

# 学位論文内容の要旨

愛知学院大学

論文提出者

松原正和

論文題目

プレス用二ケイ酸リチウムガラスセラミックスの  
結晶配向性が曲げ強度に及ぼす影響

## I. 緒言

現在、オールセラミックス修復においてジルコニアと二ケイ酸リチウムガラスセラミックスが広く使用されている。二ケイ酸リチウムガラスセラミックスは CAD/CAM 機器を用いた切削用ブロックとロストワックス法を応用したプレス用インゴットが市販されており、CAD/CAM 技術が発展する中、多くの歯冠修復物がプレス法によって製作されている。ガラスセラミックスはセラミック結晶によって機械的性質を強化されたガラスである。二ケイ酸リチウムガラスセラミックスは針状の二ケイ酸リチウム結晶が絡み合うような構造を取ることで機械的性質が強化される。切削加工の場合は二ケイ酸リチウム結晶がランダムな方向に向いているのに対し、プレス成形の場合はプレスによって二ケイ酸リチウム結晶が配向することがわかっている。しかし、二ケイ酸リチウム結晶の配向が曲げ強さに及ぼす影響はいまだにわかっていない。本研究では、二ケイ酸リチウム結晶の配向性を明らかにし、曲げ強さとの関係を検討した。

## II. 材料と方法

供試材として、IPS e.max Press (Ivoclar Vivadent)、Initial LiSi Press (GC)、Vintage LD Press (松風)、Vintage PRIME Press (松風) を選択し、直方体試料 (長さ 24 mm、幅 4.0 mm、厚み 1.2 mm)、円盤試料 (直径 12 mm、厚み 0.50 mm)、クラウン試料 (上顎第一大臼歯形態) を製造者指示の方法

でプレス成形した。直方体試料に対して3点曲げ試験、円盤試料に対して2軸曲げ試験を行い曲げ強さを測定した。測定された曲げ強さの統計学的解析には Tukey の多重比較試験を行い、統計的有意水準を 0.05 とし、 $p < 0.05$  の時有意差ありと判定した。また、結晶配向性を評価するために X 線回折および走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察を行った。これらは直方体試料と円盤試料は表面に対して行い、クラウン試料はスプルーを含み近心咬頭を含む断面 (平行断面) と平行断面に直交し中心窩を含む断面 (垂直断面) に対して行った。X 線回折は直方体試料に対して 16 か所 (試料長軸と平行に 3 分割、垂直に 5 分割した領域とスプルー部)、円盤試料に対して 22 か所 (スプルーと平行に 5 分割、垂直に 5 分割し、四隅を除いた 21 か所とスプルー部)、平行断面に対して 6 か所 (辺縁部、咬頭部、裂溝部の 5 か所とスプルー部)、垂直断面に対して 5 か所 (辺縁部、辺縁隆線部、咬合面部) 行った。SEM 観察は直方体試料に対して上記 16 か所、円盤試料に対して上記 22 か所、平行断面に対して 16 か所 (上記試料内 5 領域をさらに外側と内側に 3 分割した 15 領域とスプルー部)、垂直断面に対して 15 か所 (上記 5 領域をさらに外側と内側に 3 分割した 15 領域) 行った。

### Ⅲ. 結果

3点曲げ強さでは IPS e.max Press (432.7 MPa) と Vintage PRIME Press (432.0 MPa) が最も高い値を示し、次いで Initial LiSi Press (338.9 MPa)、

Vintage LD Press (292.1 MPa) となった。IPS e. max Press と Vintage PRIME Press の間に有意差はなかったが、両者と Initial LiSi Press ならびに Vintage LD Press との間には有意差が認められた。さらに、Initial LiSi Press と Vintage LD Press の間にも有意差が認められ、Vintage LD Press が最も 3 点曲げ強さが低かった。2 軸曲げ強さでは Vintage LD Press (278.9 MPa) がほかの材料に比べて有意に低い値であったが、ほかの 3 種の材料間に統計学的有意差は認められなかった。

X 線回折ではプレス前後でピーク強度に顕著な差が認められた。回折面のうち結晶長軸に平行な結晶面 (040) と垂直な結晶面 (002) に着目し、(040)/(002) X 線強度比を計算することで結晶配向性を検討した。この比の高値は観測面に結晶長軸面が多く生成されていることを意味する。

直方体試料と円盤試料では、スプルー付近の (040)/(002) X 線強度比は高値であり、結晶配向性が高く、スプルーから離れた場所の結晶配向性は低い結果であった。全体の傾向としては Vintage Prime Press が高い (040)/(002) X 線強度比を示し、Initial LiSi Press と Vintage LD Press が低い値を示した。直方体試料ならびに円盤試料の各領域を SEM 観察すると、スプルー付近の結晶はプレス方向と平行に配向していたのに対し、スプルーから離れた場所の結晶はその平行性を失っていた。この結果は X 線回折による結晶配向性の結果を良く支持している。

直方体、円盤試料のような単純形態とは異なり、複雑な形状をもつクラウ

ン試料では、結晶配向性の顕著な傾向は認められなかった。ただし、特徴的なことは、IPS e. max Press、Vintage LD Press および Vintage PRIME Press では、平行断面の(040)/(002) X線強度比が垂直断面と比べて高い傾向があった。Initial LiSi Press では平行断面と垂直断面の間で(040)/(002) X線強度比の分布に明確な傾向はなかった。クラウン試料の各領域を SEM 観察すると、垂直断面では結晶長軸断面が多くみられたが、平行断面では明らかな結晶配向は確認できなかった。表面付近では結晶の長軸が表面に対して平行に配向していることが特徴的であった。

#### IV. 考察

結晶配向性はスプルーとの位置関係により、強弱が生じることが判明した。さらに、直方体、円盤、クラウン形状のどの試料においても表面付近の結晶は表面に対して平行に配向することが確認できた。クラウン試料の場合、流動性を持ったガラスセラミックスがスプルーから耐火模型に流れ込む際、空洞の表面に衝突した後に広がっていく。この結果、初めから乱流が発生しやすくなり結晶がランダムに配向する。直方体および円盤試料の場合、ガラスセラミックスが表面に衝突することなく試料末端まで流動する。その結果、スプルー付近では乱流が発生しにくくなり結晶が平行に配向する。また、表面付近ではプレス時の圧力により結晶が耐火模型の表面に押し付けられるようにして平行に配向するものと推察される。

3点曲げ試験では、引張応力が直方体試料の中央部に集中し、破断する。この引張応力は試料長軸方向に加わり、亀裂は試料長軸に対して垂直に入る。直方体試料中の結晶は試料長軸に対して平行に配向していた。直方体試料中央部の(040)/(002) X線強度比と3点曲げ強さの相関を調べると、強い正の相関( $r=0.727$ )が認められ、結晶配向性が強度に大きく影響を与えていることが判明した。試料長軸方向に対して平行な結晶配向が亀裂の進展を阻止することで曲げ強度が向上したものと推定される。

2軸曲げ試験では、引張応力が円盤試料中央下部に集中し、二次元的に分散する。この場合、円周方向と半径方向の引張応力が均一に加わり、抵抗が低い方向に破断する。このため、一方向への結晶配向は2軸曲げ強さには大きく影響を与えないことが予想される。事実、本実験における2軸曲げ試験結果は3点曲げ試験と異なり、(040)/(002) X線強度比が大きく測定された試料において、必ずしも2軸曲げ強さは大きくは測定されていない。試料中央部の(040)/(002) X線強度比と2軸曲げ強さの相関は低く( $r=0.397$ )、2軸曲げ試験は、結晶の配向性など、試験片の内部構造からの影響を受けにくいことを示唆しているものと考えられる。SEM画像では、スプルー付近の結晶はスプルーを中心に放射状に配向していたが、試料中央部の結晶はランダムに配向していた。亀裂がどの方向にも進展する2軸曲げ試験では、試料表面上における結晶長軸の配向に影響を受けにくいことをX線回折の分析結果と同様に示しているものと考えられる。

これまでの研究では、切削したガラスセラミックスの結晶はランダムに配向していることが報告されているが、一方、プレスしたガラスセラミックスは表面付近で結晶が配向することが報告されている。また、プレスした二ケイ酸リチウムガラスセラミックスが切削した二ケイ酸リチウムガラスセラミックスより高い機械的性質を持つことが報告されているが、その理由は前述の結晶の配向性の違いに起因するものと考えられる。微細構造分析の結果、3点曲げならびに2軸曲げ試験の試料表面には二ケイ酸リチウム結晶長軸面が多く現れていることが確認された。プレスされたクラウン試料表面には多くの結晶が表面に対し平行に配向していたため、試料表面には結晶長軸面が多く現れていたことが推測される。さらに、曲げ試験の結果、試料表面に平行な結晶配向と3点曲げ強さの間関係性が明らかとなり、2軸曲げ試料やクラウン試料においても、表面に平行な結晶配向が亀裂の進展を阻止し、破壊強さを向上させる可能性が示唆された。従って、プレスされた二ケイ酸リチウムガラスセラミックスは表面に平行な結晶配向を持つことで、切削された製作物よりも高い強さを持つことが期待される。