

令和元年5月21日現在

機関番号：12602

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K11622

研究課題名(和文) ジルコニア・陶材界面のナノスケール解析による陶材破折の原因究明とその制御

研究課題名(英文) Ultra-morphological analysis of zirconia-veneering ceramic interface

研究代表者

小林 賢一 (Kobayashi, Kenichi)

東京医科歯科大学・歯学部附属病院・講師

研究者番号：00170316

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、ジルコニアを用いたオールセラミック修復物に多く見られる、前装用陶材の破折・剥離(チッピング)の原因をナノスケールの解析によって明らかにし、チッピングの少ないオールセラミック修復物を製作するための手法を確立することとした。研削やサンドブラスト等の各種表面処理は、ジルコニア表面の結晶構造を変化させるが、いずれの表面処理条件においてもジルコニア・陶材界面の破壊強度に有意差は認められなかった。陶材・ジルコニア界面への高解像度透過型電子顕微鏡による微細構造解析の結果、陶材・ジルコニア界面は緊密に接触しており、何らかの化学的相互作用の可能性が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、臨床上遭遇することの多い、ジルコニア・陶材間の破折の原因を究明するため、ジルコニアへの表面処理の影響と、高解像度電子顕微鏡によるジルコニア・陶材界面の解析を行った。ジルコニアに対して表面処理を行うことで、ジルコニアの結晶構造が変化することが明らかとなった。さらに、この表面処理がジルコニア・陶材間の破折強度に与える影響は認められなかったことから、ジルコニアに陶材を築盛する際、表面処理を行う必要がない可能性が示唆された。

研究成果の概要(英文)：The aim of this study was to clarify the zirconia-veneering ceramic interface using ultra-morphological analysis. Surface treatments (grinding, sandblasting) affected the crystal structure of zirconia. However, three surface treatment conditions (as-sintered, ground, sandblasted) resulted in comparable fracture strength of the zirconia-veneering ceramic interface. Ultra-morphological analysis revealed tight interface between zirconia and veneering ceramics.

研究分野：歯科補綴学

キーワード：ジルコニア 陶材 界面

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、歯科においてジルコニアを用いたオールセラミック修復物は、従来の金属修復物の代替材料として広く臨床応用されてきている。平成 23 年の薬事工業生産動態統計調査によれば、オールセラミック修復物の生産・輸入総額は 5 億円を超え、従来の陶材焼付修復物のそれに迫る勢いである。しかしながら、このジルコニアフレームを用いたオールセラミック修復物は、前装用陶材のチップングの頻度が従来の陶材焼付修復物に比べて高いという報告が多く、中には 30% を超える修復物で前装用陶材の破損が生じたという文献もある。

このような背景から、陶材とジルコニアに焦点を当てた研究は今までにいくつかなされている。例えば、ジルコニアと陶材の接着についての研究や、ジルコニア・陶材界面を解析した研究などがある。しかしながら、これらの研究は、ジルコニアを用いたオールセラミック修復物において前装用陶材の破折・チップングが多い原因の解明が出来ておらず、さらには前装用陶材の破折・チップングを防ぐための解決策を提示できていない。

そこで、我々はジルコニアをフレームワークとして用いたオールセラミック修復物における陶材破折の原因究明を目指し、オールセラミック修復物の構成要素である陶材とジルコニアの界面をナノスケールで解析する手法に取り組んできた。特に近年、イオンミリングを応用してジルコニア・陶材界面を加工し、走査電子顕微鏡 (SEM)、または透過電子顕微鏡 (TEM) にて観察することにより、従来の方法では困難であった高解像度でのジルコニア・陶材界面の解析に成功した。この手法により、ジルコニア・陶材界面を形態学的・化学的に解析することが可能となった。

先行研究により、前装用陶材のチップングの原因となりうる項目に関して解明が進んだものの、以下の点についてはさらなる検討が必要である： ジルコニアへの表面処理がジルコニア・陶材の界面に与える影響、ジルコニアと陶材の接着における表面処理の効果、種々のジルコニアフレームにおけるジルコニア・陶材界面の解析。

2. 研究の目的

本研究ではジルコニアと陶材の界面における表面処理と残留応力に焦点を当て、ジルコニアをフレームワークとして用いたオールセラミック修復物に多く見られる、前装用陶材の破折・剥離 (チップング) の原因解明を目指す。さらに、今までの研究成果により確立した手法を応用してナノスケールでジルコニア・陶材界面を解析・評価し、よりチップングの少ないオールセラミック修復物を作製するための手法を模索することを目的とした。研究期間内には以下のことを明らかにするよう、実験を計画した。

- (1) ジルコニアに対する表面処理が、ジルコニア・陶材の界面に与える影響を明らかにする。
- (2) ジルコニアと陶材の接着を改善するための表面処理を調査する。
- (3) 超高解像度解析にてナノスケールでジルコニア・陶材界面の状況を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 表面処理を施したフレーム用ジルコニアの解析

フレーム用ジルコニア (KATANA HT, クラレノリタケデンタル) を加工・焼成し、直径 14.5 mm、厚さ 0.5 mm の円盤状試料を作製した。その円盤状試料に対し、焼成のみ (表面処理なし)、ダイヤモンドポイントによる研削、アルミナサンドブラストの 3 種類の表面処理を施した。次に、表面処理によるジルコニアへの影響を調査するため、X 線回折を用いた結晶構造解析を行った。

(2) ジルコニアと陶材の接着を改善するための表面処理条件の検討

直径 14.5 mm、厚さ 0.5 mm の円盤状のジルコニア試料 (KATANA HT, クラレノリタケデンタル) を、1) 焼成したまま、2) ダイヤモンドポイントによる研削、3) アルミナサンドブラストの 3 種類の表面処理群に分けた (各 n=10)。次いで、表面処理を施した面に対して、前装用陶材 (Cerabien ZR, Kuraray Noritake) を築盛し、焼成後に、前装用陶材の厚さが 1.0mm となるよう研削、研磨を行った。その後、二軸曲げ試験にて前装用陶材を築盛したジルコニアにおける陶材・ジルコニア界面の破壊強度を測定した。各群の破壊強度はワイブル分析を用いて統計的に解析した。

(3) ジルコニア・陶材界面の超高解像度ナノスケール解析

実験 (2) と同様に、直径 14.5 mm、厚さ 0.5 mm の円盤状のジルコニア試料 (KATANA HT) を、1) 焼成したまま、2) ダイヤモンドポイントによる研削、3) アルミナサンドブラストの 3 種類の表面処理群に分け、表面処理を施した面に対して、前装用陶材 (Cerabien ZR, Kuraray Noritake) を築盛し、焼成後に前装用陶材の厚さが 1.0mm となるよう研削、研磨を行った。作製したジルコニア・陶材複合体をイオンミリング (クロスセクションポリリッシャー、イオンスライサー) にて加工し、ジルコニア・陶材界面を走査・透過電子顕微鏡 (STEM) を用いて観察した。

4. 研究成果

(1) 表面処理を施したフレーム用ジルコニアの解析

X 線回折による解析の結果を図 1 に示す。焼成したままのフレーム用ジルコニア (KATANA HT,

クラレノリタケデンタル)は、約40%の立方晶、約60%の正方晶を含有していることが明らかとなった。これに対して、ダイヤモンドポイントによる研削、アルミナサンドブラストにより、菱面体と単斜晶の割合が増加することが明らかとなった。ダイヤモンドポイントによる研削をした試料は約60%、アルミナサンドブラストを施した試料は約40%の菱面体を認めた。一方で、単斜晶の割合は、アルミナサンドブラストにおいてより増加する傾向にあった。これらの結果から、種々の表面処理によってジルコニア表面の結晶構造が変化することが示唆された。

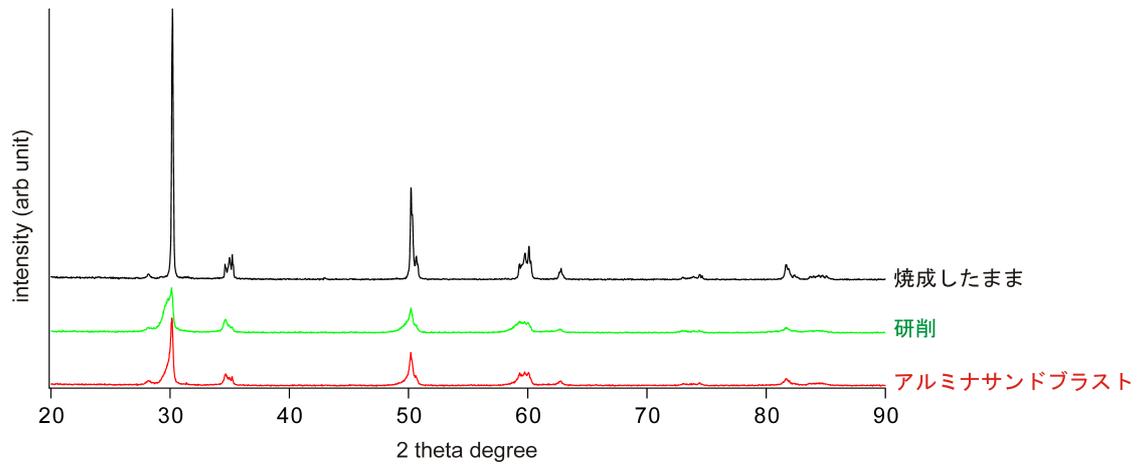


図1: X線回折の結果

(2) ジルコニアと陶材の接着を改善するための表面処理条件の検討

ジルコニア・陶材界面における破壊強度に対する、二軸曲げ試験の結果を図2に示す。ワイブル分析の結果、焼成したまま(229.8 MPa)、ダイヤモンドポイントによる研削(242.7 MPa)、アルミナサンドブラスト(221.3 MPa)のいずれにおいても、ジルコニア・陶材界面における破壊強度に有意な差は認められなかった。

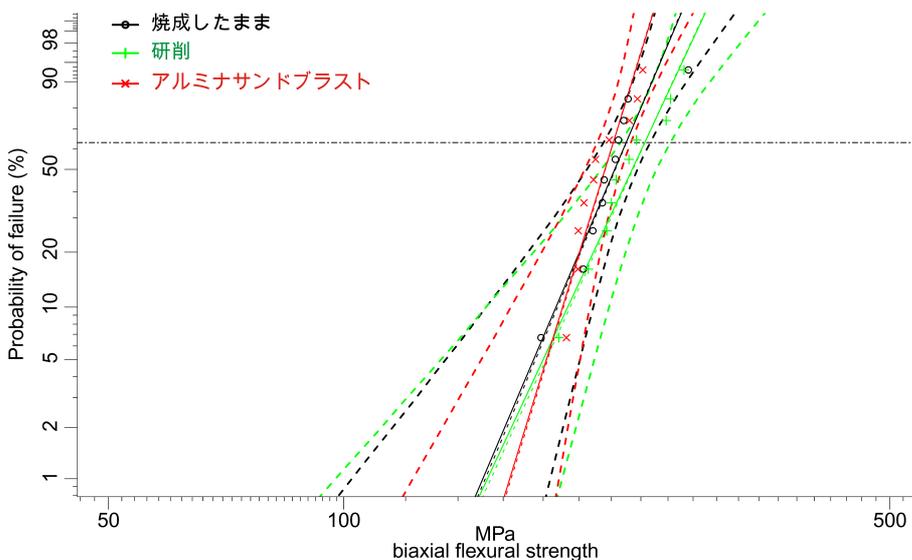


図2: 各種表面処理を施したジルコニア・陶材界面の破壊強度

(3) ジルコニア・陶材界面の超高解像度ナノスケール解析

走査・透過電子顕微鏡 (STEM) を用いたジルコニア・陶材界面の結果を図3に示す。ジルコニア・陶材界面において、ジルコニアと陶材は緊密に接触している様子が認められた。200,000倍の強拡大においても、この傾向は変わらなかった。

焼成したままのジルコニアに陶材を焼成した試料においては、正方晶と立方晶ジルコニアであると考えられるジルコニア粒子を観察することができた。

一方で、サンドブラスト処理をしたジルコニアの場合、ジルコニア表面付近のジルコニア粒子が非常に細かく変化している様子が認められた。これらのジルコニア微細粒子は、正方晶ジルコニア、立方晶ジルコニアが変態して生じたものであると考察でき、X線回折にて検出した菱面体との関連が示唆された。

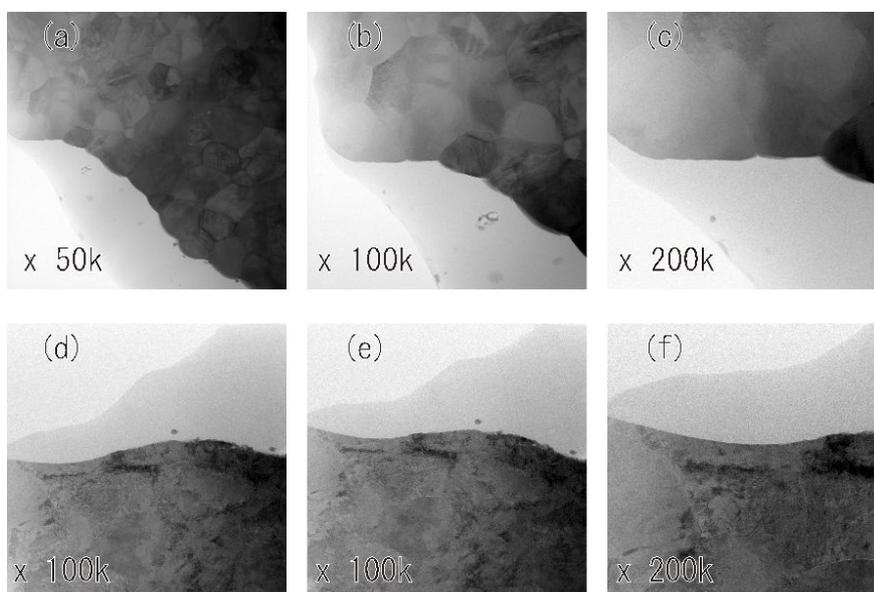


図3: ジルコニア・陶材界面の超高解像度ナノスケール解析の結果。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2件)

・ Inokoshi M, Shimizu H, Nozaki K, Takagaki T, Yoshihara K, Nagaoka N, Zhang F, Vleugels J, Van Meerbeek B, Minakuchi S. Crystallographic and morphological analysis of sandblasted highly translucent dental zirconia. Dent Mater. 2018. 34 (3): 508-518. 査読あり DOI: 10.1016/j.dental.2017.12.008

・ Inokoshi M, Zhang F, Vanmeensel K, De Munck J, Minakuchi S, Naert I, Vleugels J, Van Meerbeek B. Residual compressive surface stress increases the bending strength of dental zirconia. Dent Mater. 2017.04; 33 (4): e147-e154. 査読あり DOI: 10.1016/j.dental.2016.12.007

〔学会発表〕(計 6件)

・ 猪越正直, 清水春紀, 高垣智博, 水口俊介. 表面処理が前装用陶材・高透光型ジルコニア界面の破壊強度に与える影響. 第37回日本接着歯学会学術大会 2018.11.11 新潟

・ 猪越正直, 野崎浩佑, 清水春紀, 水口俊介. 高透光型ジルコニアにおけるイットリア含有量が透光性と曲げ強さに与える影響. 第72回日本歯科理工学会学術講演会 2018.10.06 札幌

・ Inokoshi M, Shimizubata M, Nozaki K, Takagaki T, Zhang, F, Vleugels J, Van Meerbeek B, Minakuchi S. Sandblasting increases the flexural strength of highly translucent zirconia. 96th General Session and Exhibition of the IADR 2018.07.25 London

・ 小林賢二, 高橋路奈, 安部明子, 竹内周平, 星野 崇, 小林弘清, 関田俊明. 審美障害を主訴とする重篤なClass II 症例における補綴治療. 第126回日本補綴歯科学会学術大会 2017.7.2 横浜

・ 小林弘清, 小林賢二. Twin-Stage Procedure によりアンテリアガイダンスを構築した症例. 第126回日本補綴歯科学会学術大会 2017.7.2 横浜

・ Inokoshi M, Shimizu H, Nozaki K, Takagaki T, Zhang, F, Vleugels J, Van Meerbeek B, Uo M, Minakuchi S. Crystallographic analysis of alumina sandblasted highly translucent dental zirconia. 95th General Session and Exhibition of the IADR 2017.03 San Francisco

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：
 発明者：
 権利者：
 種類：
 番号：

出願年：
国内外の別：

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：猪越 正直

ローマ字氏名：Inokoshi Masanao

所属研究機関名：東京医科歯科大学

部局名：大学院医歯学総合研究科

職名：助教

研究者番号（8桁）：90753715

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。