

機関番号：17301

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21791909

研究課題名 (和文) アルミナ・ジルコニアを主成分とする高強度セラミックス用連結材料の開発

研究課題名 (英文) Development of Joint Material for Alumina and Zirconia Ceramics

研究代表者

尾立 哲郎 (ODATSU TETSUROU)

長崎大学・病院・助教

研究者番号：70513167

研究成果の概要 (和文) : アルミナ・ジルコニアを主成分とする歯科用高強度セラミックス材料の連結方法について研究を行った。アルミナとジルコニアからなるコンポジットセラミックスでは、酸化マグネシウム粉末を微量添加することで連結強度が上がり、連結部のないコントロールと同等の曲げ強さを持つ焼結体を得られた。連結材料の走査型電子顕微鏡観察では、焼結体内部に残留する気泡が小さくなり、減少している像が観察された。部分安定化ジルコニアセラミックスでは、試作した連結材のスリップ化に問題があり、使用する分散剤の添加率や pH、焼成スケジュールを変えて試験したが、焼結体内部に気泡が残留し連結強度が上がらなかった。

研究成果の概要 (英文) : This study was to develop the methods of jointing ceramic core materials made from alumina and zirconia. The jointing strength of composite ceramic made from alumina and zirconia was increased as high as joint-free control group, using the jointing material supplemented a trace amount of magnesium oxide. At the Scanning Electron Microscope observation, a number of micro-pores and the pore size was decreased in magnesium oxide supplemented group. But in terms of partially stabilized zirconia ceramic, agglomerated particles were formed and zirconia grains were not dispersed, in spite of changing the additive amount of magnesium oxide, pH conditions and sintering schedules. As a result, micro pores were formed in the structure and jointing strength became a significantly lower.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2000000	600000	2600000
2010 年度	1300000	390000	1690000
年度			
年度			
年度			
総計	3300000	990000	4290000

研究分野：歯科補綴学一般

科研費の分科・細目：医歯薬学・補綴系歯学

キーワード：冠橋義歯補綴学、オールセラミック

1. 研究開始当初の背景

近年、アルミナやジルコニアを主成分とした高強度セラミックスの開発により、金属を

用いないオールセラミック歯冠修復法が大きな注目を集めている。陶材焼付鑄造冠は、内部に金属が裏装されているため光を遮断し、天然歯の透明感を再現できないのに対し、

オールセラミックス歯冠修復では自然な色調を再現することが可能となる。現在では CAD/CAM 技術の向上によって、工業的に均質な歯科用高強度セラミックフレームの作製が可能となった。

現在までの歯科用高強度セラミックスの研究では、その強度や歯質との接着システムの開発に重きを置かれ、これまでに格段の進歩を遂げている一方で、その適合精度に関しては CAD/CAM 技術の発展のみによって補償されてきた。

しかしながら実際の歯科臨床においては、印象材や模型材の寸法変化や模型作製時の手技的な問題から、作製したフレームの適合修正を必要とすることが稀ではない。すなわち、作製した歯冠修復物が技工で使用する作業模型上で適合しても、実際の口腔内で適合しない場合がある。

従来からの金属を鋳造して作製したフレームでは、適合不良の部分を分割し、再度ろう着を行うことで適合修正を行うことが出来るのに対して、接合技術のない歯科用高強度セラミックフレームの場合では大きな修正は難しく、修復物全体を再製作しなければならなくなる。

2. 研究の目的

本研究の目的は、より簡便に適合の良い高強度セラミックスからなる歯冠修復物を提供するために、金属のろう着に相当する新たなセラミックフレームの連結方法を確立することである。

工業的にセラミックスの焼結体を作製する場合、金属酸化物を微量添加することで、焼結をコントロールすることが知られている。先の研究では、被連結体に Alumina とランタンガラスを主成分とし、世界中で頻用されている歯科用高強度セラミックシステムの 1 つである Vita 社製 In-Ceram Alumina を使用し、連結材にアルミナからなるスリップ材として用い、そこに酸化マグネシウムを微量添加することで連結強度を向上させることが出来た。

本研究では被連結体にアルミナ・ジルコニアセラミックスを主成分とする高強度歯科用セラミックスを用い、スリップ材に金属酸化物を微量添加して連結材料を作製する。

3. 研究の方法

(1) アルミナ・ジルコニアからなる多孔質 CAD/CAM 用コンポジットセラミックブロック (In-Ceram Zirconia, VITA 社) を自動精密切断機 (ISOMET, Buehler 社) にて切り

出し、厚さ 1.2 mm、幅 4 mm、長さ 10 mm に成形した。作製した棒状試験片を 0.5 mm 幅で保持し、ここにアルミナとジルコニアからなるスリップ材 (In-Ceram Zirconia, VITA 社) を連結材料として填入した。連結材にはセラミックスの焼結促進添加物として知られる、酸化マグネシウム (和光純薬工業) を微量添加したものを使用した。その後、メーカー指示にしたがって 1180°C でスリップ焼結した後、ガラス浸透焼成を行い多孔質のセラミックフレーム内にランタンガラス (In-Ceram Zirconia Glass Powder, Vita 社) を浸透させ、試料を完成させた。

○焼成スケジュールの詳細

1 次焼成 : 1000°C、2 時間

↓

2 次焼成 : 1180°C、2 時間

↓

ガラス浸透焼成 : 1140°C、3 時間

(2) 部分安定化ジルコニアセラミック (ZENO, WELARD 社) をブロックから切り出し、厚さ 1.2 mm、幅 4 mm、長さ 10 mm に成形した。作製した棒状試験片を 0.5 mm 幅で保持し、ここにジルコニアからなるスリップ材を連結材料として填入した。連結材は易焼結グレードジルコニア粉末 (TZ-3Y-E, 東ソー) と蒸留水で作製した懸濁液に、分散剤としてカルボン酸系蒸重合体アンモニウム塩 (A-6114, 東亜合成) またはポリアクリル酸アンモニウム (A-30SL, 東亜合成)、消泡材としてポリオキシアルキレングリコール誘導体 (和光純薬工業)、pH 調整剤として塩酸を添加し、上記 (1) と同様に、酸化マグネシウム (和光純薬工業) を微量添加したものを使用した。

同様にアルミナ粉末 (低温焼結性アルミナ, 大明化学工業) を使用した、アルミナからなるスリップ材も連結材料として作製した。

それぞれの試験片を耐水研磨紙にて厚さ 1.2 mm、幅 4 mm、長さ 20 mm に形態修正した後、万能試験機 (島津製作所, AGS-10kNG) を使用して支点間距離 15 mm、クロスヘッドスピード 0.5 mm/min という条件で連結部に加重を加え 3 点曲げ試験を行い、以下の計算式 (ISO 6872) を用いて連結強度を求めた。

$$3 \text{ 点曲げ強さ } M \text{ (MPa)} = 3Wl/2bd^2$$

W : 破壊荷重 (N)

l : 支点間距離 (mm)

b : 試験片の幅 (mm)

d : 試験片の厚さ (mm)

また、連結部のない試料も作製し実験に加え、コントロールとした。

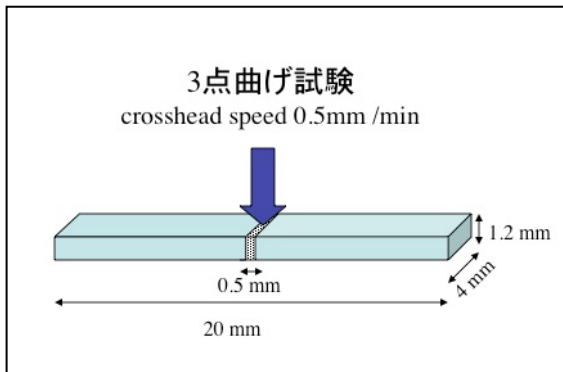


図 1：連結試験

曲げ試験にて、良好な結果を得られたアルミナ・ジルコニアからなるコンポジットセラミックスについては、連結材料の破断面を走査型電子顕微鏡（S-3500N、日立製作所）にて観察した。

4. 研究成果

(1) アルミナ・ジルコニアからなる多孔質セラミックスを被連結体とし、連結材に酸化マグネシウムを微量添加した実験群の曲げ試験結果を示す。

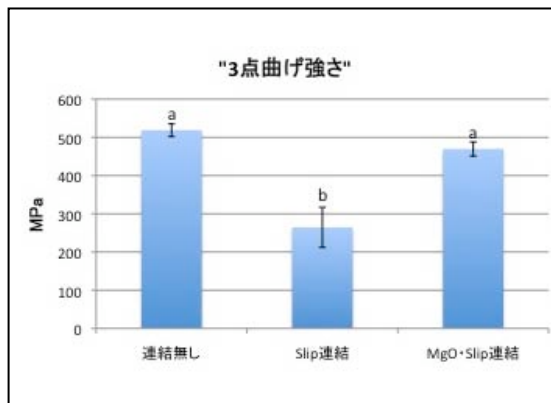


図 2：曲げ試験結果 (0.1wt%MgO 添加)

連結材料に酸化マグネシウムを微量添加した試験群 (MgO・Slip 連結) では、アルミナ・ジルコニアのみで作製した連結材料で連結した試験群 (Slip 連結) と比較して、有意に高い曲げ強さを示した ($P > 0.05$)。これは連結部のないコントロール (連結なし) と同等の値であり、連結材として使用可能であることが示された。

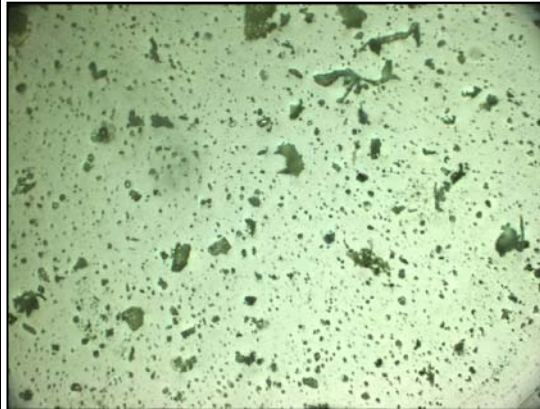
連結材料の走査型電子顕微鏡観察では、焼結体内部に残留する気泡が小さくなり、減少している像が観察された。スリップの焼成ではセラミックス粒子が相互に接する部位で、溶解することなく固相焼結するとされている¹⁾。今回使用した連結材 (In-Ceram Zirconia) は、ランタンガラス浸透前はセラ

ミック粉末がアルミナ 69%、ジルコニア 31%という組成で出来ており、焼結中に微量添加した酸化マグネシウムがアルミナの焼結を遅らせた結果、アルミナ粒子境界の成長が遅延され、内部に残留気泡の少ない焼結体を得られたものと考察する。

(2) 部分安定化ジルコニアセラミックス・アルミナセラミックス

試作した連結材料破断面の、顕微鏡写真を示す。

図 3：試作連結材の破断面



焼結体内部には 2~30 μm 程度と様々な大きさの気泡が残留した像が観察された。曲げ強さでは 200MPa 程度であり、歯科用ジルコニアセラミックスの曲げ強さ 1200MPa の 20% 程度となった。これは、セラミックス粉末の溶媒への分散中に 2 次粒子が生成し、粒子間の凝集が阻害され、構成された空間がそのまま気泡となったと考察する。

研究期間中、分散剤や消泡剤の添加率、溶媒の pH を変更したり、スリップの攪拌時間や速度を変えて連結材料を試作したものの、高密度な焼結体を得るには至らなかった。

(参考文献)

1) 守吉祐介, 笹本忠, 植松敬三ほか. セラミックスの焼結, 東京: 内田老鶴圃, 1995.

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 0 件)

[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〕
なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

尾立 哲郎 (ODATSU TETSUROU)

長崎大学病院・助教

研究者番号：70513167