

令和 3 年 8 月 20 日現在

機関番号：17301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K09663

研究課題名(和文) 高透光性PSZ系ジルコニアのアルミナブラスティング後の曲げ強度は熱処理で改善する

研究課題名(英文) Flexural strength of highly translucent stabilized zirconia with alumina-blasting is improved by heat treatment

研究代表者

吉田 圭一 (YOSHIDA, Keiichi)

長崎大学・病院(歯学系)・講師

研究者番号：70230729

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：アルミナブラスティングが高透光性ジルコニア(Aadva NT)の曲げ強さや表面性状及びレジンセメントとの接着強さに及ぼす影響も検討した。

その結果、アルミナブラスティングの噴射圧が高くなるにしたがい曲げ強さは低下した。表面性状を評価した上で、レジンセメントとの機械的嵌合力を発揮するには0.2 MPaが妥当であると判断した。そこで、低下した曲げ強さを回復するために0.2 MPaの噴射圧でアルミナブラスティング後1,500℃で1時間熱処理を行うと結晶粒界が生じ、無処理の曲げ強さと同等の値まで回復した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

0.2 MPaの噴射圧でアルミナブラスティングしたものとその後上記の熱処理を行ったジルコニアのジーセムONEとの引張り接着強さを評価した。その結果、アルミナブラスティング後熱処理したものは濡れが低下し、熱サイクル後に接着強さが大きく低下したのに対し、アルミナブラスティングだけは接着耐久性が認められた。

レジンセメントの高透光性ジルコニアとの接着において、アルミナブラスティングによって表面性状は損なわれるが、レジンセメントとの接着性を向上させるためには、0.2 MPaの噴射圧によるブラスティングは必要不可欠であることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：This study aims to evaluate the influence of different air-abrasion pressures and subsequent heat treatment on the flexural strength and crystallographic phases of highly translucent partially stabilized zirconia (Y-PSZ). Fully sintered zirconia specimens were ground with SiC paper (control) and/or air-abraded with 50 μm particles of alumina at 0.1, 0.15, 0.2, or 0.3 MPa. After air-abrasion at 0.2 MPa (0.2AB), additional specimens were then heated to 1500 °C, and held for 1 h at this temperature (0.2AB+HT1h). Crystalline phase identification was also carried out using X-ray diffraction. The flexural strength decreased with the increase in air-abrasion pressure. The lowest flexural strength was found for the 0.2AB group. All groups contained cubic-, tetragonal-, and rhombohedral-ZrO<sub>2</sub> phases with the exception of the as-sintered group. Upon increasing the air-abrasion pressure, the relative amount of the r-ZrO<sub>2</sub> phase increased. The 0.2AB+HT1h group exhibited a similar flexural strength.

研究分野：歯科補綴学

キーワード：ジルコニア 曲げ強さ アルミナブラスティング 熱処理 接着強さ 表面性状

## 1. 研究開始当初の背景

患者の審美的要求が高まっていることに伴い、ジルコニアによるオールセラミックレストレーションを行うケースが増加している。中でも、約5~6年前から市販されるようになったY-PSZは、Y-TZPのように陶材を築盛せずにフルカントゥアクラウンを製作することが可能となり、歯質削除量を大きく軽減できる。また、正方晶と立方晶が混在するY-PSZは、立方晶が正方晶より光散乱が少ないために高い透光性を示すだけでなく、Y-TZPに比べベイトリアの含有量が多いため優れた耐低温劣化性も示す。しかしながら、曲げ強さがY-TZPの約1/2となり、前歯部の単冠や3ユニットブリッジまでしか製作できない。

一方、ジルコニア修復物の装着には、内面をアルミナブラスティングし、接着性モノマーを含有したレジンセメント、もしくは接着性モノマー含有のセラミックプライマーを塗布し、レジンセメントで接着するのが臨床でのルーティンとなっている(吉田圭一、補綴臨床、49: 233-256, 2016.)。Y-TZPはアルミナブラスティング後、表面が正方晶から単斜晶に転移する応力誘起変態に伴う体積膨張によって、表面に圧縮残留応力が形成され破壊靱性が向上し曲げ強さも大きくなる(Inokoshi M *et al.* Dent Mater 33: e147-e154, 2017.)。

しかしながら、とくに口腔内のような長期の水分存在下では、表面の転移した単斜晶量が増加しすぎると、クラックが生じ逆に機械的強度が低下する(Ban S *et al.* Key Engin Mater 330-332, 353-356, 2007.)。したがって、ジルコニア修復物の内面のアルミナブラスティングは、レジンセメントの機械的嵌合力を向上するためには必要不可欠だが、過度になると逆に機械的性質が損なわれる。

そこで、アルミナブラスティング後のY-PSZの曲げ強さの低下を改善する方法はないのか? Y-TZPをアルミナブラスティング後に熱処理すると、表面の単斜晶量が減少し圧縮応力が解放されることで、アルミナブラスティング後より曲げ強さが低下する(Sato H *et al.* Dent Mater J 27: 408-414, 2008.)。これに対し、Y-PSZでは、アルミナブラスティング後に熱処理を行うと、表層に過度に増加した菱面体晶が著明に減少し曲げ強さが改善するのではないかという仮説を立てた。

## 2. 研究の目的

対合歯とのクリアランス不足の症例においては、歯質削除量が少なくなりレイヤード法では色調再現が困難になる。そこで、支台歯の色調を活かし審美的要求が高い、とくに前歯部の症例においては、Y-PSZで製作するとフルカントゥアクラウンが可能となる。

アルミナブラスティングしたY-PSZの曲げ強さは、焼結後や研磨後より40%以上も低下した。したがって、Y-PSZで製作した修復物の装着直前にルーティンで行っている、0.2~0.3 MPaの噴射圧でアルミナブラスティングを行うと、具備している本来の機械的強度に比べ著明に低下した修復物を装着することになるのではと危惧される。

そこで、本研究はY-PSZに対して、さまざまな噴射圧でのアルミナブラスティング後の表層の表面分析を行い、曲げ強さが低下する原因を究明するとともに、本来の機械的強度まで改善する適切な熱処理を究明する。

## 3. 研究の方法

(1) アルミナブラスティングの噴射圧と時間によってY-PSZの曲げ強さがどの程度低下するのかを明らかにする。

高透光性PSZ(Aadva NT、ジーシー)を使用し、焼結後曲げ試験片を作製した(as-sintered)。その後、SiC紙#600で研削し(研削、約25×2×2 mmに仕上げた。次に、50 μmのアルミナ(ハイアルミナ、松風)で0.1, 0.15, 0.2, 0.3 MPa、15秒間ブラスティング(Basic classic II、レンフェルト)を行った試験片(AB)も作製した。さらに、0.2

MPa の噴射圧でアルミナブラッシング後 (0.2AB)、追加熱処理を行う試験片を 2 種類作製した。一つは、1,500°C まで 10°C/min で昇温し係留せず、直ちに 10°C/min で 200°C まで冷却したもの (0.2AB+HT0)、もう一つは同条件で 1,500°C で 1 時間係留したもの (0.2AB+HT1h) である。なお、研削やアルミナブラッシングは長軸 1 面のみを行い、処理面が荷重面と反対になる (引張り応力) ように曲げ試験用治具に静置した。また、表面粗さ測定機を用いて算術平均表面粗さ ( $R_a$ ) を測定後、X 線回折装置 (XRD) を用いて結晶構造の解析を行った。さらに、走査型電子顕微鏡 (SEM) にて表面観察も行った。

(2) 熱処理の温度や時間、回数により、曲げ強さがどの程度改善されるのかを検証する。

(3) アルミナブラッシングや熱処理によって、Y-PSZ が低温劣化しないのかを検証するとともに、アルミナブラッシング後の熱処理で、Y-TZP と同様にレジンセメントとの接着耐久性を示すのかを検証する。

高透光性 PSZ と高透光性 TZP (Aadva EI、ジーシー) を使用し、SiC 紙#600 で研削した (研削)。その後、50  $\mu\text{m}$  のアルミナで 0.2 MPa、15 秒間ブラッシングを行った試験片 (AB) を作製した。条件を統一するために、高透光性 TZP でも 0.2 MPa で行った。高透光性 PSZ では、さらに 1,500°C まで 10°C/min で昇温し、1 時間係留後 10°C/min で 200°C まで冷却した試験片 (AB+HT) も作製した。次に、ジルコニア試験片を 0.4 MPa、10 秒間アルミナブラッシングした SUS304 ロッドと、セルフアドヒーシブレジンセメント (ジーセム ONE : ジーシー) で接着した。続いて、ジルコニア面から LED 照射器 (ペンキュア: モリタ) で 40 秒間光照射した。試験片作製後 37°C 蒸留水に 24 時間浸漬 (TC0)、あるいはその後 4°C と 60°C の水槽に交互に 1 分間浸漬する TC を 20,000 回行った試験片 (TC20,000) も作製し、引張り接着強さを測定した。

#### 4. 研究成果

##### (1) アルミナブラッシングの影響

結果として、as-sintered が最も高い曲げ強さを示し、研削によって曲げ強さはやや低下した (図 1)。また、0.1AB の曲げ強さは as-sintered と比較して 200 MPa 以上低下した。アルミナブラッシングの噴射圧が高くなるにしたがい曲げ強さは徐々に低下し、0.2AB が最も低い値を示した。一方、追加熱処理を行った HT0 は 0.1AB と同等の曲げ強さを示し、HT1h は 580 MPa で研削とほぼ同じ曲げ強さまで回復した。

表面粗さは、研削が最も低い値を示し、アルミナブラッシングの噴射圧が高くなるにしたがい大きくなり、0.3AB で約 0.5  $\mu\text{m}$  と最も高い値を示した (図 2)。また、追加熱処理を行ったものの表面粗さはいずれも 0.2AB と有意差が認められなかった。

図 1

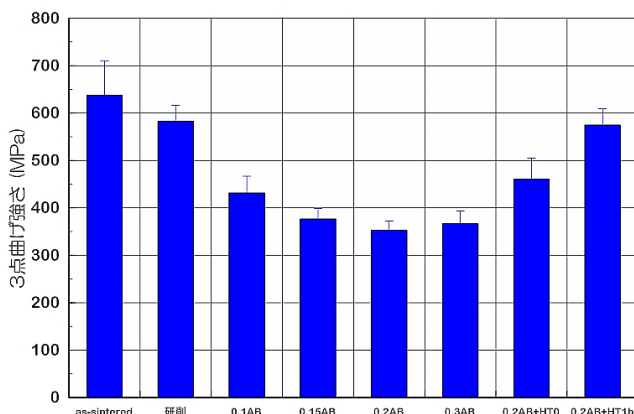
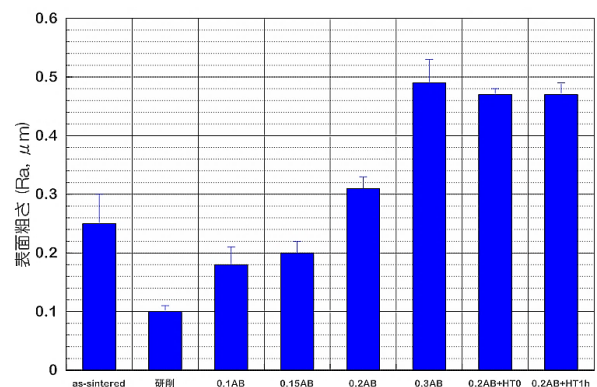


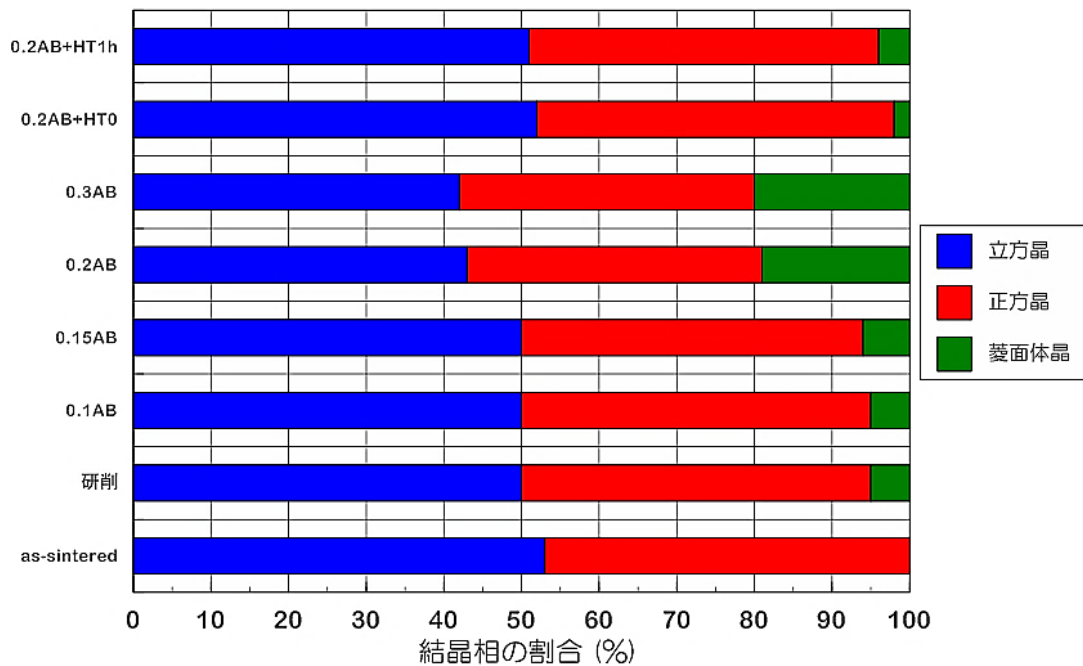
図 2



XRD による分析で、as-sintered は立方晶が正方晶よりわずかに多かった (図 3)。研削では菱面体晶 (rhombohedral) がわずかに析出した。0.1AB と 0.15AB は研削とほぼ同様な結晶相の割合を示したが、0.2AB と 0.3AB は菱面体晶が約 20% を占めるまで増加した。

これに対し、0.2AB+HT0 と 0.2AB+HT1h は菱面体晶が減少したことに伴い正方晶が増加し、研削とほぼ同様な結晶相の割合を示した。

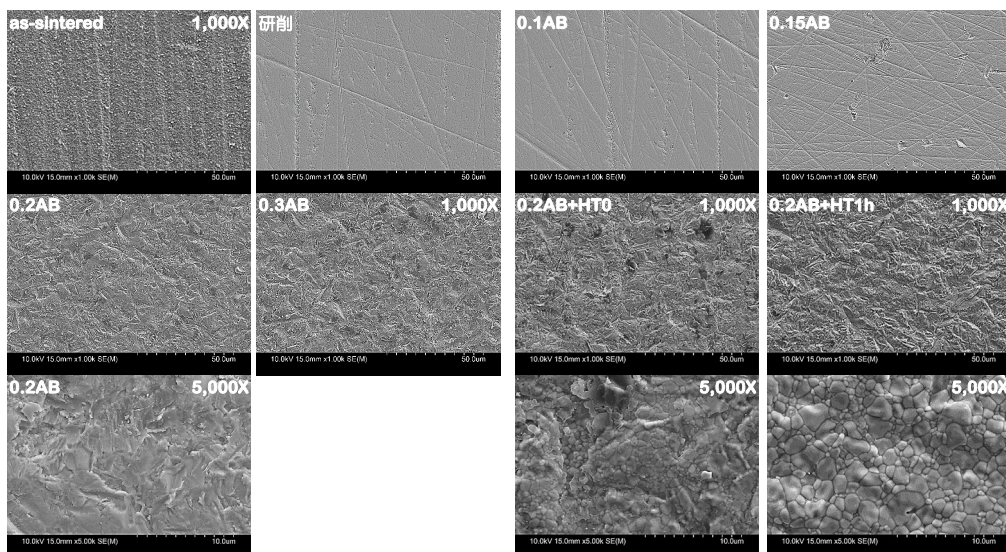
図 3



## (2) 熱処理の影響

結果として、0.1AB と 0.15AB の SEM 像は、アルミナブラスティングの痕跡がごくわずかに観察された (図 4)。0.2AB と 0.3AB では表面の微細な凹凸の形成が確認でき、セメントとの機械的嵌合力を発揮させるには 0.2 MPa 以上の噴射圧が必要であることがわかった。また、ブラスティング面にマイクロクラックは認められなかった。0.2 MPa の噴射圧でブラスティング後に追加熱処理した 0.2AB+HT0 と 0.2AB+HT1h は、1,000 倍の SEM 像で比較すると、0.2AB と同様な微細な凹凸が観察された。一方、5,000 倍の SEM 像で比較すると、HT0 で結晶がわずかに析出しはじめ、1h で再結晶化によって明瞭な結晶粒界が観察された。

図 4



## (3) 熱処理が接着強さと低温劣化に及ぼす影響

結果として、TZP と PSZ の研削はいずれも、TC0 は約 20 MPa の値を示したが、TC20,000 では 10 MPa 以下の値まで著明に低下し、接着耐久性が認められなかった (図 5)。一方、



アルミナブラスティングを行うと、TZP と PSZ いずれも TC0 で 38 MPa 前後の値を示し、アルミナブラスティングによってレジンセメントの機械的嵌合力が大きく向上することがわかった。TC20,000 では TZP はやや接着強さが低下したが、TC0 と有意差は認められなかった。一方、PSZ は約 23 MPa の値を示し、TC0 より有意に値が低下した。NT が EI の約 55%の曲げ強さという機械的強度の差が接着耐久性に影響を及ぼしたと考えられる。PSZ をアルミナブラスティング後に追加熱処理を行った場合 (PSZ/AB+HT)、TC 前後いずれも研削と同等の接着強さしか示さなかった。熱処理によって表面の濡れ性が大きく低下し、レジンセメントとの接着強さに悪影響を及ぼしたと考えられる。

図 5

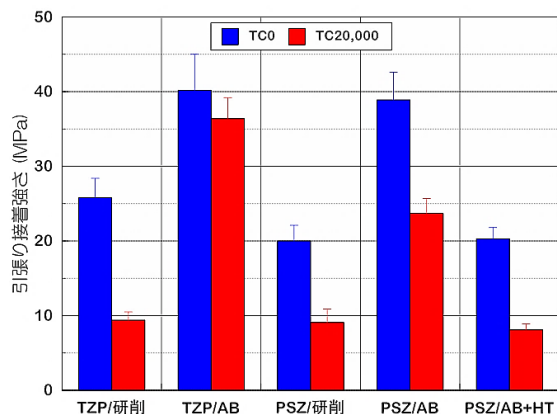
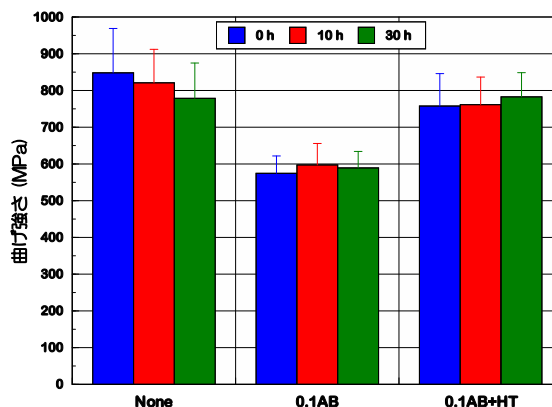


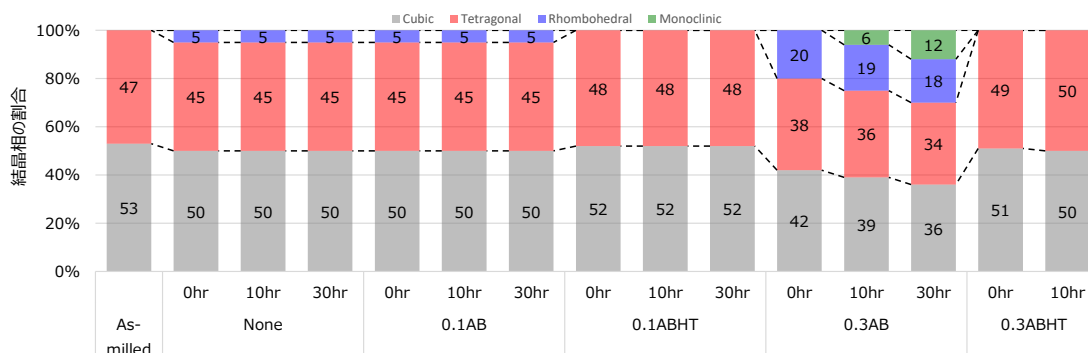
図 6



As-milled 以外のサンプルは、低温劣化 (LTD) の影響を評価するために各種処理後にオートクレーブ処理 (0 hr, 10 hr, 30 hr) を行った。その結果、オートクレーブ処理により、曲げ強さは変化しなかった (図 6)。また、0.1 MPa の噴射圧では単斜晶相は析出しなかった。オートクレーブ処理 30 hr では LTD は生じないと思われた。一方、追加熱処理した場合には、菱面体晶相が完全に消失し、単斜晶相は析出しなかった (図 7)。

0.3 MPa の噴射圧では、オートクレーブ処理の時間延長とともに、単斜晶相の析出量が増え、LTD が生じると考えられた。一方、追加熱処理した場合には、菱面体晶相が完全に消失し、単斜晶相は析出しなかった。ただし、立方晶相の析出量が減少し、正方晶相の析出量が増加した。

図 7



<まとめ>

高透光性ジルコニアの Y-PSZ で製作された補綴装置の装着には、他の歯科用材料と同じく、装着材料であるレジンセメントの機械的嵌合力を高めるためのアルミナブラスティングは必須である。アルミナブラスティングによって曲げ強さは低下したが、熱処理によって曲げ強さはアルミナブラスティングしなかった場合にまで回復し、低温劣化も認められなかった。しかしながら、熱処理した場合、レジンセメントとの接着強さは大きく低下したのに対し、アルミナブラスティングした場合は接着強さが向上した。

したがって、Y-PSZ で製作された補綴装置は Y-PSZ で行うアルミナブラスティングの噴射圧の 0.3 MPa よりやや低い 0.2 MPa で行った方が望ましいことが明らかになった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 YOSHIDA Keiichi	4. 巻 28
2. 論文標題 Influence of alumina air-abrasion for highly translucent partially stabilized zirconia on flexural strength, surface properties, and bond strength of resin cement	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Applied Oral Science	6. 最初と最後の頁 e20190371
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1590/1678-7757-2019-0371	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 吉田圭一、鎌田幸治、澤瀬 隆
2. 発表標題 唾液で汚染されたジルコニアの清掃方法がレジンセメントの接着強さに及ぼす影響
3. 学会等名 公益社団法人日本補綴歯科学会第128回学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉田 圭一、澤瀬 隆
2. 発表標題 アルミナブラッシング後の高透光性PSZ系ジルコニアの曲げ強さと表面性状
3. 学会等名 日本補綴歯科学会第127回学術大会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Yoshida K, Sawase T
2. 発表標題 Additional heat treatment of alumina-blasted highly translucent partially stabilized zirconia
3. 学会等名 96th General Session of the International Association for Dental Research
4. 発表年 2018年～2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	平 曜輔  (TAIRA Yohsuke)  (40226725)	長崎大学・医歯薬学総合研究科(歯学系)・准教授   (17301)	
研究 分担者	鎌田 幸治  (KAMADA Kohji)  (60264256)	長崎大学・病院(歯学系)・講師   (17301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------