

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 9 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420054

研究課題名(和文) 歯科技工士が現有の作業場に簡単に導入可能なオールセラミック義歯製造技術

研究課題名(英文) Development of Easy Fabrication Process of All Ceramic Artificial Teeth

研究代表者

鈴木 裕之 (Suzuki, Hiroyuki, Y.)

広島大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：90284158

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：樹脂3Dプリンターと高速遠心成形法を組み合わせ、オールセラミック義歯を製作する技術の開発を行った。樹脂型は薄肉のシェル型とし、これを泥漿中に埋設しながら成形する埋設成形を開発することで、簡単にセラミック成形体が得られ、また成形後の離型も簡単に行えるようになった。本法により、アルミナ、およびジルコニア製の義歯モデルを作製したところ、焼結密度99%で緻密で均質な製品を得ることが出来た。

研究成果の概要(英文)：All-ceramic artificial teeth were fabricated using resin 3D-printer and high-speed centrifugal compaction process (HCP). Thin walled shell type resin molds were made by the printer, in which ceramic powders were successfully compacted by the HCP. Mold releasing was easy because of the use of the shell type molds. Alumina and zirconia artificial teeth with 99% in sintered densities were obtained by the process.

研究分野：機械工学

キーワード：高速遠心成形 埋設成形 医療材料 オンデマンド成形

1. 研究開始当初の背景

現在、利用範囲が拡大しているオールセラミックス義歯であるが、いまだ値段が高く、また日本製品も出遅れているため、保険適用外となっているのが実情である。そこで、より簡単に、しかも既存の歯科技工士の技術の延長線上で製作可能なものとしてほしい。

2. 研究の目的

簡便なオールセラミックス義歯の作成技術を開発する。基本的なスキームは以下の通りである。

本研究室では以前より、セラミックスなどの微細粉末を高密度に充填・成形することが出来る高速遠心成形法 (High-speed Centrifugal Compaction Process, HCP) を開発している。本法は、従来の粉末成形法と異なった特徴を持ち、特に、一品ずつ形状の違う義歯のような製品への適応性に優れていると考えられている。そこで、今回の研究では、HCPを基軸に、オールセラミックスの義歯の製造技術の開発を試みることにした。

3. 研究の方法

高速遠心成形法は、他の湿式成形法と違い多孔質体の型を準備する必要がない。さらに、肩に掛かる応力が少ないために、型自身の強度もあまり必要としない。この特徴をより精査したところ、HCP中に、型全体を泥漿中に浸漬することで、型に発生する応力を劇的に減少させることが出来ることが明らかとなった。我々はこれをHCPにおける「埋設成形」と名付け、この成型方法を実現するために、新規に樹脂3Dプリンターを導入し、薄肉のシェル型を生成すると共に、そこに、アルミナあるいはジルコニア粉末を高密度で御充填し、更に離型、焼結と続けて、高密度で酷品質のオールセラミックスの義歯を製作することを試みた。

4. 研究成果

4.1 樹脂シェル型の造形

簡単に導入可能な機器として、卓上型の樹脂3Dプリンターを選定した。また、プリンターの造形方式としては、卓上型の多くが熱可塑性樹脂の射出方式をとっているのに対して、我々は、UV樹脂を用いた、紫外線硬化型の3Dを選定した。この方式のプリンターの方が、造形精度が高いため(特に、積層方向に生じる凹凸が少ない)である。積層ピッチが50 μ mである。後の結果に示すように、このプリンターの造形精度を大きく凌駕する表面転写精度を持つ成形体・焼結体が得られている、更なる造形精度のプリンターの導入で、より高い形状転写特性が得られると思われる。

導入したプリンターにより薄肉のシェル型を造形したところ、最低0.4mmの肉厚を設定すれば、中に義歯形状を持つ中空の型を造

形出来ることが明らかとなった。この型は、HCP埋設成形中の生成圧力に十分にたえ、ほぼ変形することなくその中にアルミナ/ジルコニアの粉末を高密度に充填することが出来る。

なお、HCP中に樹脂型に浮力が作用するが、それに耐えるために2.5mm以上の太さのコラムを付けばよいことも分かった。このコラムは、3Dプリンティング時に、シェル型本体と同時に造形することが出来る。

4.2 HCP埋設成形

上述の樹脂セル型を使って、HCP埋設成形をすると、アルミナ/ジルコニア両粉末を高密度に充填した成形体を得ることが出来た。ただし、アルミナの粒子充填密度は63%と、ほぼランダム最密充填の値に至ったのに対して、ジルコニアのそれは約55%と粒子充填率が劣った。その理由は成形以前の泥漿調整条件にあると思われる。通常の回転ボールミルから、遊星ボールミルに泥漿調整機材を変更することで、ジルコニア粉末成形体の粒子充填率はやや改善し、更に後述する焼結特性も改善した。

4.3 シェル型の離型

当初は、樹脂型を中の成形体と共に加熱して、樹脂の熱分解によるストレスフリー脱脂を試みた。その結果、樹脂の膨脹/収縮により成形体に応力が掛かり、成形体が破壊する問題が認められたため、型自体にプレクラックを導入することで、成形体の破壊を防ぐ方法を構築した。

ただし、樹脂を熱分解して離型したサンプルは、著しく焼結特性が劣化することが明らかとなった。これは、UVレジンの何らかの添加物が、焼結特性を阻害するコンタミとして働いたためであると考えられる。ただし、その成分について突き止めて、除去するところまでは研究は進まなかった。

その一方で、薄肉のシェル型は、機械的な離型方法によっても、簡単に除去することが可能なことが明らかとなった。ゆえに、以降は、機械的離型法によりながら、焼結特性や寸法特性などを評価することとした。

4.4 焼結特性

アルミナ/ジルコニアいずれの粉末による成形体も、大気中の無加圧焼結(1300 $^{\circ}$ C)で、ほぼ99%まで緻密に焼結することが分かった。さらに、寸法変化を観察すると、少なくとも適切な泥漿調整条件によって作られた泥漿により作製したサンプルについては、均等な収縮特性が得られ、シェル型の内部形状を均等に収縮した歪みのない焼結体が得られた。転写精度は約0.2mm以内であり、これは義歯として十分な精度である。

なお、最初にシェル型自体を焼結収縮領域だけ大きく作っておくことで、患者の歯と同じサイズ・形状の焼結体を確実に作製するこ

とが出来る。

一方で、焼結体の表面をSEMなどにより詳細観察すると、そこには細かい段差形状が確認され、これは3Dプリンターの造形ピッチが、そのまま転写されたものであった。この事実は、HCPによる成形・焼結法には、現行の3Dプリンターよりも高い転写精度を持っていることを示しているが、現状では、そのまま義歯として使用するには、3Dプリンターの造形精度の方が(転写精度が高いとされるUVレジンによるプリンターであっても)不十分であることを意味している。今後は、より転写精度の高いプリンターの導入が望まれる。

アルミナ製の義歯に関しては、成形体に対して硝酸塩法によりマグネシアを添加して、これによる焼結体の着色も試みた。その結果、極微量のマグネシア添加でもかなりの黄変が認められ、歯科技工士が要求している程の繊細な色彩変化は実現しなかったが、本法をより詳細にコントロールすることで、今後は着色状態をコントロールすることが出来ると考えられる。なお、高密度アルミナ義歯は、強度的には天然の歯よりも過多すぎるため攻撃性が高く、更に破壊靱性値もあまり高くないので、歯科材料としては最適ではない。そこで、アルミナでこの時点まで研究を進めて以降は、主要な素材をジルコニアに変更している。

当初、アルミナと同様の、回転ボールミルにより泥漿調製して作製したジルコニア成形体は、粒子充填密度に不均一性が生じると共に、焼結体密度も平均で96%止まりで、不十分な結果であった。そこで、その組織を観察したところ、泥漿の調製自体が不十分だったことが明らかとなったので、泥漿の調製機器をより投入エネルギーの高い遊星ボールミルに変更することで、ほぼ均一な粒子充填特性の成形体としたところ、平均で99%の焼結体密度を得ることが出来るようになった。この焼結体は、アルミナ同様に、成形体の形状を保ちながらほぼ歪み無く収縮しているため、義歯として十分な寸法精度を持っている。

4.5 実際の義歯形状への適用

以上の実験は、やや簡素化した前歯あるいは奥歯のモデル形状に対して行ってきた実験である。アルミナ/ジルコニアいずれの素材に対しても一定の結果が得られたので、実際の歯形状のCADデータを元にシェル型を作製し、成形・焼結を行った。その結果、多くのサンプルで、成形後にクラックが生じてしまい、結果として健全な焼結体を得られなかった。

この原因を精査したところ、成形後の乾燥工程において微小な乾燥収縮があり、モデル形状よりも凹凸の激しい実際の歯形に対しては、型内で各所に引っかかりが生じてクラックの発生につながっていると考えられる。

この点に関して、今後も継続研究し、問題点を除去すれば、本法はほぼ、実用化の段階に至ると考えられる。

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)

〔雑誌論文〕(査読あり 計4件)

1) Hiroyuki Y. Suzuki, Jumpei Inoue, and Yusaku Nozaki: Fabrication of Multiple and Tapered Nozzle Holes for Diesel Engine by High-speed Centrifugal Compaction Combined with Three-Dimensional Printed Cores, Part 1 - Development of Process -, J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, Vol. 63 (2016) in printing. 査読あり

2) Hiroyuki Y. Suzuki, Syuichi Gomi, and Yusaku Nozaki: Fabrication of Multiple and Tapered Nozzle Holes for Diesel Engine by High-speed Centrifugal Compaction Combined with Three-Dimensional Printed Cores, Part 2 - Evaluation of Finished Product and Spray Observation -, J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, Vol. 63 (2016) in printing. 査読あり

3) Hiroyuki Y. Suzuki, and Hiroki Matsuoka: Impregnation of Porous P/M Bodies with Molten Alloy under High Centrifugal Force, J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, Vol. 63 (2016) in printing. 査読あり

4) Hiroyuki Y. Suzuki, and Yuuki Miyano: Development of All-ceramic Artificial Teeth using High-speed Centrifugal Compaction Process with a 3D printer, J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, Vol. 63 (2016) in printing. 査読あり

〔学会発表〕(計3件)

1) 宮野裕基, 鈴木裕之: 3Dプリンターと高速遠心成形法を組み合わせたセラミック義歯のオンデマンド製造, 日本機械学会機械材料・材料加工部門 第23回機械材料・材料加工部門技術講演会(M&P2015), 2015.11.14-11.15, 広島大学

2) 松岡宏樹, 鈴木裕之: 高速遠心力下における多孔質体への熔融金属の含浸現象, 日本機械学会機械材料・材料加工部門 第23回機械材料・材料加工部門技術講演会(M&P2015), 2015.11.14-11.15, 広島大学

3) 宮野裕基, 鈴木裕之: 3Dプリンターと高速遠心成形法を組み合わせたオールセラミック義歯の製造, 日本機械学会 2014年度年次大会, 2014.9.7-9.10, 東京電機大学

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等 なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鈴木 裕之 (Suzuki Hiroyuki)

広島大学・工学研究院・准教授

研究者番号： 90284158

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：