



Title	アコースティックエミッション法を応用した接着界面の新規非破壊評価
Author(s)	江崎, 良真
Citation	大阪大学, 2019, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/72234
rights	© 2021 Japan Prosthodontic Society. This is an open-access article distributed under the terms of Creative Commons Attribution License 4.0 (CCBY 4.0), which allows users to distribute and copy the material in any format so long as attribution is given to the Japan Prosthodontic Society.
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

学位論文

アコースティックエミッション法を応用した
接着界面の新規非破壊評価

大阪大学大学院歯学研究科

口腔科学専攻

顎口腔機能再建学講座

クラウンブリッジ補綴学分野

江崎 良真

緒言

今日の歯科臨床において歯科用接着材の使用頻度は高く、修復物や補綴装置の口腔内での長期的な安定には良好な接着状態が維持されることが重要である。しかしながら、接着操作が完璧に行われたとしても、長期経過とともに、時に修復物や補綴装置の脱離、辺縁漏洩、二次う蝕等が発生することが問題となっている。この原因として、感染象牙質の残存[1-4]、接着材の健全歯質への浸透不良[5]、未重合モノマーの残存、溶出[6,7]、経時的な接着材あるいは歯質の劣化[8,9]などが報告されている。また、口腔内の温度変化や咀嚼および口腔悪習癖による咬合力などの物理的要因は、接着界面に大きなストレスを与え、接着材の物理的な劣化に大きく関連し、その安定性に影響すると考えられている[9-15]。接着材や接着界面の劣化により再度治療が必要となることは珍しくないものの、口腔内に修復物や補綴装置が存在している段階で接着界面の接着状態を経時的に測る方法はいまだに存在しない。

現在、歯科臨床における再治療は修復物や補綴装置が脱離や破折が起こってから行われることがほとんどであり、修復物や補綴装置の接着状態を脱離前に口腔内にて直接評価することは意義深い。

これまでの基礎的研究における接着界面の評価法は、試料作製時に接着界面に外力を加える破壊的な試験によるものがほとんどであった。近年、

X 線マイクロコンピュータ断層撮影装置 (micro Computed Tomography; 以下 μ CT) や光干渉断層画像装置 (Optical Coherence Tomography; 以下 OCT) などの非破壊試験も試みられるようになってきたが, μ CT は金属に代表される X 線非透過性材料の内部を把握できず, その解像度も十分ではない. また, OCT は, 生体組織を透過する近赤外線の反射光を利用した光干渉計の原理に基づいた装置であり[16], 表面から 3 mm 程度内部の構造をリアルタイムで分析することができるが[17], 検査対象の表面が粗造であると近赤外線の乱反射が生じることや, 非透光性の材料には使用できないなどの問題を有している[17]. このように μ CT や OCT であっても, 口腔内に修復物や補綴装置が存在する状態のまま接着界面を評価することは不可能である. そこで, 臨床応用可能な技術として, 構造物の欠陥を非破壊評価するために工業分野で実績のあるアコースティックエミッショ (AE) 法に着目した.

AE は, 固体材料の塑性変形や破壊に伴って弾性エネルギーが解放され, 音波として固体中を伝搬する現象である[18]. AE の研究報告は Kaiser らによって 1953 年に初めて行われ[19], その後, 土木建築構造物[20-22], 機械/航空宇宙構造物[23,24], 材料の安全性[25-29]および信頼性のリアルタイム評価などの多くの工学用途に使用され, 材料の状態および破壊のメカニズムの評価に利用されている[20-24]. 歯科領域では, コンポジットレジンの重合収縮応力による界面剥離の検出

[25-27,30-32,36,40]，接着界面におけるマイクロクラック進展の検出 [32,35,41]，コンポジットレジンの材料強度とその破壊過程の計測 [28,29,33,34,41]，メタルフリークラウンの初期破壊荷重値と最終破壊荷重値の計測[37,39,42]に AE 法が応用されている。このように AE 法は，さまざまな破壊試験および非破壊試験との併用による材料内部のひずみや破壊過程の計測に用いられているが，これらの研究は試料の重合収縮やマイクロクラックの進展といった事象を観察したり，三点曲げ試験や荷重負荷試験といった破壊試験と組み合わせたりしたものであり，口腔内に装着された修復物や補綴装置の接着界面を直接評価することを目的とした報告ではない。

そこで，本研究では補綴装置と歯質の界面を口腔内で検査できる新規検査装置の開発をめざして，従来の検知側の AE センサーに加え，シグナルの付与側にも振動波を加振する機能のある AE センサーを用いて評価する手法(アクティブ AE 法と命名した)を考案した。すなわち，一方の AE センサーから試料に振動波を与え，試料を介して伝播した振動波を対極に設置した他方の AE センサーで計測する手法を採用した。これは，発生した弾性波を受信する機能のみをもった従来の AE センサーに，自ら振動波を発する機能を付与した，これまでにない画期的なシステムである。本研究は，口腔内で実用可能な新規非破壊試験法の確立をめざして，歯根象牙質と支台築造用レジンの接着状態の違いを AE 法で確認した。さらにアクティブ

AE 法を活用して歯根象牙質と支台築造用レジン、補綴装置と支台歯の接着状態の違いとその経時変化を非破壊観察した。

材料および方法

本研究では、大阪大学大学院歯学研究科倫理審査委員会の承認を受け (H26-E6), ヒト抜去歯を使用した.

実験 1 AE 法による歯根象牙質 - レジン接着界面の評価

1.1 μ CT を用いた微小漏洩試験による試料の状態の確認

1.1.1 試料作製法 (図 1)

生理食塩水中に保存されたう蝕に罹患していないヒト抜去歯のうち, 単根管歯 6 本を本実験に供した. まずセメントエナメル境で歯軸に対して垂直に歯冠部を切断したのち, K ファイル (マニー K ファイル, マニー, 栃木) にて #80 まで手指による根管拡大を行った. 拡大終了後, 2.5% 次亜塩素酸ナトリウム水溶液 (hypogen, Premier, Pennsylvania, USA) を用いて根管洗浄を行った後, エアブローと綿栓を用いて十分に根管を乾燥させ, ガッタパー チャポインツ (GUTTA PERCHA POINTS, ジーシー, 東京) と根管充填用シーラー (キャナルス N, 昭和薬品化学工業, 東京) を使用して通法どおり側方加圧根管充填法にて根管充填を行った後, ストッピング (松

風テンポラリーストッピング, 松風, 京都) にて仮封し, 37°C 水中に 24 時間保管した.

根管形成バー (No.1-5, トクヤマ FR ポスト用ドリル, トクヤマデンタル, 東京) でポストの長さをセメントエナメル境より 10 mm の長さに統一し, 注水下にてポスト孔の形成を行った. ポスト孔形成後, 3%EDTA (スマアクリーン, 日本歯科薬品, 山口) で 2 分間処理し, 水洗, 乾燥後, 10~15%次亜塩素酸ナトリウムゲル (AD ゲル, クラレノリタケデンタル, 東京) で 1 分間処理し, 再度十分に水洗を行った. その後, エアブローを 10 秒間行った後に, 数本のペーパーポイント (カラーコードペーパーポイント, ジーシー, 東京) を使用して, 目視にてポイントが水分で濡れなくなるまで十分に乾燥した. この段階の試料を「アドヒーシブなし群」とした.

さらに光重合型ボンディング材 (クリアフィルユニバーサルボンド Quick, クラレノリタケデンタル, 東京) を塗布して 10 秒間処理したのち, エアブローならびにペーパーポイントで根管内の余剰分を除去し, LED 照射器 (Mini LED3, 最大光量 2,200 mW/cm², Satelec, Mérignac, France) を用いて 10 秒間光照射を行った. この段階の試料を「アドヒーシブあり群」とした.

その後, 「アドヒーシブなし群」, 「アドヒーシブあり群」の各群の試料に対して, 支台築造用レジン (Clearfil DC Core Automix ONE,

クラレノリタケデンタル, 東京) をポスト孔に注入し, 咬合面, 頬舌側, 近遠心側の 5 方向から 20 秒間ずつ LED 照射器を用いて光照射を行った. なお本研究では, 支台築造用レジンと象牙質の接着状態の分析に焦点を絞るため, ポストは挿入しなかった.

1.1.2 μ CT 観察 (図 2)

まず, 1.1.1 で作製した 2 群の試料の微小漏洩試験前の状態を μ CT (R_mCT2, リガク, 東京) にて管電圧 90 kV, 管電流 160 μ A, 解像度 20 μ m, FOV 10 mm の撮影条件で観察した (n=3). その後, 歯根象牙質 - レジン接着界面から 1 mm 外側, 歯根外表面にネイルバーニッシュ (TOP SPEED FIRST DRY NAIL ENAMEL C07, Revlon, New York, USA) を塗布し, 歯根象牙質 - レジン接着界面以外の部分をコーティングした. ネイルバーニッシュを乾燥後, 硝酸銀 (I) 試薬 50 g (キシダ化学, 大阪) を蒸留水 50 ml に溶解させ, 50% 硝酸銀水溶液を作製し, それぞれの試料を水溶液中に 24 時間浸漬した. 微小漏洩試験後の界面の状態を μ CT にて観察し, 画像解析ソフト (TRI 3D BON, ラトックシステムエンジニアリング, 大阪) にて, 硝酸銀の漏洩部位を三次元描出した.

1.2 AE 法による歯根象牙質 - レジン接着界面の非破壊評価

1.2.1 試料作製法

生理食塩水中に保存されたう蝕に罹患していないヒト抜去単根管歯 14 本を本実験に供した。1.1.1 と同様の方法で、「アドヒーシブなし群」と「アドヒーシブあり群」試料をそれぞれ 7 本ずつ作製した（図 1）。

1.2.2 AE 法による歯根象牙質 - レジン接着界面を介した振動波の計測（図 3）

試料のセメントエナメル境における切断面と硬化した支台築造用レジンの面が一致するように、突出した支台築造用レジン部を耐水研磨紙（#600, 三共理化学, 埼玉）にて研磨した。研磨後、AE センサー（AE-900S-WB, NF 回路設計ブロック, 神奈川）を設置したジグに作製した試料を固定し（図 4），試料の支台築造用レジン部とジルコニアボール滑走用のアクリル管が 45° の角度となるよう調整し、落下距離が垂直に 50 mm となるように直径 5 mm, 重さ 0.4 g のジルコニアボール（YTZ®ボール, ニッカトー, 大阪）の落下のスタート地点を設定した（図 4）。次に、設定した位置からゆっくりとジルコニアボールをアクリル管内で滑走させ、試料の支台築造用レジン部に衝突させた。

衝突時の衝撃によって発生した衝撃音（振動波）は AE センサー、プリアンプ（9917, NF 回路設計ブロック, 神奈川），ディスクリミネータ（9922, NF 回路設計ブロック, 神奈川），オシロスコープ

(WaveSurfer 424, Teledyne LeCroy, 東京) によって計測した。得られたデータは解析ソフトウェア (LabVIEW, NATIONAL INSTRUMENTS, Texas, USA) を用いて時間周波数解析を行い、音の大きさを示す振幅と音の成分を示す周波数との関係を解析した。

実験 2.1 アクティブ AE 法による歯根象牙質 - レジン接着界面の評価 (図 5,6)

実験 1.2 で使用した「アドヒーシブなし群」と「アドヒーシブあり群」の試料をジグにセットされた 2 つの同機種 AE センサー (AE-900S-WB, NF 回路設計ブロック, 神奈川) の間に挟み、ゴムバンドにて固定した ($n = 7$)。次に、音波信号発生器 (WF1943B, NF 回路設計ブロック, 神奈川) からディスクリミネータと電力増幅器となる高速バイポーラ電源 (HAS 4011, NF 回路設計ブロック, 神奈川) を経由し、一方の AE センサーを加振することで振動波を送り、もう一方の AE センサーで試料を介して得られた振動波をプリアンプによって増幅し、オシロスコープ (DS-5624, IWATSU, 東京) によって計測した。得られたデータの振動特性を評価するため、時間周波数解析を行った。なお、予備実験として無振動時のノイズの振幅が最も小さくなる周波数を求めたところ、50 kHz が適

切であった。したがって、アクティブ AE 法における振動波の周波数はすべて 50 kHz とした。

実験 2 - 2 アクティブ AE 法によるクラウン - 支台歯接着界面の評価

2.2.1 試料作製

エポキシ樹脂製の下顎第一小臼歯の支台歯模型 (A55A-441, ニッシン, 京都) をもとに、スキャナー (inEos X5, Dentsply Sirona, Pennsylvania, USA) で直接支台歯模型をスキャンし、CAD ソフトウェア (inLab MC X5, Dentsply Sirona, Pennsylvania, USA) を用いて CAD/CAM レジン冠をデザインした。次いで、ミリングマシン (CEREC MC XL, Dentsply Sirona, Pennsylvania, USA) にて CAD/CAM レジン冠を作製した。CAD/CAM レジン冠用ブロック (セラスマート, ジーシー, 東京) を用いて冠を 4 装置作製した。

2.2.2 アクティブ AE 法によるクラウン - 支台歯接着界面の評価

本実験はこれまでの実験と異なり、同一試料の時間経過による接着状態を分析した。冠試適時、接着性レジンセメントによる冠装着直後、2 週間後の 3 回の計測を行うことで、補綴装置が外れている状態 (試適時) と接着している状態の経時変化 (冠装着直後、2 週間後) を評価した。作製した CAD/CAM レジン冠をジグにセットし、

頬舌側の最大豊隆部が接触するように 2 つの AE センサーで挟み, ゴムバンドにて固定した. 次に, 実験 2.1 と同様の方法で計測した. 冠内面, 支台歯模型の表面にトゥースプライマー (以下; TP) とセラミックプライマー (以下; CP) の塗布の有無の組み合わせで 4 群を設定した. 接着性レジンセメント (パナビア V5, クラレノリタケデンタル, 東京) にて接着し, LED 照射器を用いて咬合面, 頬舌側, 近遠心側の 5 方向から 20 秒間ずつ光照射を行った. 冠装着直後と 2 週間後に再度アクティブ AE 法で振動波を観察した. アクティブ AE 法で得られたデータの周波数特性を評価するため, システム開発ソフトウェア (LabVIEW, NATIONAL INSTRUMENTS, Texas, USA) により時間周波数解析を行った.

結果

実験 1 歯根象牙質 - レジン接着界面の評価

1.1 μ CT を用いた微小漏洩試験による試料の状態の確認

微小漏洩試験前のアドヒーシブなし群、あり群の μ CT 画像を比較したところ、歯根象牙質 - レジン接着界面における気泡やギャップの様相に違いは認められなかった（図 7）。微小漏洩試験後も μ CT 単純撮影では気泡やギャップの様相に違いは認められなかった（図 8）が、試料に浸透した硝酸銀の閾値を設定した上で三次元描出したところ、アドヒーシブあり群に比べ、アドヒーシブなし群の歯冠側の象牙質 - レジン接着界面において多くの硝酸銀が侵入しているのが確認された（図 9）。

1.2 AE 法による象牙質 - レジン接着界面の非破壊評価

AE 法を用いたジルコニアボール衝突試験の結果、アドヒーシブなし群とあり群のレジン築造体部から歯根象牙質 - レジン接着界面を通って歯根象牙質に伝わった振動波の波形に違いが認められた（図 10）。すなわち、アドヒーシブなし群の波形は約 3 msec 毎に振幅の増減を繰り返しながら徐々に減衰したのに対し、アドヒーシブあり群の波形は最大振幅から滑らかに減衰した。

得られたデータを時間周波数解析した結果、アドヒーシブなし群の試料では、最も大きいピーク周波数は試料により異なり、それ以外にも一試料につき複数のピークが確認された（図 11a）。これに対し、アドヒーシブあり群の試料では振動特性のピークがいずれの試料においても単一（図 11b）となった。

実験 2-1 アクティブ AE 法による歯根象牙質 - レジン接着界面の評価

まず、アドヒーシブなし群とあり群からそれぞれ一試料を選択し、一試料につき連続して 4 回の測定を行った。AE センサーは測定が 1 回終了するごとに試料からはずして、再度セッティングし直し、これを繰り返して測定を行った。

その結果、アクティブ AE 法による測定では、アドヒーシブなし群、あり群とともに、同一試料においては 4 回とも大きいピーク周波数が前者は 2 つ、後者は 1 つという共通した特徴を有する類似した波形が得られ、アクティブ AE 法が良好な再現性を有することが確認された（図 12）。アクティブ AE 法によって得られたデータを時間周波数解析した結果、実験 1 と同様にアドヒーシブなし群では、ピーク周波数は試料によって異なるものの、一試料につき複数確認

された（図 13a）のに対し、アドヒーシブあり群では振動特性のピークがいずれの試料においても 1 峰性を示した（図 13b）。

実験 2-2 アクティブ AE 法によるクラウン - 支台歯接着界面の評価

アクティブ AE 法を用いて冠の試適時および冠装着後（装着直後、2 週間後）の振動特性を計測し、得られたデータを時間周波数解析した結果、それぞれの段階で振動特性に違いが確認された。冠試適時は、低い周波数帯域の小さなピークを除くと、いずれも 2 峰性のピークを示した（図 14a）。冠装着直後は、既に 1 峰性を示した試料（図 14b の試料 3）もあったが、他の試料は依然として 2 峰性あるいは 3 峰性のピークを示した。冠装着 2 週間後は、試料 1 のように弱いピークを複数示す試料もあったが、いずれも 1 峰性のピークを示した（図 14c）。

さらに、時間周波数解析の二次元評価では得られない波形の最初の音が鳴ってから鳴りやむまでの、特に音が減衰していく様子を評価するため、時間周波数解析の結果を三次元描出した。その結果、冠装着から 2 週間後にはほぼ同一のピーク波形を示した試料（試料 2, 3, 4）は三次元描出しても冠試適時、冠装着直後、冠装着 2 週間後において振動特性の山の麓部分が複数から单一へと変化した（図 15a）。さらに、これらと異なる傾向を示した試料 1 においても冠試

適時， 冠装着直後， 冠装着 2 週間後において振動特性の山の麓部分が複数から单一へと変化した（図 15b）. 最終的にすべての試料で冠試適時では振動特性のピークが複数確認され， 冠装着後には時間経過とともに， 単一に変化して行く傾向が確認できた. なお， トウースプライマー， セラミックプライマーの塗布の有無による影響は認められなかった（図 14a,b,c）.

考察

接着界面の状態を評価する手法としては、接着試験による接着強さの測定ならびに電子顕微鏡による界面の形態観察が一般的である。いずれも試料作製時に接着界面を切り出す必要があるため、接着界面に外力が加わり、その構造が変化する可能性がある。また、接着界面が機械的に脆弱な場合、試料体の破壊が生じる問題点もあった[17]。近年、 μ CTによる非破壊評価が様々な分野で広く使用されている[43]。 μ CTは内部構造の情報を得るため、任意の方向に沿ってスライス画像を作成することができるコンピュータ支援三次元再構成システムである。歯科材料の研究では、歯科用接着材の重合収縮の評価[44]、コンポジットレジン修復の内部空隙率の定量化[45]等、接着界面や内部ギャップの存在を含む様々な目的に使用されている[46]。しかし、その分解能には限界があり、サブミクロンレベルでの剥離を検出することはできない[32]。これに対して、本研究で用いたアクティブAE法では評価したところ、 μ CTの単純撮影では違いを検出できなかった接着界面の接着状態の差を振動波の違いとしてとらえることができた。

実験1.1において微小漏洩試験前後の各群の μ CT画像をそれぞれ比較したところ、本実験で使用した μ CTの単純撮影では象牙質—レ

ジン接着界面における気泡やギャップの様相に明らかな違いは認められなかった。しかし、試料に浸透した硝酸銀の閾値を設定した上で三次元描出したところ、アドヒーシブあり群に比べ、アドヒーシブなし群の歯冠側の象牙質-レジン接着界面において多くの硝酸銀が侵入していることが確認できた。これにより、アドヒーシブなし群、アドヒーシブあり群の各試料をAE法による非破壊評価に供する妥当性を示すことができた。 μ CTは非破壊観察として有用であるものの、その解像度には限界があり、現時点では臨床応用は困難である[31]。また、実験機材が大型であることから、口腔内に使用することは不可能である。

本実験で着目したAE法は材料の状態および破壊のメカニズムを評価することができる非破壊試験である[20-24]。固体材料に外力が加わると、弾性域では外力は材料内部にひずみエネルギーとして蓄えられる。その外力が弾性変形域から塑性変形域に入ると、蓄えられていたひずみエネルギーを消費して弾性変形が生じる。弾性変形の限界を超えると、亀裂の生成によりエネルギーが解放される。変形や破壊の過程で大半のひずみエネルギーは消費されるが、残りは音、熱、光、磁気などに変換され、その中にAE波も含まれる。AE波を電気信号(AE信号)に変換する原理は、圧電素子の圧電効果(圧電体に圧力が加わると、それに応じたひずみに比例した電圧が

生じる現象) を利用している。AE 計測システムは、AE 波を AE 信号に変換する AE センサー、微弱な AE 信号を増幅する増幅器(プリアンプ)、AE 解析装置、データを表示、保存するコンピュータやオシロスコープなどから構成される。AE 解析装置には、必要な周波数帯域の信号を取り出すフィルタが内蔵されており、フィルタ処理後に増幅器(メインアンプ)により AE 信号を再度増幅し、信号処理によって各 AE 評価パラメータへと変換される。なお、この AE 信号波形は、正負に電圧が変化する交流信号である[47]ことから、この技術を応用し、外力として振動波を発生することも可能である。これによりアクティブ AE 法が実現され、口腔内で使用できる検査装置の開発を目的として本実験にアクティブ AE 法を活用した。

実験 1.2 では、どの周波数で最も振動しているかを示す振動特性を評価するため、得られた弾性波の最初のピークを分析対象とした。これは、共鳴音による影響を受けていない、その物質固有の振動による純粋な音であり、振動した物質の振動特性を特徴づける要素となる。AE 法を用いたジルコニアボール衝突試験の結果、アドヒーシブなし群とアドヒーシブあり群のレジン築造体部から歯根象牙質 - レジン接着界面を通って歯根象牙質に伝わった振動波の波形に明らかな違いが認められた。時間周波数解析した結果、アドヒーシブなし群のすべての試料で振動特性のピークが複数となり、アドヒー

シブあり群のすべての試料で振動特性のピークが 75 kHz 付近の周波数帯域の広い、弱いピークを除いて单一となった。これは、アドヒーシブなし群では歯根象牙質と支台築造用レジンが接着していないため、複数の物質がそれぞれ振動することにより振動特性のピークが複数になったことを示している。一方、アドヒーシブあり群では歯根象牙質と支台築造用レジンが接着によって 1 つの物質として振動し、振動特性の大きいピークが单一となった。このように、AE 法を用いたジルコニアボール衝突試験では、物質の振動の違いを観察することで、アドヒーシブなし群とアドヒーシブあり群を判別することができた。しかし、本 AE 法は何らかの物理的な外力を再現性良く加える必要があるため、臨床応用することは困難である。さらに、この物理的な外力による刺激は検査対象へ負荷をかけることとなり、接着界面への侵襲に繋がる懸念がある。

このような AE 法の課題を解決するため、一方の AE センサーを信号增幅器によって加振し、もう一方の AE センサーで試料を介した信号をプリアンプによって増幅し、オシロスコープで計測する新規検査法を考案し、「アクティブ AE 法」と命名した。実験 2-1 で得られたデータを時間周波数解析した結果、実験 1 と同様に、振動特性のピークが、アドヒーシブなし群では複数、アドヒーシブあり群では单一となった。また、外力によって生じた弾性波を用いる AE

法を利用して評価した実験 1 と同様の結果を得ることができたことから、アクティブ AE 法は接着界面の状態を評価する手法として妥当であると考えられた。

アクティブ AE 法によるクラウン - 支台歯接着界面の評価では、冠試適時および冠装着後（装着直後、2 週間後）の CAD/CAM レジン冠の接着状態を計測し、得られたデータを時間周波数解析した。その結果、それぞれの段階の振動特性に違いが確認された。振動特性のピークが時間経過に伴い、複数から单一へと次第に変化した。冠試適時、冠装着直後には振動特性のピークが複数存在し、2 週間後には振動特性のピークは单一へと変化した。試料 1（図 14c）では他の試料と異なり、大きな 1 峰性のピークを示したものの、弱いピークを示した周波数帯域も存在した。ここまででは波形の最初の音にのみ注目してきたが、それだけではなく減衰していく音にも注目することで、波形全体の振動特性を把握することとした。

そこで、時間周波数解析の二次元評価では得られない波形の最初の音が鳴ってから鳴りやむまでの減衰していく様子を評価するため、時間周波数解析の結果を三次元描出した。その結果、すべての試料で冠試適時には振動特性のピークが複数確認され、冠装着後には時間経過とともに、单一に変化していくのを確認できた。これまでの時間周波数解析では二次元表記された波形の最初の音の解析、つまり

り，被験体の振動特性の特徴を捉えているだけであった。しかし，時間周波数解析した結果を三次元描出することで，波形全体の周波数分布を立体的に表現することができた。三次元描出した際には，複数の山が重なり合っている状態で表記されるが，これまでの二次元の時間周波数解析の結果とは異なり，ピークではなく一つのピークが形成された山の麓部分となる低い振幅帯域が单一となっているか否かで，一個体が振動しているか複数の個体が振動しているかを判断することができた。本実験で得られた試料 1 の時間周波数解析の三次元描出結果では，2 週間後の測定で示される振動特性の山の麓部分は試料 2 と同様に单一であり，ピークが複数存在する状態はその物質の強い共鳴音によって生じたものと推察された。

実験 2-2 においては，支台歯に歯面処理材であるトゥースプライマー，CAD/CAM レジン冠内面にシラン処理材であるセラミックプライマープラスを用いる群と用いない群を評価した。しかしながら，その有無による影響は認められなかった。本実験では支台歯の材質を均等にすることを目的にエポキシ樹脂製の人工歯を用いたため，歯質とは異なりプライマーは確実な接着を獲得するために必要ではなかったためと考えられる。また，CAD/CAM レジン冠用のレジンブロックに対して，シラン処理材を用いなくても 20~40 MPa 程度の接着強さが得られることが報告されている[48]。したがって支台

歯-接着性レジンセメント界面においても接着性レジンセメント-冠の二つの界面においても一個体として振動していることが示唆された。なお、本実験では補綴装置と支台歯の接着界面に焦点を当てるため、均質な試料を用いる必要があった。そこで、あえて抜去歯を用い、規格化された支台歯形態を有するエポキシ製の支台歯を用いることによって試料の個体差をなくした。しかしながら、抜去歯を用いなかったことは本研究の limitation と言える。また、実際の臨床では単冠ばかりではなく、連結冠であったり、ブリッジであったり、その補綴様式は多様である。接着状態も不良となった部分が小さいものから大きいものまで様々であることは容易に想像される。このような条件の違いにより時間周波数解析結果がどのように変化するかは未知の部分であり、今後の研究により解明を進める必要がある。また、同一試料、同一測定法を用いた場合でも、測定した振動波形の振幅の大きさが、特にアクティブ AE 法を用いた冠試適時に、大きい違いが生じた。これは、AE センサーをセットする際に用いるシリコーングリースの量の差、AE センサーの試料への接触の仕方の違い、冠試適時という冠と支台歯がまったく接着していない状態であったこと等の様々な実験条件の差によって生じたと推察された。今後も研究を重ねて、このような振動波形測定時の振幅に大きい差が出ないように測定条件を規格化していく必要がある。

本研究により AE センサーを用いて接着界面の状態を評価できることが明らかとなった。さらに、アクティブ AE 法は補綴装置と支台歯の接着界面を非破壊評価する手法としてより有用であることが示された。今後は本基礎的研究結果をベースに装置の小型化が実現できれば、ピンセットのようなプローブを歯冠部に接触させるだけで、補綴装置と歯質の界面の接着状態に問題がないかを検査できる装置の開発へつなげることが期待できる。また、実際の口腔内に存在する補綴装置を追跡調査することによりデータベースを構築し、さらに人工知能学習を利用することで、補綴装置の接着から脱離に至る規則性を見出し、脱離、脱落が生じる前に再製を行う判断基準を確立することができると考えている。

結論

アクティブ AE 法は、歯根象牙質と支台築造用レジン、補綴装置と支台歯の接着状態の違い、さらにその経時変化を口腔内にて観察する装置に応用する基本技術として有用である。

謝辞

稿を結ぶにあたり，御懇切なる御指導，御校閲を賜りました大阪大学大学院歯学研究科顎口腔機能再建学講座クラウンブリッジ補綴学分野矢谷博文教授に深甚なる謝意を表します。研究の遂行に際し終始御指導，御鞭撻を賜りました大阪大学大学院歯学研究科顎口腔機能再建学講座クラウンブリッジ補綴学分野峯 篤史助教に深謝いたします。

また，実験遂行において多大な御教示，御示唆を頂いた東北大学大学院工学研究科工学部先端材料強度科学研究センターワークス次世代エネルギー・システム研究部門地殻システム研究分野橋田俊之教授，東北大学大学院工学研究科工学部先端材料強度科学研究センターワークス次世代エネルギー・システム研究部門エネルギー循環システム研究分野佐藤一永准教授，東北大学大学院工学研究科工学部先端材料強度科学研究センターワークスエネルギー・システム研究部門エネルギー循環システム研究分野産学官連携研究員坂本 正様，大阪大学産業科学研究所第1研究部門知能アーキテクチャ研究分野福井健一准教授に謹んで感謝の意を表します。

さらに、本研究に種々の御配慮、御援助、御助言を頂いた大阪大学大学院歯学研究科クラウンブリッジ補綴学分野の諸先生方に厚く御礼申し上げます。

文献

1. Nakajima M, Sano H, Burrow MF, Tagami J, Yoshiyama M, Ebisu S, Ciucchi B, Russell CM, Pashley DH. Tensile bond strength and SEM evaluation of caries-affected dentin using dentin adhesives. *J Dent Res* 1995;74:1679-88.
2. Nakajima M, Sano H, Zheng L, Tagami J, Pashley DH. Effect of moist vs. dry bonding to normal vs. caries-affected dentin with scotchbond multi-purpose plus. *J Dent Res* 1999;78:1298-303.
3. Nakajima M, Ogata M, Okuda M, Tagami J, Sano H, Pashley DH. Bonding to caries affected dentin using self-etching primers. *Amer J Dent* 1999;12:309-14.
4. Nakajima M, Sano H, Urabe I, Tagami J, Pashley DH. Bond strengths of single-bottle dentin adhesives to caries-affected dentin. *Oper Dent* 2000;25:2-10.
5. Yoshiyama M, Tay FR, Doi J, Nishitani Y, Yamada T, Itou K, Carvalho RM, Nakajima M, Pashley DH. Bonding of self-etch and total-etch adhesives to carious dentin. *J Dent Res* 2002;81:556-60.
6. Hashimoto M, Ito S, Tay FR, Svizer NR, Sano H, Kaga M, Pashley DH. Fluid Movement across the resin-dentin interface during and after bonding. *J Dent Res* 2004;83:843-8.
7. Tay FR, Pashley DH. Water treeing – A potential mechanism for degradation of dentin adhesives. *Amer J Dent* 2003;16:6-12.
8. Tay FR, Pashley DH. Have dentin adhesive become too hydrophilic? *J Can Dent Assoc* 2003;69:726-31.
9. Nishitani Y, Yoshiyama M, Wadgaonkar B, Breschi L, Mannello F, Mazzoni A, Carvalho RM, Tjäderhane L, Tay FR,

- Pashley DH. Activation of gelatinolytic/collagenolytic activity in dentin by self-etching adhesives. *Eur J Oral Sci* 2006;114:160-6.
10. Watts DC, Alnazzawi A. Temperature-dependent polymerization shrinkage stress kinetics of resin-composites. *Dent Mater* 2014;30:654-60.
11. Rodrigues FP, Lima RG, Muench A, Watts DC, Ballester RY. A method for calculating the compliance of bonded-interfaces under shrinkage: validation for Class I cavities. *Dent Mater* 2014;30:936-44.
12. Breschi L, Mazzoni A, Ruggeri A, Cadenaro M, Di Lenarda R, De Stefano Dorigo E. Dental adhesion review: Aging and stability of the bonded interface. *Dent Mater* 2008;24:90-101.
13. De Munck J, Van Landuyt K, Peumans M, Poitevin A, Lambrechts P, Braem M, Van Meerbeek B. A critical review of the durability of adhesion to tooth tissue: methods and results. *J Dent Res* 2005;84:118-32.
14. De Munck J, Van Meerbeek B, Van Landuyt K, Lambrechts P. Influence of a shock absorbing layer on the fatigueresistance of a dentin-biomaterial interface. *Eur J Oral Sci* 2005;113:1-6.
15. De Munck J, Van Meerbeek B, Wevers M, Lambrechts P, Braem M. Micro-rotary fatigue of tooth-biomaterial interfaces. *Biomaterials* 2005;26:1145-53.
16. Sumi Y. The development of a dental optical coherence tomography system and its clinical application to the diagnosis of oral diseases. *J Jpn Soc Laser Dent* 2012; 23:137-41.
17. Minamino T, Mine A, Matsumoto M, Sugawa Y, Kabetani T, Higashi M, Kawaguchi A, Ohmi M, Awazu K, Yatani H.

Nondestructive observation of teeth post core-space using optical coherence tomography: comparison with microcomputed tomography and live images. *J Biomed Opt* 2015;20:107001

18. 羽田野 甫. アコースティックエミッショントその応用. 精密機械 1984;50:441-7.
19. 富士 岳. アコースティック・エミッショント. 日本舶用機関学会誌 1974;9:242-53.
20. Muravin G, Lezvinsky L, Muravin B. Acoustic emission diagnostics of reinforced concrete bridges condition. *Prog Acoust Emission* 1998;9:89-98.
21. Yuyama S, Okamoto T, Shigeishi M, Ohtsu M. Quantitative evaluation and visualization of cracking process in reinforced concrete by a moment tensor analysis of acoustic emission. *Mater Eval* 1994;53:751-6.
22. Kim KB, Yoon DJ, Jeong JC, Park P, Lee SS. Analysis of correlation between AE parameters and stress intensity factor using principal component regression and artificial neural network. *J Korean Soc Nondestruct Test* 2001;21:80-90.
23. Kwon IB, Kim ZG, Kim CG, Hong CS. Simultaneous sensing of the strain and the matrix cracking failure of a composite beam using an embedded fiber optic Michelson sensor. *J Korean Soc Compos Mater* 1996;9:74-84.
24. Cherfaoui M, Herve C. Acoustic emission for the evaluation of integrity for pressure vessel. *Prog Acoust Emission* 1998;9:45-9.
25. Choi N, Takahashi K, Hoshino K. Characteristics of acoustic emission during the damage process in notched

short-fiber-reinforced thermoplastics. NDT E Int 1992;25:271-8.

26. Choi N, Takahashi K. Characterization of the damage process in short fibre/thermoplastic composites by acoustic emission. *J Mater Sci* 1998;33:2357-63.
27. Choi N, Kim Y, Kim T, Rhee K. Detection of microfracture processes in composite laminates by thermo-acoustic emission. *J Mater Sci* 2003;38:1013-9.
28. Woo S, Choi N. Analysis of fracture process in single-edge-notched laminated composites based on the high amplitude acoustic emission events. *Comput Sci Technol* 2007;67:1451-8.
29. Woo S, Choi N, Cho N. Characterization of the fracture process of notched glass fiber/aluminum hybrid laminates by acoustic emission. *Comput Sci Technol* 2008;68:1521-30.
30. Van Ende A, Lise DP, De Munck J, Vanhulst J, Wevers M, Van Meerbeek B. Strain development in bulk-filled cavities of different depths characterized using a non-destructive acoustic emission approach. *Dent Mater* 2017;33:165-77.
31. Cho NY, Ferracane JL, Lee IB. Acoustic emission analysis of tooth-composite interfacial debonding. *J Dent Res* 2013;92:76-81.
32. Li H, Li J, Yun X, Liu X, Fok AS-L. Non-destructive examination of interfacial debonding using acoustic emission. *Dent Mater* 2011;27:964-71.
33. Alander P, Lassila LV, Tezvergil A, Vallittu PK. Acoustic emission analysis of fiber-reinforced composite in flexural testing. *Dent Mater* 2004;20:305-12.

34. Carvelli V, D’Ettorre A, Lomov SV. Acoustic emission and damage mode correlation in textile reinforced PPS composites. *Compos Struct* 2007;163:399-409.
35. Choi NS, Gu JU, Arakawa K. Acoustic emission characterization of the marginal disintegration of dental composite restoration. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2011;42:604-11.
36. Carrera CA, Chen YC, Li Y, Rudney J, Aparicio C, Fok A. Dentin-composite bond strength measurement using the Brazilian disk test. *J Dent* 2016;52:37-44.
37. Lin CL, Kuo WC, Yu JJ, Huang SF. Examination of ceramic restorative material interfacial debonding using acoustic emission and optical coherence tomography. *Dent Mater* 2013;29:382-8.
38. Lin CL, Kuo WC, Chang YH, Yu JJ, Lin YC. Examination of ceramic/enamel interfacial debonding using acoustic emission and optical coherence tomography. *Dent Mater* 2014;30:910-6.
39. Skalskyia V, Makeevb V, Stankevycha O, Pavlychko R. Features of fracture of prosthetic tooth-endocrown constructions by means of acoustic emission analysis. *Dent Mater* 2018;34:46-55.
40. Chlup Z, Žižka R, Kania J, Přibyl M. Fracture behaviour of teeth with conventional and mini-invasive access cavity designs. *J Eur Ceram Soc* 2017;37:4423-9.
41. Ereifej NS, Oweis YG, Altarawneh SK. Fracture of fiber-reinforced composites analyzed via acoustic emission. *Dent Mater J* 2015;34:417-24.
42. Ereifej N, Silikas N, Watts DC. Initial versus final fracture of metal-free crowns, analyzed via acoustic emission. *Dent Mater* 2008;24:1289-95.

43. Santis R De, Mollica F, Prisco D, Rengo S, Ambrosio L, Nicolais L. A 3D analysis of mechanically stressed dentin–adhesive–composite interfaces using X-ray micro-CT. *Biomaterials* 2005;26:257–70.
44. Sun J, Eidelman N, Lin-Gibson S. 3D mapping of polymerization shrinkage using X-ray micro-computed tomography to predict microleakage. *Dent Mater* 2009;25:314–20.
45. Kakaboura A, Rahiotis C, Watts D, Silikas N, Eliades G, 3D-marginal adaptation versus setting shrinkage in light-cured microhybrid resin composites. *Dent Mater* 2007;23:272–8.
46. Neves Aline A, Jaecques S, Van Ende A, Vivan Cardoso M, Coutinho E, Lührs Anne-Katrin, Zicari F, Van Meerbeek B. 3D-microleakage assessment of adhesive interfaces: Exploratory findings by μ CT. *Dent Mater* 2014;30:799–807.
47. 長谷亜蘭：アコースティックエミッション計測の基礎. 精密工学会誌 2012;78:856–61.
48. Higashi M, Matsumoto M, Kawaguchi A, Miura J, Minamino T, Kabetani T, Takeshige F, Mine A, Yatani H. Bonding effectiveness of self-adhesive and conventional-type adhesive resin cements to CAD/CAM resin blocks. Part 1:Effects of sandblasting and silanization. *Dent Mater J* 2016;35:21–8.

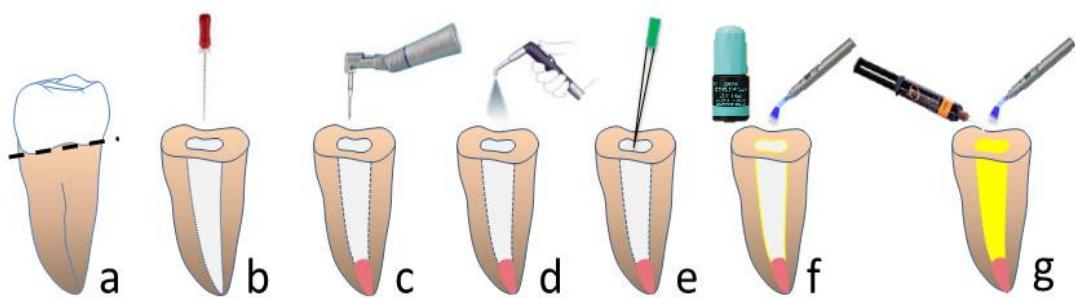


図 1 試料作製方法

a : 歯冠部象牙質除去

b : 根管拡大および根管充填

c : ポスト孔形成

d : 根管洗浄

e : 根管乾燥

f : 光重合型ボンディング材の塗布および光照射

g : ポスト孔内に支台築造用レジン填入および光照射

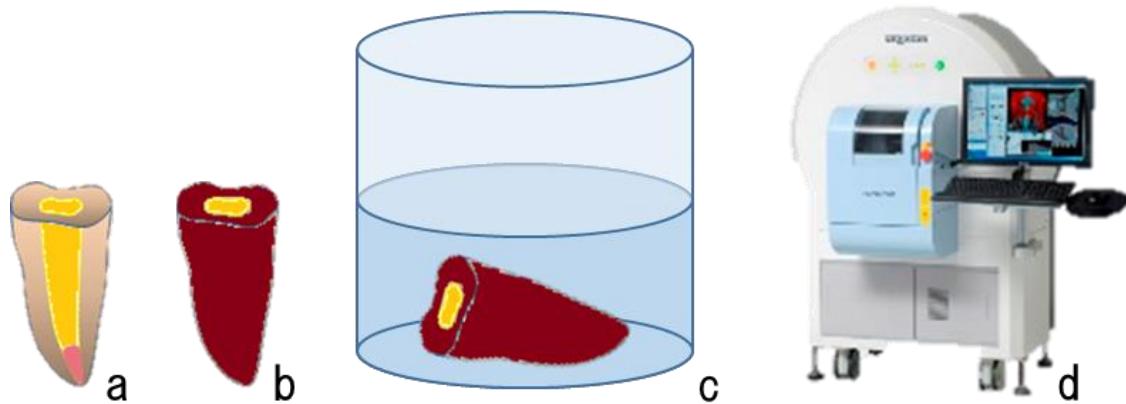


図 2 試料作製方法と微小漏洩試験方法

- a : 微小漏洩試験前に μ CT 単純撮影
- b : 象牙質 - レジン界面から 1 mm 外側と歯根外表面にネイルバーニッシュを塗布し, 界面以外の部分をコーティング
- c : ネイルバーニッシュ乾燥後, 50% 硝酸銀水溶液に 24 時間浸漬
- d : 微小漏洩試験後に μ CT 単純撮影

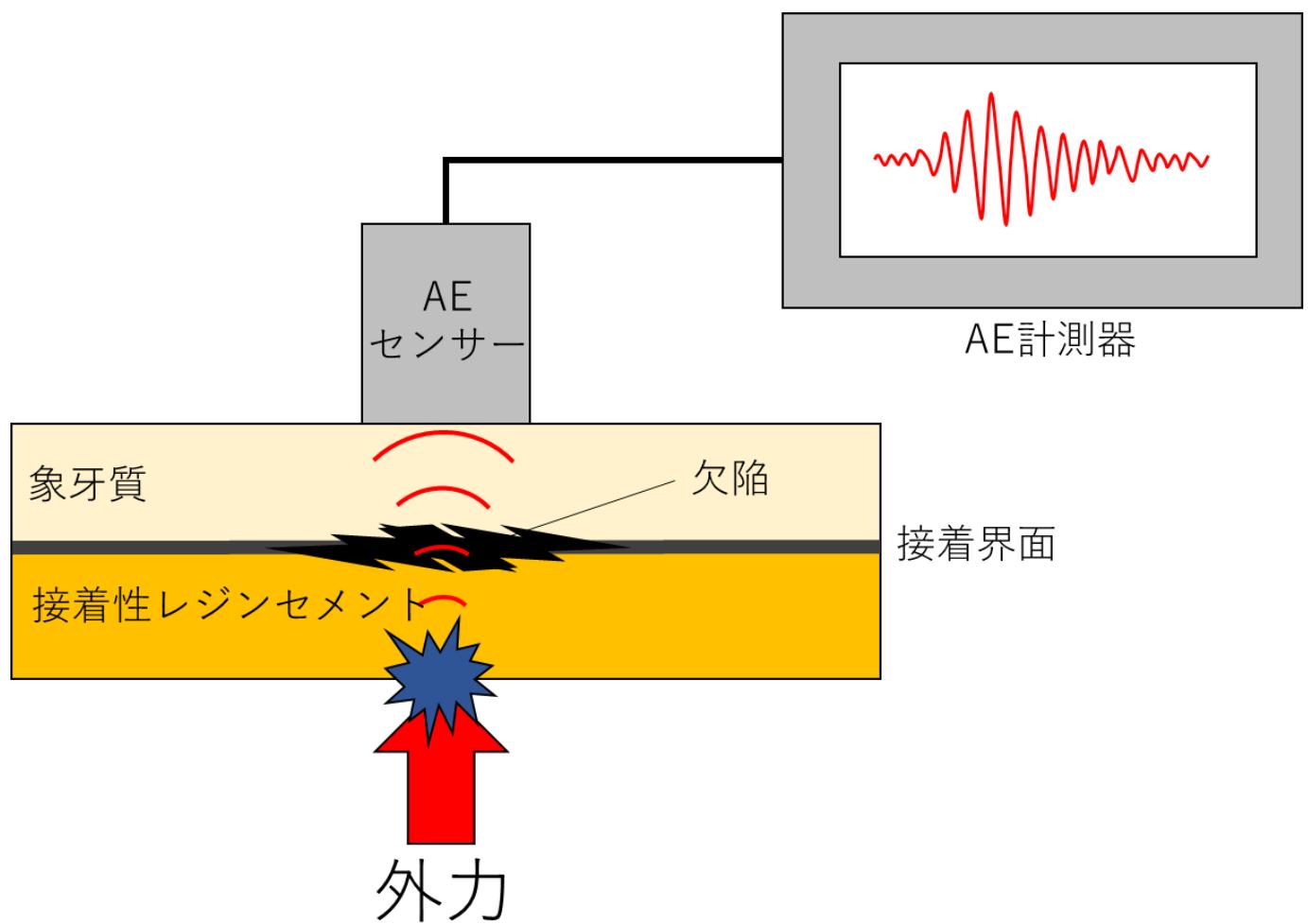


図 3 従来型 AE 法の原理

試料に外力を加えることで、生じた衝撃とともに振動波が発生する。試料内部に欠陥が存在する場所で伝播した振動波が変化し、その振動波を AE センサーで検知する。その振動波の違いで内部欠陥の存在を確認する手法である。

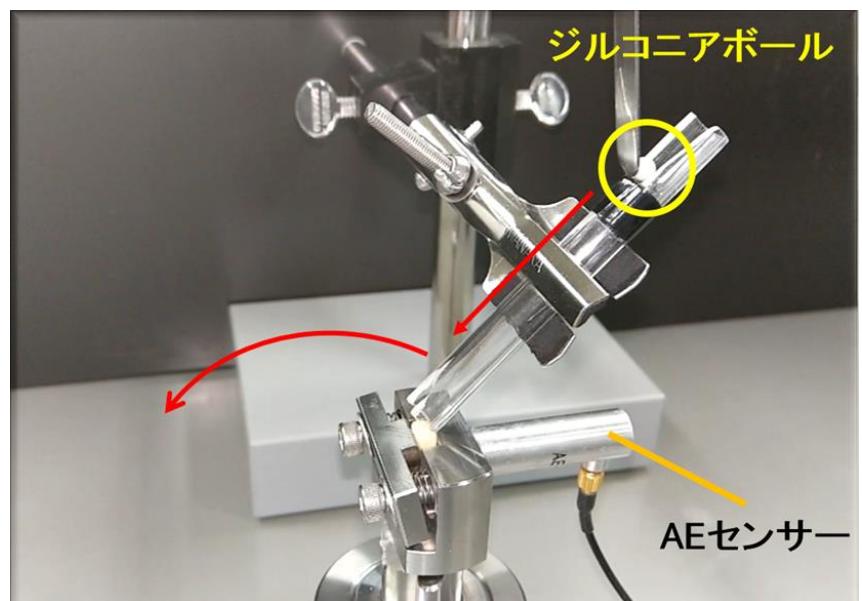
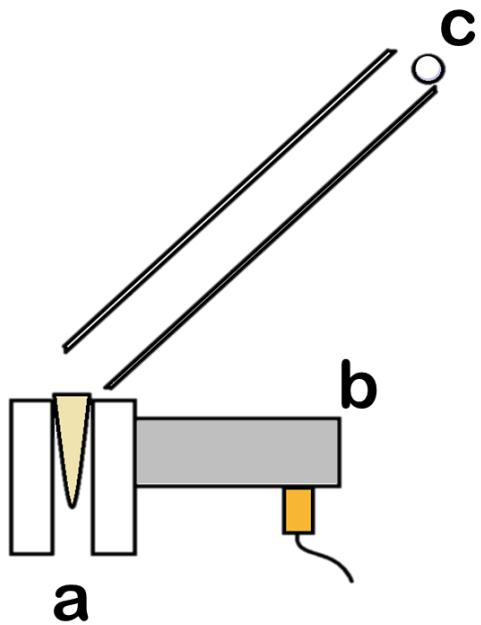


図 4 ジルコニアボール衝突試験 (左: イラスト, 右: 実際の写真)

a: 試料, b: AE センサー, c: ジルコニアボール

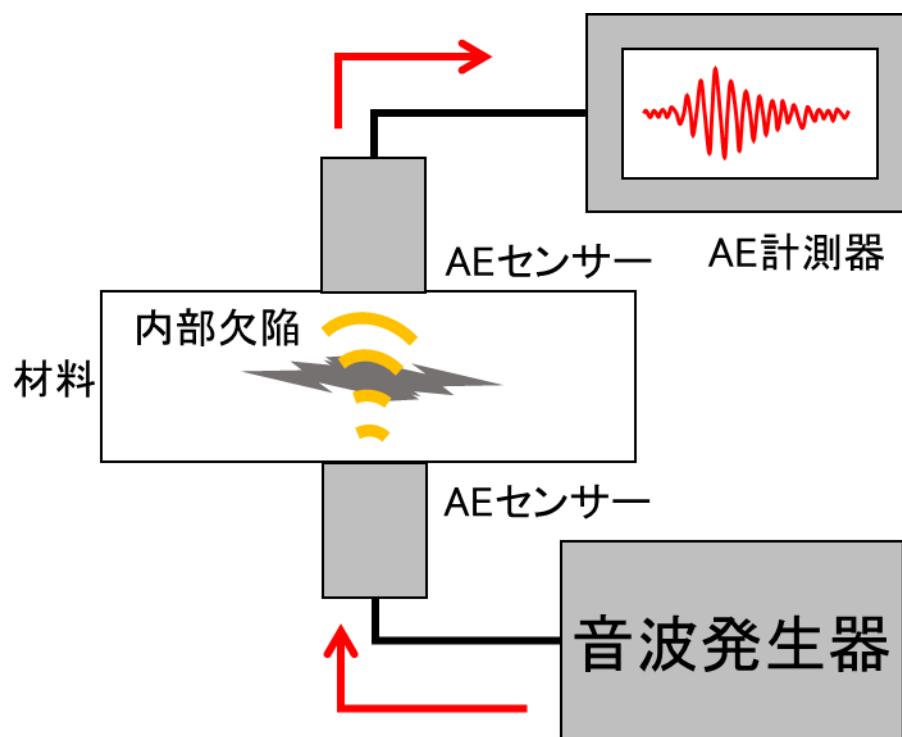


図 5 新規評価法(アクティブ AE 法)の原理

音波発生器によって振動波を加振した AE センサーから振動波を発生させ、材料を介することで変化した振動波を従来型 AE 法としての AE センサーで検知し、AE 計測器にて記録する。

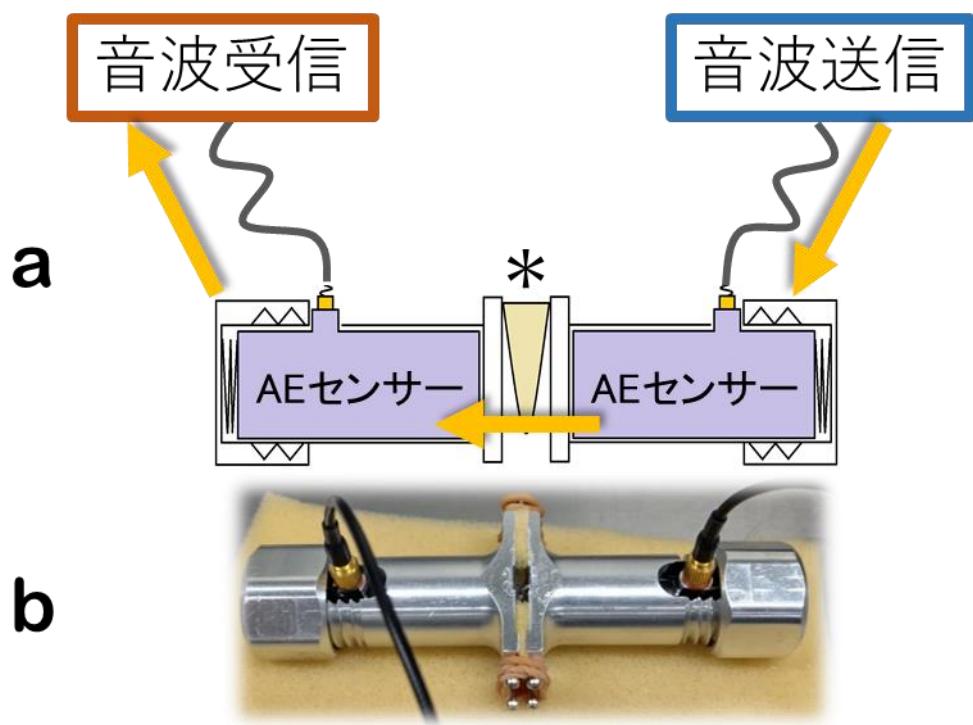


図 6 アクティブ AE 法の模式図

a:振動波の伝播方向を示す

右のセンサーから試料を介して、左のセンサーへと振動波が伝播する。

b:実際の実験装置の写真

*:試料

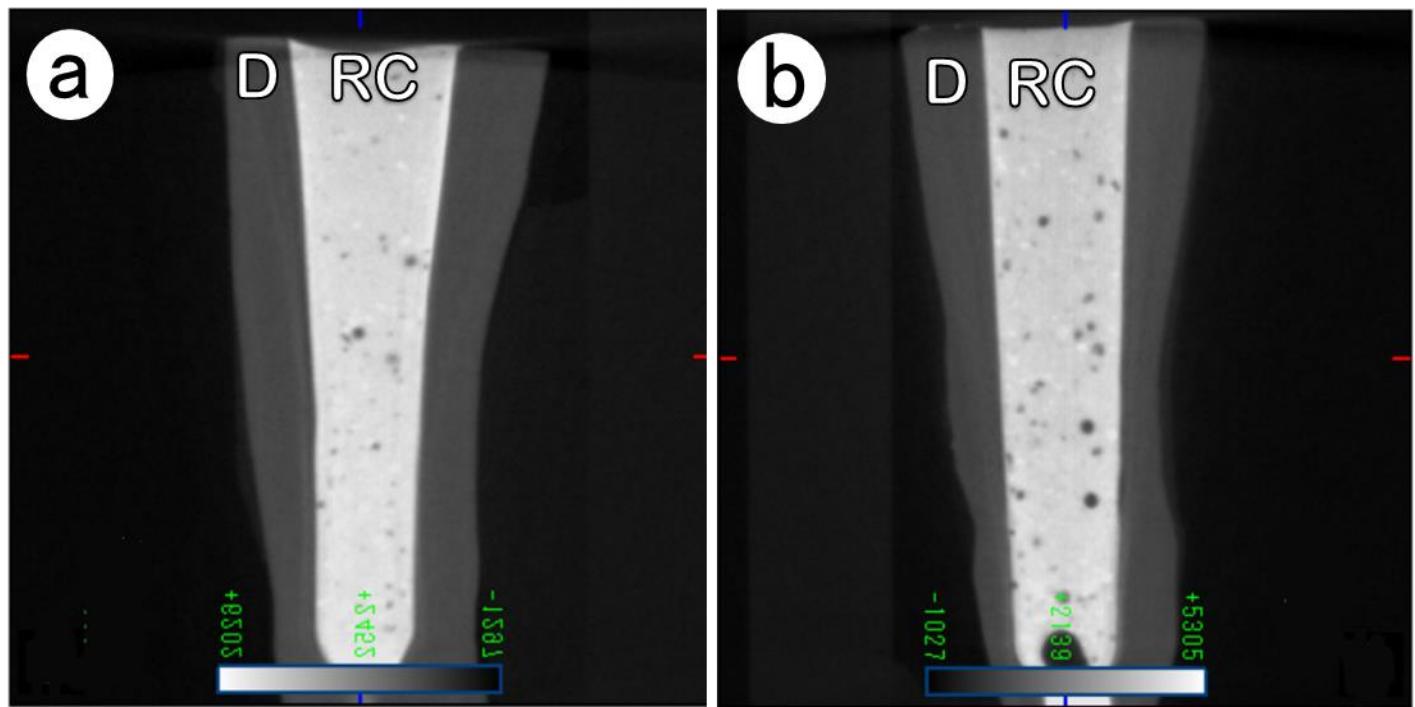


図 7 微小漏洩試験前の μ CT 単純撮影画像
a : アドヒーシブなし群
b : アドヒーシブあり群
D : 象牙質, RC : 支台築造用レジン.

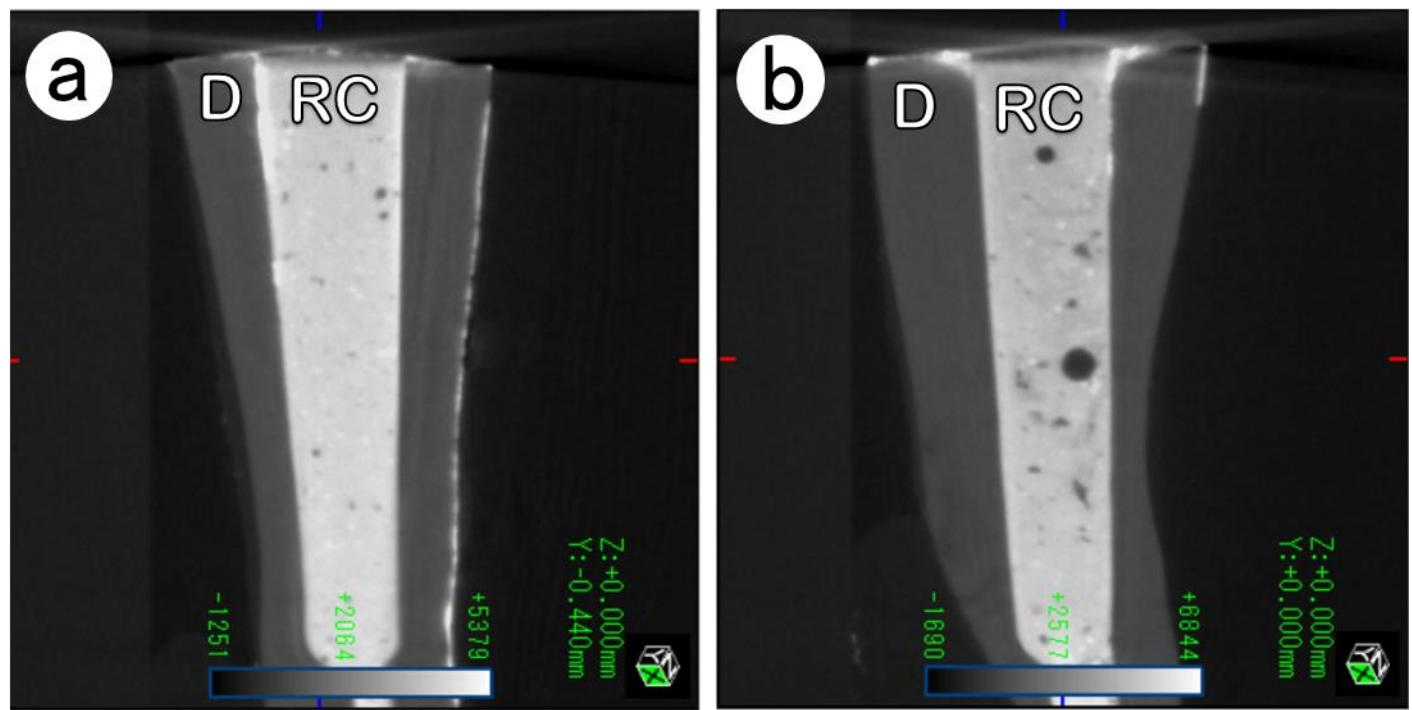


図 8 微小漏洩試験後の μ CT 単純撮影画像

a : アドヒーシブなし群
 b : アドヒーシブあり群
 D : 象牙質, RC : 支台築造用レジン.

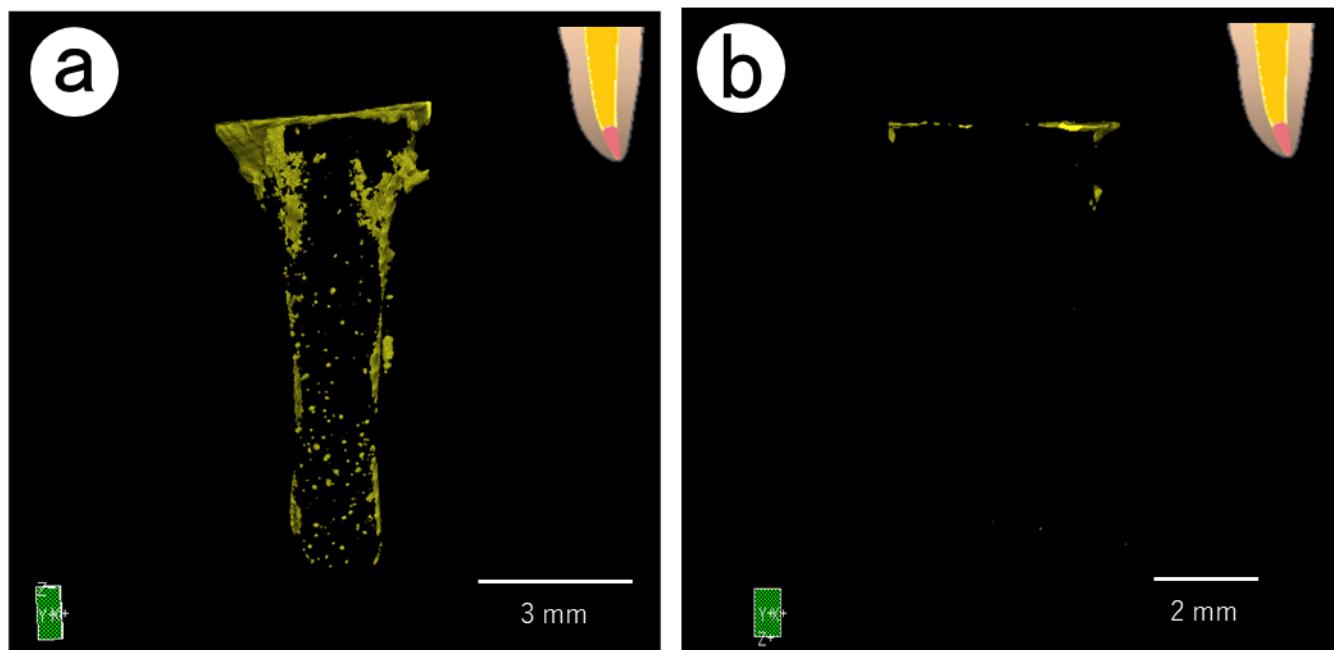


図 9 硝酸銀の三次元描出画像

a:アドヒーシブなし群

b:アドヒーシブあり群

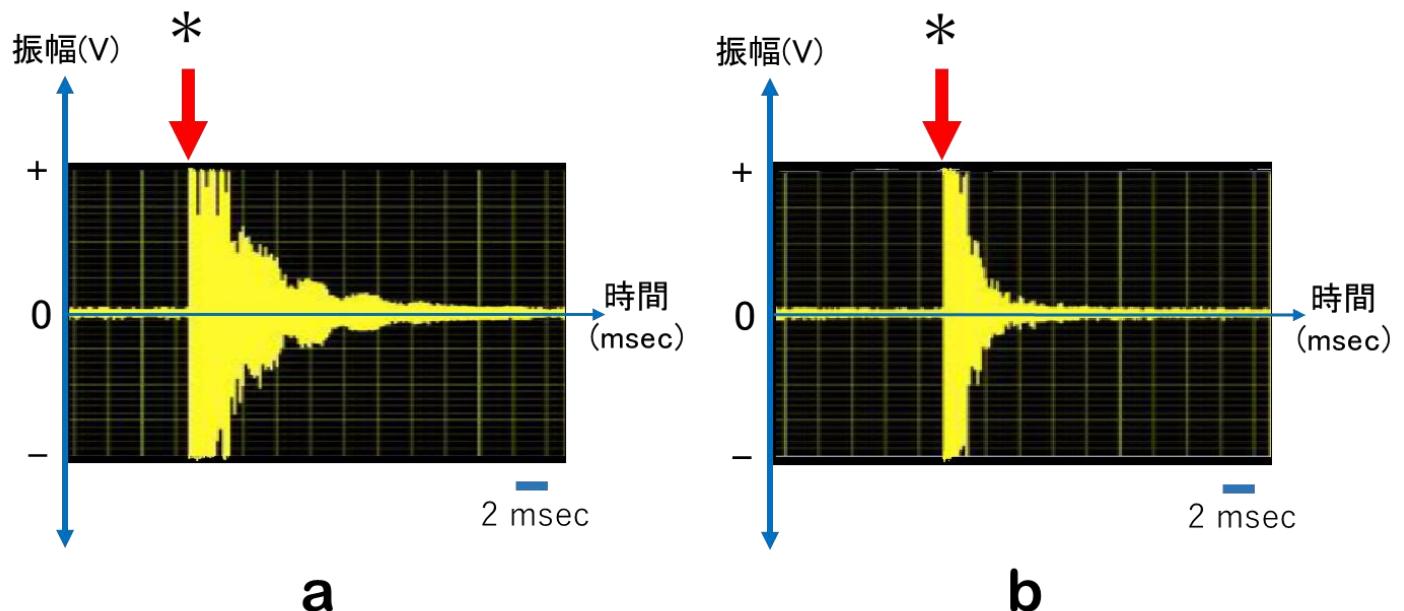


図 10 AE 法を用いたジルコニアボール衝突試験によって得られた振動波形

a:アドヒーシブなし群

b:アドヒーシブあり群

*:振動波(衝突音)の開始点

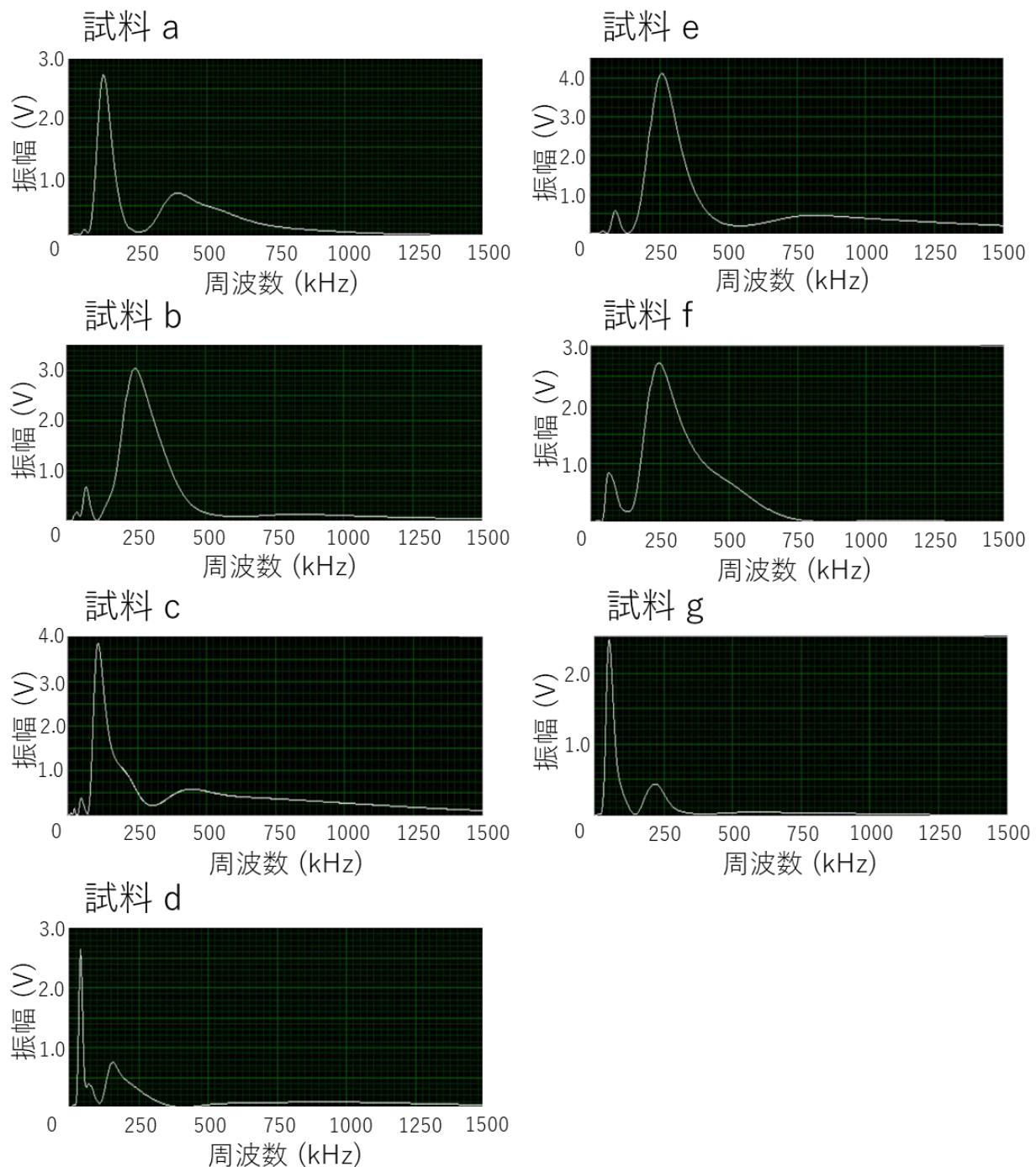


図 11a AE 法を用いたジルコニアボール衝突試験の時間周波数解析の結果 (アドヒーシブなし群)

$n=7$

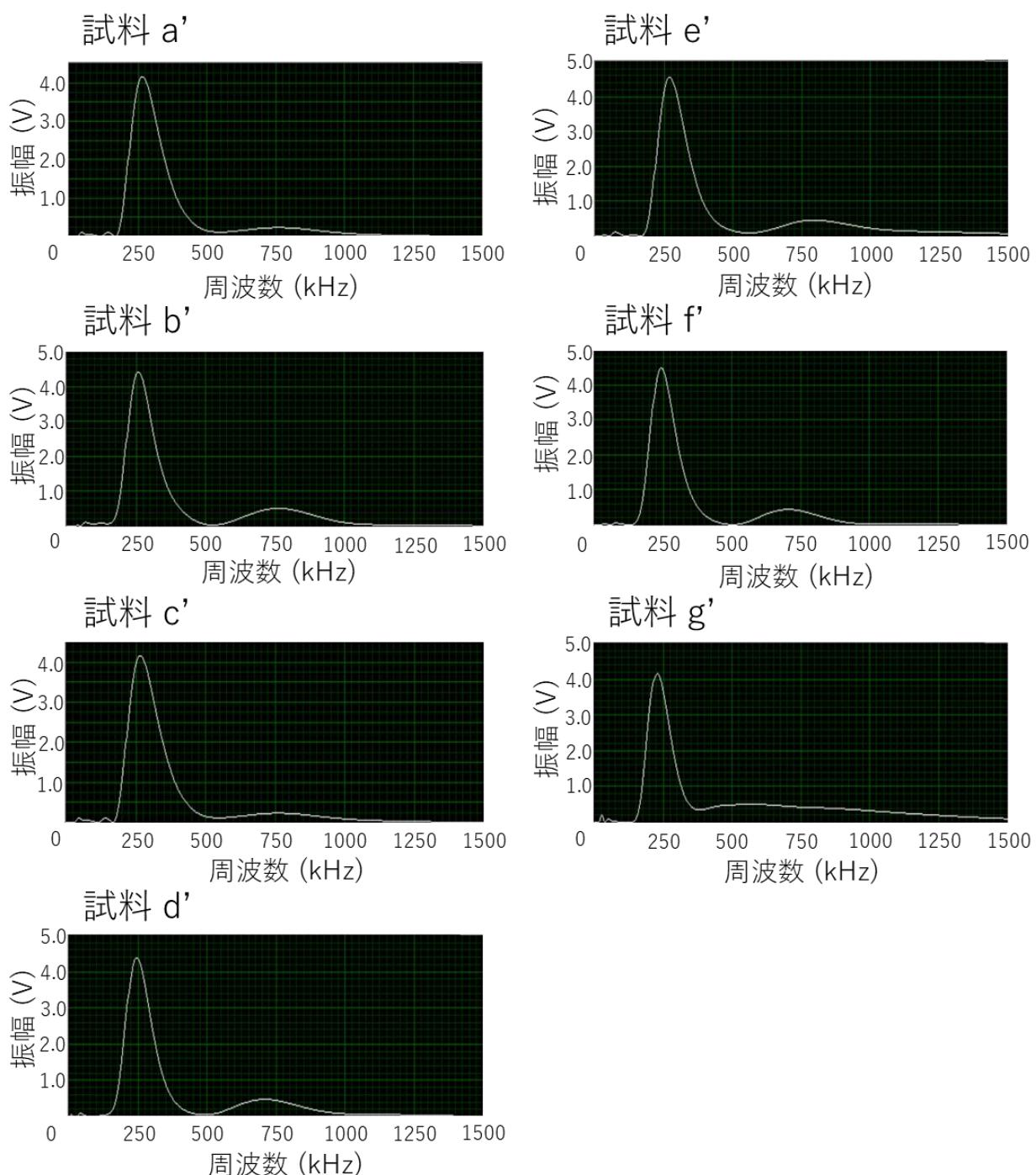


図 11b AE 法を用いたジルコニアボール衝突試験の時間周波数
解析の結果 (アドヒーシブあり群)

$n=7$

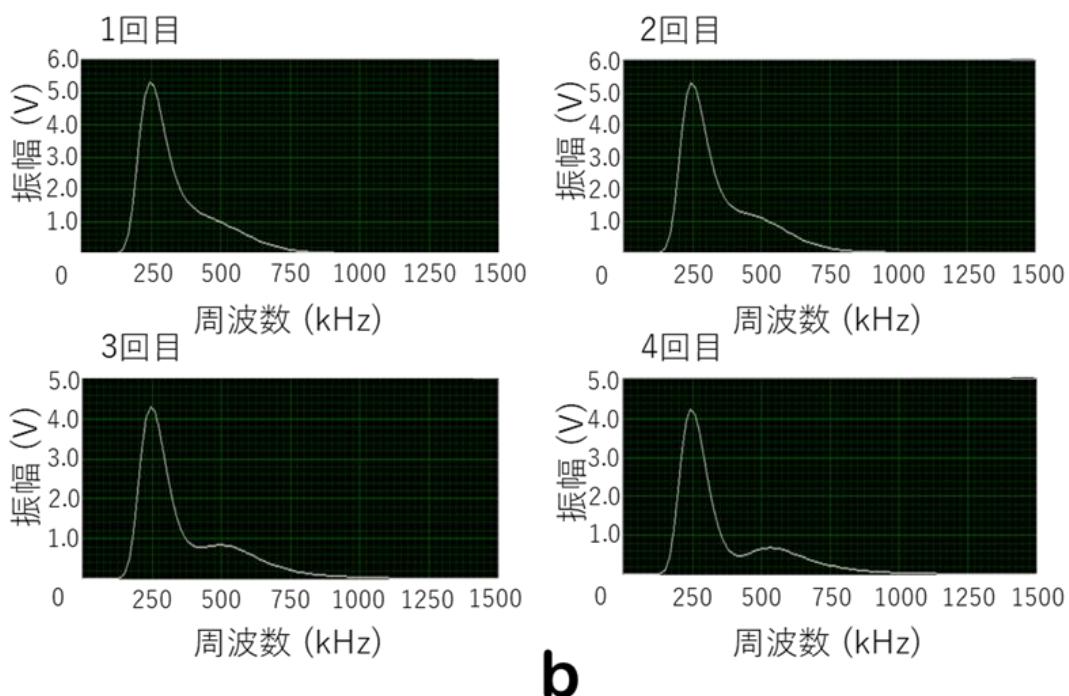
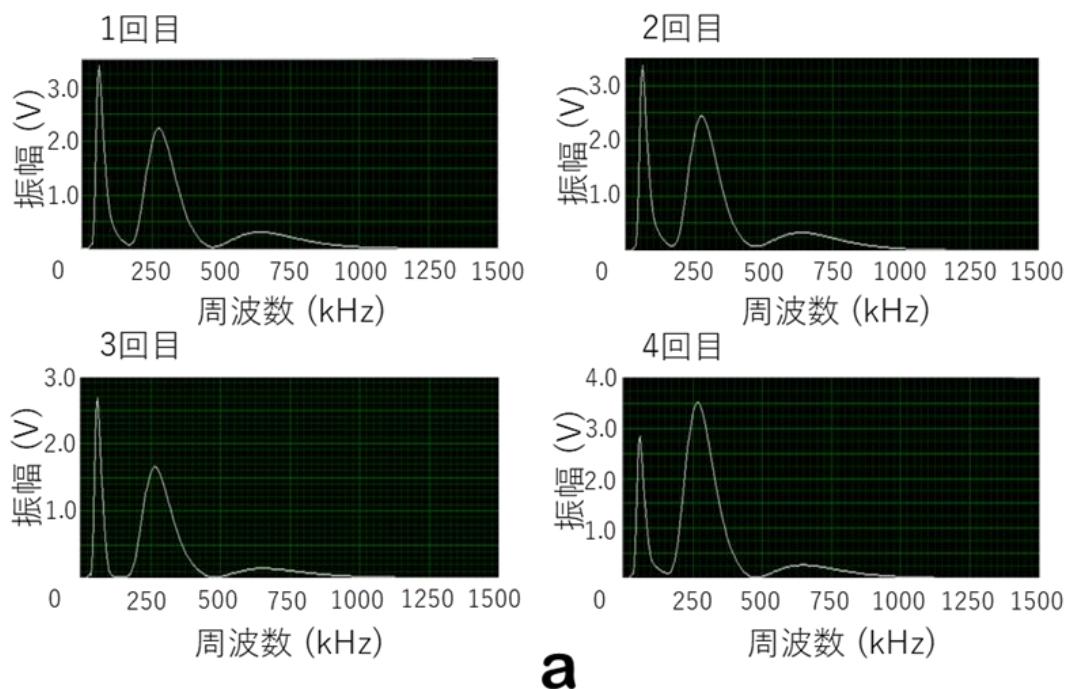


図 12 アクティブ AE 法による同一試料における 4 回測定時の解析結果

a:アドヒーシブなし群

b:アドヒーシブあり群

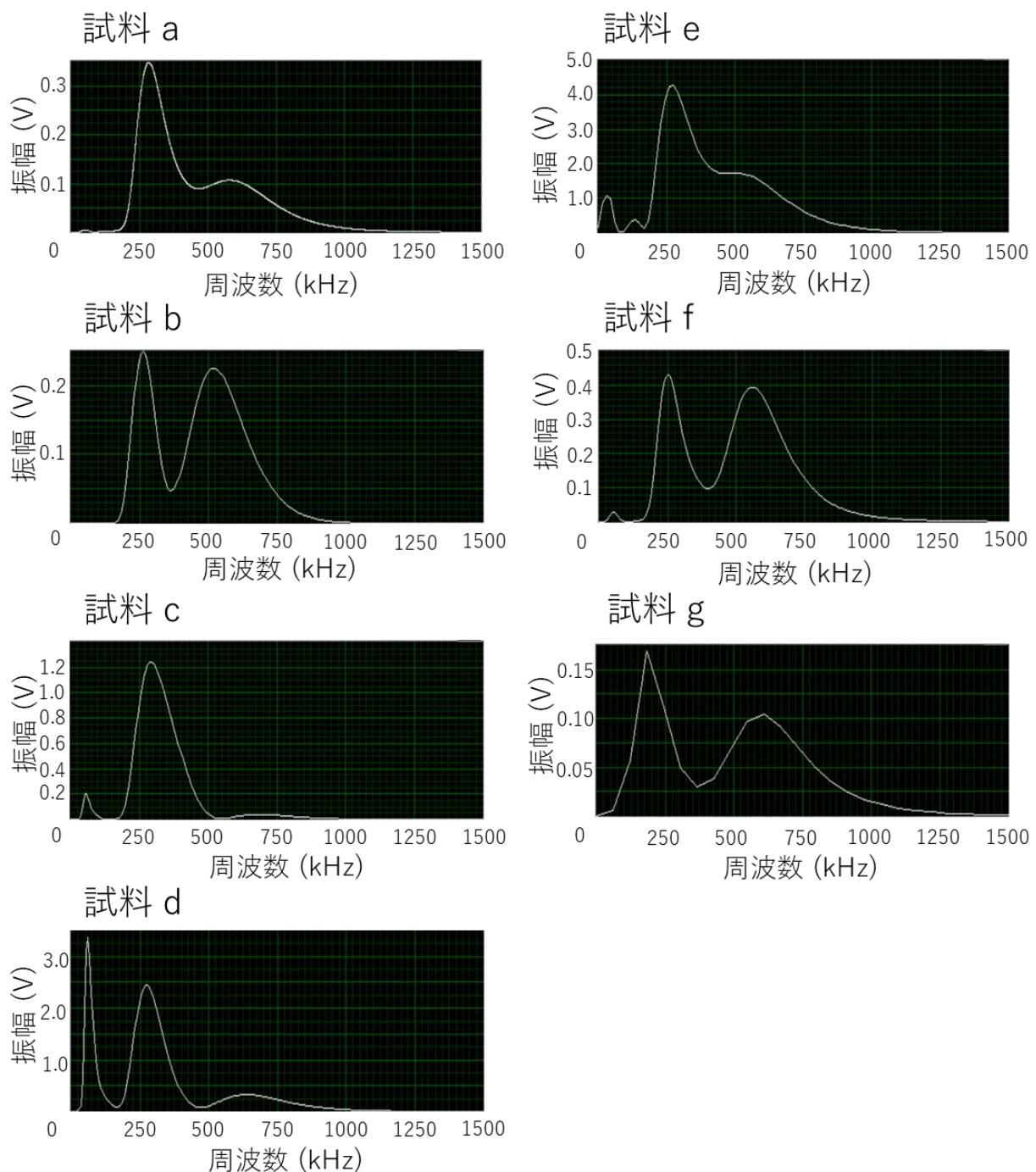


図 13a アクティブ AE 法による歯根象牙質 - レジン接着界面の評価 (アドヒーシブなし群)

$n=7$

試料は図 11a と同じものを使用

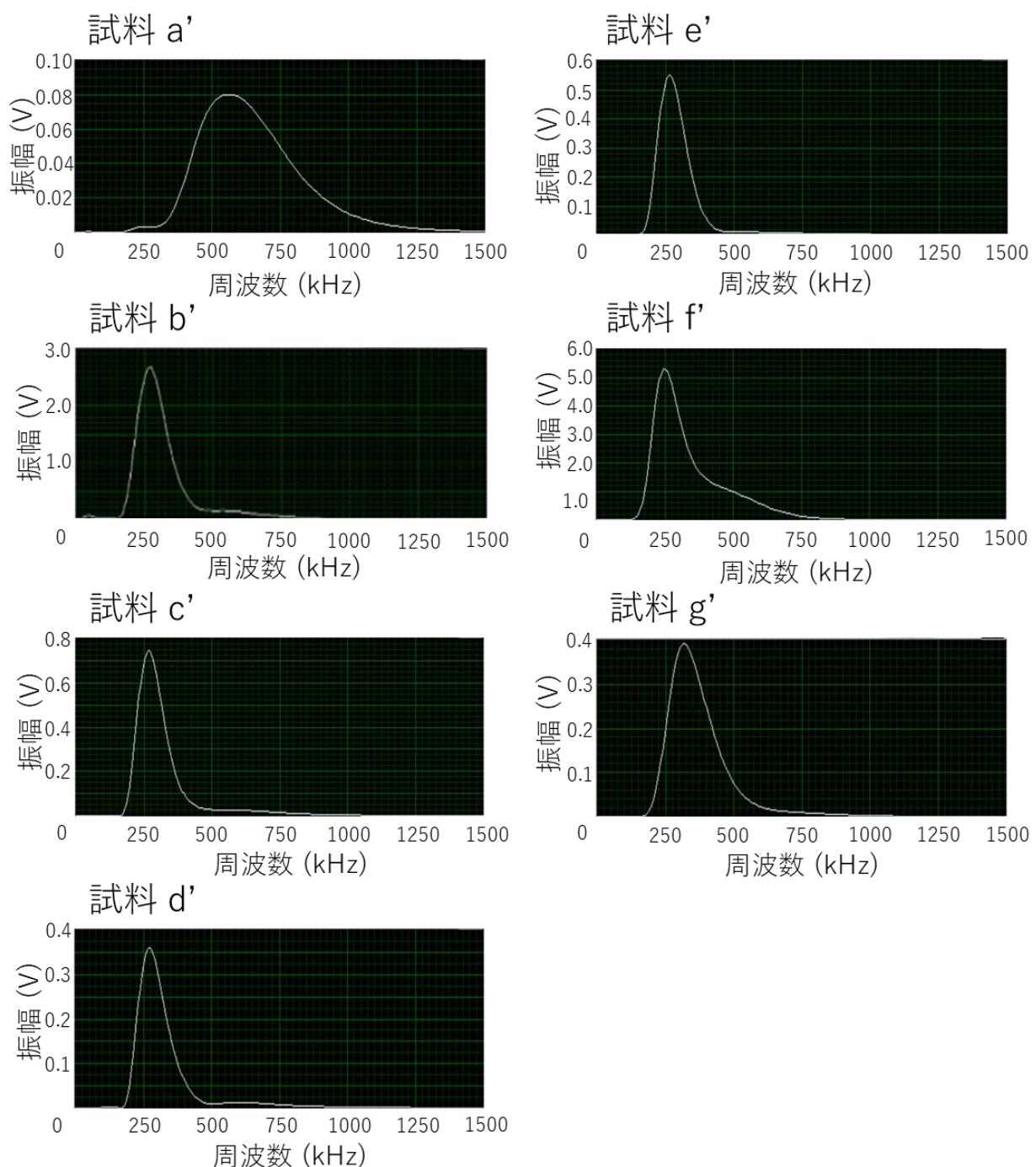


図 13b アクティブ AE 法による歯根象牙質-レジン接着界面の評価 (アドヒーシブあり群)

$n=7$

試料は図 11b と同じものを使用

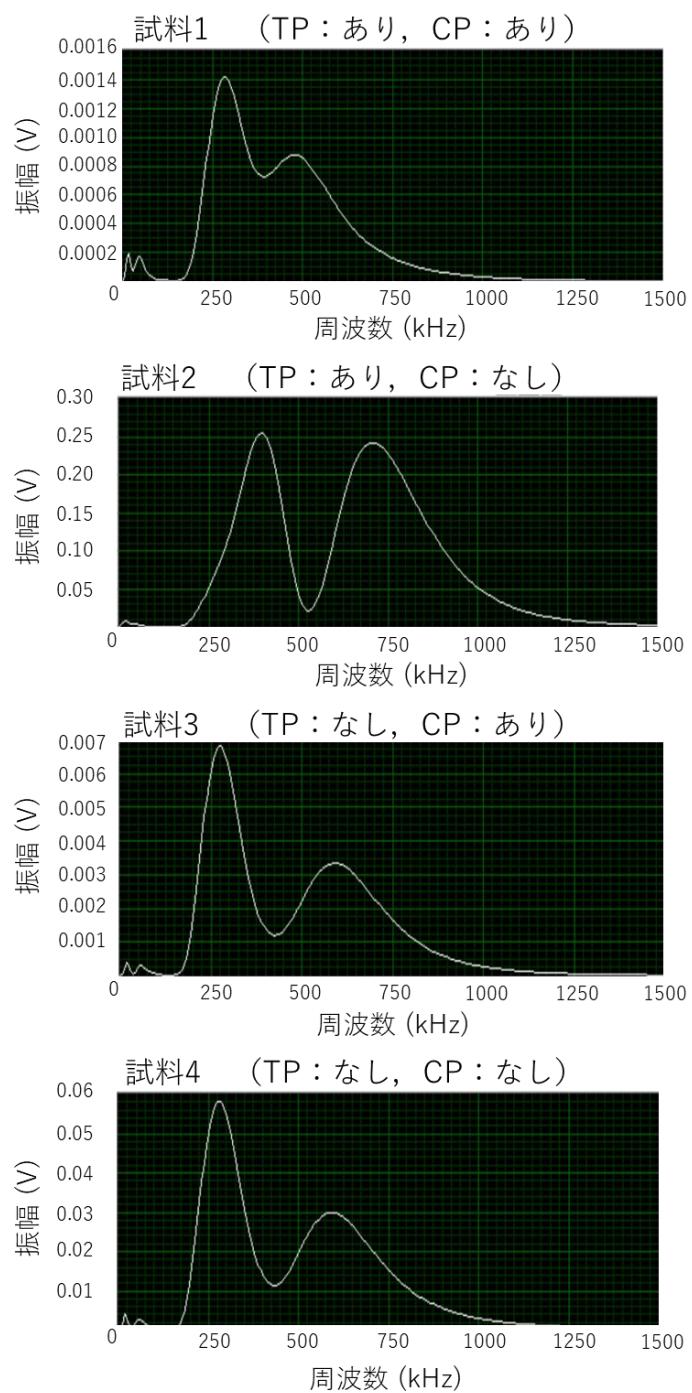


図 14a アクティブ AE 法によるクラウン-支台歯接着界面の評価
(冠試適時)

$n=4$

TP: トゥースプライマー

CP: セラミックプライマー

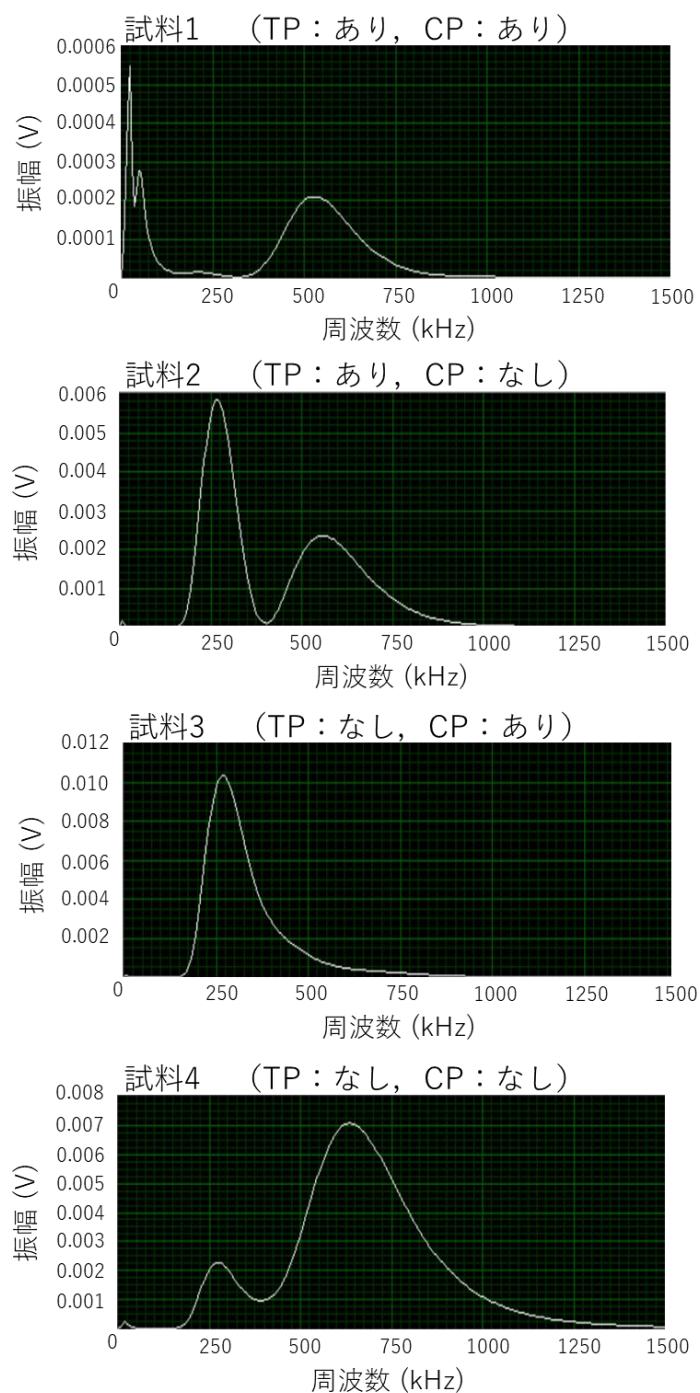


図 14b アクティブ AE 法によるクラウン-支台歯接着界面の評価
(冠装着直後)

$n=4$

TP:トゥースプライマー

CP:セラミックプライマー

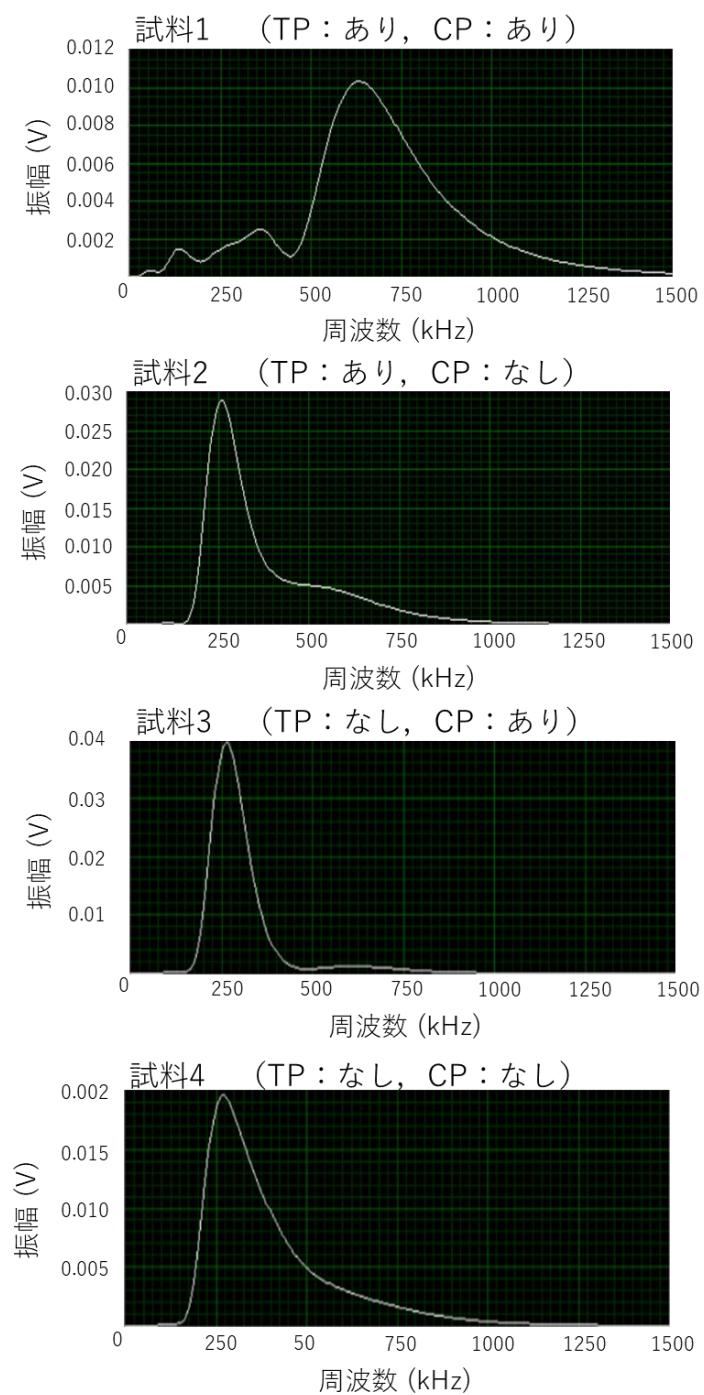


図 14c アクティブ AE 法によるクラウン-支台歯接着界面の評価
(冠装着後, 2 週間経過時)

$n=4$

TP:トゥースプライマー

CP:セラミックプライマー

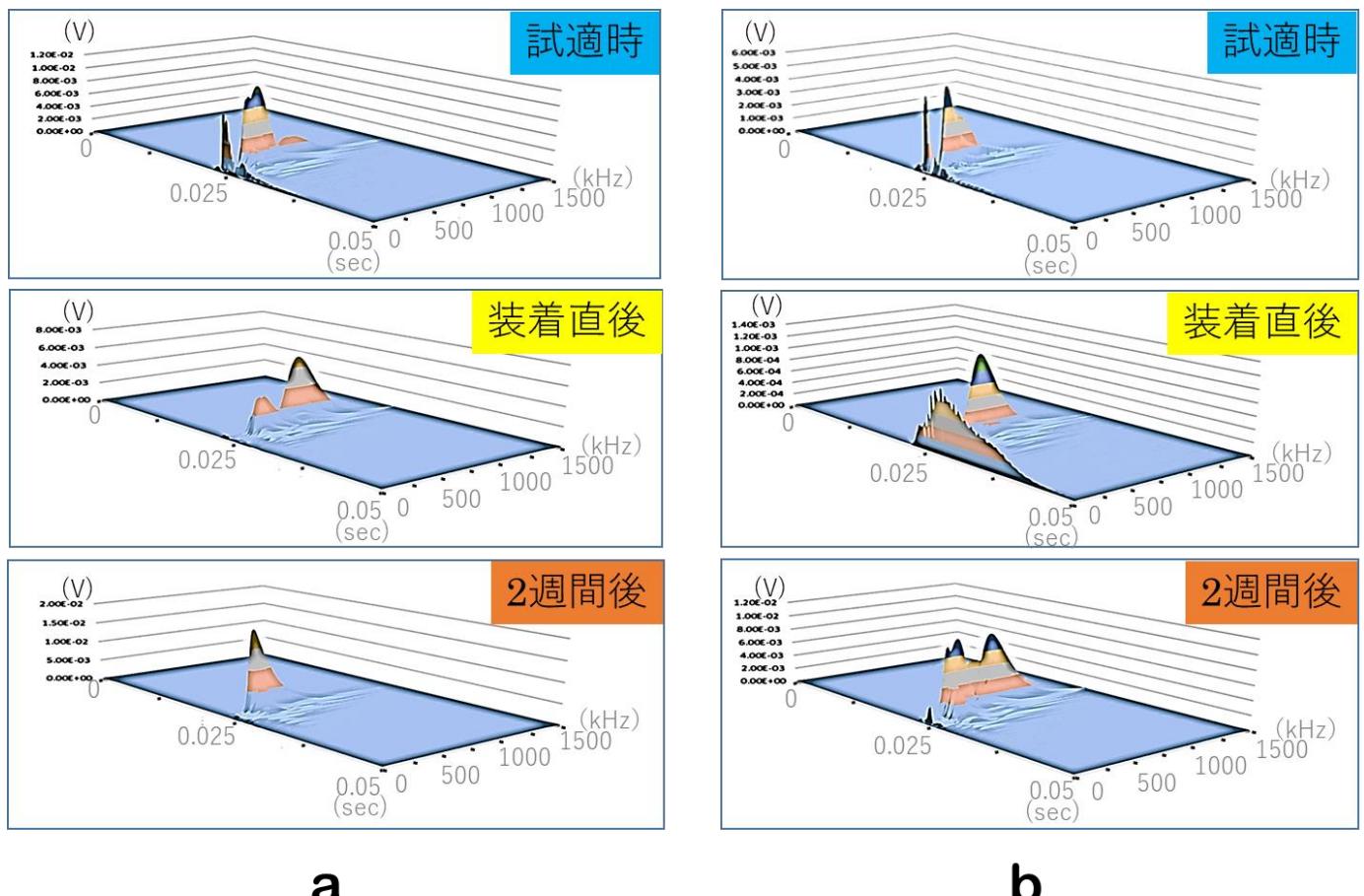


図 15 時間周波数解析の結果の三次元描出画像

a:代表例として図 14 の試料 2 を示す.

b:図 14 の試料 1 を示す.