

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24792058

研究課題名(和文)ジルコニアオールセラミック修復用陶材の強度向上の要件を探る

研究課題名(英文)The factors to improve the strength of zirconia all-ceramic veneering porcelain.

研究代表者

三浦 賞子 (Miura, Shoko)

東北大学・大学病院・医員

研究者番号：60431590

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円、(間接経費) 720,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、ジルコニアフレームや焼成条件の変化がベニアポーセレンの破壊靱性に及ぼす影響を検討することである。

破壊靱性値の測定は、ISO15732に準じた破壊靱性試験により評価した。ジルコニアオールセラミック修復用ベニアポーセレンは、2種類の異なった厚さのジルコニアフレーム(以下ZAC)に、各3条件の焼成温度及び昇温速度にて焼成した。ZAC及びPFMの破壊靱性値は、フレーム厚さの違いや焼成温度条件では有意差はみられなかった。昇温速度条件では、ZACでは速度を速くした場合においてマニュアル条件よりも破壊靱性値は有意に低くなった($p<0.05$)。

研究成果の概要(英文)：We investigated how various frame materials, porcelain firing temperature and heating rate influenced the fracture toughness of the veneer porcelain used for zirconia all-ceramic restorations.

The fracture toughness was evaluated according to the ISO 15732 standard. The data were analyzed using 2-way ANOVA and the Tukey-Kramer HSD test. The results suggest that the effects of the ZAC frame thickness and firing temperature on the fracture toughness of the veneer porcelain were not significantly different; however, the heating rate significantly influenced the fracture toughness.

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学 補綴・理工系歯学

キーワード：ジルコニアセラミックス 陶材 焼成条件 破壊靱性 チッピング

1. 研究開始当初の背景

歯科用CAD/CAMシステムの技術向上およびジルコニアセラミックの臨床導入は、ジルコニアオールセラミック修復の臼歯部クラウン・ブリッジ症例への応用を可能にした。

当分野では、日本での許認可以前からジルコニアセラミックの物性に関する基礎研究に携わり、ジルコニアセラミックが臨床応用に十分な強度を持つことを報告した。一方、臨床においてはこれまでに100ケース以上のジルコニアオールセラミック修復を装着し、その予後を追跡してきた。その結果、7.0% (8 ケース) に陶材のチッピングが認められた。

ジルコニアオールセラミック修復の症例には、1,2年で8~50%の割合でチッピングが生じ、その発生率はメタルセラミック修復の10年で4%という頻度をはるかに上回るとの報告がある (I. Sailer ら, *Int J Prosthodont* 20: 383-388, 2007, T. E. Donovan, *JADA* 139: 14S-18S, 2008)。我々の臨床研究におけるチッピング率はこれらの報告よりも小さい値ではあるものの、メタルセラミック修復と比べるとやはり高率であるといえる。

さらにこれまでのチッピングについて詳細な観察・検討を加えたところ、全例が装着後1年以内に生じた陶材内でのチッピングであり、ジルコニアフレーム界面の露出を伴わない凝集破壊であったという共通した特徴を有した。この特徴はP.G.Coelho ら (*J Dent Res* 88(4): 382-386, 2009) や M.Schmitter ら (*J Oral Rehabil* 36: 610-615, 2009) の報告とも一致しており、チッピングの原因がジルコニアセラミックの界面ではなく、陶材の内部破壊にあることを示すものである。したがって、陶材そのものの強度を高める手法を確立することが、チッピングが少なく予知性の高いジルコニアオールセラミック修復の実現に不可欠と考え、本研究を企画立案した。

2. 研究の目的

我々は陶材に生じる内部破壊の原因について以下の仮説を持つ。

(1) 熱伝導率が小さい

ジルコニアは熱伝導率が小さく、陶材との比較では1/3程度であるが、金属と比べると1/300まで劣る。このため陶材の表層だけが冷えて固化し、ジルコニアはかなり遅れて冷えるため、温度傾斜による歪みが焼成後の陶材内部に生じやすい可能性がある。

(2) 熱容量が大きい

ジルコニアの熱容量は金の約5倍であることから、焼成条件(焼成温度、焼成速度など)によっては、陶材の焼成不足が生じやすい可能性がある。

(3) フレームの形態

陶材を支持するジルコニアフレームの形態が陶材の強度に影響する可能性がある。

以上のことから、ジルコニアオールセラミック修復用陶材の焼成条件と強度の関係、ジルコニアフレーム形態と陶材の強度の関係について、メタルセラミック修復と比較しながら分析し、陶材の強度を高め、チッピングが起らない長期的に安定したジルコニアオールセラミック修復の至適条件を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) フレームの製作

実験に使用した材料を表1に示す。ジルコニア試料のフレーム部分は、フレーム材(cercon[®] base, DeguDent GmbH, Hanau-Wolfgang, Germany)を切断機(MICRO-MATIC PRECISION SLICING & DICING MACHINE, MICROTEC)にて板状に切り出し、それらを専用焼結炉(cercon[®] heat, DeguDent GmbH)にて焼結(約1350℃, 約7時間)した。その後、ダイヤモンドディスク(シンタディスク, 松風, 京都, 日本)にて長さや幅を、#400の研磨シート(ダイヤモンドパッド, マルトー, 東京, 日本)を使用して厚さを調整し、各実

験条件に準じたジルコニアフレームを完成させた。これらのジルコニアフレームは、50 μm の酸化アルミニウムでサンドブラスト（2.5気圧，距離3 cm，10秒）処理をし，アルコールで10分間超音波洗浄後，ポーセレンファーンズ（AUSTROM3001，DEKEMA，Frankfurt，Germany）を使用し，メーカー指示によるマッフルの空焼き（650～1000，昇温速度55 /分，係留5分，大気中）を行った。

コントロールとして，メタルセラミック試料も製作した。メタルセラミック試料のメタルフレーム（陶材焼付用合金；KIK，ISHIFUKU，東京，日本）は，アクリル板で各実験条件に準じたサイズのパターンを製作し，それらをリン酸塩系埋没材（Ceravest G，GC，東京，日本）にて埋没しリング加熱（800，30分係留）後，歯科用真空加圧鑄造機（CASAPAC MK3，Dentronics，東京，日本）を用いて鑄造し製作した。その後，#800のサンドペーパー（耐水研磨紙，Struers，Ballerup，Denmark）にてサイズを調整し完成させた。これらのメタルフレームは，ジルコニアフレームと同様に，50 μm の酸化アルミニウムでサンドブラスト処理をし，アルコールで10分間超音波洗浄，メーカー指示による温度でディギャッシング（メーカー指示，1030，15分係留，大気中）を行った。

(2) フレームへのベニアポーセレンの築盛・焼成

ジルコニアフレームは，オペーク陶材を筆積みにて築盛し，8分乾燥後，メーカー指示による焼成スケジュールにて焼成（焼成温度500～940，昇温速度45 /分，1分係留，真空中）を行った。これを2回繰り返し，オペーク陶材の厚みが焼成後0.2 mmとなるようにした。その後，ポーセレン築盛用ジグを用いてデンティン陶材を粉末2.0 g，液0.7 ml（蒸留水）の分量で混和し，コンデンスを行いながら築盛し，20分乾燥させた。焼成は，各実験条件に準じた焼成スケジュールにて行った。焼成

後，#400の研磨シート（ダイヤモンドパッド，マルトー，東京，日本）にてポーセレンの厚みが約3.0 mmとなるよう研磨した。

メタルフレームの陶材の築盛は，ジルコニアフレームと同様の手順で行った。

(3) 試料の包埋・研磨

(2)で製作した試料は，エポキシ樹脂（エポフィックス，Struers）にて全ての試料を包埋し，包埋材の硬化後，試料の断面を出すために研磨機（サファイア 820S，マルトー，東京，日本）にて試料の真中まで一方向から粗研磨をした。その後，断面をダイヤモンド研磨材（ダイヤモンドサスペンション，Buhler，Uzwil，Switzerland）にて 15 μm ，6 μm ，1 μm の順に鏡面になるように手研磨を行った。

(4) 破壊靱性値の測定

破壊靱性値の測定は，ISO15732 に準じ，ビッカース圧痕を用いた破壊靱性試験を微小硬さ計（AKASHI MVK-H2，Mitutoyo，神奈川，日本）を使用して行った。各実験にて定められた計測点に圧痕をつけ，破壊靱性値を算出した。

計測データは，圧子の負荷に耐えられず圧痕が割れた場合や，亀裂が対角線延長上にない場合など，計測不可能と見なされた圧痕部分は除き，可能と判断したものをデータとして集計した。データの統計分析には2要因の分散分析と Tukey-Kramer の HSD 検定 ($\alpha=0.05$) を用いた。

(5) フレーム材の影響

ジルコニア試料及びメタルセラミック試料ともに，厚さが 0.4 mm（10 mm×15 mm×0.4 mm 以下 ZAC（0.4））と 0.8 mm（10 mm×15 mm×0.8 mm 以下 ZAC（0.8））の2種類のフレームを製作し，3-(2)で示した方法にて試料を製作した。なお，ジルコニアオールセラミック修復用ベニアポーセレンについては，ベニアポーセレンのみの試料（以下 ZAC（0.0））も製作した。試料数は各条件につき5個とし，ジルコニア試料は計15個，メタルセラミッ

ク試料は計 10 個製作した。

破壊靱性値の測定は、ベニアポーセレン部分のフレームからの距離が 0.5 mm, 1.0 mm, 1.5 mm, 2.0 mm の地点を計測点とし、各地点 6 箇所 (計 24 箇所) にビッカース圧痕を付けた。これによりビッカース硬度を測定し、破壊靱性値を算出することで、フレームの種類ごとにフレームの厚さとフレームからの距離が破壊靱性値に与える影響を分析した。

(6) 焼成条件の影響

ジルコニア試料 (ZAC (0.4)) およびメタルセラミック試料 (PFM (0.4)) はオバーク陶材を焼成後、デンティン陶材の焼成を行った。試料数は各条件につき 5 個ずつとし、ジルコニア試料、メタルセラミック試料各 25 個ずつ製作した。

破壊靱性値の測定は、ベニアポーセレン部分のフレームからの距離が 0.5 mm, 1.0 mm, 1.5 mm, 2.0 mm, 2.5 mm の地点を計測点とし、各地点 4 箇所 (計 20 箇所) にビッカース圧痕を付けた。これによりビッカース硬度を測定し、破壊靱性値を算出することで、フレームの種類ごとに焼成温度とフレームからの距離、また昇温速度とフレームからの距離が破壊靱性値に与える影響を分析した。

4. 研究成果

(1) フレーム材の影響

ジルコニア試料におけるベニアポーセレンの破壊靱性値は、ZAC(0.8)では 1.11 ~ 1.43 $\text{MPa m}^{1/2}$ の範囲内であり、平均は $1.29 \pm 0.09 \text{ MPa m}^{1/2}$ であった。同様に ZAC (0.4)では 1.13 ~ 1.44 $\text{MPa m}^{1/2}$, 平均 $1.33 \pm 0.08 \text{ MPa m}^{1/2}$ ZAC (0.0)では 1.28 ~ 1.51 $\text{MPa m}^{1/2}$, 平均 $1.35 \pm 0.05 \text{ MPa m}^{1/2}$ であった (図 1 上)。各条件それぞれの地点毎の平均値間及びフレーム厚さ 3 条件間には有意差は認められなかった ($p > 0.05$)。

メタルセラミック試料におけるベニアポーセレンの破壊靱性値は、PFM (0.8)では 1.65 ~ 2.04 $\text{MPa m}^{1/2}$ の範囲内であり、平均は $1.81 \pm 0.10 \text{ MPa m}^{1/2}$ であった。同様に PFM (0.4)

では 1.61 ~ 1.97 $\text{MPa m}^{1/2}$, 平均 $1.79 \pm 0.11 \text{ MPa m}^{1/2}$ であった (図 1 下)。各条件のそれぞれの地点毎の平均値間及びフレーム厚さ 2 条件間には有意差は認められなかった ($p > 0.05$)。メタルセラミック試料の全体の平均値はジルコニア試料と比較して約 1.4 倍高かった ($p < 0.05$)。

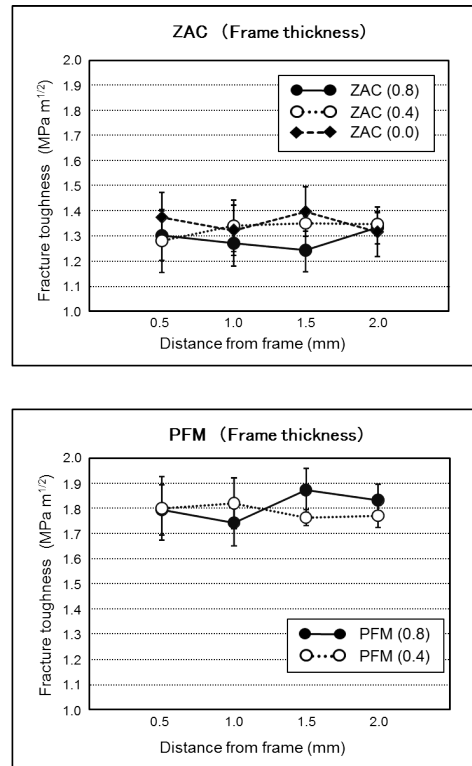


図 1 フレーム材の影響

(2) 焼成条件の影響

焼成温度による影響

ジルコニア試料におけるベニアポーセレンの破壊靱性値は、条件 M では 1.13 ~ 1.61 $\text{MPa m}^{1/2}$ の範囲内であり、平均は $1.36 \pm 0.13 \text{ MPa m}^{1/2}$ であった。同様に条件 H では 0.88 ~ 1.60 $\text{MPa m}^{1/2}$, 平均 $1.27 \pm 0.15 \text{ MPa m}^{1/2}$ 。条件 L では 1.13 ~ 1.54 $\text{MPa m}^{1/2}$, 平均 $1.36 \pm 0.12 \text{ MPa m}^{1/2}$ であった (図 2 上)。各条件それぞれの地点毎の平均値間及びフレーム厚さ 3 条件間には有意差は認められなかった ($p > 0.05$)。

メタルセラミック試料におけるベニアポーセレンの破壊靱性値は、条件 M では 1.45

~ 1.96 MPa m^{1/2} の範囲内であり，平均 1.60±0.11 MPa m^{1/2}，条件 H では 1.43~1.83 MPa m^{1/2}，平均 1.60±0.13 MPa m^{1/2}であった（図 2 下）．なお，条件 L は，計測可能な圧痕が他の試料と比較し明らかに少なかったため，今回のデータから除外した．各条件それぞれの地点毎の平均値間及び焼成条件 2 条件間には破壊靱性値の差は認められなかった（p>0.05）．メタルセラミック試料の全体の平均値はジルコニア試料と比較して約 1.2 倍高かった（p<0.05）．

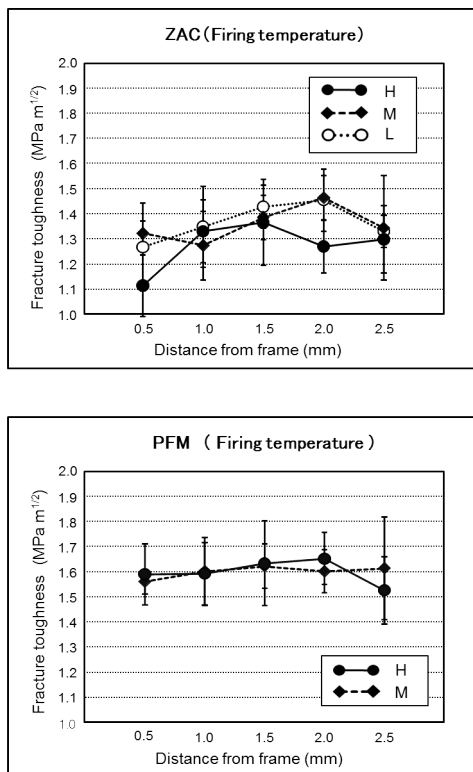


図 2 焼成温度の影響

(3)昇温速度による影響

ジルコニア試料におけるベニアポーセレンの破壊靱性値は，条件 M では 1.13~1.61 MPa m^{1/2} の範囲内であり，平均は 1.36±0.13 MPa m^{1/2}であった．条件 F では 1.05~1.41 MPa m^{1/2}，平均 1.25±0.08 MPa m^{1/2}，条件 S では 1.06~1.48 MPa m^{1/2}，平均 1.30±0.09 MPa m^{1/2}であった（図 3 上）．各条件それぞれの地点毎の平均値間では，条件 F において 0.5 mm

地点は 2.0 mm 地点に対して有意に低かった（p < 0.05）．また，昇温速度 3 条件間において条件 F は条件 M と比べて有意に低かった（p<0.05）．

メタルセラミック試料におけるベニアポーセレンの破壊靱性値は，条件 M では 1.45~1.96 MPa m^{1/2} の範囲内であり，平均は 1.60±0.11 MPa m^{1/2}であった．条件 F では 1.43~1.83 MPa m^{1/2}，平均 1.59±0.12 MPa m^{1/2}，条件 S では 1.47~1.94 MPa m^{1/2}，平均 1.72±0.09 MPa m^{1/2}であった（図 3 下）．各条件それぞれの地点毎の平均値間には，有意差は認められなかった（p>0.05）．また，昇温速度 3 条件間において条件 S は条件 M, F と比べて有意に高かった（p<0.05）．メタルセラミック試料の全体の平均値はジルコニア試料と比較して約 1.3 倍高かった（p<0.05）．

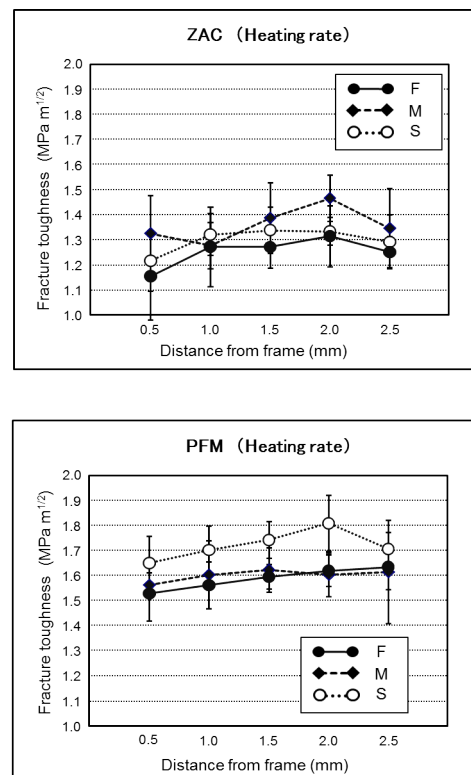


図 3 昇温速度の影響

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2件)

Shoko MIURA, Ryoichi INAGAKI, Shin KASAHARA, Masanobu YODA. Fit of zirconia all-ceramic crowns with different cervical margin designs, before and after porcelain firing and glazing. Dental Material Journal 2014: 33; in press.

工藤桃子, 三浦賞子, 菊地聖史, 稲垣亮一, 笠原紳, 佐々木啓一, 依田正信. ジルコニアオールセラミック修復用ベニアポーセレンの破壊韌性に関する研究 - フレーム材とポーセレンの焼成条件の影響 -. 日本補綴歯科学会誌 2014: 6(3)印刷中.

〔学会発表〕(計6件)

S. Miura, S. Kasahara, M. Kudo, Y. Okuyama, A. Izumida, M. Yoda, K. Sasaki, A Retrospective Study All-ceramic Single Crowns: 5-year clinical results, The 5th International Symposium for Interface Oral Health Science, 2014年1月20日, 仙台・東北大学

笠原紳, 加藤裕光, 奥山弥生, 三浦賞子, 佐々木啓一, 模型材の色調がCAD/CAM計測精度に与える影響, 日本補綴歯科学会東北・北海道支部学会, 2013年10月12日, 札幌

S. Miura, M. Kudo, R. Inagaki, S. Kasahara, K. Sasaki, M. Yoda, Stress Analysis of Cantilevered All-Ceramic FPDs Using the 3-D FEM, 2nd Meeting of the International Association for Dental Research Asia Pacific Region, 2013年8月21日, Bangkok, Thailand.

工藤桃子, 三浦賞子, 笠原紳, 奥山弥生, 泉田明男, 稲垣亮一, 佐々木啓一, 依田正信, ジルコニアオールセラミッククラウンの臨床報告 第122回日本補綴歯科学会学術大会, 2013年5月18日, 福岡.

M.Kudo, S. Miura, M. Kikuchi, S. Kasahara, R. Inagaki, K. Sasaki, M.Yoda, Fracture Toughness of Veneer Porcelain for Zirconia All-ceramic Crown, 91th IADR General Session, 2013年3月

23日, Seattle, USA.

工藤桃子, 三浦賞子, 菊地聖史, 稲垣亮一, 笠原紳, 佐々木啓一, 依田正信, ジルコニアオールセラミック用ベニアポーセレンの破壊韌性値に及ぼす焼成条件の影響, 第121回日本補綴歯科学会学術大会, 2012年5月18日, 横浜.

6. 研究組織

(1)研究代表者

三浦 賞子 (Miura, Shoko)

東北大学・大学病院・医員

研究者番号: 60431590