# 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 7 月 9 日現在

機関番号: 32710

研究種目: 基盤研究(C)(一般)

研究期間: 2018~2020

課題番号: 18K09693

研究課題名(和文)高強度3Dプリンティング義歯材料の開発応用

研究課題名(英文)Development and application of high strength 3D printing denture base materials

#### 研究代表者

新保 秀仁 (SHIMPO, HIDEMASA)

鶴見大学・歯学部・学内講師

研究者番号:40514401

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文):修理用レジンと3Dプリンティングレジンの接着性ではジクロロメタン処理やシラン処理は3DP,ミリングともに有効であったものの,流し込みレジンと比較して明らかに処理効果が低かった.3Dプリンティングレジンの造形角度による精度では225。が最も有意に優れた適合性を示し,サポートの位置が適合精度に関与していると示唆された.ジルコニア配合3Dプリンティング人工歯の耐摩耗性では未配合人工歯はナノジルコニア配合試作3Dプリンティング人工歯と比較して,重量では25.5%の以上減少し,重ね合わせによる検証では17.2 $\mu$ m低い差分を示したことからジルコニア粒子を配合することにより優れた耐摩耗性を示した.

研究成果の学術的意義や社会的意義 歯科分野へのCAD/CAM技術応用はヒューマンエラーが排除され,均質かつ再現性の高い補綴装置の製作が期待されている.特に3Dプリンタによる製作方法は複雑な形状も造形可能であるため,義歯の製作に関しては有用性が高いと考えられる.しかしながら,依然として製作フローが確立されていない,義歯に必要とされる性質が現状の材料よりも劣ることが指摘されている.本研究は既存の3Dプリンティングレジンを用いて,製作フローによる精度や接着性など,日常臨床に必要な術式に関して検証を行った.さらにジルコニアを配合したレジンを人工歯材料とそて使用することにより,既存の硬質レジン歯の性質に近似させる試みを行った.

研究成果の概要(英文): Adhesion between repair resin and 3D printing resin: Dichloromethane treatment and silane treatment were effective for both 3DP and milling, however the treatment effect was clearly lower than that of cast resin. 3D printing resin accuracy by molding angle: As a result of comparing the compatibility of denture bases molded, 225 ° showed significantly better compatibility than other conditions. Specimens with the same inclination at the molding angle showed similar tendencies, suggesting that the position of the support is involved in the fitting accuracy. Abrasion resistance of 3D-printed artificial teeth containing nano-zirconia: The weight of 3D-printed artificial teeth without zirconia was reduced by more than 25.5% compared to the prototype 3D-printed artificial teeth containing nano-zirconia at 10,000 and 20,000 times. In addition, verification by superimposition showed a difference of 17.2 μm lower, and excellent wear resistance was shown by containing nano-zirconia particles.

研究分野: 歯科補綴学

キーワード: CAD/CAM 人工歯 3Dプリンティング 接着性 精度 造形角度

### 1.研究開始当初の背景

近年,コンピュータサイエンスの進歩に伴い,デジタルテクノロジーを用いた補綴装置の製作が一般臨床にも普及するようになってきた.遅れはしたが,有床義歯においても CAD/CAM 技術を応用したデジタルデンチャーの製作が試みられ,約70年間頑なに踏襲されてきた可撤性義歯の製作術式が大きな変革期を迎えようとしている.なかでも全部床義歯に関しては既に臨床応用されており,海外ではいくつかの製品が上市されている.これまで CAD/CAM 全部床義歯の義歯床は強度を優先したミリング法によって製作され,人工歯は既成人工歯の接着を行っていたが,現在では生産性や経済性を考慮し,3Dプリンタを使用して義歯床および人工歯の製作が試みられている.しかし,ミリング材料と比較し,3Dプリンタ材料の理工学的性質は劣っていると考えられる.そこで,耐摩耗性を考慮した3Dプリンタ用人工歯材料の開発を試みる.

#### 2.研究の目的

ナノジルコニアはセリア系ジルコニアにナノサイズのアルミナ粒子を加えたナノ複合体のジルコニアセラミックスで耐久性・生体親和性に優れ、従来のイットリア系のジルコニアと比べ靭性値が約3倍,曲げ強度もセラミックの中で最も強度の高いセラミック材料として固定性補綴装置の製作に使用されている.通常 MMA 系レジンやコンポジットレジンに代表される歯冠修復レジンの強化にはシラン処理されたガラスフィラーが用いられ、サブミクロンタイプの Sio2系酸化物粒子や形状の異なるハイブリッドタイプが一般的である.しかしながら,流動性の高い3Dプリント用レジン材料では粒径の大きいジルコニア粉末は均一化が困難であり,使用することができなかった.しかし,超臨界水熱合成法で開発されたジルコニアナノ粒子(Zirconeo)は10nm以下のジルコニア粒子が分散した液体であり,3Dプリント材料にも混入が可能となった.本研究では既存のUV 硬化型 MMA系レジンの機械的強度の向上を図る為に,10nm以下のナノジルコニア粒子を混入させることによって,新しい3Dプリンティング用強化型UV重合レジンを開発するものである.

### 3.研究の方法

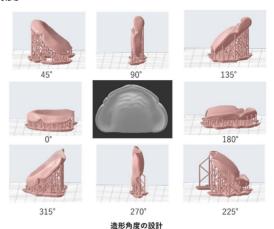
### (1) 修理用レジンと 3D プリンティングレジンの接着性

実験には、以下に示す3種類の義歯床用レジンを使用した. 高圧縮レジン(以下ミリング)、UV 硬化型3Dプリンティングレジン(DENTCA Denture BaseII,DENTCA.以下3DP)、コントロールとして従来法である 常温重合型レジン(PalaXpress, KULZER.以下流し込み)の3条件とした. 製作した板状試料は表面をエメリー紙#600にて表面を研磨後、超音波洗浄を行った.被着面をテープにて5.0mmに規定被着面はテープにて直径5mmに規定し,板状試料に対して即時重合レジン(ユニファストIII、ピンク、GC)築盛し、引張試験用のアクリル棒を植立した.重合後、37℃の蒸留水に24時間浸漬し実験に供した.表面処理条件はジクロロメタン(プロビスタ、サンメディカル、以下D)、シランカップリング処理(クリアフィルセラミックプライマープラス、クラレ、以下Si)およびコントロールとして未処理(以下U)の3種類とした.計測には万能試験機(AG-IS、島津製作所社製)を使用し、クロスヘッドスピード2.0 mm/min.にて引張試験を行った.被着面からアクリル棒が離脱するまでの最大応力を接着強さとして評価した.試料数は各条件につき10個ずつ製作し、平均値を算出した.得られたデータは一元配置分散分析後、Tukeyの多重比較検定にて危

険率 5%で統計解析を行った.

## (2) 3D プリンティングレジンの造形角度による精度

基礎床は無歯顎石膏模型(ニッシン)用いて,従来法にて製作.その基礎床のスキャニングを行いSTL化したデータをもとに、CADソフトを用いて,義歯床粘膜面がステージと平行になるように設計したものを0°とし45°ずつ角度変化させ,315°までの8つの条件で設計を行った.0°,45°,315°は粘膜面に,135°,180°,225°は研磨面にサポートを付与した.試料は各条件につき5個ずつ計個製作した.基礎床の製作は紫外線重合型義歯床用液体樹脂(DENTCA Denture Basell, DENTCA Inc.)を使

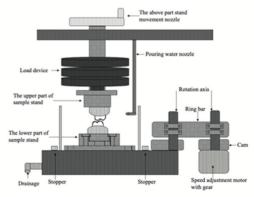


用し、SLA 方式により造形する 3 D プリンタによって造形した(ZENITHU, OPT).造形条件は,積層ピッチを  $100\mu m$ ,メーカー指定のパラメーターで造形を行った.重合した試料はサポートを除去した後,メーカーの指示に従い,(後処理の詳細な条件)を行い,実験に供した.適合性の評価はラボスキャナーR700(3shape)を用いてスキャニングし,得られた STL データと模型のデータを画像マッチングソフト(Geomagic design X , 3Dsystem)にて解析し,算出された差分を適合性として評価した.

## (3) ジルコニア配合 3D プリンティング人工歯の耐摩耗性

試作人工歯の既存の 4 ユニット人工歯 (e-Ha クワトロ, ヘレウスクルツァー)をラボスキャナー(R700, 3shape)にてスキャン後, STL データを作成した.その後, 超臨界水熱合成法で開発されたジルコニアナノ粒子は 10nm 以下のジルコニア粒子が分散した液体を 30%配合した紫外線重合型義歯床用液体樹脂(DENTCA Denture BaseII, DENTCA Inc.)を使用し, SLA 方式により造形する 3 D プリンタによって造形した(ZENITH U, OPT). 造形条件は, 積層ピッチを 100μm,メーカー指定のパラメーターで造形を行った.重合した試料はサポートを除去した後,メーカーの指示に従い,(後処理の詳細な条件)を行い,実験に供した.

また ,各試料片の表面粗さを均一化するために試料片表面に 50µm アルミナサンドブラスト処理(10 秒間)を行った. 試験条件は荷重 1.5kgf ,移動ストロークは頬舌方向に各 2.0mm の計 4.0mm ,水中温度 37°C ,ストローク速度 60 回/分を 1 サイクルとし 20,000 回まで行った ,摩耗量の評価は重量の変化および重ね合わせによる差分にて行った .重ね合わせによる評価はラボスキャナー (R700 , 3shape )を用いてスキャニングし ,得られた STL データと未使用の既成人工歯のスキャンデータを画像マッチングソフト (Geomagic design X , 3Dsystem )にて解析し ,算出された差分を摩耗量として評価した .



Structure of the wear testing device 摩耗試験装置の構造

### 4.研究成果

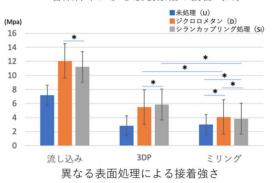
(1) 修理用レジンと 3D プリンティングレジンの接着性

ミリングにおける接着強さは全てのすべての表面処理条件で有意差を認めなかった.(U:3.01, D:4.09, Si:3.85[Mpa])(P>0.05)を示した.3DPにおいては他の2条件と比較してUが有意に低い接着強さ(2.83MPa)を示し(P<0.05), D(5.49 MPa)とSi(5.85 MPa)の間には有意差を認めなった(P>0.05).流し込みにおいてはUで有意に低い接着強さ(7.18 MPa)を示し(P<0.05), また D(12.07 MPa)とSi(11.20 MPa)に有意差を認めず(P>0.05), 3DPと同様の傾向を示した.義歯床材料間ではすべての表面処理条件下で流し込みが最も高い接着強さを示し(P<0.05), 3DP-Uを除いては3DPとミリング間に有意差を認めなかった(P>0.05).破壊様相ではCAD/CAM

デンチャー材料では 3DP-D,Si で混合破壊を 20%認めたものの,その他の条件ではすべて界面破壊であった.現在,修理に使用されている分液タイプのアクリルレジンと CAD/CAM 用レジンの接着強さは流し仕込みレジンと比較して有意に低く,臨床応用するには不十分であると考えられた.また,接着の表面処理材として使用されるジクロロメタン処理やシラン処理は 3DP,ミリングともに有効であったものの,流し込みレジンと比較して明らかに処理効果が低かったことから,CAD/CAMデンチャー材料に適した表面処理方法を考案する必要があると示唆された.

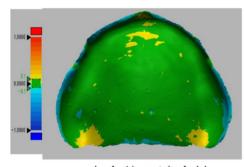
	流し込み		3DP			ミリング			
	U	G	С	U	G	С	U	G	С
界面破壊	10	0	0	100	80	80	100	100	100
凝集破壊	60	100	100	0	0	0	0	0	0
混合破壊	30	0	0	0	20	20	0	0	0

各条件下による破壊様相の割合(%)

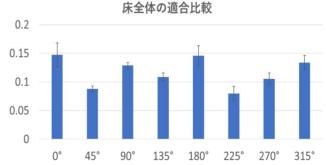


### (2) 3D プリンティングレジンの造形角度による精度

8 つの角度で造形した義歯床の適合性を比較した結果, $225^\circ$ が他の条件と比較して,有意に優れた適合性を示した(P<0.05). 一方, $0^\circ$ と  $180^\circ$ は最も低い適合性を示した.造形角度が同じ傾斜である試料は近似した傾向を示したことから,サポートの位置が適合精度に関与していると示唆された.

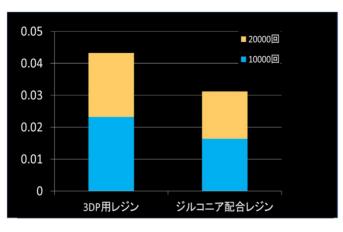


床全体の適合性

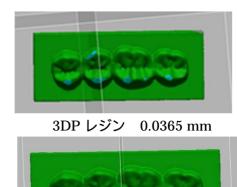


#### (3) ジルコニア配合 3D プリンティング人工歯の耐摩耗性

未配合の 3D プリンティング人工歯は 10,000, 20,000 回ともにナノジルコニア配合試作 3D プリンティング人工歯と比較して,重量では 25.5%の以上減少し, $17.2\mu m$  低い差分を示した.ナノジルコニア粒子を配合することにより優れた耐摩耗性を示した.



重量変化



ジルコニア配合レジン 0.0193 mm 重ねあわせによる偏差

### 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕	計2件	(うち招待講演	2件 / うち国際学会	0件)
しナムルバノ	014IT '	しつり101寸畔/宍	4円/ ノン国际士女	VIT )

1.発表者名
新保秀仁
2.発表標題
有床義歯治療におけるCAD/CAMの応用
DWAZETUWICALA ROLLING WALLE
2 244
3.学会等名
第11回日本デジタル歯科学会(招待講演)
4.発表年
2020年

1.発表者名 新保秀仁

2 . 発表標題

有床義歯分野における3Dプリンタの活用

3 . 学会等名

第129回日本補綴歯科学会(招待講演)

4 . 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1.著者名 新保秀仁,鳥居麻菜,仲田豊生,大久保力廣「末瀬一彦編著」	4 . 発行年 2020年
2.出版社 ヒョーロン・パブリッシャーズ	5.総ページ数 156
3.書名 クリニカルデジタルデンティストリーーここまでできる!デジタル機器の現状と臨床活用 第2章ー補綴装 置編	

### 〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6.研究組織

	· 101 2 CMILINED		
	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
	大久保 力廣	鶴見大学・歯学部・教授	
研究分担者	(OHKUBO CHIKAHIRO)		
	(10223760)	(32710)	

### 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
---------	---------