械的強度が高く、CAD/CAM法を用いた切削加工で歯科補綴物を作製する際に有望な材料であると思われる。

審査の結果の要旨

CAD/CAM (computer-aided design and computer aided manufacturing: コンピューター支援設計/加工)の技術は、現在、歯科にDigital Dentistryという新たな領域を築くまでに発展している。CAD/CAMは、修復物や補綴装置に均一な

高品質が保たれること、製作工程が従来に比べ格段に省資源的であることを特長とする。平成 26 年度より、コンポジットレジンブロックを切削加工して歯冠補綴装置を作製する CAD/CAM の治療技術が、保険に導入された。これにより、本法は急速に一般臨床に普及すると思われ、現在、より優れたレジンプロックの研究開発が活発化している。

レジンプロックの作製には、無機フィラーとモノマーを混練し、これを重合硬化させる方法が用いられる。しかし、この従来法ではフィラーを高密度かつ均一に充填することが難しく、特に粒子径が小さいナノフィラーでは高密度均一分散はできない。このため、岡田氏はフィラープレス／モノマー含浸法という新たな製造法を考案した。これは、フィラーをプレスして得たブロックにモノマーを含浸させ、これを重合硬化させるという逆転的な発想より成る。本研究では、この方法で作製したレジンプロックのフィラー分散状態と機械的強度を従来法と比較し評価した。

材料には、無機フィラー（シラン処理した平均粒径 40 nm のシリカナノフィラー）とモノマー（UDMA/TEGDEMA/BPO/Lucirin TPO）を用いた。金型に無機フィラーを充填し 38 MPa と 76 MPa でプレス、一部はさらに 170 MPa でプレスした。この後、成形体をモノマーに室温で 5 日間浸漬、得られた含浸体を光・加熱重合し最終的なレジンプロックを得た。

本研究の結果、フィラープレス／モノマー含浸法によれば、レジンプロックにナノフィラーが高密度で均一に分散し得ることがわかった。フィラー含有量は 70 重量%に達し、プレス圧が高いほど含有量が高く、機械的強度は曲げ強さ 200 MPa、曲げ弾性率 10 GPa に達した。

以上、CAD/CAM 用コンポジットレジンプロックの新たな製造法を確立した点で、本研究は今後の歯科医療に大いに貢献するものとして高く評価できる。

よって、本論文は博士（歯学）の学位請求論文として十分な価値を有すると判定した。