

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 11 日現在

機関番号：17301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25670825

研究課題名(和文)パルスレーザー堆積法による次世代ハイブリッド歯冠修復

研究課題名(英文)Hybrid dental restoration using pulse laser deposition

研究代表者

日野 直樹 (HINO, Naoki)

長崎大学・医歯薬学総合研究科(歯学系)・客員研究員

研究者番号：30649166

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：各種歯科用合金板試験片へのPLD法によるアルミナ、TiO₂、SiO₂のPLD法による成膜を行い、試験片の色調、顕微鏡下表面観察、成膜した各合金の摩耗試験も行った結果、アルミナによるPLD成膜により色調も青白色に変化した。TiO₂堆積成膜では金色や緑色、紫色を呈した。SiO₂堆積成膜は青味がかかった銀色を呈した。これらのことは矯正用合金ワイヤーの金属色を隠すのに効果があると思われ、PLD成膜した合金ワイヤーとブラケットの摩耗摩擦に影響があるか検証した結果、PLD法にて成膜したワイヤーでは未処理とほぼ同程度の摩擦を示す結果となり、成膜の影響が少ないことが分かった。

研究成果の概要(英文)：Dental alloys were coated with PLD (Pulse Laser Deposition) method using alumina, TiO₂ and SiO₂. The alumina coating demonstrated the blue-white color. TiO₂ coating showed right gold, green and purple color. SiO₂ coating demonstrated blue-silver color. These results indicated that the PLD deposition would be beneficial for orthodontic wires to hide metal color for clinical application. After the orthodontic alloy wires were deposited with alumina, frictional properties were examined. There were no difference in friction forces between control and experimental groups.

研究分野：医歯薬学

キーワード：PLD成膜 歯科用合金

1. 研究開始当初の背景

歯科医療で最も多く使用される歯冠修復用金属材料は過酷な口腔内環境に耐え得る機械的強度を有する反面、審美性に劣り、歯科生体材料として耐食性のある合金元素で構成されていても、表面からの溶出元素によってアレルギーを引き起こす患者がいるという事実は歪めないということが背景にある。

2. 研究の目的

本研究では、ターゲットをレーザー（パルスエネルギー）によりプラズマ化することで、比較的低温であるパルスレーザー堆積（Pulsed Laser Deposition: PLD）法により歯科焼成陶材や高強度のアルミナ、ジルコニアなどの審美材料により成膜を行えば、合金表面からの構成元素の溶出を遮断し、審美的かつ金属本来特有の機械的強度を保持させることを目的とした。

3. 研究の方法

(1)実施した研究は歯科用合金4種類(タイプ金合金、銀パラジウム合金、コバルトクロム合金、ステンレススチール合金SUS304)を板状に铸造もしくは切断加工した試験片表面をサンドブラスト処理もしくは鏡面研磨後に、PLD法による成膜を試み、歯冠色の再現性や溶出試験により溶出元素の抑制効果の検証について実験を行った。铸造により試験片を作製した合金は铸造歯冠修復用の前3者の合金で、後者のステンレス鋼合金は既製冠や矯正用ワイヤー・ブラケットで、審美歯科に深く関係する。PLD法によるアルミナ成膜には50nmと100nmの2種類の膜厚とした。成膜後の各合金試験片の色調を目視により確認し、溶出試験を行った。溶出試験は各処理合金を生理食塩水と2%乳酸に1週間浸漬し、合金の構成元素について溶出が抑制されるかをICP発光分光分析により検証した。検証した元素は金合金がAu, Pd, Ag, Cu, Zn、銀パラジウム合金がAu, Pd, Ag, Cu、コバルトクロム合金がCo, Cr, Mo、ステンレス鋼がCr, Fe, Niであった。

(2) (1)での結果により抑制が確認されなかったため、膜厚や膜の種類、ターゲットを変えて実験を行った。歯科用合金も2種類(銀パラジウム合金、ステンレススチール合金SUS)にしたり、PLD法によるアルミナ、TiO₂、SiO₂の成膜を行った。歯科で使用される既製の銀パラジウム合金およびステンレス合金板(サイズ10mm x 10mm)をPLD法にて成膜した試験片の色調、顕微鏡下表面観察、成膜した各合金の摩耗試験も行った。アルミナとTiO₂の膜厚

は150 μ m、250 μ mとし、SiO₂の成膜は100、170、300 μ mとした。

(3) アルミナによる250 μ mのPLD成膜により、成膜により色調も青白色に変化したため、矯正用合金ワイヤーの審美応用を鑑み、合金ワイヤーの成膜を試み、その摩擦特性についての実験を行った。未処理のワイヤーとセラミックブラケット間の摩擦測定もコントロールとして行った。使用した既製の矯正用ワイヤーはNickel Titanium (NiTi)、NiTi coated with Al₂O₃ PLD (C-NiTi)、Stainless Steel (SS)とSS coated with epoxy (C-SS)の4種類であった。セラミックブラケットはワイヤースロットライナーが付与されたもの(Clarity™)をゴム(0.12mm)で結紮、セルフライゲーション(CLIPPY-C)とともにスロットサイズ(0.022")の2種類であった。測定は摩擦測定用ジグを作製し、ブラケット固定用ジグを用いて、cross-head speed 10mm/min、移動距離5mm、ブラケットの傾斜0°10°で摩擦係数の測定を行った。

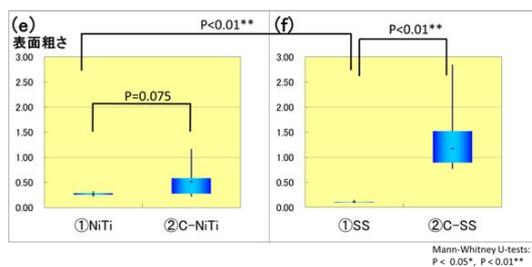
4. 研究成果

(1) PLD法によるアルミナ膜厚が50nmと100nmと、大変薄く、色調は母材の表面色調に影響を受けているということが示唆された。各合金元素の抑制ははっきりとは観察されなかった。成膜を施した金銀パラジウム合金のICP溶出元素分析ではAgの溶出量は乳酸では323 μ g/cm²、生理食塩水では113 μ g/cm²、Cuの溶出量は乳酸では246 μ g/cm²、生理食塩水では186 μ g/cm²という風に溶出元素は生理食塩水よりも乳酸の方の溶出量が若干多い傾向があったが、各合金元素の抑制ははっきりとは観察されなかった

(2) アルミナ堆積成膜の膜厚150 μ mでは金色、膜厚250 μ mでは青色を呈した。TiO₂堆積成膜の膜厚250.0 μ m、成膜温度200では金色、膜厚250.0 μ m、成膜温度300では緑色(銀パラジウム合金)・紫色(ステンレス)を呈した。SiO₂堆積成膜の膜厚100.0 μ m、170.0 μ m、300.0 μ mではいずれも青味がかかった銀色を呈した。次に、成膜した合金板の表面性状の観察を行った。顕微鏡下で表面粗さを比較検討した結果、TiO₂、SiO₂堆積成膜の表面粗さは変化無く、アルミナでは粗くなった。また、成膜した銀パラジウム合金およびステンレス合金板の摩耗測定をおこなった。成膜したワイヤー、他のコーティング法(epoxyコーティング)による各条件の試験片の摩耗測定を行った結果、epoxyコーティングでは未処理と比較し摩耗が1.3倍となったが、PLD法にて成

膜したワイヤーでは未処理とほぼ同程度の結果となり成膜の影響が少ないことがわかった。PLD法による成膜は膜厚を制御することが可能で、成膜温度が低温なため、金属材料本来の機能性を維持することが可能と考えられる。

(3) ブラケットスロットをワイヤーに対して10°に傾けた場合、NiTiワイヤーではCLIPPY-Cとの間において、NiTiよりC-NiTiの摩擦力が有意に小さくなり、Clarity TMでは両者に有意差がなかった、SSワイヤーではClarity TMにおいて、SSよりC-SSの摩擦力が有意に大きくなり、CLIPPY-Cでは両者に有意差がなかった。ブラケットスロットをワイヤーに対して0°に傾けた場合、NiTiワイヤーではClarity TMとの間において、NiTiよりC-NiTiの摩擦力が有意に小さくなり、CLIPPY-Cでは両者に有意差がなかった。SSワイヤーではClarity TMにおいて、SSよりC-SSの摩擦力が有意に小さくなり、CLIPPY-Cでは両者に有意差がなかった。NiTi, C-NiTi, SS, C-SSいずれもClarity TMよりCLIPPY-Cとの摩擦力が有意に小さくなった。表面粗さはSSがC-SSより粗く、NiTiとC-NiTiは有意な差がなかった。矯正治療においてワイヤーとブラケット間の摩擦が小さいと歯は動きやすいが、審美性を考慮したワイヤーを使用する場合、NiTi, SSともにセルフライゲーションブラケットと組み合わせて使用すると摩擦を小さくできることがわかった。



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〕(計2件)

Eid A, Hussein K, Niu L, Li G, Watanabe I, Shabraway M, Pashley D, Tay F. Effects of tricalcium silicate cements on osteogenic differentiation of human bone marrow-derived mesenchymal stem cells in vitro. Acta Biomaterialia 査読有 10: 3327-3334, 2014.

Zapata U, Watanabe I, Opperman LA, Dechow PC, Mulone T, Elsalanty ME: In vitro mechanical evaluation of mandibular bone transport devices. J Med Devices 査読有 8: 1-8, 2014

〔学会発表〕(計5件)

林 太郎, 黒木唯文, 村田比呂司, 渡邊郁哉: 純チタンの機械的性質に及ぼすレーザー表面処理条件の影響, 平成 26 年度日本補綴歯科学会, 仙台国際センター(仙台), 5月{プログラム・抄録集, p. 175}

Rashad A, Udoh K, Shiraishi T, Watanabe I: Zirconia bioactive glass composite coating for zirconia dental implant applications, 第 63 回日本歯科理工学会学術講演会, タワーホール船堀(東京), 4月{日本歯科理工学会誌, 33(2), p. 99, 2014}

Eid AA, Watanabe I: In-vitro biocompatibility of an expandable root canal filling material in wet condition, 第 62 回日本歯科理工学会学術講演会, 日本歯科大学新潟歯学部(新潟), 10月{日本歯科理工学会誌, 32(5), p. 363, 2013}

白石孝信, 池田 香, 篠崎信也, 渡邊郁哉: ジルコニア用前装陶材トランスパデンティンの反射光特性, 第 62 回日本歯科理工学会学術講演会, 日本歯科大学新潟歯学部(新潟), 10月{日本歯科理工学会誌, 32(5): p. 343, 2013}

中尾紀子, 松永淳子, 渡邊悦子, 吉田教明, 渡邊郁哉: 審美性を考慮した矯正用アーチワイヤーの摩擦特性, 第 61 回日本歯科理工学会学術講演会, タワーホール船堀(東京), 4月{日本歯科理工学会誌, 32(2), p. 120, 2013}

6. 研究組織

(1)研究代表者

日野 直樹 (HINO, Naoki)

長崎大学・医歯薬学総合研究科(歯学系)・客員研究員

研究者番号: 30649166

(2)研究分担者

渡邊 郁哉 (WATANABE, Ikuya)

長崎大学・医歯薬学総合研究科(歯学系)・教授

研究者番号：00274671

白石 孝信 (SHIRAIISHI, Takanobu)
長崎大学・医歯薬学総合研究科 (歯学系)・
准教授
研究者番号：10150468