

平成30年 8月30日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K11196

研究課題名(和文)チタン焼結体の歯科補綴への応用

研究課題名(英文)Application of porous titanium using moldless process for prosthesis

研究代表者

友竹 偉則 (TOMOTAKE, Yoritoki)

徳島大学・病院・准教授

研究者番号：70263853

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)：本研究は、チタン粉末とバインダーとしてのワックスを混練したチタン-ワックス混合体から作製される多孔性チタン焼結体を歯科補綴に応用することを目的とし、純チタン粉末の粒径や各粒径の混合率を調整した5種類の試料体の物性を評価した。収縮率は2.5%～14.2%であり、粒径の小さい試験体ほど収縮率は高かった。機械的強度は106～428 MPaであり、気孔密度に影響されていた。チタン基材との接着強度では32～100 MPaで粒型に依存していた。補綴装置への応用には寸法精度と機械的強度が重要であり、本法による多孔性チタン焼結体は材料設計によって適応有効であると考えられた。

研究成果の概要(英文)：This study aimed to evaluate the physical and mechanical properties of porous titanium using moldless processes with various particle sizes, shapes and mixing ratio of each titanium powder to wax binder for prosthesis. Cp Ti powders with different particle sizes, shapes and mixing ratio were divided into five groups. The shrinkage ratio of sintered specimens was in the range of 2.5-14.2%. The shrinkage ratio increased with decreasing particle size. The bending strength was demonstrated in the range of 106-428 MPa under the influence of porosity. The shear bond strength was in the range of 32-100 MPa. The shear bond strength was also particle-size dependent. The decrease in the porosity increased shrinkage and bending strength. Shrinkage and mechanical strength required for prosthesis were dependent on the particle size and shape of titanium powders. It was considered that this production method can be applied to the prosthetic framework by selecting the material design.

研究分野：医歯薬学

キーワード：チタン チタン-ワックス 焼結体 補綴装置 チタンフレーム

## 1. 研究開始当初の背景

チタンは生体親和性に非常に優れることから、生体材料として歯科インプラントや人工関節などで広く利用されている。骨代替材料としては弾性率が接合する骨に比べて大きいことから、負荷が掛かる部位での骨性結合の破壊が危惧されるなど、機械的性質の改善も求められている。このような問題に対して、我々は賦形成性に優れたチタン-ワックス混合体を焼結する多孔性チタンの製作方法を開発してきた。この方法によって、気孔率を変化させることで骨組織に近似した弾性率に調整可能となり、骨代替材料としては理想的な機械的性質を付与することができる。

一方、歯冠補綴への応用では、高い生体親和性と金属材料としての機械強度を有することから、ニッケルやパラジウムなどの金属アレルギー患者への選択材料に特に用いられている。しかし、チタンの技工操作では高い融点と表面酸化層が形成されやすいことから鑄造が難しいこともあり、補綴材料としての利用は限定されているのも現状である。最近では **CAD/CAM** システムが発展してきたことによって、インプラント上部構造のフレーム用基材に用いられるようになった **PC** 上でデザインされたフレーム形態をチタンインゴットから削り出すことによって製作するものであり、高い適合性を有するフレームワークが提供されるようになってきている。作業ステップには作業模型上でのワックスモデルをスキャンしてデジタルデータを取り込む必要があり、相応の作業時間と機器の導入が必要となってくる。また、一度削り出したチタンフレームは形態修正することが難しいこともあり、何らかの修正方法を開発しておくことは今後有益になる。

我々が開発したチタン-ワックス焼結体の製作方法を歯科補綴に応用することに着目した。この方法は、チタン粉末とバインダーとしてワックスを混練したチタン-ワックス

混合体を創製し、任意の形態に成形し、熱処理を経ることでチタン焼結体を製作するものである。従来の鑄造操作に必要な埋没作業が不要で、型(モールド)を用いずに、比較的低温で任意の形状の成形体を製作することが可能となる。

さらには、粒径や空孔のスペーサーとなる焼却体を含有させることで気孔率や空孔率を変化させて機械的性質が調整できる。また、既製のチタン製コンポーネントへの焼結体を溶着させることが可能であり、**CAD/CAM** によるチタンフレームの形態修正に利用でき、さらには **CAD/CAM** 基材としても応用できると考える。

しかしながら、焼結過程では隣接するチタン粒子間での溶着によって寸法変化、つまりは収縮が生じる。よって、チタン粒度や各粒径の混合率を詳細に検討し、条件ごとの機械的強度と寸法変化率を測定することが材料設計では重要となる。

## 2. 研究の目的

本研究は、我々が開発したチタン焼結体の製作方法を歯科補綴に応用することを目的とする。

異なるチタン粒径(45 $\mu\text{m}$  ~ 500 $\mu\text{m}$ )や形状ごとに、チタン-ワックス混合体から製作した焼結体の基本的性質、収縮率や弾性率などの物性評価を行う。その結果を基にチタン-ワックス混合体における異なるチタン粒径の間での混合比やワックス混和比等を調整して、焼結体としての製作における物性評価を行うことで、歯科補綴装置に必要なとされる機械的強度と寸法精度を満たすチタン焼結体の材料設計を検討する。また、既製のチタンコンポーネントや **CAD/CAM** 製作チタンフレームへの溶着強度の評価を行うことで、歯科補綴での応用を検討する。

## 3. 研究の方法

### (1) チタン粒径ごとの試験片作製

チタン焼結体の作製には、市販のチタン粉末（ニラコ社製，タイロップ社製，他）を用いる。

各チタン粉末製品（粒径  $45\mu\text{m}$  ~  $500\mu\text{m}$  以上）を遠心分離機で篩にかけて、粒径ごとに分別する。それぞれの粒径ごとに SEM による形状記録を行った後に、我々が開発した方法における混練性と成形性が両立しうる比率でバインダーワックスとチタンを混和し、チタン-ワックス混合体を創製する。

試験片製作用に規格したシリコン製の型枠にチタン-ワックス混合体を填入して成形し、熱処理（大気中 **380** で脱脂，アルゴン雰囲気中 **1100** で焼成）を行い、焼結体試験片を作製する。

焼成後に再度、それぞれの粒径，焼成条件ごとの外観試験で焼結体の成形性，形状記録を行い，SEM 観察によって粒間の溶着の状態を観察する。

## （2）物性の評価方法

歯科補綴に重要な適合精度に影響する収縮率の測定や，機械強度の設計のための気孔密度測定と曲げ試験を行う。

焼結による収縮率測定には直径  $6\text{mm}\times 10\text{mm}$  の円柱状試験片とし焼結前後の寸法比で算出する。

気孔密度の測定には同試験片の水中浸漬による吸水率から算出する。

曲げ試験には  $4\text{mm}\times 7\text{mm}\times 20\text{mm}$  の短冊状試験片とし，曲げ強さの評価は室温大気中，曲げスパン **15mm**，クロスヘッドスピード **1mm/min** による破断荷重より曲げ強さを算出する。以上の試験を評価することにより，粒径ごとのチタン焼結体の基本的性質，収縮率や弾性率などの物性評価を行う。

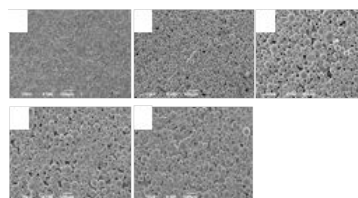
既製チタンとの鑄造接着強度の試験には研磨した純チタン板上に各混合率のチタン-ワックスの円柱試験片を焼結，溶着させてせん断試験を行い，SEM による接着面の観察

も行う。

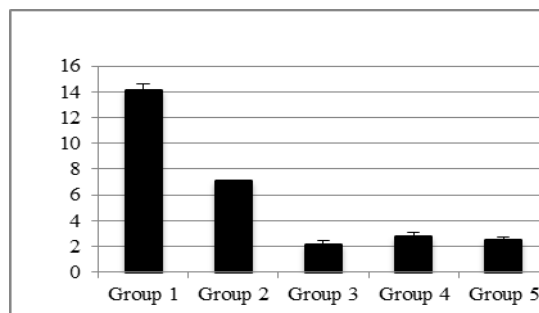
## 4．研究成果

試料として，混練比率（チタン **90%**：ワックス **10%**）で混和した **5** 種（粒径  $45\mu\text{m}$  以下の不正形，粒径  $45\mu\text{m}$  以下の円形，粒径  $150\mu\text{m}$  以下，粒径  $150\mu\text{m}$ ・**75wt%** +  $45\mu\text{m}$ ・**15%**，粒径  $150\mu\text{m}$ ・**80wt%** +  $45\mu\text{m}$ ・**10wt%**）の混合体を各試験に対応するように成形し，熱処理（大気中 **380** で脱脂，アルゴン雰囲気中 **1100** で焼成）によって各試験片を作製した。

各試験体の SEM 像を示す。

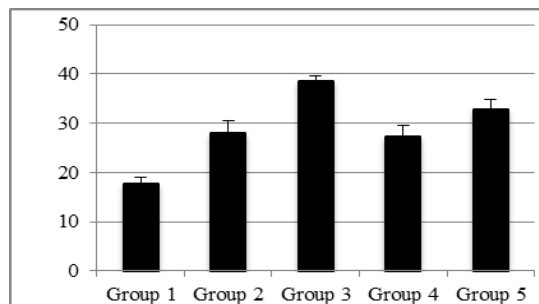


各試験体の収縮率（縦軸：%）を示す。



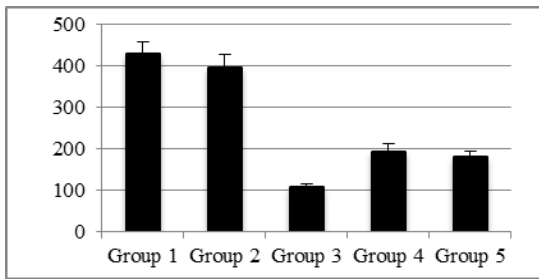
収縮率は **2.5%** ~ **14.2%** であり，粒径の小さい試験体ほど収縮率は高かった。

各試験体の気孔密度（縦軸：%）を示す。



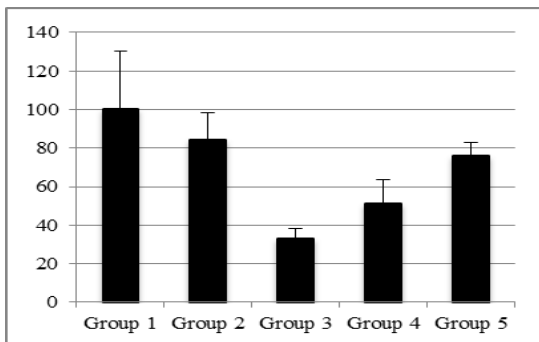
気孔密度は **17.7%** ~ **38.5%** であった。

各試験体の曲げ強度（縦軸：MPa）を示す。



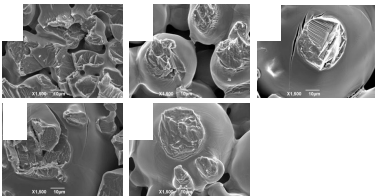
機械的強度では、粒径の小さい45 $\mu\text{m}$ 以下の群で高く、150 $\mu\text{m}$ 以下の群でも小さい径を混和することで強度が増加することが分かった。

各試験体の接着強度(縦軸:MPa)を示す。

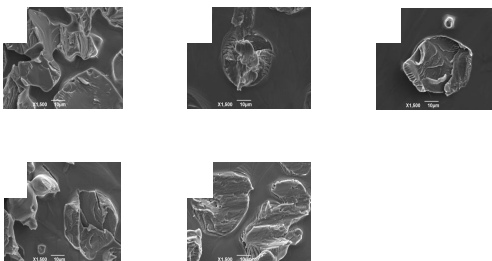


チタン基板との接着強度では32~100MPaで、粒型に依存していた。

各試験体の破断面のSEM像を示す。



チタン基板側のSEM像を示す。



補綴装置への応用には寸法精度と機械的強度が重要であり、一般的な歯科用合金の鑄造収縮は2.0~2.3%であり、機械的強度では近年頻用されているセラミックス冠で300~

500MPaが求められている。また、チタン基板との接着強度と破断面での凝集破壊の確認から補綴フレームの修正に有用であると考えられた。本法による多孔性チタン焼結体は材料設計によって補綴装置への応用が可能であると考えられた。

## 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 1 件)

**Prananingrum W, Tomotake Y, Naito Y, Bae J, Sekine K, Hamada K, Ichikawa T.**  
**Application of porous titanium in prosthesis production using a moldless process: Evaluation of physical and mechanical properties with various particle sizes, shapes, and mixing ratios.**  
**J Mech Behav Biomed Mater. 2016; 61: 581-9. (査読有) doi: 10.1016/j.jmbbm.**

[学会発表](計 2 件)

**Widyasri Prananingrum, Yoritoki Tomotake, Yoshihito Naito, Kazumitsu Sekine, Kenichi Hamada, Tetsuo Ichikawa.**  
**Sintering Time and Its Influence on Moldless-Processed Porous Titanium's Properties.**  
**94th Annual Meeting of the International Association for Dental Research 2016.06.22-25 Seoul, Korea.**

**Prananingrum Widyasri, 内藤禎人, 友竹偉則, 田島登誉子, 市川哲雄.** モールドレスプロセスによるチタン多孔体のインプラント上部構造への応用 (**Application of porous titanium using moldless process for implant superstructure framework**) 日本口腔インプラント学会誌 **28** 巻特別号 **305; 2015.**

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

友竹 偉則 (TOMOTAKE, Yoritoki)  
 徳島大学・病院・准教授

研究者番号：70263853

**(2)研究分担者**

内藤 禎人 ( **NAITOU, Yoshihito** )

徳島大学・病院・助教

研究者番号：20509773

**(3)研究協力者**

**PRANANINGRUM, Widyasri**

徳島大学大学院・大学院生