

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 3 月 31 日現在

機関番号：11301
 研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2011～2012
 課題番号：23792203
 研究課題名（和文） ECR プラズマ CVD セラミックコーティングの硬質レジン前装冠への応用
 研究課題名（英文） Application to Composite Resin Facing Crown of ECR Plasma CVD Ceramic Coating.
 研究代表者
 丸森 亮太郎（MARUMORI RYOTARO）
 東北大学・大学院歯学研究科・大学院非常勤講師
 研究者番号：80534065

研究成果の概要（和文）：

最先端成膜プロセス技術の一つ、マイクロ波プラズマCVD (Chemical Vapor Deposition) 成膜技術により、白金加金表面へのチタニアコーティングを試みた。その結果、(1)結晶相の主要な生成物としてルチル型チタニアおよびTiO₂が認められた。(2)測色結果では、白金加金は金属色を十分に遮蔽しているとはいえない結果であった。(3)SEMによる観察では、等方性の結晶組織が観察された。

研究成果の概要（英文）：

Metal is currently widely used in dentistry, but it has an esthetic disadvantage because of its color. In this study, TiO₂ Films were prepared on titanium used as a dental metal by microwave plasma CVD for use as whiteners.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：医歯薬学

科研費の分科・細目：歯学・補綴系歯学

キーワード：プラズマ CVD, チタニア, 硬質レジン前装冠

1. 研究開始当初の背景

硬質レジン前装冠は、陶材焼付前装冠と比較して、操作簡便、安価、金属を選ばない、製作中の変形がない、脆さがない、口腔内での修理が容易など多くの利点を有することから、前歯部への健康保険適用のもと広く臨床応用されている。しかしながら、レジン-金属間の化学接着のみでは結合力が不十分であるため、リテンションビーズによる機械的維持力を利用して、レジン-

金属界面の微小剥離とそれによる変色や前装部の剥離などを防止しているのが現状である。リテンションビーズの存在は、鑄造後のメタルフレームの厚さ調整を不可能にしているばかりでなく、レジン層の厚さの確保を困難にしているため、レジン前装冠は色調再現性に大きな欠点を有している。そこで申請者はこのリテンションビーズ(金属部 0.15～0.3mm)とオペークレジン(金属色の遮蔽層 0.3～0.5mm)の代わりに、メタルフレー

ム上に薄いセラミックス層を形成し、出来たセラミックス層上にレジンを築盛、重合することによって、高い結合力と高い色調再現性を併せ持つ、新しい硬質レジ前装冠を製作することを考えた。

そしてこれまでの研究により申請者は、研究協力者である東北大学金属材料研究所の後藤らの開発したプラズマ CVD 装置 (Chemical Vapor Deposition)を用いて、臨床で汎用されている金パラジウム銀合金の板状試料上に 0.1mm 以下の非常に薄い被膜ながら、金属色を遮蔽するのに十分な白色不透明の TiO_2 膜を成膜することに成功した。さらにマイクロ波出力、基板温度、成膜圧力をそれぞれ $P_M=2\text{kW}$, $T_{\text{dep}}=500^\circ\text{C}$, $P_{\text{tot}}=3$ または 5Torr にした場合が、 $30\sim 50\mu\text{m}$ の TiO_2 膜を生成するための至適条件であることを突き止めた。また、生成された TiO_2 膜の微細構造が直径数 100nm 程度の球状粒子から構成され、球状粒子が連結して網目状のネットワークを形成する、前装レジとの結合に極めて有利な構造であることも明らかにした。この TiO_2 膜と結合力の高いプライマー、レジンの検討を行い、新たな硬質レジ前装冠の製作方法を探索することを背景に本研究を立案した。

2. 研究の目的

本研究の目的は、硬質レジ前装冠の製作過程で従来用いられてきた機械的嵌合によるレジンの維持とオパークによる金属色の遮蔽に替わる、金属とレジンの全く新しいインターフェイスを創造し、より優れた耐久性と審美性を備えた硬質レジ前装冠を製作することである。その手法として、最先端成膜プロセス技術の一つ、マイクロ波プラズマ CVD 成膜技術を歯科分野に応用し、歯科用金属表面へのチタニアコーティングによる、

いわゆる「白い金属」を歯冠修復物に応用することを目的とする。

3. 研究の方法

平成23年度は、製作したチタン基板を用いて、マイクロ波プラズマ CVD 装置にて TiO_2 膜の成膜を行った。基板予備酸化温度が $700^\circ\text{C}\sim 1000^\circ\text{C}$ 、酸素分圧が約 10Pa の雰囲気中にて10時間予備酸化を行った後に、マイクロ波プラズマ CVD 装置にて成膜した。ISO-26443のセラミックスコーティングの付着強度評価法に基づき、各条件にてマイクロ波プラズマ CVD にて成膜された被膜の付着強度を評価した。デジタルロックウェル硬度計(FUTURE-TECH FR-1e)を用い、成膜した被膜の表面に $588.6\text{N}(60\text{kgf})$ の一定の力で圧痕を付け、その周囲の膜の状態を光学顕微鏡にて倍率100倍にて観察し、付着強度を評価した。

平成24年度は、金属は白金加金を使用し、白金加金表面への TiO_2 膜の成膜を試みた。前年度の純チタン表面への成膜条件を基に、マイクロ波出力(P_M)、成膜圧力(P_{tot})を各3段階に変化させ、プラズマ CVD コーティングを行った。

実験項目

- (1) X線回折による結晶相同定
- (2) 高速分光光度計による測色
- (3) SEMによる微細組織観察

以上の3項目を行った。

4. 研究成果

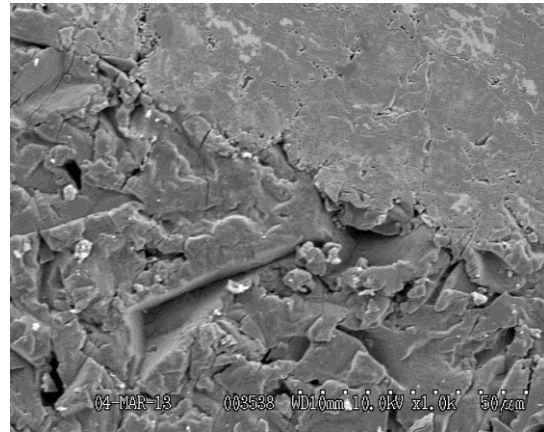
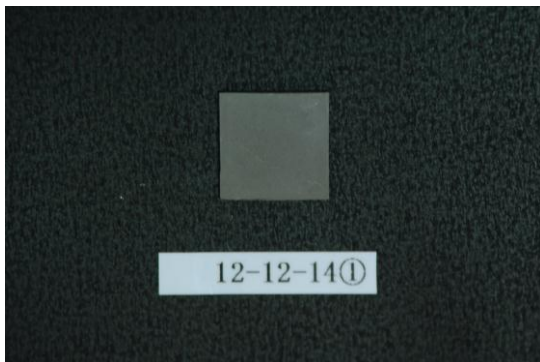
チタン基板の結果は、予備酸化温度 800°C の場合では、 $P_{\text{tot}}=0.2\text{kPa}$, $P_M=0.8\text{kW}$ 、予備酸化温度 850°C の場合では、 $P_{\text{tot}}=0.2\text{kPa}$, $P_M=0.8\text{kW}$ 及び $P_{\text{tot}}=0.4\text{kPa}$, $P_M=1.0\text{kW}$ 、予備酸化温度 900°C の場合では、 $P_{\text{tot}}=0.4\text{kPa}$, $P_M=0.8\text{kW}$ が付着強度評価のための圧痕周

困の評価分類模式図において、比較的良好的なClassを示したが、本実験でそれぞれ予備酸化温度、マイクロ波出力、成膜圧力を変化させた値の範囲では、明らかな違いは見られなかった。しかし、成膜圧力が高く、マイクロ波出力が強くなるほど付着強度が下がる傾向が見られた。また、同一条件の試料においても、付着強度に違いが見られた。これはプラズマや、パラメータの安定性が原因であることが考えられた。

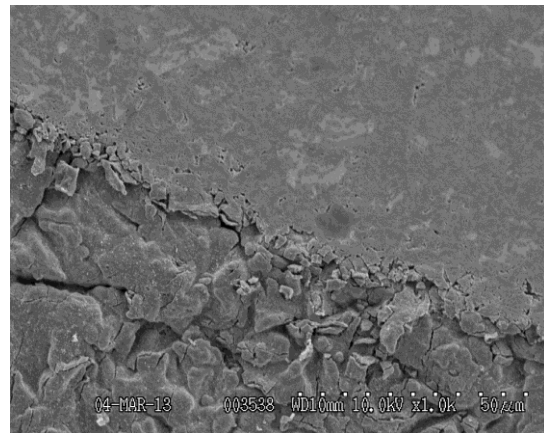
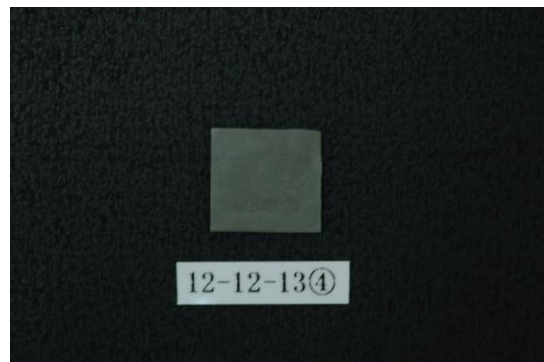
白金加金を基板として用いた実験において、(1)X線回折による結晶相同定では、結晶相はいずれの条件においても、主要な生成物としてルチル型チタニアおよびTiO₂が認められた。(2)高速分光光度計による測色結果では、白金加金(金70, 銀4.7, 白金6.0, 銅19, その他:イリジウム)は金属色を十分に遮蔽しているとはいえない結果であった。これは、当分野で今までに行った、金銀パラジウム合金を基板とし実験を行った際の結果同様、基板に銀が含まれていることが原因と思われた。(3)SEMによる微細組織観察では、等方性の結晶組織が観察されたが、結晶構造が粗造であり組織的にはまだ脆弱であった。

以下に成膜圧力 2.0×10^2 Pa, ①マイクロ波1.0 kw, ②マイクロ波0.8 kw, ③マイクロ波1.2 kwにてそれぞれ成膜した基板とロックウェル試験のSEMを示す。

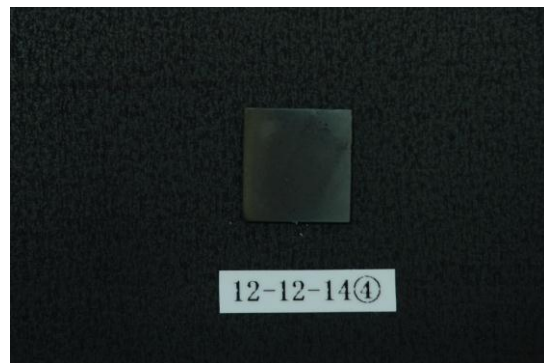
① マイクロ波1.0 kw

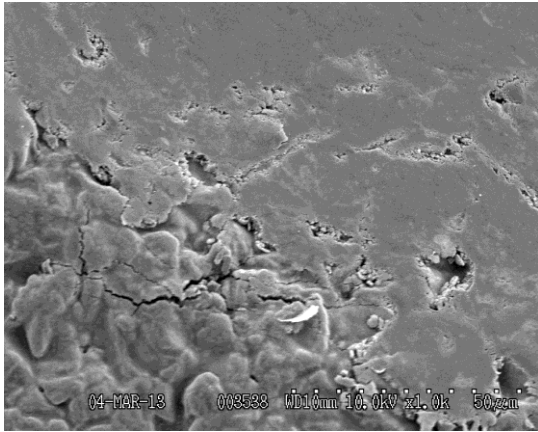


② マイクロ波0.8 kw



③ マイクロ波1.2 kw





本研究の目的は、歯科用金属への白色コーティングによる審美性の改善であった。平成24年度に行った白金加金へのプラズマCVDコーティングの実験結果からは、白金金属色の十分な遮蔽効果が認められたとは言いがたい。しかしながら、基板に含まれている銀が原因であると思われることが分かっており、白色コーティングに向けて基板条件を検討するにあたりこの解明は大きな前進である。今後の展望としては、基板条件、成膜条件を検討し、より白色化できる条件を探すと共に、臨床応用への必須条件である付着強度の評価を実施していく予定である。また白金加金に加え、より銀を含まない純白金についても研究を進める予定である。

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] (計0件)

[学会発表] (計0件)

[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

6. 研究組織

(1) 研究代表者

丸森 亮太郎 (MARUMORI RYOTARO)
東北大学・大学院歯学研究科・大学院非常勤講師
研究者番号：80534065

(2) 研究分担者 ()

研究者番号：

(3) 連携研究者 ()

研究者番号：