

学位論文題名

繊維強化プラスチック型審美矯正ワイヤーの  
湿潤環境下での機械的特性挙動

学位論文内容の要旨

【緒言】

近年、歯科矯正治療においては治療中においても審美性が求められることが多く、ブラケット、結紮線に関しては透明で耐久性のあるものが開発され臨床に広く使われている。しかし、矯正治療に必要不可欠のワイヤーに関しては金属製のものがほとんどであり、審美的に優れたワイヤーの臨床応用が望まれている。審美矯正ワイヤーの研究開発はこれまでにいくつか試みられてきたが、現在発表されているワイヤーは臨床応用するには十分とは言えず普及には至っていないのが現状である。

筆者らが研究開発を進めている生体親和性に優れた繊維強化プラスチック型審美矯正ワイヤー(以下、FRP ワイヤー)は、透明性が高く審美的に優れ、これまでの3点曲げ試験などの基礎的研究から臨床応用に適する曲げ強さを有することが示されている。しかし、アーチワイヤーは口腔内で長期使用されるため湿潤条件下での長期的な材料特性についても検討する必要がある。また矯正用ワイヤーの様に臨床上変形させる必要がある場合には、その機械的特性にレジンの吸水性が大きく影響するものと思われ、その対策は早急に検討すべき課題である。

本研究では、口腔内使用の前段階として、FRP ワイヤーの湿潤条件下における吸水動態を調べ、機械的特性の経時的変化を応力緩和試験、アコースティックエミッション(AE)測定、定たわみ曲げ試験を用いて解析することを目的とした。

【材料および方法】

ワイヤー成形に先立ちガラス繊維とマトリックスとの間の接着強さの向上を目的として、カップリング処理剤 KBM403( $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン)を生体親和性に富む(CPSA)ガラス繊維(直径約 20 $\mu$ m)に使用した。マトリックスにはビスフェノール A-ジグリシジルメタクリレート(Bis-GMA)を用い、一方向配向型、円形断面、繊維体積分率 30%、直径 0.5mm の FRP ワイヤーを光重合法により作製した(以下、403 ワイヤー;カップリング非処理材は無処理ワイヤーとする)。

FRP ワイヤーの吸水動態と機械的特性の影響を明るみにするために 37°C の蒸留水に無処理および 403 ワイヤーを 3, 6, 12, 24 時間浸漬前後で秤量し、ガラス繊維重量を差し引いた値をマトリックス部重量とし、下記の式より吸水率を求めた。

$$\text{マトリックス部の吸水率} = (m - m_0) / m_0 \times 100 \quad (\%)$$

$m$ : 吸水後のマトリックス部の重量

$m_0$ : 乾燥恒量時のマトリックス部の重量

また、24 時間吸水後に 23, 100°C での 1 時間再乾燥試験を行った。比較のためレジン 100% のワイヤーについても同様の試験を行った。さらに 3 点曲げ試験を行い、得られた荷重-たわみ曲線のたわみ 2mm までの曲線下の面積を 2mm 変形エネルギーとし評価に用いた。

乾燥、湿潤条件における FRP ワイヤーが持つ矯正力の時間による変化、および吸水による影響を調べるために、たわみ 2mm での応力緩和試験を 24 時間まで行った。荷重保持率は最大荷重値に対する、記録された荷重値の比率とした。また試験中の微視的な破壊を検出するためにアコースティックエミッション (AE) 測定を同時に行い、AE 計数とそれを積算した AE 累積数を求めた。

曲げ変形を付与されたワイヤーの機械的特性を調べるために、たわみ 2mm の曲げ変形を所定の時間 (3, 6, 12, 24 時間) 付与後、変形の回復が収まるまで解放し、3 点曲げ試験で評価する定たわみ曲げ試験を行った。得られた荷重-たわみ曲線より、永久変形量、縦弾性係数、2mm 荷重値、2mm 変形エネルギーを求めた。ここでは変形前のワイヤーが曲げ棒先端に触れる位置を 0 とし、定たわみ曲げ変形後のワイヤーが触れる位置を永久変形量とした。縦弾性係数 (E) は荷重が負荷され始めた位置からたわみが 0.2mm 増加した時点での荷重値を求め、以下の式より算出した。

$$E = 4 P l^3 / 3 \delta \pi d^4$$

l: 支点間距離 d: 試料直径  $\delta$ : たわみ (今回は 0.2 を使用) P: 荷重値

また、たわみが 2mm の時点での荷重値を 2mm 荷重値とした。

### 【結果および考察】

吸水試験の結果、いずれの試験片も 3~6 時間で吸水をほぼ完了し、カップリング処理の有無による明確な差は認められなかった。FRP ワイヤーはレジン 100% のワイヤーよりも吸水率が高かった。これは、ガラス繊維とマトリックス間に界面が存在するために、水が進入しやすいためと思われる。吸水後の FRP ワイヤーはたわみが 4mm に達しても明確な破断を示さず、荷重-たわみ曲線の勾配で示される見かけ上の弾性率は浸漬前に比べて明らかに低下した。100°C で再乾燥すると機械的特性がほぼ元通りに回復した。これは吸水によりガラス繊維/マトリックス間の界面接着力が低下しても、乾燥下では機械的な嵌合効力が、曲げ変形に対する抵抗として働き、荷重を維持したためと推測される。

乾燥条件下における応力緩和試験直後のワイヤーには永久変形が見られず、24 時間後の荷重保持率は無処理、403 ワイヤーとも約 85%と同程度で、AE の発生も散発的で少ないが、湿潤条件下での試験直後のワイヤーには永久変形が見られ、特に無処理ワイヤーで大きな値を示した。無処理ワイヤーは浸漬直後から AE が発生し、荷重保持率は大きく低下し、24 時間後には約 14.5%まで低下したのに対して、403 ワイヤーは浸漬 6 時間後から AE の発生が増加し、24 時間後も約 43%の荷重を保持していた。この結果よりカップリング処理はガラス繊維とマトリックスの界面剥離を抑制し、荷重の保持に効果的であることが分かった。

乾燥条件下における定たわみ曲げ試験後の試験片には永久変形は見られず、縦弾性係数、2mm 荷重値、2mm 変形エネルギー、永久変形量には大きな変化は見られなかった。湿潤条件においては、浸漬 6 時間付近まで 403 ワイヤーが高い値を示したが、次第に無処理ワイヤーとの差は小さくなった。カップリング処理の効果により浸漬後約 6 時間まで界面の剥離が抑制されているが、その後、次第に界面接着効果が低下し、剥離が進行すると推測される。

#### 【結論】

1. 定たわみ曲げ試験後、永久変形量は負荷時間とともに増加し、縦弾性係数、2mm 荷重値が低下した。これらは 2mm 変形エネルギーにより単一の指標で総合的に評価できた。また、曲げ変形により生じているミクロな破壊は AE をもちいて検出することができた。
2. 応力緩和試験での AE の増加、荷重保持率の低下、定たわみ曲げ試験での永久変形量の増加、および縦弾性係数、2mm 荷重値の低下が著しくなる時期は吸水が完了する時間 3～6 時間とほぼ一致した。
3. 湿潤条件下ではマトリックスに吸水、可塑化が起こり、変形に伴うガラス繊維/マトリックス間の界面剥離、滑りが生じることで、荷重および縦弾性係数の低下、永久変形量の増加など機械的特性の低下を引き起こすことが示された。
4. カップリング処理は界面剥離を抑制し機械的特性低下の抑制に効果があった。
5. 口腔内に類似した環境下で FRP ワイヤーの経時的挙動を各種試験を導入して調べ、マトリックスとカップリング剤の吸水に対する対策等、臨床応用の実現に必要な改善点を明らかにした。

# 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 飯 田 順一郎  
副 査 教 授 亘 理 文 夫  
副 査 教 授 大 畑 昇

学 位 論 文 題 名

## 繊維強化プラスチック型審美矯正ワイヤーの 湿潤環境下での機械的特性挙動

審査は審査委員が一同に会して、口頭試問の形式によって行われた。まず申請者に論文の概要の説明を求めるとともに適宜解説を求め、次いでその内容および関連分野について試問した。

申請者からは以下のような内容についての論述がなされた。

アーチワイヤーは口腔内で長期使用されるため、湿潤条件下での長期的な材料特性について検討する必要がある。現在ガラス繊維とマトリックスにレジンを用いた矯正用ワイヤー（FRP ワイヤー）を開発中であるが、矯正用ワイヤーの様に臨床上変形させる必要がある場合には、機械的特性にレジンの吸水性が大きく影響するものと思われる。そこで FRP ワイヤーの湿潤条件下における吸水動態を調べ、機械的特性の経時的変化を応力緩和試験、アコースティックエミッション(AE)測定、定たわみ曲げ試験を用いて解析することを目的とした。

### 【材料および方法】

ワイヤー成形に先立ちガラス繊維とマトリックスとの間の接着強さ、ならびに耐水性の向上を目的とし、カップリング処理剤（KBM403）を CPSA ガラス繊維に使用した。マトリックスに Bis-GMA を使い、一方向配向型、円形断面の FRP ワイヤーを光重合法により作製した。この試験片を 403 ワイヤー、またカップリング処理を施していないガラス繊維を用いた試験片を無処理ワイヤーとした。

FRP ワイヤーの吸水動態を知るために 37℃の蒸留水中に 3、6、12、24 時間浸漬し吸水率を求めた。

また、比較のためガラス繊維の入っていないワイヤーも同様の試験を行い比較した。さらに無処理、403 ワイヤーについては、24 時間吸水後に 23、100℃で 1 時間乾燥させた後の吸水率を求め、さらに 3 点曲げ試験を行い、得られた荷重-たわみ曲線のたわみ 2mm までの曲線に囲まれる面積を 2mm 変形エネルギーとし評価に用いた。

FRP ワイヤーが持つ矯正力の時間による変化、および吸水による影響を調べるために、たわみ 2mm の応力緩和試験を行い荷重保持率を求めた。また試験中の微視的な破壊を検出するためにアコースティックエミッション（AE）測定を同時に行い AE 計数と、それを積算した AE 累積数を求めた。

一度曲げ変形を付与されたワイヤーの機械的特性を調べるために乾燥および湿潤環境下

でたわみ 2mm の曲げ変形を、3、6、12、24 時間付与する定たわみ曲げ試験を行った。曲げ変形の解放後、3 点曲げ試験を行い、得られた荷重-たわみ曲線より、永久変形量、縦弾性係数、2mm 荷重値、2mm 変形エネルギーを求めた。

#### 【結果および考察】

吸水試験の結果、いずれの試験片も 3~6 時間で吸水をほぼ完了しており、カップリング処理の有無による明確な差は認められなかった。吸水した FRP ワイヤの機械的特性は明らかに低下するが、100℃で乾燥するとほぼ元通りに回復した。これは吸水により接着力が低下したガラス繊維/マトリックス間の界面が、乾燥することで機械的な嵌合効力が働き、曲げ変形に対する抵抗として荷重を発揮したためと推測できる。

応力緩和試験において、湿潤条件下での無処理ワイヤは浸漬直後から AE が発生し、24 時間後の荷重保持率は約 14.5%まで低下したのに対して、403 ワイヤは浸漬 6 時間後から AE の発生が増加し、24 時間後も約 43%の荷重を保持していた。この結果よりカップリング処理はガラス繊維とマトリックス材の界面の剥離を抑制し、荷重を保持できることが分かった。

定たわみ曲げ試験では、浸漬 6 時間後での縦弾性係数、2mm 荷重値、2mm 変形エネルギーは無処理ワイヤより 403 ワイヤが高い値を示したが、次第に差が小さくなった。永久変形量は 6 時間を過ぎた辺りから差が大きくなっていった。これは浸漬後 6 時間後まではカップリング処理によって界面の剥離が抑制されているが、次第に界面接着効果が低下し、徐々に剥離したためと推測できる。

以上の結果から学位申請者は、吸水が完了する時間と機械的特性低下が始まる時間が一致することより、湿潤条件下での機械的特性低下の要因は吸水であること、カップリング処理は界面剥離を抑制し機械的特性低下の抑制に効果があることを示した。

以上の論述に引き続き以下の項目を中心に口頭試問を行った。

1. 評価に 2mm 変形エネルギーを用いた根拠
2. 機械的特性の劣化のメカニズム
3. 得られた結果の重要性
4. 今後の研究の方向性

これらの試問に対して申請者は明快な回答、説明を行った。

本研究は、開発が進んでいる矯正用 FRP ワイヤの弱点であるところの口腔内における経時的な機械的特性の低下という現象に対して、その現象が発生する主なる原因はマトリックスの吸水であること、またガラス繊維とマトリックスを接着するカップリング処理は機械的特性の低下に対しては抑制効果を持つことを明確にしたものである。得られた結果は今後の開発の方向性を明らかにする上で重要な価値があり、高く評価できるものである。更に、試問の内容から、学位申請者は、関連分野にも幅広い学識を有していると認められた。また今後は更に詳細な解析の準備を進めており、将来の展望についても評価された。

よって審査担当者全員は、申請者は博士（歯学）の学位を授与される資格を有するものと認めた。