

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：17301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K20447

研究課題名(和文) 常温セラミックス膜形成技術を応用したジルコニアの接着前装に関する研究

研究課題名(英文) Study on adhesive bonding of veneering material to zirconia using cold ceramic coating technique

研究代表者

篠原 綾乃 (SHINOHARA, Ayano)

長崎大学・病院(歯学系)・医員

研究者番号：10749394

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、間接法用コンポジットレジンとジルコニアの接着強度を改善することを目的に、ジルコニア表面に様々なセラミックコーティングを試みた。その結果、ジルコニア試料表面をアルミナでエアアブレーション処理した後、シリカ微粒子を担持させたジルコニアビーズをその上に焼結させた場合が最も高い接着強さを示した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we tried various ceramic coating on zirconia surface with the aim of improving the bond strength of indirect resin composite to zirconia. As a result, the highest bonding strength was obtained when the zirconia substrate was air ablated with alumina and then zirconia beads carrying the silica fine particles were sintered on it.

研究分野：歯科補綴学

キーワード：ジルコニア 接着

1. 研究開始当初の背景

近年、CAD/CAM システムの発達にともなって、ジルコニア製の歯冠修復物やインプラント上部構造が高精度にしかも容易に加工できるようになった。しかし、天然歯と同様な色調の再現や隣接面調整のためには、ジルコニアフレームの前装が必要である。現在は陶材を焼成する前装が主流であるが、その陶材の破折が最も多い偶発症のひとつとして問題視されている。

ハイブリッド型コンポジットレジンがジルコニアフレームに強力に接着できれば、大型の補綴装置であっても、陶材のように焼成収縮によるクラックを気にする必要がなく、たとえ前装部が破折したとしても容易に補修ができ、また対合となる天然歯の咬耗も生じにくいと考えられる。

しかし、ジルコニアの接着耐久性は、金属や他のセラミックスなどに比べると残念ながら低い。そこで本研究では、ジルコニアと前装用ハイブリッド型コンポジットレジンとの接着力を改善するために、次に示すエアロゾルデポジション法に着目した。

エアロゾルデポジション法は、1997年に産業技術総合研究所で開発された製膜技術である(図1)。粉末材料の噴射加工技術のひとつであり、セラミックス微粒子を高温で焼結することなく、常温で固化・緻密化できるコーティング法である(明渡ら, Synthesiology 2008)。金属、ガラス、シリコンの基板の上に圧電セラミックス材料であるチタン酸ジルコン酸鉛が製膜されたのが最初であり、その後1000℃以上でしか焼成できないアルミナ微粒子を常温で固化することが可能になった。

一般にセラミックスの製膜法としてはPVD法、CVD法、ゾルゲル法、溶射法などがあるが、膜の組成に制限がある、高温にする必要がある、結合力が不十分などの問題点がある。エアロゾルデポジション法では、約30種類の中から選択した化合物のナノ粒子をガス中に漂わせ、ターゲットに吹き付けると微粒子同士が砕けて結びつく。当初、エアロゾルデポジション法で形成される膜は緻密膜のみであったが、製膜条件を工夫することにより、ナノポーラスな膜も形成可能といわれている。

製膜の過程で加熱が不要のため、携帯電話、半導体チップ、液晶ディスプレイ、自動車などのセラミックコーティングが検討されていた。その後、東陶機器(TOTO)が実用化を進め、アルミナやチタン酸バリウムなど、様々な酸化膜、複合酸化物の膜形成が可能となった。

歯科ではエアロゾルデポジション法を用いて、ハイブリッド型コンポジットレジンに無色透明の厚さ5~10µmのアルミナ層が形成可能で(特開2006-326120長崎大学、東陶機器(株))、レジン前装冠やレジンジャケット冠表面のコーティングへの利用が考えられていた。しかし、歯科治療に応用した例は国内外とも見当たらなかった。

一方、歯科用ジルコニア材料の表面にレジン接着させる既存の方法としては、アルミナ粉末を用いたエアアブレーション処理、リン酸エステル系プライマーを塗布する方法、シリカを担持したアルミナ粉末を吹き付けるシリカコーティング法、シリカ系セラミックスを薄く焼結させ、シランカップリング剤を用いて接着する方法などがあった。

2. 研究の目的

本研究では、イットリア安定型ジルコニア製のクラウン、ブリッジ、インプラント上部構造を想定し、エアロゾルデポジションなどのセラミックコーティングを施してジルコニアの表面を改質することにより、レジンとの接着を改善することを目的とした。

3. 研究の方法

イットリア安定型ジルコニア製の板状試料へのエアロゾルデポジション法を用いたコーティングを試みたが、努力の甲斐なく実現には至らなかった。そのため、何らかの理由で万が一エアロゾルデポジションによる製膜が不可能であった場合を想定していた計画に従って、次のような複数の方法によるセラミックコーティングを行った。

粒径50-70µmのアルミナでエアアブレーション処理した後、シリカ微粒子を担持した粒径30µmのアルミナ粒子(Cojet Sand)を、シリカ系ペースト(IPS e.max CAD Crystall Glaze Paste)を塗布したジルコニア試料表面に播種し、840℃で焼結させたもの

粒径50-70µmのアルミナでエアアブレーション処理した後、シリカ系ペースト(IPS e.max CAD Crystall Glaze Paste)だけをジルコニア試料表面に塗布し、840℃で焼結させたもの

粒径50-70µmのアルミナでエアアブレーション処理した後、シリカ微粒子を担持した粒径30µmのアルミナ粒子(Cojet Sand)を、シリカ系グレースプレー(IPS e.max CAD Crystall Glaze Spray)を塗布したジルコニア試料表面に播種し、840℃で焼結させたもの

粒径50-70µmのアルミナでエアアブレーション処理した後、シリカ系グレースプレー(IPS e.max CAD Crystall Glaze Spray)だけをジルコニア試料表面に塗布し、840℃で焼結させたもの

粒径 150~212 μm のジルコニア製ビーズ表面にあらかじめシリカ系グレースプレー (IPS e.max CAD Crystall Glaze Spray) を噴霧してシリカ微粒子を担持させておいた。ジルコニア被着体表面を粒径 50-70 μm のアルミナでエアアブレーション処理した後、シリカ系ステイン材 (Initial IQ Lustre Paste) を塗布し、その上にジルコニア製ビーズを播種し、940 で焼結させたもの

粒径 50-70 μm のアルミナでエアアブレーション処理した後、シリカ系ステイン材 (Initial IQ Lustre Paste) だけをジルコニア試料表面に塗布し、940 で焼結させたもの

粒径 150~212 μm のジルコニア製ビーズ表面にあらかじめシリカ系グレースプレー (IPS e.max CAD Crystall Glaze Spray) を噴霧してシリカ微粒子を担持させておいた。ジルコニア被着体表面を粒径 50-70 μm のアルミナでエアアブレーション処理した後、シリカ系オパーク材 (VINTAGE ZR Opaque Liner) を塗布し、その上にジルコニア製ビーズを播種し、940 で焼結させたもの

粒径 50-70 μm のアルミナでエアアブレーション処理した後、シリカ系オパーク材 (VINTAGE ZR Opaque Liner) だけをジルコニア試料表面に塗布し、940 で焼結させたもの

粒径 50-70 μm のアルミナでエアアブレーション処理した後、イオンスパッタリング装置 (IB-3) を用いて、ジルコニア試料表面に金を蒸着したもの

アルミナでエアアブレーション処理し、上記いずれのコーティング処理も行わなかったもの

以上 10 通りの条件で試料を製作した。

各試料の被着面をマスキングテープで直径 5 mm に規定し、リン酸エステル系モノマーとシランカップリング剤を含有するプライマー (Clearfil Ceramic Primer Plus) を塗布し、アクリル製円板状の枠を置き、その中にハイブリッド型コンポジットレジン (Gradia) を填入し、技工用光照射器を用いて重合した (図 1)。

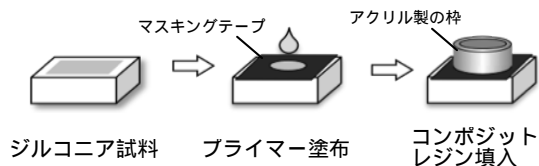


図 1 接着試験片の作製手順

接着の完了した試料を 37 の水中に 24 時間浸漬し、万能試験機を用いてクロスヘッドスピード 0.5 mm/min でせん断試験を行い、接着強さを求めた。その後、実体顕微鏡下に破断面を観察し、また、走査型電子顕微鏡を用いて試料表面の観察も行った。

4. 研究成果

せん断接着試験の結果は 13.5 ± 0.9 MPa、 6.7 ± 2.0 MPa、 14.3 ± 1.0 MPa、 11.3 ± 0.7 MPa、 17.5 ± 2.7 MPa、 7.1 ± 1.4 MPa、 6.0 ± 1.5 MPa、 8.1 ± 2.0 MPa、 2.5 ± 2.2 MPa、 9.1 ± 0.9 MPa であった (図 2)。

アルミナでエアアブレーション処理したジルコニアの表面にシリカ系ステイン材を塗布し、あらかじめシリカ微粒子を担持させたジルコニア製ビーズをその上に播種し、比較的高温の 940 まで加熱することによって (条件) コントロール (条件) の 2 倍近くの接着強さが得られることが明らかになった。

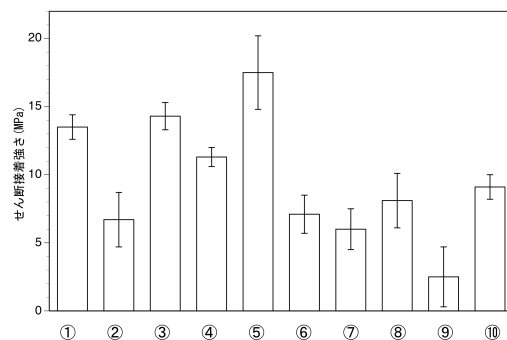


図 2 コーティングしたイットリア安定型ジルコニアとハイブリッド型コンポジットレジンとの接着強さ

また条件 の試料を精密切断機で切断し、断面を走査型電子顕微鏡で観察したところ、ジルコニア粒子がジルコニア試料表面に固定されたリテンションビーズ様の凹凸が多数認められ、コンポジットレジンとジルコニア試料との機械的維持が接着強さに寄与していることが示唆された。このようなジルコニアに対する機械的維持の積極的な利用は、化学的接着を補強する有効かつ実用的な方法であると考えられた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 0 件)

[学会発表](計 1 件)

1) Fukui J, Okada M, Ohira C, Kamada K, Shinohara A, Taira Y, Sawase T: Effects of porcelain-fused zirconia beads on retention between veneering resin composite and zirconia. International Congress of Dental Technology. Program. p93. 2017 (Taipei, Taiwan)

[図書](計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況（計0件）

取得状況（計0件）

〔その他〕

ホームページ等

該当なし

6．研究組織

(1)研究代表者

篠原綾乃（SHINOHARA, Ayano）

長崎大学・病院（歯学系）・医員

研究者番号：10749394