

令和元年6月25日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K20496

研究課題名(和文)水熱劣化を抑制し色調付与に配慮した高透光性ジルコニアセラミックスの開発

研究課題名(英文)Development of transparent colored zirconia ceramics

研究代表者

宇佐美 博文 (Usami, Hirofumi)

大阪大学・歯学部附属病院・医員

研究者番号：30573456

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：イットリア安定型ジルコニア(Y-TZP)は湿潤な環境で劣化する性質を持つ。また最近ではフルジルコニアクラウンの需要が増加しており、口腔内に露出する機会が増える。そのため、劣化を抑制し、さらに透光性と色調を兼ね備えたジルコニアクラウンが期待される。本研究では、シリカを微量添加した高透光性ジルコニアを作製しその物性について評価した。また、そのジルコニア粉末から、ジルコニアブロックを作製しミリングマシンにてジルコニアクラウンを作ることができた。また、ジルコニア粉末に微量の酸化鉄を添加させることで、歯質に近い黄色みのある色調を作ることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、イットリア安定型ジルコニア(Y-TZP)の湿潤な環境で劣化する性質を改善することができ、そのモノリシックジルコニアクラウンを製作することができた。また、そのジルコニア粉末から歯質に近い黄色みのある色調を作ることに成功した。

これにより、強度、劣化抵抗性と審美性を兼ね備えたクラウンを製作することが今後可能となり、口腔内でより長期間安定する補綴装置を製作できる可能性が示唆された。

研究成果の概要(英文)：High-translucent yttria stabilized tetragonal zirconia (Y-TZP) with less content of alumina than conventional Y-TZP is becoming popular in dentistry in order to realize full-contour zirconia restorations. Although decreasing the amount of alumina addition can increase the translucency, high-translucent Y-TZP may degrade in a humid and low temperature environment such as the oral cavity. The purpose of this study was to evaluate the fitting accuracy and fracture resistance of monolithic zirconia crowns of a new silica-doped Y-TZP.

The experimental 0.2 wt% silica doped Y-TZP sintered at 1500 °C showed high-translucency and superior hydrothermal stability. In addition, from the experimental zirconia powder, we made zirconia blocks and was able to make zirconia crowns with a milling machine. We succeeded in making a color with the yellow that was near to teeth color by adding a very small amount of iron oxide in zirconia powder.

研究分野：歯科補綴学

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

CAD/CAM システムの普及により、高強度のジルコニアを用いた補綴装置が普及するようになった。中でも高透光性ジルコニアだけで製作するフルカントウアのクラウンやブリッジは、煩雑な陶材築盛が不要で破折の危険性が低いため、とくに臼歯部において数多く用いられている。ところが、高透光性ジルコニアは、光の透過性を高めるため、材料の水熱劣化予防に役立つアルミナをほとんど含有していない。そのため、低温でも湿潤な口腔内で長期間使用するとジルコニア自体が劣化し、補綴装置の破折につながる可能性がある。

2. 研究の目的

本研究では、透過性をもつが水熱劣化しにくいナノ複合化ジルコニアを開発し、あわせてステイン陶材による色調再現のため、このジルコニアの表面改質を行うことを目的とした。

3. 研究の方法

実験には、シリカを 0.2 wt% 添加し、焼結温度を 1400、1450、1500、1600 に変化させた 4 種類の試作イットリア系ジルコニア (Y-TZP) を用いた。コントロールとして市販フレーム用 Y-TZP と市販高透光 Y-TZP を用いた。試作 Y-TZP は、アルミナを含まずイットリアを 3 mol% 含むジルコニア粉末にシリカ粉末を 0.2 wt% 添加しボールミルにて粉碎・混合した。次に、冷間等方圧加工法により、粉末をプレス成形した。試作 Y-TZP、市販 Y-TZP とともに指定温度まで焼結炉の温度を上昇させ、その後、2 時間の係留を行い、焼結させた。各試料の密度を比重測定キッドにて測定した。その後、試料を直径 20 mm、厚み 0.5 mm に加工し分光測色計を用いて標準白板および黑板上で Y 、 L^* 、 a^* 、 b^* を測定し各試料のコントラスト比と透光性パラメータを算出した。

試料の中で最も透光性の高かった 1500 で焼結した試作 Y-TZP の物性評価を行った。実験にはシリカを 0.2 wt% 添加し、1500 で 2 時間係留し焼結した試作 Y-TZP とコントロールとして市販高透光性 Y-TZP を用いた。各試料を薄板に加工し試料を 5 群 (非劣化群、劣化群 4 群) に分け、劣化群には 134 °C 水中で最大 40 時間まで加速劣化試験を行った。その後、万能試験機を用いて曲げ試験を行った。また、各試料に対し、X 線回折によりジルコニアの単斜晶割合を測定し、劣化の程度を検討した。曲げ試験で使用した試料に対し、ミスト CVD によるシリカ皮膜の付与を行った。成膜を行った試料に対し、蛍光 X 線分析装置を用いて表面の組成定量分析を行い、表面および断面の微細構造観察を走査型電子顕微鏡 (FE-SEM) にて観察した。

物性評価で良好な耐劣化性を示した高透光性ジルコニア粉末でブロックを試作した。まず、上顎右側第一大臼歯エポキシ模型をフルジルコニアクラウン用に形成し、それを歯科用 CAD/CAM システムのスキャナーによりスキャンし CAD ソフトウェア上で大臼歯クラウンをデザインした。その後、完全焼結ジルコニアブロックからミリングマシンでクラウンを切削加工した。作製したクラウンの適合性を確認するため、クラウンと支台歯の間に適合試験材を挿入し辺縁間隙量をマイクロスコープで観察した。また、内面に残った適合試験材の質量から内面間隙量を算出した。そのクラウンを支台歯にセメントで固定し咬合面より万能試験機にて荷重を加え、破壊試験を行った。破壊後の試料を用いて X 線回折を行い、クラウンの劣化について評価した。比較の対象には市販高透光性ジルコニアクラウンを用いた。

4. 研究成果

試作 Y-TZP のかさ密度は、1400 で焼結させた試料のみ約 5% 低く、他の試料はほとんど変わらなかった。透光性パラメータ、コントラスト比から試作 Y-TZP は 1400 で焼結させた試料の透光性が最も低く、1450、1500 と焼結温度を上昇させるごとに透光性が高くなった。しかし、1600 の試料は 1500 の試料よりも透光性が低かった。市販 Y-TZP と比較すると、1500 で焼結させた試作 Y-TZP は市販フレーム用 Y-TZP よりも透光性が高く、市販高透光性 Y-TZP よりも透光性が低かった。非劣化群では試作 Y-TZP、市販高透光性 Y-TZP とともに約 800 MPa の曲げ強度を有していたが、劣化試験 40 時間後では、市販高透光性 Y-TZP の曲げ強度が試作群と比べて有意に低下した。また、市販高透光性 Y-TZP の単斜晶割合は劣化試験 40 時間後に約 80% であったが、試作 Y-TZP の単斜晶割合は 25% 以下であった。これらの結果から、シリカを添加することで水熱劣化を抑制した Y-TZP を製作することができたと考えられた。

表面の組成定量分析の結果、CVD 処理後には 0.08% の SiO₂ が認められた。FE-SEM による表面および断面の観察の結果、処理前と CVD 群を比較しても、明確な膜の形成は認められなかった。

ミリングマシンによって完全焼結ジルコニアブロックからジルコニアクラウンが作製された。完全焼結ブロックの切削のため半焼結ジルコニアブロックの切削と比べて長い時間がかかった。辺縁間隙量、内面間隙量ともに市販高透光性ジルコニアクラウンと有意な差を認めなかった。クラウンの破壊試験では、市販高透光性ジルコニアクラウンよりも高い破壊荷重を示した。また、破断面の X 線回折から市販高透光性ジルコニアクラウンには有意な劣化が認められたが、試作ジルコニアには認められなかった。また、試作ジルコニア粉末に酸化鉄を微量に添加し焼結させたジルコニアは黄色みがかかっており色調付与することに成功した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

NAKAMURA Takashi, OKAMURA Shinya, NISHIDA Hisataka, USAMI Hirofumi, NAKANO Yoshiro, WAKABAYASHI Kazumichi, SEKINO Tohru, YATANI Hirofumi Fluorescence of thulium-doped

translucent zirconia. Dental Materials Journal,47,2018,1010-1016.査読有

Nakamura T, Nakano Y, **Usami H**, Wakabayashi K, Ohnishi H, Sekino T, Yatani H. Translucency and low-temperature degradation of silica-doped zirconia: A pilot study. Dent Mater J.35,2016,571-577.査読有

〔学会発表〕(計 4 件)

Takashi NAKAMURA, Shinya OKAMURA, Hisataka NISHIDA, **Hirofumi USAMI**, Yoshiro NAKANO, Kazumichi WAKABAYASHI, Tohru SEKINO, Hirofumi YATANI Fluorescence of translucent dental zirconia doped with Thulium. 43rd Annual Meeting of American Academy of Esthetic Dentistry, 2018

Nakano, Y., Nakamura, T., **Usami, H.**, Miyamae, M., Wakabayashi, K. and Yatani H Effect of different sintering methods on the fracture resistance of monolithic zirconia crowns after aging. 10th World Congress of International Federation of Esthetic Dentistry, 2017

中野芳郎, 中村隆志, 岡村真弥, 塩見祥子, 天羽康介, **宇佐美博文**, 若林一道, 矢谷博文. 低温劣化を抑制した高透光性ジルコニアの開発. 第126回日本補綴歯科学会学術大会、2017

中野芳郎, 中村隆志, 岡 雄造, **宇佐美博文**, 西田尚敬, 若林一道, 関野 徹, 矢谷博文 低温劣化がシリカ添加高透光性ジルコニアの機械的特性に及ぼす影響, 第67回日本歯科理工学会学術講演会、2016

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

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。