様　式　C－19、F－19、Z－19　(共通)

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

平成 27 年　5 月 21 日現在

機関番号： 32667
研究種目： 基盤研究(C)
研究期間： 2011～2014
課題番号： 23592872

研究課題名（和文）ジルコニアをコアとする全部陶材冠の耐破折強度の改善

研究課題名（英文）The method to improve the fracture strength of all-ceramic crowns made of zirconia coping.

研究代表者
後藤　真一（GOTO, Shin-ichi）

日本歯科大学・新潟生命歯学部・准教授

研究者番号：10105504

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　4,000,000円

研究成果の概要（和文）：この研究ではCAD/CAMシステムで作製した全部陶材冠の耐破折強度を改善させる方法について検討した。全部陶材冠の強さは、ジルコニアコーピングの厚さが増すほど、サポート形態の面積が増すほど有意に向上した。また、数種の薬剤をジルコニア半焼結体の表面に塗布することによりジルコニアと前装用陶材の剪断焼付強さが有意に向上した。その中で焼付強さの向上に最も効果のあった薬剤は、Indium tin oxideであった。接着強さは、濃度が1 mMの薬剤を塗布した試験片が、薬剤を塗布しなかった条件（Control）よりも有意に向上した。この研究成果により全部陶材冠の破壊強度がさらに向上することが示唆された。

研究成果の概要（英文）：The method to improve the strength of all ceramic crown was examined in this study. The fracture force increased with the increase of the thickness of a zirconia copoing and the area of zirconia support. Furthermore treatment with some chemical spreading on half sintered zirconia improved the bond strength between zirconia coping and porcelain veneer significantly. The highest bond strength was observed using Indium tin oxide among them. Treatment with Indium tin oxide in 1mM concentration was improved the bond strength in comparison with treated nothing (Control). It was suggested that the fracture strength of all ceramic crowns improved moreover by these results of our research.

研究分野： 歯科理工学

キーワード： ジルコニア　CAD/CAM　コアの形態　オールセラミッククラウン　応力負荷試験　剪断焼付強さ　チッピング

１．研究開始当初の背景

（1）1990 年代に高強度のアルミナ・セラミックスが開発され、日本においてもオールセラミックス修復物の研究が盛んに行われるようになった。初期のオールセラミックス修復物の作製は、熟練した技工士が大変な労力と時間をかけて手作業で行っていたため、個々の修復物が高価となりしかも品質が安定していなかった。これらの問題を解決するため、人件費の高い先進国で修復物の自動作製を目指し CAD/CAM 装置の研究開発が進んでいる。近年、国民の健康意識の高まりと審美願望により、最近の数年間で金属を用いた歯科修復物の割合は、大きく減少している。その主な原因は、金属アレルギーを引き起こす患者さんが増えたこと、白い歯を願望する患者さんが増えたこと、咬合圧に耐え得る強度の大きなセラミックス（アルミナ系およびジルコニア系のセラミックス）がコア用の材料として歯科に導入（日本での使用が認可された。）され歯科医が金属フリーの歯科治療用材料としてセラミックスを選択し推奨したこと、患者さんもこれを受け入れたためと考える。セラミックスは、18 世紀後半に歯科に導入された材料であり、生体親和性、化学的安定性、耐磨耗性、審美性に優れた材料であることは十分認識されている。しかし、修復物がオールセラミックスになったとき、最大の欠点である脆さがどこまで克服できているのかが危惧されるところである。

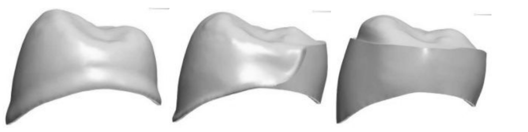
（2）臨床応用されたオールセラミッククラウンの破折例では、アルミナのコアと前装用陶材の界面を回り込むように破折していた。この破折面は、アルミナのコアと前装用陶材が十分に焼付いていないこと、前装用陶材自身の強度が十分でないことを示唆している。CAD/CAM システムで作製したオールセラミックスクラウンの基本的な強さを測定し、さらにクラウン全体の強さを向上させるために、コアセラミックスと前装用陶材の結合強さを向上させる方法を検討する必要があると考えた。

２．研究の目的

（1）この研究の目的は、①CAD/CAM システムで作製したオールセラミックスクラウンの基本的な強さを測定すること、②クラウン全体の強さを向上させるため、コアセラミックスと前装用セラミックスの結合強さを向上させる方法を検討することにある。その結合強さを向上させる方法案として、コアセラミックスの表面改質を行うこと、前装用セラミックス自体の強度を上げることによりクラウン全体の強さを向上させることであった。

３．研究の方法

（1）ニッシン歯列模型の下顎第二小臼歯に支台形成し、そのレプリカを歯科精密鋳造法に準じてコバルトクロム合金で作製し原型とした。CAD システムで 作製したジルコニアコーピングの形態を下の図に示した。



(NS)　　　(LS)　　　(TS)

図１ ジルコニアコーピングの形態

（NS）:サポート形態無し、（LS）:歯冠までの舌側をサポートする形態、（TS）：歯冠までの全周をサポートする形態の 3 種類、コーピングの厚さ 3 種類（0.4mm、0.6mm、0.8 mm）、これらを組み合わせた条件 9 種のコーピングを CAD/CAM システム（ジーシーGM-1000）により設計作製した。27 個のジルコニアコーピングにメーカー指示の方法により前装用セラミックスを焼成した。さらに比較検討するためジルコニア製のオールセラミッククラウンを CAD/CAM システムで作製した。繰り返し数は 3 とした。合計 30 個のオールセラミッククラウンをコバルトクロム合金で作製した原型にグラスアイオノマーセメントで合着し、オートグラフを用いて全て同じ場所(近心小窩)に先端半径 1.0mmの球形圧子を押し込む応力負荷試験を行った。（クロスヘッドスピードは、0.5mm/min とした。）

（2）直径 10.0±0.04 ㎜、長さ約 12.5 ㎜ の半焼結円柱状試料を CAD/CAM システム（GM-1000,ジーシー）で作製した。ジルコニアのコーピングと前装陶材の焼付強さを向上させる効果があると期待し選択した薬剤 9 種類（A: Control, B: Germanium (Ⅳ) oxide, C: Gold powder, D: Gold slurry TS3, E: Indium tin oxide, F: Zinc oxide, G: Yttrium oxide, H: Cerium (Ⅳ) oxide, I : Zeolite Synthetic HS-720, J: Zeolite Synthetic HS-690）を半焼結円柱状試料端面に塗布後、完全焼結した。完全焼結したそれぞれの試料端面は、サンドブラスト処理、スチーム洗浄を行って余剰の薬剤を除去した。なお、薬剤を使用しないで焼結した試料をコントロールとして用いた。完全焼結した試料の薬剤塗布面に自作の金型を用いて直径 10.0 ㎜、長さ約 6 ㎜となるようにオペーク陶材(Frame Modifier,ジーシー)を築盛し、メーカー指示の方法で焼付けた。 焼付強さは剪断法で測定した。繰り返し数は 6 とした。

（3）前装陶材の焼付強さを向上させる効果があると期待し選択した薬剤 9 種類の中で、一番効果のあった薬剤（Indium tin oxide）を拡散させた見かけの濃度溶液 5 種類（ 0.1 mM ～1M ）を半焼結円柱状試料端面に各 0.5ml 滴下乾燥後、完全焼結した。なお、薬剤を使用しないで焼結した試料をコントロールとして用いた。完全焼結した試料の薬剤処理面に自作の金型を用いて直径 10.0 ㎜、長さ約 6 ㎜ となるようにオペーク陶材(Frame Modifier,ジーシー)を築盛し、メー

カー指示の方法で焼付けた。焼付強さは剪断法で測定した。繰り返し数は 6 とした。

（4）（1）と同様の方法で作製したジルコニアコーピングに Indium tin oxide(Alfa Aesar, USA) の 1 mM 分散水溶液を塗布後、メーカー指示の方法により前装用陶材（イニシャル Zr-Fs, ジーシー）を焼成した。さらに比較検討するため、CAD/CAM システムで作製したフルジルコニアクラウンにや薬剤を塗布し焼結した。繰返し数は 3 とした。合計 30 個のオールセラミッククラウンをコバルトクロム合金製の原型にグラスアイオノマーセメントで合着し、オートグラフを用いて全て同じ場所(遠心小窩)に先端半径 1.0mmの球形圧子をクロスヘッドスピード 0.5mm/min で押し込む応力負荷試験を行った。

（5）ジルコニアコーピングと前装陶材の剪断焼付強さを改善するのに効果のあった Indium tin oxide 塗布試料のジルコニアと陶材の焼付界面の状態について EPMA（JXA-8900, 日本電子）を用いて面分析および線分析を行った。

4．研究成果

（1）の測定結果を 図 2 に示した。

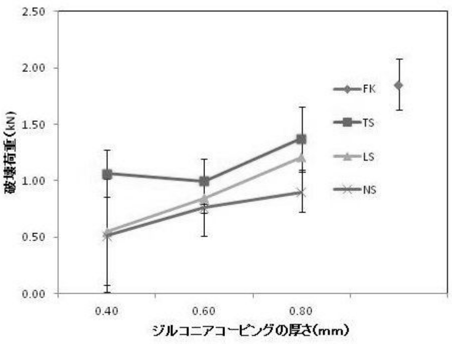


図 2　破壊荷重に及ぼすジルコニアコーピングの形態と厚さの影響

二元配置分散分析の結果、破壊荷重は、ジルコニアコーピングの厚さが増すほど、サポート面積が増える形態によって有意に向上した。サポート形態とコーピングの厚さの間には交互作用効果は無かった。ジルコニア製オールセラミッククラウン（FK）は、1.86ｋN（SD：0.23）で破壊した。

ジルコニアコーピングの厚さが増すほどオールセラミッククラウンの耐破壊強さが向上したのは、球形圧子荷重方向の前装用セラミックスの厚さが減少したためと考える。サポート形態の面積が増すほど、オールセラミッククラウンの耐破壊強さが向上したのは、球形圧子より受けた応力の分力を支える前装用セラミックスの厚さが減少したためと考える。

（2）の測定結果を図 3 に示した。

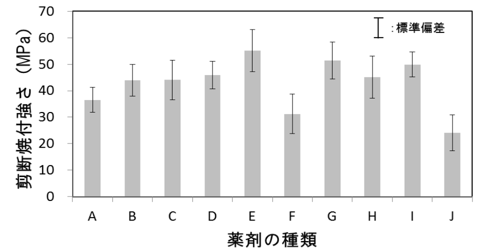


図 3　ジルコニアと前装陶材の剪断焼付強さ（MPa）

実験に使用した薬剤名（A: Control, B: Germanium (IV) oxide, C: Gold powder, D: Gold slurry TS3, E: Indium tin oxide, F: Zinc oxide, G: Yttrium oxide, H: Cerium (IV) oxide, I : Zeolite Synthetic HS-720, J: Zeolite Synthetic HS-690）

一元配置分散分析の結果,剪断焼付強さは、薬剤の種類によって有意に変化した。TukeyHSD による多重比較の結果、E、G、I の条件が薬剤を塗布しなかった条件（Control）A よりも有意に向上した。実験に使用した薬剤（E、G、I）は、ジルコニアを完全焼結する温度及びコーピングに前装陶材を焼成する温度で酸化還元反応（酸素の放出吸収）が起こり酸素を介してコーピングと前装陶材が化学的に結合する可能性を示していると考える。

剪断焼付強さを測定した時の前装陶材の破壊の様子から陶材自体の強度を向上させないとこれ以上格段に焼付強さを大きくすることは難しいと考える。

（3）の測定結果を図 4 に示した。

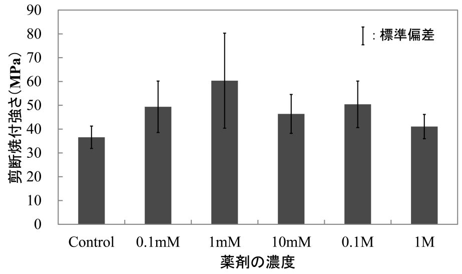


図 4　ジルコニアと前装陶材の剪断焼付強さ

一元配置分散分析の結果、剪断焼付強さは、薬剤の濃度によって有意に変化した。多重比較（Dunnett ’s T3 test）の結果、溶液 1 mM の条件が薬剤を塗布しなかった条件（Control）よりも有意に向上した。

実験に使用した薬剤の平均分子径の大きさを 100pm 程度と仮定すると 0.1 mM の薬剤 0.5 ml 滴下後の半焼結円柱状試料端面には隙間なく分子が 1 段並ぶことができ、1 mM の時 10 段、10 mM で 10^2 段、0.1 M で 10^3 段、1 M で 10^4 段積み重なることができる量であると考える。しかし、 滴下した薬剤が微粒子の拡散溶液であったため、設定した溶液濃

度の差によってもジルコニア試料端面に接している分子の数に大きな違いがなく、濃度間に剪断焼付強さの違いが生じなかったものと考える。ジルコニアコーピングと前装陶材の焼付強度をさらに高めるには、薬剤の粒子をより細かくすること、剪断焼付強さを測定した時の破壊の様子から前装陶材自体の強度を向上させる必要があると考える。実験に使用した薬剤は、ジルコニアとの焼付強さの向上に相当の効果があることから、ジルコニアを完全焼結する温度及びコーピングに前装陶材を焼成する温度で酸化還元反応（酸素の放出吸収）が起こり,酸素を介してコーピングと前装陶材が化学的に結合する可能性を示していると考える。
（4）の測定結果を図 5 に示した。

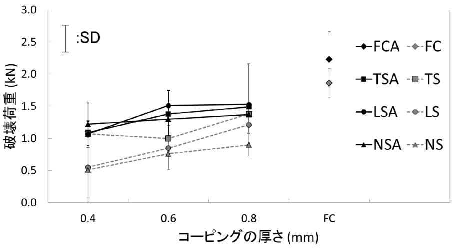


図 5 破壊荷重に及ぼすジルコニアコーピングの形態と厚さ、ならびに薬剤塗布の影響

図中 FCA，TSA，LSA，NSA（実線）が今回行った結果で、FC，TS，LS，NS（点線）が（1）の結果である。二元配置分散分析の結果、破壊荷重は、ジルコニアコーピングの厚さが増すほど、また、サポート形態の面積が増えるほど有意に向上した。ジルコニアコーピングに薬剤を塗布することによりオールセラミッククラウンの破壊荷重は 1.02～2.39 倍となったが、ジルコニアコーピングの厚さが薄く、また、サポート形態の面積が小さいときに塗布の効果は顕著であった。
（5）の観察結果を図 6 に示した。

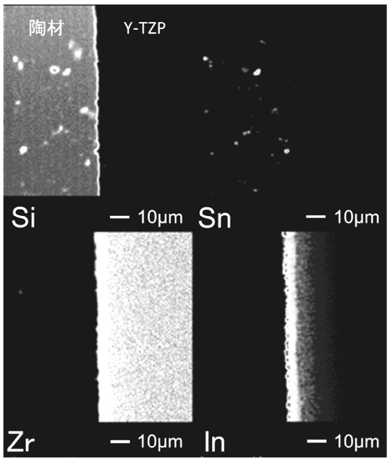


図 6　プライマーを塗布したジルコニア半焼結体の焼付界面の EPMA 分析

面分析の結果、陶材側には、陶材の主成分の Si が、また Y-TZP 側には、Y-TZP の主成分の Zr が観察された。さらに Y-TZP 半焼結体の焼付界面から Y-TZP 側にかけて約 25 マイクロメートル（図１）、焼結体でも約 15 マイクロメートルの深さまでプライマーの主成分である In が拡散しているのが観察された。また、EPMA による線分析の結果、Si の Y-TZP 側への拡散が、また Zr の陶材側への拡散が観察された。In の拡散が焼結体でも観察されたことから、Y-TZP を完全焼結する温度で酸化還元反応（酸素の放出吸収）が起こり、酸素を介してコーピングと前装陶材が化学的に結合する可能性を示していると考える。このことにより、ジルコニアと陶材の焼付強さが向上したと考えられる。また、In_2O_3 を陶材側に添加することにより、陶材焼付鋳造冠のように酸化膜を介してジルコニアと陶材が化学的に結合する可能性もある。
以上のことから、ジルコニアへのプライマー処理が、ジルコニアと陶材の化学的な結合を引き起こし、焼付強さの向上に寄与している可能性が示された。

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）

〔学会発表〕（計　5　件）

① 小出（風間）未来， 後藤真一， 宮川行男 ：
プライマー処理したジルコニアと前装陶材の焼付界面の EPMA 分析，一般社団法人日本歯科理工学会， 2014.10.04～05， アステールプラザ（広島）

② 後藤真一， 丸山完， 小出（風間）未来， 宮川行男 ：
オールセラミッククラウンの強さに及ぼすジルコニアコーピングの形態と薬剤塗布の影響， 一般社団法人日本歯科理工学会，2014.10.04～05， アステールプラザ（広島）

③ 後藤真一， 宮川行男：
ジルコニアと前装陶材の焼付強さに及ぼす薬剤濃度の影響， 一般社団法人日本歯科理工学会， 2014.04.12～13， タワーホール船堀

④ 後藤真一， 赫多清， 宮川行男：
ジルコニアと前装陶材の焼付強さ， 一般社団法人日本歯科理工学会， 2013.10.19～20， 日本歯科大学新潟生命歯学部

⑤ 後藤真一, 菅原佳広, 丸山 完, 小倉英夫：オールセラミックスクラウンの強さに及ぼすジルコニアコーピングの厚さとサポート形態の影響， 一般社団法人日本歯科理工学会， 2012.10.13～14， 福岡市東区九州大学

６．研究組織
(1)研究代表者

後藤　真一　（GOTO, Shin-ichi）
日本歯科大学・新潟生命歯学部・准教授
研究者番号：10105504