

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 26 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24592916

研究課題名(和文) 生体にやさしい歯冠用コンポジットレジン複合型ジルコニアクラウンの臨床応用に向けて

研究課題名(英文) Studies on zirconia-based crowns combined with composite resin that is gentle to the biogenic for the clinical application

研究代表者

下江 宰司 (Shimoe, Saiji)

広島大学・医歯薬保健学研究院(歯)・准教授

研究者番号：90379884

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：この研究は臨床応用に向けたジルコニアと歯冠用コンポジットレジンの複合化について、その接着特性に関する検討を行った。方法として、機械的嵌合力、化学的な表面処理、機能性モノマーの化学的相互作用、ブラスト処理とその後の熱処理による相転移、被着面のぬれなどの要因が接着強さに及ぼす影響についてその有効性や耐久性の評価を行った。その結果、各要因で効果的な条件が明らかとなり、現時点における最適な臨床応用法が示唆された。

研究成果の概要(英文)：This study was evaluated the bonding behavior of indirect composites joined to zirconia material for clinical application. The effect of mechanical retentive force, chemical surface treatments, chemical interaction of functional monomers, air-abrasion and subsequent heat treatment, wettability of bonding surface were evaluated in the usefulness and durability. In the results, the optimal method for clinical application was suggested, because the effective conditions were revealed in each factor.

研究分野：医歯薬学

キーワード：ジルコニア 歯冠用コンポジットレジン 接着強さ 表面処理

1. 研究開始当初の背景

歯科診療におけるジルコニアは、単体として用いられるインプラントのアバットメントを除いては主にオールセラミッククラウン・ブリッジのフレームに応用されている。一方、外装には審美性を考慮して従来のセラミック材料を焼付けているため、破折や対合歯の摩耗など歯や顎骨、歯周組織のダメージが懸念される症例では使用が制限されることも予想される。このような症例においては従来、セラミック材料とは異なる長所を有する歯冠用コンポジット材料が選択されることも少なくなく、その機械的性質は近年飛躍的に向上している。また、コンポジット材料はセラミック材料が破折した修復物の口腔内修理にも応用されている。

しかしながら、歯冠用コンポジットレジン複合型ジルコニアクラウンとして長期的に口腔内で機能するためには、咬合圧に耐えうる最適なフレームのデザインとともに、より強固な結合とその耐久性が必要となるが、歯冠修復用コンポジットレジンの複合化に関する報告は国内外ともに僅かであり、耐久性を含め、その結果は臨床応用可能なレベルに到達しているとは言えない。

2. 研究の目的

従来の歯科補綴物は歯や顎骨、歯周組織へのダメージまでも考慮し、金属、セラミック材料、高分子材料の3種を単独または複合化することにより様々な症例に対応してきた。歯科診療における審美的要求やアレルギーに対しても有効なジルコニアが、金属に代わる生体材料としてさらに活用されるためには、セラミック材料だけでなく“生体にやさしい”とされる高分子材料との複合化も必須であると考えられる。そこで本研究では、前回の申請で明らかにできなかったセリア系のCe-TZP/アルミナナノ複合体(ナノジルコニア)を加え、歯冠用コンポジットレジン複合型ジルコニアクラウンの臨床応用に向けた新技術を開発することを目的とした。

3. 研究の方法

ジルコニアの試料は、セリア系のナノジルコニアを主に使用し、接着処理条件として、(1)機械的嵌合力の影響、(2)化学的な表面処理の影響、(3)機能性モノマーの化学的相互作用の解析、(4)プラスト処理とその後の熱処理による相転移の影響、(5)ジルコニア被着面のぬれが接着強さに及ぼす影響についてそれぞれ剪断接着試験やXPSによる化学的解析などを行い、その有効性及び耐久性について評価を行った。

4. 研究成果

(1) 機械的嵌合力の影響

ナノジルコニアを使用し、機械的維持として臨床で最も用いられるアルミナプラスト

処理について、粒径を25~125 μmの4条件、噴射圧を0.1~0.4 MPaの4条件とし、これらに無処理のものを加え、耐久性も含めて検討を行った。

その結果、アルミナ粒径の違いでは、無処理と比較しアルミナプラスト処理を行った4つのグループは有意に高い値を示したが、粒径の違いによる差は認められなかった。また、噴射圧の違いでも、無処理のものに比べ処理したものは高い値を示したが、噴射圧の違いによる差は認められなかった。

以上の結果よりナノジルコニアと歯冠用コンポジットレジンの接着においても、アルミナプラスト処理は有効に作用するものの、アルミナ粒径、噴射圧の違いは接着効果に影響を与えないことが明らかとなった(投稿予定)。

(2) 化学的な表面処理の影響

ナノジルコニアとの接着における化学的な表面処理の効果について検討した。2種類のプライマーとトライボケミカル処理したものを比較した結果、トライボケミカル処理したものは無処理と有意差が無く、効果が認められなかった。2種プライマーは処理をしなかったものと比較して有意に高い値を示したが、機能性モノマーであるホスホン酸系モノマー(6-MHPA)よりリン酸エステル系モノマー(MDP)を含有しているプライマーのほうが高い値を示した。この結果により、Y-TZPジルコニアには有効であったトライボケミカル処理は効果がないこと、6-MHPAやMDPと行った機能性モノマーがどちらのジルコニアにも有効なことが明らかとなった。

(3) 機能性モノマーの化学的相互作用の解析

力学的な試験において有効とされる各種機能性モノマーが実際にジルコニア表面に吸着しているかを検証するため、X線光電子分光分析装置(XPS)にて表面分析を行った。ジルコニアはY-TZPとナノジルコニアを用い、プライマーはリン酸エステル系モノマー(MDP)、トリアジン系ビニルモノマー(VBATDT)、シランカップリング剤(-MPTS)、カルボン酸系モノマー(4-META)が含有されている3種を用いた。

クリアファイルセラミックプライマー(CP)、アロイプライマー(AP)処理時では、2つのジルコニアともにMDPの成分であるP2pスペクトルにピークが見られた。また、CPに含まれる-MPTSの成分であるSi2pや、APに含まれるVBATDTのS2pにはピークが見られなかった。さらにスーパーボンドC&Bのリキッドに含まれる4-METAは、ZrとCの吸着量の比を算出し、無処理、CP、APと比較したところ、未処理よりCの値が大きくなる傾向が見られたが、MDPを含んだプライマーと比べると小さい値を示した。

化学的な分析により、接着試験で有効であ

ることが報告されている MDP がジルコニアに吸着することが明らかになった。4-META はそれに比べると吸着量が少ないと考えられ、VBATDT は吸着しないことが確認された。また、アルミナを 30% 含有するナノジルコニアにおいても -MPTS の吸着は認められなかった (投稿予定)。

(4) プラスト処理とその後の熱処理による相転移の影響

ジルコニアはアルミナサンドブラストの応力負荷により表層の正方晶が単斜晶へ相変態し、熱処理によって正方晶へ結晶相が回復することが知られている。ナノジルコニアにおけるプラスト処理と熱処理の有無が接着強さへ及ぼす影響について検討した。

その結果、表面粗さにおいては処理なしと 10 秒間または 20 秒間アルミナプラストを行ったもの (S10、S20) には差があったが、S10 と 10 秒間プラストを行った後、1100 で 10 分間熱処理を行ったもの (S10-H) には有意差が認められなかった。しかしながら、コンポジットレジンとの接着強さでは、熱サイクルの前後において、C、S10-H グループが S10、S20 グループに対し有意に低い値を示した。これらのことから陶材の築盛とは異なり、歯冠用コンポジットレジンとの接着においてプラスト処理後の熱処理は不要であることが Y-TZP ジルコニアと同様に示唆された。

(5) ジルコニア被着面のぬれが接着強さに及ぼす影響

ジルコニア表面のぬれと接着強さの関係について Y-TZP ジルコニアを用いて検討を行った。条件は半自動研磨機 600 番での切削面と、10%フッ化水素酸処理、アルミナプラスト処理の 3 条件と、それぞれの条件で熱処理の有無を設定し、その接触角と接着強さを測定した。その結果、切削面、10%フッ化水素酸処理、アルミナプラスト処理の順に接触角は低くなり、それらに熱処理を施した試料は 3 条件すべてで接触角の減少を示した。次に接触角と接着強さの関係では、熱処理の有無で分けると 3 条件の間には強い相関が認められたが、熱処理の有無を加えたすべての条件で評価すると相関は認められず、表面のぬれだけでなく他の条件も影響を及ぼすことが明らかとなった (投稿予定)。

3 年間の本研究の成果をまとめると、複合化に必要な各条件について最適なものを明らかにすることで、ジルコニアと歯冠用コンポジットレジンの結合強度は金属と陶材の焼き付け強度に近いものとなり、現時点での臨床応用において最善な指針が得られたと考えられる。しかし、高分子材料の欠点である吸水性や経時的な劣化を考慮すればさらなる検討が必要である。今後は新たな機械的維持装置の考案により、さらなる結合強度や耐久性を模索していく予定である。

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 5 件)

1. 下江宰司, ジルコニアと間接修復用コンポジットレジンの接着, 日本歯科技工学会雑誌, 査読無, 第 36 巻, 第 1 号, 2015, 印刷中.
2. 下江宰司, 荒木結子, 田上直美, 松村英雄, 村山 長, 二川浩樹, 里田隆博, ジルコニアとの接着における表面処理の有効性と歯冠用コンポジットレジンの接着特性. 日本歯科技工学会雑誌, 査読有, 第 34 巻, 第 1 号, 2013, 1-7.
3. 岩畔将吾, 下江宰司, 千葉祐嗣, 大倉啓孝, 里田隆博, ジルコニアと前装用陶材の焼付強度におけるアルミナプラスト処理の効果と焼成速度の影響. 日本歯科技工学会雑誌, 査読有, 第 34 巻, 第 1 号, 2013, 8-14.
4. Shimoe Shimoe, Tanue Naomi, Kusano Kenta, Okazaki Masayuki, Satoda Takahiro, Influence of air-abrasion and subsequent heat treatment on bonding between zirconia framework material and indirect composites, Dental Materials Journal, 査読有, Vol.31, No.5, 2012, 751-757.
5. 千葉祐嗣, 下江宰司, 岩畔将吾, 里田隆博. 床用レジンとジルコニアの接着における表面処理の効果. 日本歯科技工学会雑誌, 査読有, 第 33 巻, 第 1 号, 2012, 1-5.

〔学会発表〕(計 8 件)

1. 下江宰司, 千葉祐嗣, 平田伊佐雄, 岩畔将吾, 松村英雄, 加藤功一, ジルコニアと機能性モノマーの化学的相互作用の解析, 日本歯科理工学会第 64 回学術大会, 2014 年 10 月 4, 5 日, アステールプラザ (広島・広島市)
2. 岩畔将吾, 下江宰司, 村山 長, 里田隆博, ジルコニアとコンポジットの接着におけるダイオードレーザーを用いた微細維持の効果, 日本歯科技工学会第 36 回学術大会, 2014 年 9 月 20, 21 日, 北海道大学 (北海道・札幌市)
3. 大平ちひろ, 下江宰司, 岩畔将吾, 大宅麻衣, 谷口暁音, 里田隆博, 表面処理による親水性がジルコニアと歯冠用コンポジットレジンの接着に及ぼす影響, 日本歯科技工学会第 36 回学術大会, 2014 年 9 月 20, 21 日, 北海道大学 (北海道・札幌市)
4. 大宅麻衣, 下江宰司, 岩畔将吾, 大平ちひろ, 谷口暁音, 里田隆博, ナノジルコニアとコンポジットレジンの接着

におけるアルミナプラストの効果-噴射圧の影響-, 日本歯科技工学会第 36 回学術大会, 2014 年 9 月 20, 21 日, 北海道大学 (北海道・札幌市)

5. Iwaguro Shogo, Shimoe Saiji, Murayama Takeshi, Ohkura Hirotaka, Satoda Takahiro, Influence of micro slits with three-dimensional laser beam machine on the bond strength between zirconia and veneering porcelain, The 5th International Congress of Dental Technology, The 35th the meeting of the Nippon Academy of Dental Technology, 2013, 7, 5-7, Daejeon (Korea)
6. Kanou Yuri, Shimoe Saiji, Shintani Kou, Iwaguro Shogo, Satoda Takahiro, Effect of surface treatment on bonding of indirect composite to Ce-TZP/Al₂O₃ nanocomposite, The 5th International Congress of Dental Technology, The 35th the meeting of the Nippon Academy of Dental Technology, 2013, 7, 5-7, Daejeon (Korea)
7. Shintani Kou, Shimoe Saiji, Kanou Yuri, Iwaguro Shogo, Satoda Takahiro, Influence of air-abrasion and subsequent heat treatment on bonding between Ce-TZP/Al₂O₃ nanocomposite, The 5th International Congress of Dental Technology, The 35th the meeting of the Nippon Academy of Dental Technology, 2013, 7, 5-7, Daejeon (Korea)
8. 高木由真, 下江宰司, 木坂健志, 山本早紀, 千葉祐嗣, 岩畔将吾, 里田隆博, ナノジルコニアとコンポジットレジンの接着におけるアルミナプラスト処理の効果, 日本歯科技工学会第 34 回学術大会, 2012 年 9 月 15, 16 日, ママカリフォーラム (岡山県・岡山市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

下江 宰司 (Shimoe Saiji)

広島大学・大学院医歯薬保健学研究院・准教授

研究者番号 : 9 0 3 7 9 8 8 4

(2) 研究分担者

里田 隆博 (Satoda Takahiro)

広島大学・大学院医歯薬保健学研究院・教授

研究者番号 : 8 0 1 7 0 8 0 1

平田 伊佐雄 (Hirata Isao)

広島大学・大学院医歯薬保健学研究院・助

教

研究者番号 : 4 0 3 4 6 5 0 7