

令和元年6月5日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K20481

研究課題名(和文)フルカントゥア・ジルコニア歯冠補綴装置の低温劣化の防止・抑制法の探索

研究課題名(英文) research of prevention of low-temperature degradation of full-countour zirconia prostheses

研究代表者

原田 章生 (Harada, Akio)

東北大学・歯学研究科・助教

研究者番号：40757267

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、メンテナンス処置におけるジルコニアの表面性状の検索を目的とし、PEEKあるいはステンレス製の超音波スケーラーチップが低温劣化処理した3Y-TZPの表面性状に与える影響を評価した。XRD評価の結果、各超音波スケーラーチップ処理は3Y-TZP単斜晶の変化に影響を及ぼさなかった。低温劣化処理した3Y-TZPの表面粗さはステンレスチップ処理により有意に増加した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

CAD/CAM技術の進歩により近年では歯冠修復材料としてジルコニアが多く用いられ、最近では前装材料を用いないフルカントゥア・ジルコニアが多く使用されている。一方で、前装材料を使用しないことにより、水分に曝露することで脆い結晶構造に変化する低温劣化という現象も知られており、口腔内における長期間の水分曝露による影響も無視できない。

本研究では低温劣化したジルコニア表面にメンテナンスで使用する器具におけるジルコニアの表面性状を評価し、ステンレススチールチップでは粗造な表面を形成したものの、臨床的には問題のない範囲であること、PEEK製チップではその影響はより小さなものであることを示した。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study was to evaluate the influence of ultrasonic scaling and low-temperature degradation (LTD) on surface properties of zirconia. Yttria-stabilized tetragonal zirconia polycrystals (3Y-TZP) were aged by autoclaving at 135 °C and 0.2 MPa for 100 hours comparable to 5 years intraoral aging, subsequently treated by ultrasonic scaler tips made of PEEK or stainless steel. X-ray diffraction analysis showed that LTD induced phase transformation whereas ultrasonic scaling did not generate monoclinic phase. Ultrasonic scaling significantly increased Sa ($P < 0.0001$), especially when LTD-induced 3Y-TZP was subjected to ultrasonic scaling using stainless steel tip.

研究分野：歯科材料学

キーワード：ジルコニア 低温劣化

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

歯科用ジルコニアは歯科臨床に幅広く応用され、歯のクラウンや歯の欠損を補うブリッジのフレーム材料として用いられてきた。近年では材料の開発により、フレーム材料としてだけでなく、前装陶材を用いない、フルジルコニアクラウン・ブリッジ治療が行われてきている。

ジルコニアはいくつかの結晶構造を有しているが、歯科で広く応用されている 3mol%イットリア含有部分安定化正方晶ジルコニア (3Y-TZP) はそのほとんどが正方晶で構成される。3Y-TZP には機械的ストレスが加わると結晶構造が正方晶から単斜晶に変化し、結晶が膨張することで局所に圧縮応力を加え、クラックの伝播を防止する性質があることが知られている(応力誘起相変態機構)。

一方で、3Y-TZP は水分に曝露されると、機械的ストレスを加えなくても結晶構造が正方晶から単斜晶に相変態することが知られており(低温劣化; Low-temperature degradation; LTD) 口腔内の唾液などに曝露されるフルジルコニアクラウン等に適用した 3Y-TZP の口腔内での長期予後については詳細に評価されていない。また、単斜晶は脆く、長期メンテナンスにおいて超音波スケーリングを行った際の 3Y-TZP 表面への影響についても詳しく評価する必要がある。長期的なメンテナンスを行った際に 3Y-TZP の表面の粗さが増加し、細菌付着を促進し得るのであれば、LTD の影響を考慮したメンテナンスの方法を探索する必要がある。

2. 研究の目的

歯科用ジルコニアの超音波スケーリング処理および低温劣化処理が表面粗さ、結晶構造に与える影響を評価すること。

3. 研究の方法

(1) 試料作製

半焼結ジルコニアブロック (Lava Plus Zirconia; 3M/ESPE) を切断し、1450 で 2 時間焼結し、4×4×2 mm になるよう調整した。試料の片面を 1 μm ダイヤモンド懸濁液を用いて鏡面研磨した。

作製した試料に対し表面粗さ解析、結晶構造解析を行った。次に、試料を以下の 6 群に分けた (n=6) 超音波スケーリング未処理群 (UT) 樹脂 (Poly Ether Ether Ketone; PEEK) 製チップを使用した超音波スケーリング処理群 (US-P) ステンレススチール製のチップを使用した超音波スケーリング処理群 (US-S) LTD と超音波スケーリング未処理群 (LTD-UT) LTD と PEEK 製チップを使用した超音波スケーリング処理群 (LTD-US-P) LTD とステンレススチール製チップを使用した超音波スケーリング処理群 (LTD-US-S)。また、6 つの試料は走査型電子顕微鏡を用いた断面の解析に使用した。

経年劣化である LTD はオートクレーブを用いて加速試験を行うことができる。LTD 処理は ISO 13356:2008 に従い、134 °C、0.2 MPa、100 時間オートクレーブ処理を行った。

(2) 表面粗さ

光干渉計 (TalySurf CCI HD-XL; Taylor Hobson) を用い、表面粗さのパラメータである Sa、Sq、Sp、Sv、Sz を算出した。全ての試料の表面粗さを LTD 処理前後および超音波スケーリング処理後に計測した。

(3) 結晶構造

3Y-TZP の結晶構造について X 線回折 (XRD) 解析を用いて行い、単斜晶の割合を計算した。

次に、SEM を用いて試料断面を観察し、単斜晶の進展深さを計測した。また、Electron Back Scatter Diffraction; EBSD を用いて同様に結晶相の解析を行った。

4. 研究成果

(1) 各群の表面粗さ

各群試料表面に対する超音波スケーリング処理後の表面粗さを図 1 に示す。LTD 処理をしない群では US-S にわずかな粗さの増加を認め、LTD 処理後の群では LTD-US-P に粗さの増加を、LTD-US-S に著しい増加を認めた。

各群の算術平均高さ (Sa) の値を図 2 に示す。UT と比較して US-S が有意に高い値を示した。また、LTD 処理群において

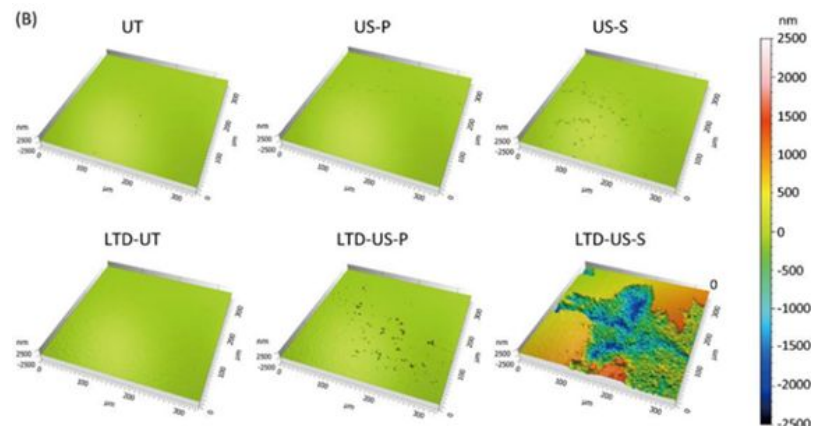


図 1. 各群試料の表面粗さ

は各群間において有意差を認め、LTD-UT < LTD-US-P < LTD-US-S の順に有意な Sa の増加を認めた (Tukey Kramer HSD test, $P < 0.01$)。しかしながら、細菌の付着は $0.2 \mu\text{m}$ 以上の線粗さ (Ra) から生じるとされ、本試験の結果からは細菌付着に影響を与えないとされる範囲での表面粗さの増加のため、臨床的な影響は小さいものと推測される。

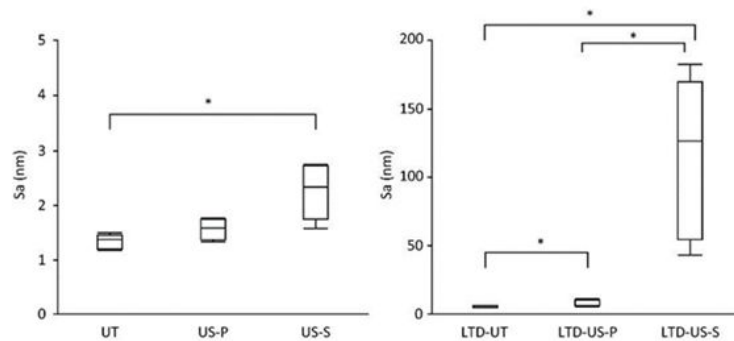
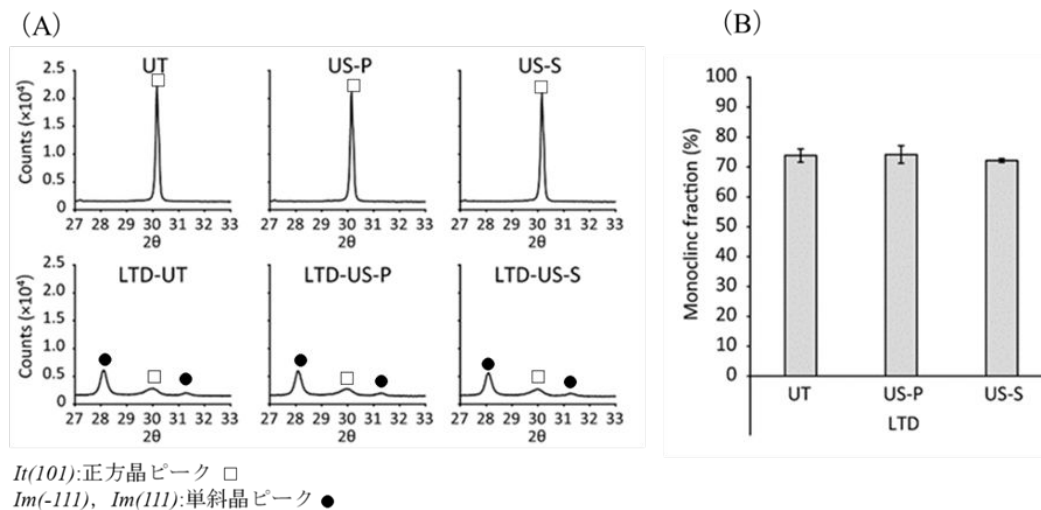


図2. 各群の算術平均高さ (Sa)

(2) 結晶構造

XRD 解析の結果を図3 (A)に示す。UTでは 30.2° に正方晶を示すピーク $It(101)$ を認めた。超音波スケーリング処理を行った US-P および US-S では $It(101)$ のピークに変化は認めず、また単斜晶を示すピークも認めなかった。一方、LTD 処理をした群ではいずれも $It(101)$ のピークが低下し、 28.2° と 31.3° に単斜晶を示すピーク $Im(-111)$ および $Im(111)$ の増加を認めた。Toraya の式より単斜晶の生成割合を計算した結果を図3 (B)に示す。分散分析の結果、有意差を認めず、超音波スケーリング処理による単斜晶の増加は認めなかった (ANOVA, $P > 0.05$)。



$It(101)$: 正方晶ピーク □
 $Im(-111)$, $Im(111)$: 単斜晶ピーク ●

図3. XRD 解析における波長 (A) および計算式から得られた単斜晶の生成割合 (B)

LTD 未処理群 (A) および LTD 処理群 (B) の断面の像を図4に示す。LTD 未処理群では一般的な断面像を呈するが、LTD 処理群では表層 (図の上部) から約 $16 \mu\text{m}$ において相変態層を認め (境界を点線で示す) 内部にマイクロクラックを認める (白矢印)。また EBSD 像において、緑は正方晶、赤は単斜晶を示しているが、LTD 処理後の試料の相変態は単斜晶から構成され、LTD

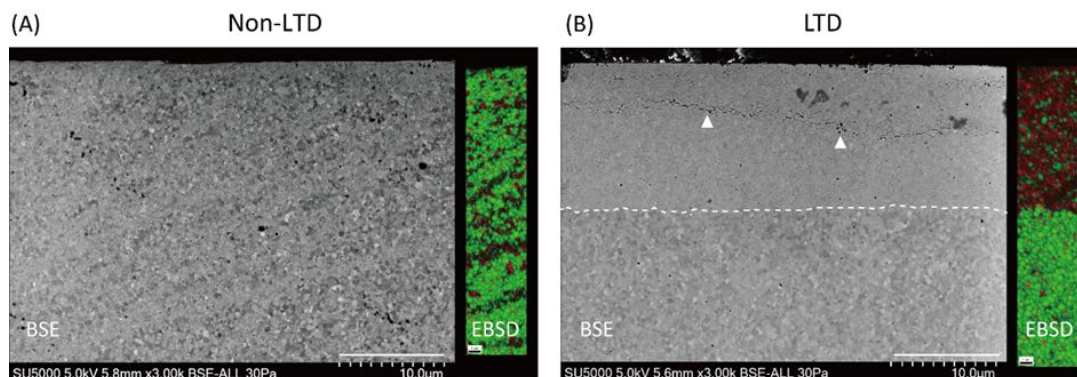


図4. LTD 処理前後における後方散乱電子像 (BSE) と電子航法散乱回折像 (EBSD) における結晶構造の解析

未処理群では正方晶から構成されていることを確認した。

LTD 処理 1 時間は口腔内の約 3-4 年に相当するとされ、100 時間処理した場合には 300-400 年を想定した極端な条件であった。材料表面の観察では確かに各条件に差を認めたものの、臨床的には LTD および超音波スケーリング処理の影響は小さなものと考えられる。ジルコニア表面への影響を考慮すればステンレススチール製のチップよりも PEEK 製のチップの方が推奨される。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

Nakazawa K, Nakamura K, Harada A, Shirato M, Inagaki R, Ortengren U, Kanno T, Niwano Y, Egusa H.

Surface properties of dental zirconia ceramics affected by ultrasonic scaling and low-temperature degradation.

PLoS One, 13(9): e0203849, 2018.

査読あり

〔学会発表〕(計 1 件)

日本歯科理工学会春季第 71 回学術講演会 (2018 年 4 月)

低温劣化処理および超音波スケーリングがジルコニアの表面性状に与える影響

中澤 晃介, 原田 章生, 江草 宏

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究分担者

(2)研究協力者

研究協力者氏名：江草 宏

ローマ字氏名：Egusa Hiroshi

研究協力者氏名：中村圭祐

ローマ字氏名：Nakamura Keisuke

研究協力者氏名：中澤晃介

ローマ字氏名：Nakazawa Kosuke

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。