

## 金属に代わる歯科用修復材料の創製を目指して



研究ノート

山口 哲\*, 今里 聡\*\*

Development of dental restorative materials substituting for metals

Key Words : Dental restorative materials, Composite resins, Multi-scale analysis, Maximum principal strain, Failure criteria

### はじめに

う蝕(むし歯)により生じた歯の欠損部を修復するための材料には、金属、セラミックス、コンポジットレジンなど様々なものがある。このうち、古くから利用されている金属は、機械的強度が高いものの天然歯とはかけ離れた色調であるため、最近では非常に重要な要件である患者の審美性に対する要求を満たすことができない。一方、コンポジットレジン(CR)は、レジンマトリックスにガラスフィラーを高濃度・高密度に配合した審美性材料で、添加されるフィラーもマクロ型からナノ型にいたるまで様々なタイプのもものが開発されており<sup>1</sup>、その性能の向上に伴って日常臨床での使用頻度がますます増加している。さらに、平成26年4月には、ナノフィラーを高密度に充填したCRを用いるCAD/CAM冠が保険適用になり、小臼歯の治療に使用され始めた。しかしながら、CRの物性は、金属代替材料と

して大臼歯部に広く使用されるには未だ十分とは言えず、機械的強度のさらなる向上が必要とされている。

本稿では、金属に代わる歯科用修復材料の創製を目指して、われわれがこれまでに取り組んできたいくつかの研究について概略を紹介する。

### マルチスケール解析

CRの機械的性質の向上に必要とされる要因は、フィラーの形状、種類、サイズや幾何学的配置などが挙げられるが、フィラーのサイズが小さいがゆえに、通常の実験では、どの要因がマクロな物性に影響を及ぼしているのかを検証することが困難であった。そこで、コンピュータ上でミクロ構造とマクロ構造との連携解析を可能にするマルチスケール解析に着目した。

マルチスケール解析は、大きく分けて、均質化解析、マクロ解析と局所化解析の3つのフローで構成されている。まず、均質化解析では、非均質なミクロ構造モデルを作製して、数値材料試験を行い、その試験データをもとに材料物性値を同定する。次に、マクロ解析では、同定された材料物性値をマクロ構造モデルに適用して解析する。最後に、局所化解析では、マクロ構造解析から一部の領域を切り出して結果を拡大し、ミクロ構造内の結果分布を評価する。さらに、従来の有限要素解析とは異なり、ボクセル(空間を小さな立方体で分割)を使用することから、メッシュ生成の必要がなく、複雑な構造を伴う大規模なモデルの解析が可能となる<sup>2</sup>。このマルチスケール解析を用いれば、CRの機械的性質の向上に必要な要因を効率的に比較検証できると考えられることから、われわれは、フィラーの形状、種類、サイズや幾何学的配置の各要因を個々に比較可能なモデルを作製し、これらの違いがマクロな物性に及ぼす



\* Satoshi YAMAGUCHI

1979年8月生  
大阪大学大学院基礎工学研究科卒  
(2006年)  
現在、大阪大学 大学院歯学研究科  
顎口腔機能再建学講座(歯科理工学教室)  
講師 博士(工学) 歯科理工学  
TEL: 06-6879-2919  
FAX: 06-6879-2919  
E-mail: yamagu@dent.osaka-u.ac.jp



\*\* Satoshi IMAZATO

1961年12月生  
大阪大学歯学部卒(1986年)  
現在、大阪大学 大学院歯学研究科  
顎口腔機能再建学講座(歯科理工学教室)  
教授 博士(歯学) 歯科理工学  
TEL: 06-6879-2915  
FAX: 06-6879-2915  
E-mail: imazato@dent.osaka-u.ac.jp

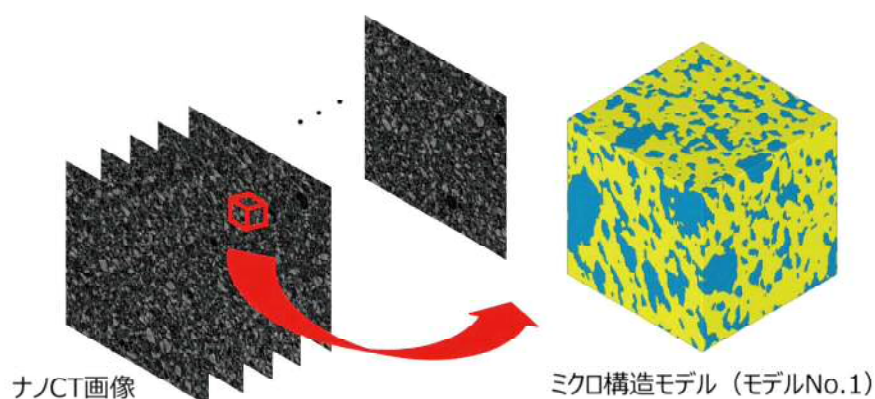


図1. ナノCT画像列から  $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$  の領域を抽出して再構成したマイクロ構造モデル

影響の検証を行った。

### CRの破壊基準

コンピュータ上で解析を行うにあたり、実際の材料を用いた実験と整合性がとれた結果を得るために最も重要となるのが破壊基準である。そこで、まず、市販品の組成を参考に、不定形のシリカガラスフィラーをレジンモノマー（Bis-GMAとTEGDMAの混合物）に填入した試作CRを用いて試験片を作製し、最小で500 nmの解像度を持つナノCTを用いて試験片を撮影し、撮影領域から任意の領域を抽出することで、10種のマイクロ構造モデルを作成した（図1）。これらのマイクロ構造モデルを用いて均質化解析、マクロ解析と局所化解析を行った。

様々な破壊基準で比較を行った結果、最大主ひずみの平均値に対する標準偏差の割合が、その他の基準と比べて最も小さな値を示し、解析に有用であることを見出した。さらに、局所化解析の結果から、不定形フィラー間、つまり、レジンマトリックス内部に最大主ひずみが集中していることが分かり、レジンマトリックスの物性を改良することでCR全体の機械的性質の向上が実現できる可能性が示された。

### マイクロフィラーの「形状」が曲げ強さに及ぼす影響

まず、CRの機械的性質の向上に必要とされる要因の1つであるフィラーの形状が曲げ強さに及ぼす影響を評価するために、充填用CRを対象にした解析を実施した。

破壊基準の検証で使用したマイクロ構造モデルをもとに、球形フィラーモデル（図2）を新たに作製し、

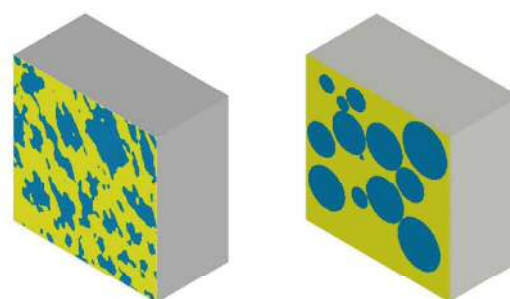


図2. ミクロ構造モデル  
(左：不定形フィラー、右：球形フィラー)

同様にマルチスケール解析を行ったところ、不定形フィラーを用いる方がマクロ構造モデルの曲げ強さが大きくなり、マイクロ構造では最大主ひずみの分布が拡がりにくいことが明らかとなった。

これらの結果は、フィラーの形状を工夫することでマイクロ構造の破壊起始点から亀裂が伝播するのを防ぎ、マクロ構造の曲げ強さを向上できる可能性を示している。

### ナノフィラーの「種類」が圧縮強さに及ぼす影響

次に、フィラーの種類が圧縮強さに及ぼす影響を評価するために、CAD/CAM用CRブロックを対象にした解析を実施した。CAD/CAM冠として使用可能なブロックの構成成分は、「シリカ微粉末とそれを除いた無機質フィラーの2種類のフィラーの合計が60 wt%以上である」と定義されており、われわれは、この無機質フィラーを改良することで、咬合力に耐えうる圧縮強さを得られるのではないかと着想した。

市販されているCAD/CAM用CRブロックを対

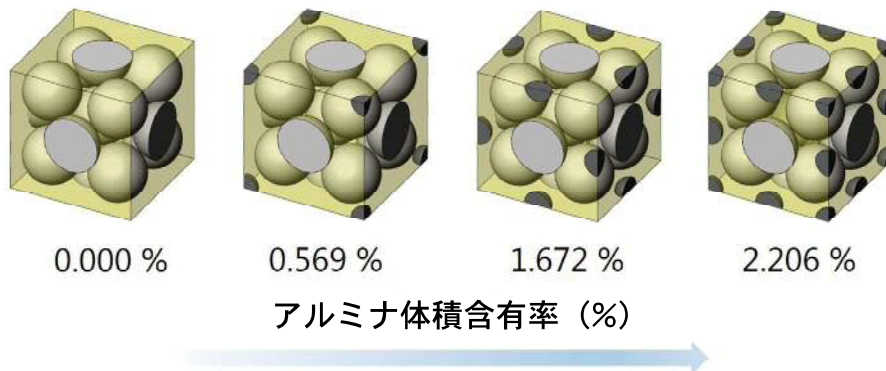


図3. 2種のフィラー（ $\phi$ 40nmのシリカと $\phi$ 20nmのアルミナ）を含有するマイクロ構造モデル

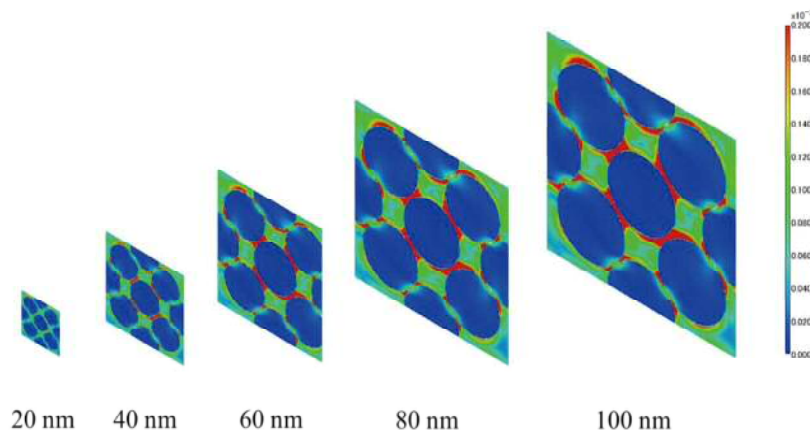


図4. ナノフィラーのサイズがCRのマイクロ構造の最大主ひずみ分布に及ぼす影響<sup>3</sup>

象に無機質フィラーの比率をエネルギー分散型X線分光器や走査型プローブ顕微鏡を用いて分析し、その種類と体積含有率が圧縮強さに及ぼす影響をマルチスケール解析により検証した。その結果、興味深いことに、2種のフィラーが含有されているCAD/CAM用CRブロックの場合（図3）、アルミナの体積含有率が高くなると圧縮強さが低下する傾向にあることが分かった。1種のフィラーに着目した場合、フィラーの機械的性質を高くする（シリカからアルミナなど）とマクロ構造の機械的性質が向上したことから、CAD/CAM用CRブロックに含有するシリカに加えて、シリカよりも弾性率の高いフィラーを、ごく微量含有することが圧縮強さの向上につながるということが明らかとなった。

#### ナノフィラーの「サイズ」が圧縮強さに及ぼす影響

ブロックに含有されるナノフィラーのサイズについては、5種の異なる直径の球形シリカフィラーを

Bis-GMA/TEGDMAに填入したモデルを作製し、これらのモデルに対してマルチスケール解析を行った。

均質化解析とマクロ解析の結果から、ナノフィラーの直径が小さくなるほど、圧縮強さが高くなることが明らかとなった<sup>3</sup>。これは、図4の局所化解析の結果が示すとおり、ナノフィラーの直径が小さくなるほど、レジンマトリックス内に集中する最大主ひずみが小さくなり、フィラー同士が動きにくくなっていることに起因するものと考えられる。

#### ナノフィラーの「幾何学的配置」が圧縮強さに及ぼす影響

最後に、フィラーの幾何学的配置が圧縮強さに及ぼす影響を評価するために、マイクロ構造モデル内に球形シリカフィラーを12個分規則的に配置したモデルを作製し（図5）、体積含有率を一定にした状態で、体心に配置したフィラーからその周囲に配置

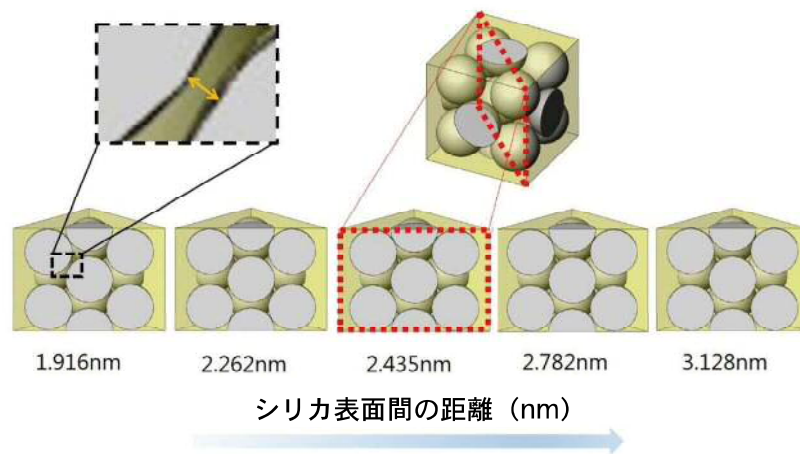


図5. ナノフィラーの幾何学的配置の異なるモデル

したフィラーまでの距離の変化が圧縮強さに及ぼす影響を検証した。

フィラー間の距離が離れるほど、圧縮強さが減少する傾向を示したが、その変化量は3%と少なく、先のフィラーの形状、種類やサイズの要因と比べると影響が少ないことが分かった。これは、フィラーが少数単位で凝集している方が、均質に分散しているのと比べて、圧縮強さが大きくなることを示唆している。

### おわりに

本稿では、金属に代わる歯科用修復材料の創製を目指して、マルチスケール解析を応用した研究事例の概略を紹介した。今後は、明確になった破壊基準をもとに、時間を考慮したマイクロ構造解析が可能なモデル<sup>4</sup>を作製し、マトリックスレジン内を進展する亀裂を抑制するフィラーの設計を進めていく。*In silico* でフィラーとマトリックスレジンの両面から検証を進め、CRのマクロな物性に最も影響を及ぼす要因が明確になれば、CRを試作し、*in vitro* で長期耐久性の評価<sup>5</sup>を行い、製品の開発・実用化へと展開していきたいと考えている。

### 参考文献

1. 山口 哲, 今里 聡. 材料特性からみたコン

ポジットレジンの現状. 歯界展望 118:992-997, 2011.

2. Yamaguchi S, *et al.*, *In silico* analysis of the biomechanical stability of commercially pure Ti and Ti-15Mo plates for the treatment of mandibular angle fracture. *J Oral Maxillofac Surg* (in press), 2017.
3. Yamaguchi S, *et al.*, Multi-scale analysis of the effect of nano-filler particles diameter on the physical properties of CAD/CAM composite resin blocks. *Comput Methods Biomech Biomed Engin* 20: 714-719, 2017.
4. Yamaguchi S, *et al.*, Dynamic finite element analysis and moving particle simulation of human enamel on a micro scale. *Comput Biol Med* 55: 53-60, 2014.
5. Yamaguchi S, *et al.*, *In vitro* fatigue tests and *in silico* finite element analysis of dental implants with different fixture/abutment joint types using computer-aided design models. *J Prosthodont Res* (in press), 2017.

### 謝辞

本研究は、科学研究費補助金 (15K11195) のもとで行われた。