

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 5 月 20 日現在

機関番号：44416

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K11745

研究課題名(和文) 蛍光性及び水熱劣化抑制能を有するマルチファンクションジルコニアセラミックスの開発

研究課題名(英文) Development of multi-function zirconia ceramics with fluorescence and water degradation restraint

研究代表者

中村 隆志 (Nakamura, Takashi)

大手前短期大学・ライフデザイン総合学科・教授

研究者番号：20198211

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では天然歯に近い色調の蛍光性をもち、劣化しにくい歯科用高透光性ジルコニアを開発することを目的とした。最初に、2種の高透光性ジルコニアに酸化ツリウムを微量添加して、その蛍光性、透過性、物性を調べた。その結果、1種の高透光性ジルコニアでは、蛍光性が発揮され、物性の低下が生じなかったが、その蛍光色調は、天然歯より暗かった。そこで、この透光性ジルコニアに、酸化ツリウムと酸化エルビウムの添加量を変化させて共添加し、その蛍光色調や透過性、物性を調べた。その結果、最適な添加量でツリウムとエルビウムを共添加したジルコニアは、添加なしと透過性や物性は変わらず、天然歯に近い蛍光色調をもつことが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られた試作ジルコニアは、従来の高透光性歯科用ジルコニアとは異なり、天然歯に近似した色調の蛍光性を有している。この試作ジルコニアを使用すれば、暗い口腔内であってもより白い歯、明るい歯を熟練なしに作れる可能性がある。現在は、金、パラジウムといった歯科用の貴金属価格が高騰し、社会保険が適用される金属製のクラウンやブリッジが場合により保険点数よりも製作コストが高くなること、そして金属色が患者の審美性を損ねることが問題となっている。今回の試作ジルコニアは、改良の余地はあるものの、比較的低コストで、明るく白い歯を再現したメタルフリーの補綴装置を国民に提供できるようになることが期待される。

研究成果の概要(英文)：The objective of this study was to develop the new dental translucent and fluorescent zirconia without water degradation. First, two kinds of translucent dental zirconia doped with thulium oxide and checked the fluorescence, permeability and physical properties. As a result, fluorescence was shown by a translucent zirconia, and a decline of the physical properties had not formed. However, the fluorescent color was darker than a natural tooth. So, the addition amount of the thulium oxide and the erbium oxide was changed into this translucent zirconia, and the fluorescent color, permeability and physical properties were evaluated. The zirconia co-doped with thulium and erbium oxide by the suitable ratio, permeability and the physical properties was not different from the control zirconia and the fluorescence similar to that of natural teeth was obtained.

研究分野：補綴理工系歯学

キーワード：ジルコニア 蛍光性 ツリウム 破壊靱性 エルビウム

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2005年に最初に認可された歯科用ジルコニアは、クラウンブリッジのフレーム材料であった。数年前にフレーム用ジルコニアよりも透光性に優れたジルコニアが開発され、CAD/CAMによるフルジルコニアのクラウンブリッジが臨床で多用されるようになった。フルジルコニアのクラウンブリッジは、破折しにくいだけでなく、価格の高騰やアレルギーの可能性がある金属を使用しないことや、陶材築盛が不要であることも大きな利点である。ところが、高透光性ジルコニアに蛍光性は付与されておらず、歯冠色陶材の積層なしでは蛍光性の再現が困難であった。一方、ジルコニアの問題点として材料の水熱劣化があげられる。高透光性ジルコニアは透過性を向上させるため、原料から劣化抑制に役立つアルミナを削除している。そのため口腔内で水熱劣化が進む可能性をもつことが推察される。そこで、蛍光性や耐劣化性をもつ高透光性ジルコニアを開発できれば、歯質に近い色調、蛍光性をもち、口腔内で長期間使用しても劣化しにくいフルジルコニアの補綴装置が製作できるようになることが期待される。

2. 研究の目的

CAD/CAM技術が発達し、歯冠色をもち経済性に優れた高透光性ジルコニアのみで製作するフルジルコニアのクラウンブリッジが多用されるようになった。ところが、高透光性のジルコニアには蛍光性がなく、患者の希望する明るく白い歯を再現するのが困難である。さらに、高透光性ジルコニアは、透光性向上のため劣化抑制に有効なアルミナをほとんど含んでおらずフレーム用ジルコニアよりも口腔内で劣化しやすい性質を持っている。

そこで、本研究は天然歯と同様の色調の蛍光性をもち、長期間使用しても劣化しにくいクラウンブリッジ用の高透光性ジルコニアを開発することを目的とした。

3. 研究の方法

初年度は、天然歯(抜去大白歯)を歯冠部で板状に切断し、蛍光性と色調を評価した。次に、天然歯に近い色調の蛍光性を発揮させるため、市販の標準グレードジルコニア(TZ-3Y-E)粉末に各種の希土類(Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm)を微量添加し、混合、成形後に焼結して試料を製作し、蛍光分光光度計により評価した。

次年度は、より蛍光強度が高くなる条件を最適化するために、標準グレードのジルコニアに加えて、2種類の歯科用高透光性ジルコニア(ZpexおよびZpex Smile)を用い、 Tm_2O_3 の混和率を変えて試料を作製し、蛍光性や物性を評価した。

最終年度では、より蛍光色調を天然歯に近づけるため、歯科用高透光性ジルコニア(Zpex)に酸化ツリウム(Tm_2O_3)と酸化エルビウム(Er_2O_3)の添加量を変化させて共添加した試料粉末を作製した。これを焼成して円盤状のジルコニア試料を作製した。蛍光性や透過性、ビッカース硬度や破壊靱性値は前年と同様に算出した。

4. 研究成果

初年度の実験で、天然歯は波長365 nmの紫外線に対してピーク波長446 nmの青白色の蛍光を示すことがわかった。またジルコニアへの希土類添加により、Pr、Sm、Euは赤色、Tb、Ho、Erは緑色、Dyは黄色の蛍光を示し、Tmは青色の蛍光を示した。歯質に近い青色を示したTmを添加した試料は、蛍光分光光度計により、波長460 nmの蛍光を示すことが明らかとなった。蛍光強度

はジルコニアの透過性に影響を受けることが推察されたので、以後は、歯科用の高透光性ジルコニアも使用して実験を行うこととした。

次年度の実験において、2種の歯科用高透光性ジルコニアともに Tm_2O_3 添加量が0.8wt%で蛍光強度が最大となった。また、高透光性ジルコニアの透光性は Tm_2O_3 添加量が変わっても、大きく変わらないことが示された。ピッカース硬度は3種のジルコニアで大きな相違はないが、破壊靱性値(K1c)はZpex Smileが他の2種よりも小さくなった。この実験から、イットリアを3mol%含んだ歯科用高透光性ジルコニアに、 Tm_2O_3 を0.8 wt%すると青色の蛍光が得られることが示された。しかしながら、この試料であっても、紫外線ライト下の蛍光は天然歯よりも暗い色調であった。これは、肉眼で観察できる蛍光は、単に蛍光強度だけでなく、その色調が影響を与えていることが考えられた。

最終年度の実験の結果、 Tm_2O_3 のみを添加した試料では波長約460nmのピークをもつ蛍光が、 Er_2O_3 のみを添加した試料では波長約546、562nmの2つのピークをもつ蛍光が認められた。両者を共添加した試料では、3つのピークを合わせ持つ蛍光スペクトルが得られた。得られた蛍光スペクトルから、蛍光色調のxy値を算出し、色度図上にプロットしたところ、0.8 wt%の Tm_2O_3 と0.3-0.5 wt%の Er_2O_3 を共添加した試料が天然歯に近い蛍光色調を有することが示された。 Tm_2O_3 と Er_2O_3 の合計の添加量が変わっても、透光性やピッカース硬度は、添加なしの試料(コントロール)と大きな相違はなかった。破壊靱性値(K1c)はコントロール試料の4.83と比較して、酸化ツリウムと酸化エルビウムを共添加した試料では4.27-4.64で約4-11 %低下した。

以上より、最適な添加量でツリウムとエルビウムを共添加した高透光性ジルコニアは、添加なしのジルコニアと透過性や物性は変わらず、天然歯に近い蛍光色調をもつことが示された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Nakamura T, Nakano Y, Usami H, Okamura S, Wakabayashi K, Yatani H	4. 巻 64
2. 論文標題 In vitro investigation of fracture load and aging resistance of high-speed sintered monolithic tooth-borne zirconia crowns	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Prosthodontic Research	6. 最初と最後の頁 182 ~ 187
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jpjor.2019.07.003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Carbajal Jeison, Wakabayashi Kazumichi, Nakamura Takashi, Yatani Hirofumi	4. 巻 31
2. 論文標題 Fracture Resistance of Computer-Aided Design/Computer-Assisted Manufactured Glass-Ceramic Incisor Crowns Fabricated on Reverse-Tapered Preparations	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The International Journal of Prosthodontics	6. 最初と最後の頁 478 ~ 480
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11607/ijp.5831	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 NAKAMURA Takashi, OKAMURA Shinya, NISHIDA Hisataka, USAMI Hirofumi, NAKANO Yoshiro, WAKABAYASHI Kazumichi, SEKINO Tohru, YATANI Hirofumi	4. 巻 37
2. 論文標題 Fluorescence of thulium-doped translucent zirconia	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Dental Materials Journal	6. 最初と最後の頁 1010 ~ 1016
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4012/dmj.2017-384	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Nakamura T. Okamura S. Nakano Y. Wakabayashi K. Nishida H. Sekino T. Yatani H.	4. 巻 7
2. 論文標題 Comparison of fluorescence of zirconia with glass ceramics for CAD-CAM restoration	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Academy of Digital Dentistry	6. 最初と最後の頁 24-28
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 天羽康介, 若林一道, 酒井英樹, 木林博之, 中村隆志, 矢谷博文
2. 発表標題 審美歯冠補綴装置の光学的シミュレーション解析
3. 学会等名 第128回日本補綴歯科学会学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Konishi, S., Wakabayashi, K., Nakamura, T., Yatani, H.
2. 発表標題 Colorimetry of natural teeth and multi-layered zirconia crowns using a spectral imaging device
3. 学会等名 5th Annual Meeting of International Academy for Digital Dental Medicine (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 西田尚敬, 中村隆志, 六人部慶彦, 山本一世
2. 発表標題 雰囲気制御による3Y-TZP:Eu2+青色蛍光体の作製
3. 学会等名 第30回日本歯科審美学会学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 若林一道, 工藤博貴, 田宮紳吾, 岡村真弥, 脇智典, 中村隆志, 矢谷博文
2. 発表標題 大白歯用新規CAD/CAMハイブリッドレジンブロックで製作したクラウンの破壊強度
3. 学会等名 第30回日本歯科審美学会学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 工藤博貴, 若林一道, 岡村真弥, 天羽康介, 小西祥子, 田宮紳吾, 中村隆志, 矢谷博文
2. 発表標題 CAD/CAM冠用ハイブリッドレジンブロックの前歯部クラウンへの適用 - 第2報 ブロックと支台歯の材質の違いによる色調の差について -
3. 学会等名 第30回日本歯科審美学会学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 塩見祥子, 若林一道, 大住雅之, 岡村真弥, 中野芳郎, 中村隆志, 矢谷博文
2. 発表標題 マルチレイヤー型ジルコニアで作製した前歯部フルカントゥアジルコニアクラウンの色調の比較
3. 学会等名 第9回日本デジタル歯科学会学術大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 岡村真弥, 西田尚敬, 中野芳郎, 若林一道, 中村隆志, 関野 徹, 矢谷博文
2. 発表標題 Tm3+・Er3+共添加ジルコニアの蛍光性・物性評価
3. 学会等名 第9回日本デジタル歯科学会学術大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Nakamura, T., Okamura, S., Nishida, H., Usami, H., Nakano, Y., Wakabayashi, K., Sekino, T. and Yatani, H.
2. 発表標題 Fluorescence of translucent dental zirconia doped with Thulium
3. 学会等名 43rd annual meeting of American Academy of Esthetic Dentistry (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 西田尚敬, 関野 徹, 中村隆志, 矢谷博文
2. 発表標題 Tm-Er共添加ジルコニア蛍光体の発光特性
3. 学会等名 第69回日本歯科理工学会学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 岡村真弥, 西田尚敬, 中野芳郎, 若林一道, 中村隆志, 関野 徹, 矢谷博文
2. 発表標題 Tm3+賦活歯科用高透光性ジルコニアの特性評価
3. 学会等名 第69回日本歯科理工学会学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Nishida, H., Sekino, T., Nakamura, T., Yatani, H. Yamamoto, K
2. 発表標題 Imparting fluorescence color of natural teeth to zirconia material by co-doping Tm-Er
3. 学会等名 10th World Congress of International Federation of Esthetic Dentistry
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 岡村真弥, 西田尚敬, 中野芳郎, 若林一道, 中村隆志, 関野 徹, 矢谷博文
2. 発表標題 Tm3+・Er3+共添加歯科用高透光性ジルコニアの特性評価
3. 学会等名 第70回日本歯科理工学会学術講演会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	関野 徹 (Sekino Toru) (20226658)	大阪大学・産業科学研究所・教授 (14401)	
研究分担者	若林 一道 (Wakabayashi Kazumichi) (50432547)	大阪大学・歯学部附属病院・助教 (14401)	
研究分担者	西田 尚敬 (Nishida Hisataka) (70448116)	大阪歯科大学・歯学部・講師(非常勤) (34408)	
研究分担者	矢谷 博文 (Yatani Hirofumi) (80174530)	大阪大学・歯学研究科・教授 (14401)	