

論文の要約

氏名：岩 崎 太 郎

博士の専攻分野の名称：博士（歯学）

論文題名：トライボケミカル処理されたジルコニアと間接修復用コンポジットレジンとの接着強さ

酸化ジルコニウム（以下ジルコニア）セラミックスは、優れた機械的性質と生体適合性により、陶材焼付金属冠のフレームワーク材料に代わるものとして用いられている。多くの臨床研究において、ジルコニア修復物の臨床成績は中・長期的に安定して良好であると報告されている。しかし、ジルコニア修復物において前装陶材の微小破折が高い頻度で生じており、インプラント支持のジルコニア修復物では、歯根膜支持と比較し高い割合で前装陶材の微小破折が報告されている。その問題に対する解決策の1つに、前装陶材に代わり間接修復用コンポジットレジンを使用することが、近年いくつかの研究で検討されている。その結果として、ジルコニアと間接修復用コンポジットレジンとのせん断接着強さは20 MPa以上であり、臨床応用に必要とされるセラミックスあるいは金属と間接修復用コンポジットレジンとの接着強さを上回っていると報告されている。

ジルコニアに対する表面処理は、ジルコニアフレームワークと前装材料の良好な接着強さを獲得するために必要な手法である。この処理方法の1つに、ジルコニア表面をシリカコーティングされたアルミナ粒子でブラスト処理するトライボケミカルシリカコーティング処理がある。これにより、ジルコニア表面が粗造化するだけでなく、シリカによって被覆される。トライボケミカルシリカコーティング処理を行った表面にシランカップリング剤を用いることで、コンポジットレジンとの接着強さが向上することが示されている。一方で、水中浸漬試験や水中熱サイクル試験により、接着強さが減少することが報告されている。しかし、トライボケミカルシリカコーティング処理を行ったジルコニアと、前装を目的とした間接修復用コンポジットレジンとの接着強さに関する検討を行った報告は少ないのが現状である。

そこで本研究の目的は、トライボケミカルシリカコーティング処理を行ったジルコニアと間接修復用コンポジットレジンとの接着強さの評価、また、各種プライマーやボンディング材の効果を究明することとした。

被着体として、部分安定化ジルコニアの円形平板（直径11.4 mm、厚さ2.5 mm）を使用した。ジルコニア円形平板を耐水研磨紙にて#600まで注水研削した。その後、平均粒径110 μm のアルミナ粒子を噴出圧力0.28 MPa、噴出口から被着面の距離10 mmで10秒間、被着面に対して垂直方向よりアルミナブラスト処理を行った（ZR-PRE 試料）。さらに、半数の試料には、平均粒径110 μm の不定形のシリカを含むアルミナ粒子を噴出圧力0.28 MPa、噴出口から被着面の距離10 mmで13秒間、被着面に対し垂直方向よりトライボケミカルシリカコーティング処理を行った（ZR-PLU 試料）。その後、すべての試料は直径5.0 mmの穴をあけた両面テープにより接着面積を規定後、製造者指示に従いプライマー処理を行った。

使用したプライマーは、クリアフィルセラミックプライマー（以下CCP）、クリアフィルメガボンドプライマーとクリアフィルポーセレンボンドアクチベーターの等量混和液（以下MGP+Act）、エスベジル（以下SIL）、エステニアオパークプライマー（以下EOP）、MR. ボンド（以下MRB）、スーパーボンドPZプライマーA液とB液の等量混和液（以下PZA+PZB）、スーパーボンドPZプライマーB液（以下PZB）で、処理なしを含め計8条件とした。各プライマーは少なくとも1種類の機能性モノマーを含有しており、CCP、MGP、およびEOPはMDPが、PZAはリン酸エステル系モノマーが、MRBはMAC-10、そしてCCP、Act、SIL、PZBはシランカップリング剤（3-TMSPMA）が含まれている。

各種プライマーによる処理後、エステニアC&B ボディオパーク OA2 を2層塗布し、1層ごとに照射器にて90秒間重合を行った。その後、内径6.0 mm、高さ2.0 mmのステンレス鋼製リングを被着体に固定し、リング内にエステニアC&B デンチン DA2 を荷重圧5 Nで充填した。充填後、5分間照射し、さらに加熱重合器で110 $^{\circ}\text{C}$ 、15分間重合を行った。製作した試料の半数は37 $^{\circ}\text{C}$ 精製水中にて

24 時間水中浸漬保管後、せん断接着試験を行った。残りの半数の試料に対しては、水中熱サイクル (5 °C と 55 °C に各 60 秒間浸漬) を 20,000 回負荷後、せん断接着試験を行った。せん断接着試験は、接着試験体を治具に装着し、万能試験機を使用して、クロスヘッドスピード毎分 0.5 mm の条件で行った。

統計学的検討については、得られたデータに対して Levene 検定を行った。その結果、等分散性が得られなかったため、同一表面処理条件におけるプライマーによるせん断接着強さの違いを比較するために Kruskal-Wallis 検定を行った。この検定結果を基に、ZR-PRE 試料と ZR-PLU 試料について、それぞれ 8 条件を比較するため、多重比較検定である Steel-Dwass 検定を行った。加えて、同一表面処理条件間での水中熱サイクル負荷前後のせん断接着強さの比較は、Mann-Whitney *U* 検定を行った。なお、全ての検定は有意水準 0.05 の条件で行った。

せん断接着試験後、試料破断面を 32 倍の光学顕微鏡で観察し、破断面を間接修復用コンポジットレジンとジルコニアの界面破壊、間接修復用コンポジットレジン内での凝集破壊、界面破壊と凝集破壊が存在する混合破壊に分類した。また、接着操作前およびせん断接着試験後の試料被着面にオスミウム蒸着処理を 30 秒間行い、加速電圧 15 kV の条件で走査電子顕微鏡 (以下 SEM) にて試料表面の観察を行った。さらに、CuK α 線を使った X 線回折装置 (以下 XRD) を用いて試料表面の分析を行った。参考として、純シリカおよびアルミナ表面の分析を行った。測定結果は、X 線回折分析装置を用いて分析した。

ZR-PRE 試料において、水中熱サイクル負荷の有無にかかわらず MGP+Act 群が他の群に比較して有意に高いせん断接着強さを示した。ZR-PLU 試料では、水中熱サイクル負荷の有無にかかわらず CCP, MGP+Act および PZA+PZB 群が他の群に比較し有意に高いせん断接着強さを示した。また、水中熱サイクル負荷後の CCP, MGP+Act, SIL, PZA+PZB および PZB 群において、ZR-PLU 試料は ZR-PRE 試料に比較し有意に高いせん断接着強さを示した。Mann-Whitney *U* 検定の結果、ZR-PLU 試料の CCP, MGP+Act, SIL, PZA+PZB および PZB 群の 5 条件において、水中熱サイクルなしのせん断接着強さと水中熱サイクル負荷後のそれと比較して有意な減少は認められなかった。水中熱サイクルなしでは、ZR-PRE 試料の MGP+Act 群と、ZR-PLU 試料の CCP, MGP+Act および PZA+PZB 群に混合破壊が認められた。水中熱サイクル負荷後では ZR-PLU 試料の CCP 群のみに混合破壊が認められた。その他の条件での破壊形式は界面破壊であった。

SEM による観察の結果、ZR-PLU 試料ではアルミナブラスト処理による凸凹の面とシリカの粒子と思われる像が観察された。また、ZR-PLU 試料の混合破壊と判定された試料表面には間接修復用コンポジットレジンと思われる残留物が観察された。

XRD 分析の結果、ZR-PLU 試料、シリカ単体の試料および ZR-PLU における界面破壊と判定された試料では SiO₂ を同定した。また、ZR-PLU における混合破壊と判定された試料と間接修復用コンポジットレジン単体の試料はピークが一致した。さらに、ZR-PLU 試料とアルミナ単体の試料は Al₂O₃ を同定した。

ジルコニアに対するトライボケミカルシリカコーティング処理が間接修復用コンポジットレジンとの接着強さに及ぼす影響について検討した結果、以下の結論を得た。

1. トライボケミカル処理により表面がシリカコーティングされたジルコニアと間接修復用コンポジットレジンとの接着耐久性の獲得には、シランカップリング剤 (3-TMSPMA) による表面処理が有効であった。
2. リン酸エステル系モノマーとシランカップリング剤による表面処理が、トライボケミカルシリカコーティング処理されたジルコニアと間接修復用コンポジットレジンとの接着強さ向上に有効であった。
3. トライボケミカル処理でジルコニア表面に残留したアルミナ粒子は、リン酸エステル系モノマーを含むプライマーで処理されたジルコニアと間接修復用コンポジットレジンとの接着を阻害する要因ではないことが示された。
4. ジルコニアに対するトライボケミカル処理によるシリカコーティングは、間接修復用コンポジットレジン前装ジルコニアクラウンの製作において、有効な処理方法であると考えられる。