

平成 21 年 3 月 31 日現在

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2007～2008

課題番号：19791474

研究課題名（和文）リン酸塩系埋没材を用いた焼結鋳型による CP チタン鋳造

研究課題名（英文）CP titanium casting using sintered molds with phosphate investment

研究代表者

井上 太郎（INOUE TARO）

大阪歯科大学・歯学部・助教

研究者番号：50309184

研究成果の概要：

これまでの研究より、市販リン酸塩系埋没材を高温焼結した結果、クォーツが減少しトリジマイトが生成されていたことが判明したため、市販リン酸塩系埋没材の組成および配合比を分析した結果を参考に、トリジマイトを基材とした試作埋没材を試作し本実験の埋没材試料とした。試作埋没材の物理学的性質の測定、埋没材の加熱時の変化を顕微鏡用加熱装置によって観察、結晶構造の変化を X 線回折にて調査し、また、試作埋没材での鋳型で製作したチタン鋳造冠の鋳造精度について検討を行った。

その結果、高温で焼結した鋳型での CP チタン鋳造は良好な成績を得られたが、市販リン酸塩系埋没材の焼結鋳型とした場合と比較して、各実験内容についてとくに有意な差は無く、トリジマイトの効果はみられなかった。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	3,100,000	0	3,100,000
2008 年度	400,000	120,000	520,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	120,000	3,620,000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学・補綴理工系歯学

キーワード：歯学・チタン・鋳造・埋没材・歯科理工

1. 研究開始当初の背景

歯科補綴装置に金属材料を応用した歴史は古く、現在においても金属単体あるいは他の材料との複合材料として、臨床的価値は非常に高い。現在、わが国の保健医療制度において、歯科補綴を行ったうえで用いることが許されている鋳造用合金は、金銀パラジウム合金、14K の金合金、ニッケルクロム合金、

コバルトクロム合金、銀合金の 5 種類に限られている。中でも、金銀パラジウム合金は、歯冠修復として単純なインレーから有床義歯用装置にいたるまで最も広い用途に適用が認められおり、我が国の歯科医療の一翼を担ってきた優れた金属材料として多用され、歯科特定保険医療材料費の約 50% 前後の比率を占めている。

しかしながら、同金属は材料成分中 20% を含有しているパラジウムが平成 10 年より急激な価格高騰が起こり、同合金の市場価格が保険価格基準を上回る事態が生じた。いわゆる逆ざや現象が平成 13 年 3 月まで続き、歯科医療現場に大きな混乱を生じた。現在では、診療報酬改定と市場価格の値下がりによって一時の混乱は収まってはいるが、パラジウムの価格が再び高騰した気配が現れている。

また、近年歯科においては金属アレルギーの問題が注目されており、同金属の主成分のうち金やパラジウムも金属アレルギーの感作陽性率は決して低いとはいえない。特に、最近パラジウムアレルギーの増加が報告されており、パラジウムを含まない生体親和性金属に対する関心が高まっている。

以上のような背景から、金銀パラジウムに代わる金属材料の開発が至急に求められている現在、その生体親和性、耐食性および機械的性質などから、C P (Commercial Pure) チタンの歯科補綴装置への応用が期待されている。また、安価で資源としても豊富である C P チタニウムが代替金属として注目されている。チタンは耐食性や生体適合性に優れており、アレルギーなど体への為害性が大変小さく、近年様々な生体用移植材料として利用されている。歯科医療にとっても、生体親和性に優れた材料は重要である。

歯科医療においては、純チタンおよびチタン合金が使用され、インプラントに使用できるばかりか、さまざまな症例における選択肢となっている。しかし、一般的な歯科応用は限られてきた。その理由は、歯科補綴装置の製作には、その形態が複雑なため CAD/CAM システムなど様々な製作技術が模索されているが、現時点では、形態的自由度の大きいロストワックス法による鑄造加工が最も好ましいと考えられている。チタン鑄造も、鑄造機や埋没材の開発および鑄造技術のシステム化などにより、臨床応用への道が開けつつあるが、チタンは融点が $1,668^{\circ}\text{C}$ と非常に高く、高温時における化学的活性が高いため、良好な鑄造体を製作することが困難であり、鑄造体表層に生じる反応層が、純チタンの機械的性質、硬度に影響を及ぼすと同時に反応層に含まれる不純物の存在はその生体適合性にも影響を及ぼすものではないかと考える。その上、加工に用いる鑄造機が特殊で高価であるため、初期投資に費用がかかる。また、チタン専用埋没材の多くは、従来の歯科用埋没材と比較して価格が非常に高く、操作性が悪いなどの問題点があげられ、一般の歯科臨床に普及するに至っていない。

2. 研究の目的

本講座では、歯科鑄造に用いられる従来型リン酸塩系埋没材のチタン鑄造への応用に

いて種々検討を行ってきた。その過程において、鑄型を焼結状態とした条件下でチタン鑄造体を製作し、その表面性状や反応層の様相について検討した結果、チタン鑄造体の反応層が改善され、良好な適合を得られることが示唆された。

しかし、鑄型を焼結するためには、高温で鑄型を焼却しなければならず、一般歯科技工に利用されている焼却用電気炉では不可能であり、特殊な焼却炉が必要となる。

そこで本研究では、C P チタン鑄造を歯科臨床に普及させるために、これまでに本講座で行われてきた研究を踏まえて、安定した膨張が得られ、操作性、強度、経済性に優れ、広く普及使用されている従来のリン酸塩系埋没材を用いて、種々の試作リン酸塩系埋没材を製作し、物理学的性質の測定、埋没材の加熱時の変化を顕微鏡用加熱装置によって観察するとともに、結晶構造の変化を X 線回折にて調査し検討を行い、鑄型の焼結温度を実用化できる温度まで低くすること、また、焼結状態の鑄型で製作したチタン鑄造冠の鑄造精度について検討を行い、臨床応用の有効性を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

市販リン酸塩系埋没材の組成および配合比を分析した結果を参考に、トリジマイトを基材とした試作埋没材を試作し、本実験の埋没材試料とした。

平成 19 年度

(1) 試作埋没材を用いて鑄造を行った C P チタン鑄造冠の寸法変化と適合性の検討

全部鑄造冠の支台歯形態を模型化した金型から蠟型を起し、その蠟型から C P チタン鑄造冠を製作した。蠟型の各部位の寸法を原寸とし C P チタン鑄造冠の寸法変化を測定し、適合精度は金型からの浮き上がり量として測定を行った。

また、金銀パラジウム合金において従来の鑄造法を用いて鑄造冠を製作し同様の計測を行い、C P チタンと比較検討を行った。

測定には、万能工具顕微鏡 (トプコン TUM200 型、東京光学社製) を用いて行った。

(2) 埋没材の焼結過程および焼却過程を組織変化の観察方法はデジタル顕微鏡 (VHX-200、キーエンス社製) に顕微鏡用加熱装置 (LK-1500、ジャパンハイテック社製) を取り付け、試料の熱による挙動を顕微鏡画像と共に記録し観察を行い、画像処理ソフト (Image-Pro® Plus、メディアサイバーネティックス社) にて画像解析を行った。

結晶構造の変化はX線回折装置（XRD-6100、島津製作所社製）を用いて行った。

(3) これまでの研究で、鋳型を焼結状態としたCPチタン鋳造において表面の反応層や適合精度が改善されることが判明したが、焼結過程における埋没材の変化については詳しいことが解っていない。そこで、試作埋没材および市販されているチタン用埋没材を顕微鏡加熱装置によってモニタリングしながら加熱し、埋没材の焼結過程および焼却過程を組織変化の観察から判定を行い、結晶構造の変化をX線回折にて調査し検討を行った。

平成 20 年度

(1) リン酸塩系埋没材の試作、その物物理学性質の分析

試作埋没材をそれぞれ 800℃、900℃、1000℃、1100℃、1200℃、1300℃および 1400℃で焼却を行い、その試作埋没材の熱膨張率、圧縮強さを測定し、その物物理学性質を分析する。

熱膨張率の測定には熱膨張測定装置（示差式高温熱膨張計、モトヤマ社製）を用いて行った。

圧縮強さの測定にはオートグラフ（AG-5000A、島津製作所社製）を用いて行った。

(2) 試作埋没材を用いてCPチタン鋳造冠の試作

試作埋没材を用いて製作したCPチタン鋳造冠を焼き付きの有無を肉眼的に観察を行った。

(3) 試作埋没材を用いて鋳造を行ったCPチタン鋳造冠の表面反応層の解析

試作埋没材を用いて鋳型を前述の温度で焼却しCPチタン鋳造冠を製作した。製作した鋳造冠を試料とし、その表層における金属組織の観察と電子線マイクロアナライザーによる分析を行った。埋没材の焼結過程における組織変化の観察

4. 研究成果

平成 19 年

市販リン酸塩系埋没材の組成および配合比を分析した結果を参考に、トリジマイトを基材とした試作埋没材を試作した。焼却温度を 800℃、900℃、1000℃、1100℃、1200℃、1300℃および 1400℃の 7 条件とし、チタン JIS 規格第 2 種を使用して CP チタン鋳造冠を作製した。また、金銀パラジウム合金において従来の鋳造法を用いて鋳造冠を製作し、

原型金型へ復位させたときの浮き上がり量から適合精度の評価を行った。すべての CP チタン鋳造冠において浮き上りを示した。焼却温度 1400℃で製作したものが最も浮き上がり量が少なかった。しかし、すべての CP チタン鋳造冠において、金銀パラジウム合金で製作した鋳造冠と比較したと、浮き上がり量は大きかった。

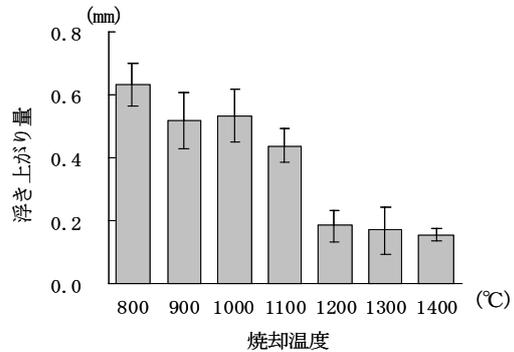
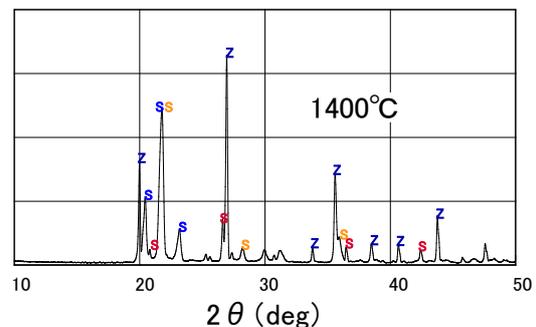


図 適合精度

試作埋没材および市販されているチタン用リン酸塩系埋没材を顕微鏡加熱装置によってモニタリングしながら加熱、観察した。すべての埋没材において、加熱により埋没材の組織の変化が段階的にみられた。約 200℃から約 300℃の間に組織の構造が明瞭になり、約 300℃から褐色を呈した部分（粒子）がみられ、徐々に色の変化が全体に広がった。約 600℃になると色の変化が減少し、部分的に褐色を呈したようになった。約 1000℃から粒子が徐々に結合を始め、褐色にみえていた部分が減少し、組織の構造が徐々に不明瞭になっていった。約 1200℃になると組織の構造が不明瞭になり、粒子の境界が確認できなくなった。埋没材の熱膨張量の変化に少し遅れて、組織の変化が現れた。

X線回折の結果、リン酸塩系埋没材を昇温すると、ジルコンが増加するとともにトリジマイトが新たに生成された。これに対して、クォーツが減少した。



平成 20 年度

市販リン酸塩系埋没材の組成および配合比を分析した結果を参考に、トリジマイトを基材とした試作埋没材を試作した。焼却温度を 800℃, 900℃, 1000℃, 1100℃, 1200℃, 1300℃および 1400℃の 7 条件とした。焼却後の圧縮強さは、焼却温度が高くなるほど大きな値を示した。

表 埋没材加熱後の圧縮強さ

加熱温度 (°C)	圧縮強さ (MPa)
800	3.7 (2.8)
900	4.2 (1.2)
1000	6.3 (2.6)
1100	25.4 (3.0)
1200	27.6 (4.2)
1300	29.0 (4.8)
1400	35.5 (4.9)

() : S.D.

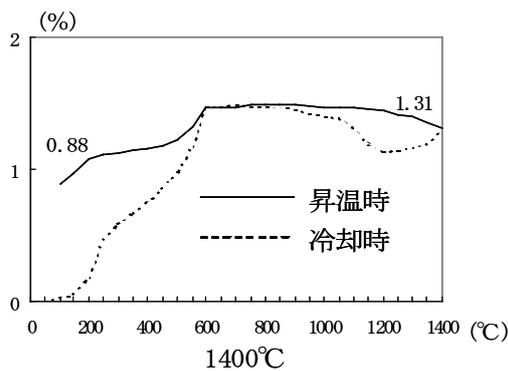


図 熱膨張曲線

各温度条件で焼却した鋳型と CP チタン JIS 規格第 2 種を使用して CP チタン鋳造冠を作製した。鋳放し面の肉眼観察では、800℃から 1200℃ではいずれの焼却温度でも黒灰色を呈したが、1300℃以上では焼却温度条件は違っても金属色を呈した鋳造体を得られた。



金属組織観察では、全ての埋没材で不純物の存在と思われる部分がみられた。1300℃以上で作製した鋳造体ではその部分の減少が認められた。



EPMA 観察では、金属組織観察と同様に 1300℃以上で作製した鋳造体で、反応層における Si、P および O の減少を認められた。

結果、トリジマイトを基材とした試作埋没材とコントロールとした市販のリン酸塩系埋没材を高温で焼却し鋳造した CP チタン鋳造冠の精度との有意な差は無く、トリジマイトの効果はみられなかった。

5. 研究組織

(1) 研究代表者

井上 太郎 (INOUE TARO)
大阪歯科大学・歯学部・助教
研究者番号：50309184