#### 研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 元 年 6 月 2 4 日現在

機関番号: 15401

研究種目: 基盤研究(C)(一般)

研究期間: 2016~2018

課題番号: 16K11593

研究課題名(和文)ジルコニアの応用範囲拡大に向けた新規微小維持の開発

研究課題名(英文)Development of the new micro retention for expanding the clinical application of zirconia

#### 研究代表者

下江 宰司(Shimoe, Saiji)

広島大学・医歯薬保健学研究科(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) 3.600.000円

研究成果の概要(和文): この研究はジルコニアの臨床応用拡大を目的に、歯冠用コンポジットレジン、床用アクリルレジンとの複合化における格子状の新規微小維持の効果を検討し、その接着特性について評価を行った。具体的には2種類のジルコニア(Y-TZP、Ce-TZP/A)を用い、微細維持のサイズによる違い、重合方法の影響、紫外線処理との併用効果、アルミナブラストとの併用効果と化学的相互作用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微細維持の処理法が示

者のQOL向上にも寄与できるものと思われる。

研究成果の概要(英文): The aim of this study was to investigate the effect and adhesive properties of micro retention (microslits formed) by laser beam machining on the bond strength between zirconia and two types of resin (indirect composites and acrylic denture base resin) for expanding the clinical application of zirconia. According to two types of tetragonal zirconia, yttria-partially stabilized zirconia (Y-TZP) and ceria-partially stabilized zirconia/alumina nanocomposite (Ce-TZP/A), the effects in size of micro retention, polymerization method and combined with UV treatment, alumina blast treatment and chemical interaction, were evaluated for the effectiveness and durability. In the results, the optimal treatment method, at the present time, for micro retention was suggested, because the effective conditions were revealed in each factor.

研究分野: 審美歯科材料の接着

キーワード: ジルコニア 歯冠用コンポジットレジン 義歯床用アクリルレジン 接着 微小維持 レーザー

## 様 式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

## 1.研究開始当初の背景

現在の歯科治療において、ジルコニアは単体として用いられる他、審美性を考慮するオールセラミックスクラウンやブリッジでは、ジルコニアフレーム外装に従来の焼成陶材を焼付け、2種の材料を複合化させたものが多用されている。一方、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臼歯部インプラントブリッジ等や、ボーンアンカードブリッジの歯肉部分は、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おり、ジルコニアクラウンが破折した症例の口腔内修理にも応用されている。また、ジルコニアフレームを応用したインプラントのフルブリッジやオーバーデンチャーでは、歯肉部(床)も必要であり、その材料には、重量や焼成収縮によるトラブル、修理の簡便さを考慮して陶材より義歯床用レジンが選択されることもある。

しかしながら、高分子材料と複合化したジルコニア修復物が長期的に口腔内で機能するためには、2 つの材料の強固な結合とその耐久性が必要となる。これまでにもジルコニアクラウンの合着を想定したレジンセメントとの接着強さについては様々な研究が報告されているが、歯冠用コンポジットレジンや義歯床用レジンとの複合化に関する報告は国内外ともに少なく、さらにジルコニア被着面にレーザー加工による格子状の機械的維持を付与したものは皆無である。

#### 2.研究の目的

研究代表者はこれまで、ジルコニアと歯冠用コンポジットレジンの複合化における研究を行い、アルミナプラストの条件による効果や、熱処理によるジルコニア表層の相変態の影響、歯冠用コンポジットレジンの接着特性、各種表面処理の評価などについて検討し、複合化のための各ステップを精査することで一定の成果を得た。しかしながら、陶材に対し劣化の点で不利な高分子材料との接着において、口腔内の過酷な環境下での耐久性を持続させるためにはアルミナブラスト以外の新しい機械的維持が必要との考えに至り、ジルコニア表層をレーザーにより格子状に加工した新規微小維持装置を考案した。そして試作条件による検討では、歯冠用コンポジットレジン、義歯床用アクリルレジンとの接着において一部の条件で高い効果を示した。

新規微小維持装置は、レーザーによりジルコニア表層を格子状に加工して維持を得るものである。その深さや幅は結合させる材料やジルコニアの種類によっても異なると考えられる。また、様々な接着表面処理条件との相互作用を検討することによりさらに高い効果を期待できる。本研究ではジルコニアと高分子材料の複合化に新たな表面処理技術を導入して、メタルフリーによる歯科治療の拡大を目指すことを目的とした。

#### 3.研究の方法

微小維持装置を応用した2種類のジルコニアと歯冠用コンポジットレジンおよび義歯床用レジンそれぞれの複合化について、(1)最適な微小維持装置の形状および深さ、幅、間隔の検討、(2)従来の機械的維持との比較と微小維持装置のサイズによる接着特性の解明、(3)微小維持装置とレジンの接着特性と様々な処理との併用効果の検証を行った。

#### 4. 研究成果

## (1) 最適な微小維持装置の形状および深さ、幅、間隔の検討

新規微小維持装置は、レーザーによりジルコニア表層を格子状に加工して維持を得るもので、その深さや幅は結合させる材料やジルコニアの種類によっても異なると考えられる。そのため2種類のジルコニアそれぞれに適切な形状となる加工設定と、歯冠用コンポジットレジン、義歯床用アクリルレジンの結合に最も効果的な微小維持装置の溝の深さ、幅、間隔を検討した。

# 加工形状の最適化

考案した微小維持はレーザー加工のため、その形状は意図していたものと若干異なった。特にNANOZRでは角が丸くなり過ぎることによる維持不足が懸念されるため、レーザーのパラメーター等の調整により最適化を行い、設計に近似した形状となる条件を決定した。

#### 効果的なサイズの検討

試作条件のサイズは深さ、幅、間隔を40 µmとしたが、最適なサイズは歯冠用コンポジットレジン、義歯床用アクリルレジンそれぞれの材料や、ジルコニアの種類によっても異なると考えられるため、想定する修復物の厚さや強度を考慮し、50,75,100 µmのサイズで検討することとした。

#### (2) 従来の機械的維持との比較と微小維持装置のサイズによる接着特性の解明

従来ジルコニアの接着で用いられている機械的維持であるアルミナブラストとの比較を2種のジルコニアおよび歯冠用コンポジットレジン、義歯床用アクリルレジンで比較するとともに、設定した50,75,100 µmのサイズの微小維持による結合強度の違いを検討し、その耐久性も評価した。

#### 微小維持によるジルコニアと歯冠用コンポジットレジンの結合強度

ジルコニアに最も効果的な接着性モノマーであるMDPを含有したプライマーを併用し、歯冠 用コンポジットレジンを接着させた後、剪断接着試験を行った。また、水中熱サイクルによ る耐久試験と試験後の破断面の分析を行った。その結果、a)熱サイクルなしにおいて、微 小維持を付与した3グループは,アルミナブラスト処理を施したグループと同等の接着強さを示した。b)熱サイクル20,000回後において、微小維持を付与した3グループは、アルミナブラスト処理を施したグループと比べて有意に高い接着強さを示した。c)ジルコニアとコンポジットレジンの接着において、Y-TZP、Ce-TZP/Aともに50 μm、75 μm、100 μm 間で接着強さに有意な差は認められなかった。

#### 微小維持によるジルコニアと義歯床用アクリルレジンの結合強度

MDPを含有したプライマーを併用し、義歯床用アクリルレジンを接着させた後、剪断接着試験を行った。また、水中熱サイクルによる耐久試験と試験後の破断面の分析を行った。その結果、a)熱サイクル前後ともに、微小維持を施したすべてのグループは、アルミcナブラスト処理を施したグループと比較して有意に高い接着強さを示した。b)ジルコニアと義歯用アクリルレジンの接着において、Y-TZP、Ce-TZP/Aの両方で、微小維持のサイズの違いによる接着強さに有意差は認められなかった。

## (3) 微小維持装置とレジンの接着特性と様々な処理との併用効果の検証

ジルコニアとの接着における新規微小維持装置についてその有用性を高めるため、レジンの重合方法の影響およびUV照射、アルミナブラストの併用効果について検討を行った。

大気、加圧、真空下による歯冠用コンポジットレジンの重合が接着強度に及ぼす影響 歯冠用コンポジットレジンは通常大気下で重合するが、大気、加圧、真空下での重合が接着 強さに及ぼす影響を検討した。その結果、ジルコニアと2種類の歯冠用レジンの接着におい て、大気下、加圧下、真空下の重合で接着強さに有意な差は認められなかった。

## 微小維持を付与したジルコニアとレジンの接着におけるUV照射の影響

微小維持の深さ,幅,ピッチによる差がなかったことから、50 um の微小維持溝を付与した 試料を用い、紫外線照射が歯冠用コンポジットレジンと義歯床用アクリルレジンそれぞれに おけるジルコニアとの接着に及ぼす影響を検討した。その結果、ジルコニア表面にUVを照射 すると濡れ性が著しく向上した。しかし、その効果は一時的なものであり、UV照射後すぐは 14.5°であったが、照射時間経過とともに接触角は大きくなり、60分後では34.0°であった。またせん断接着試験の結果では、歯冠用コンポジットレジン、義歯床用アクリルレジンの両方においてUV照射を行っても接着強さに優位な差は認められなかった。

## 微小維持溝とアルミナブラスト処理の併用効果

Y-TZP、Ce-TZP/Aの2種類のジルコニアに50 μm、75 μm、100 μmの微小維持装置を付与し、アルミナプラスト処理の併用効果を確認した。その結果、歯冠用コンポジットレジン、義歯床用アクリルレジンともにアルミナブラストの有無による差は認められなかった。しかしながら、歯冠用コンポジットレジンにおいては、アルミナブラスト処理の併用したものは熱サイクル後、値が高くなる傾向がみられた。

## 5. 主な発表論文等

#### [雑誌論文](計 5 件)

- (1) Shogo Iwaguro, <u>Saiji Shimoe, Isao Hirata</u>, Takeshi Murayama, <u>Takahiro Satoda</u>, Effect of microslit retention on the bond strength of zirconia to dental materials, Dental Materials Journal, 査読あり, 2019, 印刷中.
- (2) Tzu-Yu Peng, <u>Saiji Shimoe</u>, Naomi Tanoue, Hiroyuki Akebono, Takeshi Murayama, <u>Takahiro Satoda</u>, Fatigue resistance of yttria-stabilized tetragonal zirconia polycrystal clasps for removable partial dentures, European Journal of Oral Sciences, 査読あり, 2019, 印刷中.
- (3) 谷口美優, <u>下江宰司</u>, 小林祐介, 彭子祐, 西田博樹, <u>里田隆博</u>, イットリア系ジルコニア の研磨における 作業時間の影響,日本歯科技工学会誌 39(2), 査読あり, 2018, 8-13.
- (4) 川村碧, <u>下江宰司</u>, 大宅麻衣,岩畔将吾, <u>里田隆博</u>,ジルコニアと歯科用レジンとの接着における MDP 含有表面処理剤の違いによる影響,日本歯科技工学会誌 38(2),査読あり, 2017,163-173.
- (5) 大平ちひろ, <u>下江宰司</u>, <u>平田伊佐雄</u>, 岩畔将吾, 大宅麻衣, <u>里田隆博</u>, ジルコニアの表面 処理によるぬれ性が歯冠用コンポジットレジンとの接着に及ぼす影響, 日本歯科技工学会誌 37(2), 査読あり, 2016, 89-96.

## [学会発表](計 11 件)

- (1) 高橋梨花, <u>下江宰司</u>,谷口美優,<u>里田隆博</u>,ナノジルコニアの研磨における作業時間の影響,日本歯科技工学会第 40 回学術大会,2018.
- (2) 山本諒平, <u>下江宰司</u>, 若林侑輝, 岩畔将吾, <u>里田隆博</u>, 微小維持溝を付与したジルコニア とレジンの接着における UV 照射の影響, 日本歯科技工学会第 40 回学術大会, 2018.
- (3) 岩畔将吾, <u>下江宰司</u>, 村山 長, 若林侑輝, <u>里田隆博</u>, レーザーによる微小維持とアルミナブラスト処理の併用がジルコニアと陶材の焼付強度に及ぼす影響, 日本歯科技工学会第40回学術大会, 2018.

- (4) 砂畠菜菜, <u>下江宰司</u>, <u>平田伊佐雄</u>, <u>里田隆博</u>, 大気、加圧、真空下での重合が間接用コンポジットレジンの物性に及ぼす影響, 日本歯科技工学会第 40 回学術大会, 2018.
- (5) 安吉由美, <u>下江宰司</u>, <u>平田伊佐雄</u>, <u>里田隆博</u>, 歯冠用コンポジットレジンの加圧、大気、 真空下における重合がジルコニアとの接着強度に及ぼす影響,日本歯科技工学会第 40 回学 術大会, 2018.
- (6) Tzu-Yu Peng, <u>Saiji Shimoe</u>, Tetsuya Matsui, Naomi Tanoue, Hiroyuki Akebono, Takeshi Murayama, <u>Takahiro Satoda</u>, Fatigue Resistance of Y-TZP Clasps for Removable Partial Dentures, The 6th International Congress of Dental Technology, The 39th the meeting of the Nippon Academy of Dental Technology, 2017.
- (7) Hiroto Takenaka, <u>Saiji Simoe</u>, Shogo Iwaguro, <u>Isao Hirata</u>, Takesi Murayama, <u>Takahiro Satoda</u>, Effectiveness of Micro Mechanical Retention with Diode Laser Beam on Bonding between Zirconia and Indirect Composite Resin, The 6th International Congress of Dental Technology, The 39th the meeting of the Nippon Academy of Dental Technology, 2017
- (8) Yuki Wakabayashi, <u>Saiji Shimoe</u>, Shogo Iwaguro, <u>Isao Hirata</u>, Takeshi Murayama, <u>Takahiro Satoda</u>, Influence of Micro Retention with Diode Three-Dimensional Laser Beam, The 6th International Congress of Dental Technology, The 39th the meeting of the Nippon Academy of Dental Technology, 2017.
- (9) Shogo Iwaguro, <u>Saiji Shimoe</u>, <u>Isao Hirata</u>, Takeshi Murayama, <u>Takahiro Satoda</u>, Effect of Micro Slit on the Bond Strength of Veneering Porcelain to Zirconia, The 6th International Congress of Dental Technology, The 39th the meeting of the Nippon Academy of Dental Technology, 2017.
- (10) 大宅麻衣, <u>下江宰司</u>, <u>平田伊佐雄</u>, 岩畔将吾, 川村碧, <u>里田隆博</u>, アルミナブラスト 処理を施したジルコニアと機能性モノマーの化学的相互作用の解析, 日本歯科技工学会第 38 回学術大会, 2016.
- (11) 福岡千夏, <u>下江宰司</u>, <u>平田伊佐雄</u>, 岩畔将吾, 川村碧, <u>里田隆博</u>, ジルコニアと床用レジンの接着におけるオペークレジンの効果, 日本歯科技工学会第 38 回学術大会, 2016.

#### 〔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:里田 隆博

ローマ字氏名: Satoda Takahiro

所属研究機関名:広島大学

部局名:医歯薬保健学研究科(歯)

職名:教授

研究者番号(8桁):80170801

研究分担者氏名:平田 伊佐雄

ローマ字氏名: Hirata Isao 所属研究機関名: 広島大学

部局名:医歯薬保健学研究科(歯)

職名:助教

研究者番号(8桁): 40346507

(2)研究協力者

研究協力者氏名:岩畔 将吾 ローマ字氏名: Iwaguro Shogo

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。