

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 1 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26462877

研究課題名(和文) レーザー照射部温度のインプロセスモニタリングによるハイブリッド歯冠形成法の確立

研究課題名(英文) The building of tooth crown by ceramics-based additive manufacturing based on the temperature control at laser-irradiated area

研究代表者

古本 達明 (Furumoto, Tatsuaki)

金沢大学・機械工学系・教授

研究者番号：60432134

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)：窩洞内部に生体材料粉末を選択的に積層造形する技術を確立するため、造形に適した生体材料、粉末堆積方法、レーザー照射条件を検討し、セラミックスや歯質への造形実験を行った。その結果、 $\beta$ -TCP粉末が最も積層造形に適し、造形物の下部にレーザープロファイルに起因した熱影響層が形成され、熱影響層を低減させる条件選定が必要なこと、造形物の溶融・凝固幅がレーザー条件から算出でき、適切な選定によって積層造形できることなどを明らかとした。赤外線輻射温度計による温度計測では、粉末表面からのブルーム光を受光して正確な計測が困難であるため、温度計の受光波長域を変更した測定手法を確立する必要があることがわかった。

研究成果の概要(英文)：In order to establish the additive manufacturing technology of biomaterial powder on the prepared cavity of human tooth, various biomaterial powders were built on the substrate and the building conditions were optimized. The depositing method of biomaterial powder on the substrate was also evaluated. As results, the biomaterial powder had cohesive property and was deposited on the substrate by coating the suspensions which were including the biomaterial powders. The  $\beta$ -TCP powder was the suitable for the building on the substrate when the Yb: fiber laser was used. The aspect of built structure was controllable by laser conditions. The heat-affected zone was formed around the built structure, therefore the laser conditions to prevent the HAZ should be selected. When the temperature during laser beam irradiation was measured by the two-color pyrometer, it was difficult to obtain the temperature of biomaterial powder due to the gas plume which was formed from the laser irradiated area.

研究分野：Additive Manufacturing

キーワード：Additive Manufacturing ハイドロキシアパタイト レーザー 粉末

### 1. 研究開始当初の背景

歯周病と並び歯科の二大疾病の一つであるう蝕治療では、初期であれば切削による侵襲処置を行わず、罹患部位の再石灰化を促進するための治療法が有効であると考えられる。そのため、う蝕を細菌による感染症として捉え、罹患歯質表面にレーザー照射を行って原因菌を殺菌し、歯質の除去を可及的に抑制する最小侵襲処置が注目されている。レーザー治療は、回転切削器具と比較して不必要に健全歯質を除去することが無く、治療時の振動や音も殆ど発生しないため、患者に対して恐怖感を与えない。また、Nd:YAG レーザーは、健全歯質に比べ罹患歯質の吸収率が大きいいため、罹患歯質に対して選択的にレーザーを吸収させて除去する治療が可能である。さらに、レーザーは疼痛抑制効果があるため無麻酔で処置が行え、また、非接触であるため感染症の予防にも効果的であるなど、数多くの利点を有する。

他方、工業分野では薄板状に堆積させた各種粉末に対して選択的にレーザー照射を行い、レーザー照射部を熔融・凝集・固化させながら層状の結合物を製作し、その結合物を積層させながら3次元構造物を造形する手法が注目されている。3Dプリンターとして名を馳せている積層造形法は、ナイロンやポリカーボネートなど樹脂系材料を対象とした研究だけでなく、銅合金系、鉄系、チタン系をはじめとした金属材料、アルミナや酸化ケイ素といったセラミックス材料など、多くの材料が対象として考えられ、その適用研究が進められている。近年では、工業分野のみならず医療分野での事例が報告されるようになってきた。そこで、セラミックスやハイドロキシアパタイトなど歯質を構成し得る粉末が歯質表面に造形できれば、初期う蝕のみならず失活歯に対しても充てん・再生が可能になるという着想を得た。切削や研削を代表とする除去加工法に対して付加加工法に属する積層造形法は、複雑形状が容易に造形できる事に加え、特にセラミックス粉末は十分な強度を持つため、直接的な造形物が製作できる利点を有している。

これまで、生体材料やセラミックスなど硬脆材料のレーザー加工特性を検討し、波長や発振形態の異なるレーザーを用いた材料の吸収・透過特性、熱特性、加工特性などを明らかとしてきた。また、各種試料にレーザー照射したときの表面温度について、開発したファイバー導光型の赤外線放射温度計で測定し、照射部の状態を温度の観点から考察してきた。さらに、レーザー照射に起因して照射部近傍に生じる衝撃応力について、一次元弾性応力波理論に基づく測定手法を提案し、照射条件と衝撃応力との関連を明らかとした。そして、無機材料粉末とレーザー照射の併用で発現する殺菌効果は、レーザー誘起衝撃応力による物理的作用が寄与しているものの、照射で生じる加熱によって細胞壁が破壊されることが

主因であることを示唆してきた。

一方、積層造形分野では、レーザー照射に起因した金属粉末の結合メカニズムを知るため、結合物の機械特性や熱特性を実験的に調べてきた。また、レーザー照射時の様子を高速カメラで視覚的に捉え、材料の加熱から熔融・凝固にいたるプロセスを詳細に解明してきた。さらに、金属粉末を用いた積層造形法で高精度な射出成形金型を製作する技術を確立すると共に、金型内部に冷却用水管を配置したハイブリッド金型の製造法を提案してきた。

### 2. 研究の目的

本研究では、これまでに得た各分野における知見を融合し、う蝕などに起因して形成された窩洞や失活歯の表面に対して、選択的レーザー照射を行いながらハイドロキシアパタイト粉末(以下、HAP粉末)を接合させる技術を確立することを目的とする。歯質表面にHAP粉末を薄層状に堆積させ、HAP粉末の粒径や堆積厚さなどの諸条件とレーザー照射条件との関係を調べながら、エナメル質および象牙質表面との接合特性を明らかとする。そして、選択的にHAP粉末の堆積・接合を繰り返すことで、従来から行われてきた光重合によるレジンを充てんに代わる、新しい充てん治療法の確立を目指す。

### 3. 研究の方法

#### (1) アパタイト粉末のレーザー結合技術確立

予備実験で、酸化チタン粉末を含有した懸濁液を歯質表面に塗布・乾燥させてレーザー照射すると、粉末が熔融して歯質表面に凝固する現象が生じることがわかった(図1)。そこで、歯質となり得るHAP粉末に適用し、レーザー照射条件を変えながらHAP粉末の加工特性を調べる。実験には、歯科臨床で一般的に使用されるNd:YAGレーザー、CO<sub>2</sub>レーザー、Er:YAGレーザーを用いる。粉末粒径、形状、塗布厚さなどをパラメーターとして、粉末に対するレーザー吸収特性を考慮しながら各レーザーによる熔融・凝固特性を調べる。このとき、塗布粉末を透過したレーザーが歯質表

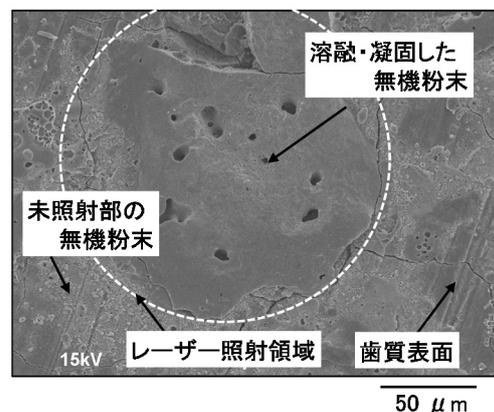


図1 熔融・凝固した酸化チタン粉末

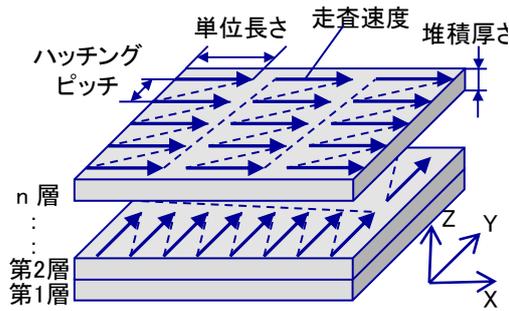


図2 レーザー照射パラメーター

面に直接照射される懸念があるが、塗布厚さを制御することで影響が及ばないように配慮する。特に、粉末粒径はレーザー加工性に最も影響を及ぼす因子であり、ふるい分け器を用いて使用する粒径分布を精細に管理する。

また、歯質表面に対して HAP 粉末を高精度に凝固させるためには、レーザー走査速度、ハッチングピッチ、単位時間あたりに照射されるエネルギー密度などの因子が存在する(図2)。そこで、諸条件とレーザー結合特性との関係も明らかにする。加工後、得られた HAP 粉末の凝固物は、その表面を光学顕微鏡や電子顕微鏡で観察すると共に、結合部の気孔率やかさ密度を評価する。

#### (2) 歯質に対する HAP 粉末の接合特性評価

HAP 粉末のレーザー加工性を明らかとした後、HAP 結合物と歯質との接合性を調べる。歯質と HAP 凝固物との接合断面について、X 線装置を用いた EDX 分析や EPMA 分析を行い、得られた結果から歯質と HAP 凝固物との接合特性を明らかとする。

#### (3) HAP 粉末の積層造形技術の確立

得られた結果から、HAP 粉末の塗布および選択的レーザー照射を繰り返し行い、歯質表面に HAP 凝固物を積層造形して任意の歯冠形状を製作する。得られた造形物は、表面および側面の面粗度を 3 次元粗さ計で測定すると共に、設定形状に対する寸法精度を評価する。また、造形物の断面観察や X 線分析も行い、加工条件にフィードバックしながら高精度な造形技術確立に向けて取り組む。

### 4. 研究成果

#### (1) 生体材料粉末の堆積技術の確立

実験に使用した粉末は、粉末形状(球形、いびつ)、平均粒径(4  $\mu\text{m}$ ~1.7 mm)、化学式が異なる 4 種類のハイドロキシアパタイト粉末である。アルミナプレート(ミスミ製:アルミナ 96)に対して、ブレードを用いて各粉末を薄く堆積させ、波長が異なる Nd:YAG レーザー、Yb ファイバーレーザー、CO<sub>2</sub> レーザー、Er:YAG レーザーを用いて条件を変えながら造形実験を行った。しかしながら、ブレードによる粉末の堆積では、自重のみで粉末を堆積させることとなるため十分な充てん密度が得られず、いずれも良好な結合物を得ることができなかった。

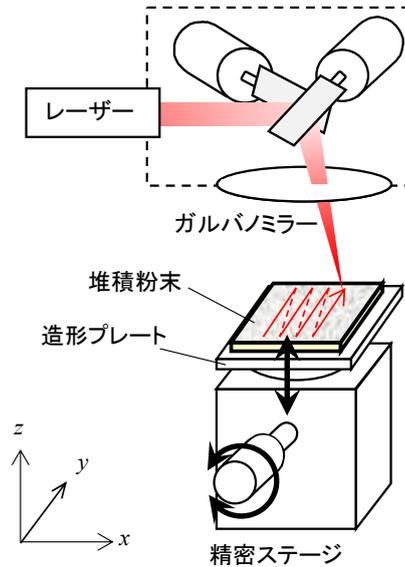


図3 粉末結合実験方法

表1 実験条件

|        |        |                        |
|--------|--------|------------------------|
| レーザー   |        |                        |
| ビーム径   | $\phi$ | 45 - 90 $\mu\text{m}$  |
| レーザー出力 | $P$    | 30.5 - 39.4 W          |
| 走査速度   | $V$    | 1 - 50 mm/s            |
| 走査長さ   |        | 10 mm                  |
| 粉末     |        |                        |
| 種類     |        | $\beta$ -TCP           |
| 堆積厚さ   | $t$    | 17 - 116 $\mu\text{m}$ |

そこで、手動加圧用治具を用いて、プレートに対して粉末を加圧しながら堆積させる「加圧法」、粉末と精製水の懸濁液をプレート上に塗布した後に乾燥させて堆積させる「懸濁液乾燥法」の 2 種類について検討を行った。その結果、いずれの手法でも堆積粉末の充てん密度を改善させることができた。そして、各種レーザーを用いて粉末結合実験を行った結果、波長が 1074 nm である Yb ファイバーレーザーと  $\beta$  TCP 粉末の組み合わせが最も結合させやすいことがわかった。そこで、以後は Yb ファイバーレーザーと  $\beta$  TCP 粉末を用いて実験を行うこととした。また、歯質表面に粉末を堆積させることを考慮し、懸濁液乾燥法による粉末堆積を行うこととした。併せて、粉末の堆積厚さは、堆積した粉末上に真球を押しつけて得られる圧痕の幾何形状から求める手法を構築した。

#### (2) アパタイト粉末のライン結合実験

実験装置の概要を図3に示す。Yb ファイバーレーザー(SUNX 製:LP-F13W-P49)は、ガルバノメーターを介して堆積粉末表面に導くことができる。表1に示す条件で 10 mm のライン照射実験を行い、各条件における造形可否を調べると共に、光学顕微鏡を用いて結合物の観察を行った。

図4は、レーザー出力と粉末厚さを変化さ

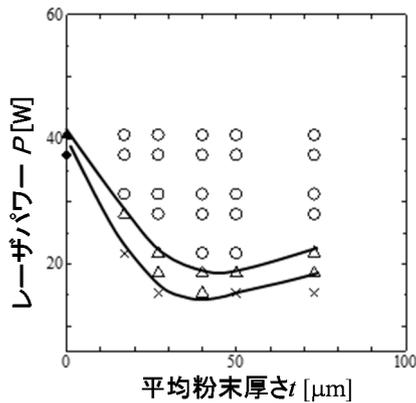
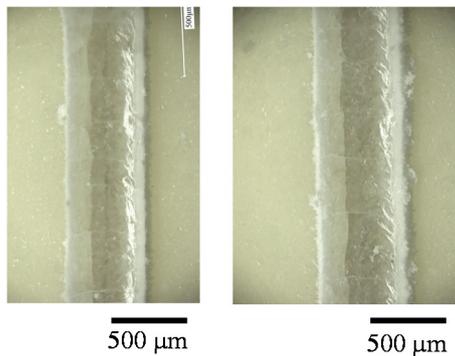


図4 堆積厚さとレーザーパワーの変化による造形可否の変化



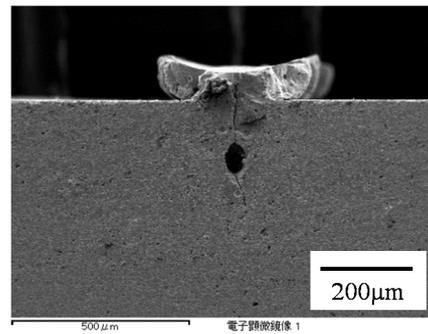
(a) 出力 : 30.5 W (b) 出力 : 39.4 W  
図5 レーザー条件による結合物の変化

せた時の造形可否を示す. 粉末厚さが  $17 \mu\text{m}$  の時, レーザー出力が  $30 \text{ W}$  を超えると良好な結合物が得られたのに対して, 堆積厚さが  $40 \mu\text{m}$  までの条件では良好な結合物が得られるレーザー出力が小さくなった. 使用したレーザーが粉末に対して透過性を有し, 堆積粉末が薄いときレーザー照射にともなう十分な加熱が行われなかったためと考えられる. 一方, 粉末厚さが  $40 \mu\text{m}$  を超えると, 粉末が熔融するために必要なエネルギーが増加するため, 結合できるレーザー出力が増加したと考えられる. これらの結果より, 堆積粉末を結合させるためには, 粉末に対するレーザー吸収特性, レーザー吸収に起因して生じる熱, 粉末内部の熱伝導特性を考慮する必要があるといえる.

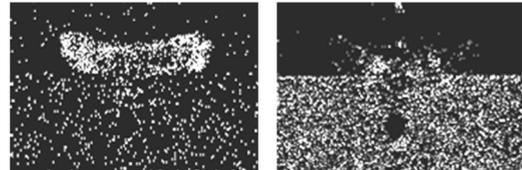
図5は, 結合物を光学顕微鏡で観察した一例である. いずれの条件でも堆積粉末がプレート上に結合されていることがわかる.

### (3) アパタイト粉末の接合特性

アパタイト粉末の接合特性を調べるため, プレート上に結合物を造形した後, プレートを切断して切断面をSEM観察するとともに, EDX分析を行って結合状態を評価した. 図6は, 切断面のSEM画像, CaおよびAlの分析結果である. 図に示すように, プレートに対して粉末が熔融凝固し, 結合物内部はCaが多く検出されていた. このことから, プレート上の

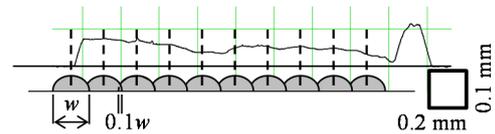


(a) 切断面のSEM画像

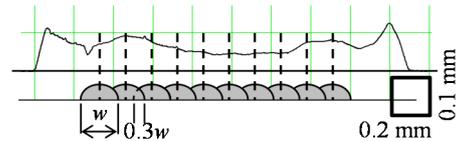


(b) Caの分布 (c) Alの分布

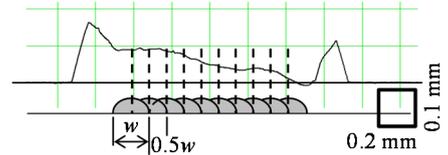
図6 切断面のEDX分析結果



(a) オーバーラップ率 : 10%



(b) オーバーラップ率 : 30%



(c) オーバーラップ率 : 50%

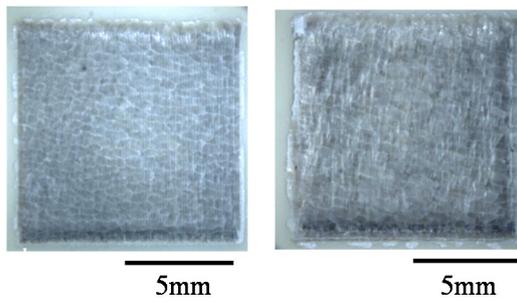
図7 ライン間隔による表面性状の変化

結合物は粉末が熔融凝固したものであり, SEM画像からも良好な接合が行われていることがわかる.

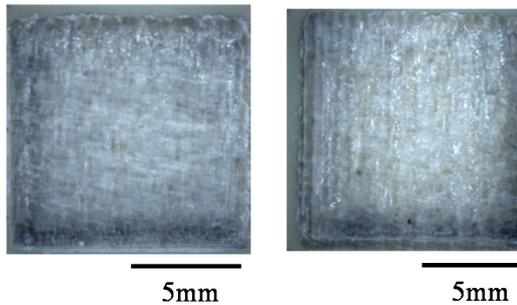
しかしながら, プレート内部にはレーザー照射に起因して生じた熱影響層が存在していた. この形状は, 照射したレーザープロファイルと相関があった. そこで, 良好な結合物を得るためにはビームプロファイルもまた考慮する必要があることがわかった.

### (4) アパタイト粉末の面結合

得られた結果を基に, プレートに対して並列状にライン造形を行って面結合を行った. ライン間隔は, 熔融幅に対するオーバーラップ率を変化させ, 得られた結合物を光学顕微鏡で観察するとともに, 3次元粗さ計を用いて結合物上面の輪郭測定を行った.

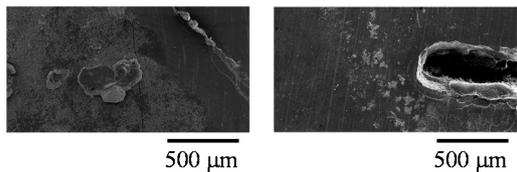


(a) 積層数：1層 (b) 積層数：2層



(c) 積層数：3層 (d) 積層数：4層

図8 積層した結合物



(a) エナメル質 (b) 象牙質

図9 歯質表面への粉末結合

図7は、ライン間隔の違いによる結合物表面の形状を比較した結果である。オーバーラップ率が小さいと、ライン間隔が広がることでライン結合が有する曲率が顕著となり、大きくなりすぎると隣のライン結合物と一体化された結合物が得られ、表面形状に偏りがみられた。本実験の範囲では、オーバーラップ率が30%のとき、最も結合物表面が平坦な結果が得られた。

図8は、これらの条件を用いて面結合を層状に積層し、得られた結合物を光学顕微鏡で観察した結果である。図に示すように、平坦な面結合を行うことで、層状に積層させることができ、3次元構造物が得られることがわかった。

#### (5) 歯質表面への粉末結合

得られた結果を用いて、抜去したエナメル質および象牙質にアパタイト粉末を結合し、SEMで比較した結果を図9に示す。エナメル質、象牙質ともに、熱影響層の課題を有するものの、粉末を結合させることができた。

### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計3件)

- (1) 古本達明：レーザー照射による歯質除去と

殺菌効果発現, 砥粒加工学会誌, 査読無, 61, 4 (2017) pp.191-194.

- (2) 辺見慎吾, 古本達明, 細川晃, 小谷野智広, 上田隆司: CO<sub>2</sub>レーザー照射時の歯質除去特性, 砥粒加工学会誌, 査読有, 59, 3 (2015) pp.145-147.

- (3) Shingo Henmi, Tatsuaki Furumoto, Takashi Ueda, Akira Hosokawa, Tomohiro Koyano: Study on Reduction of Deformation of Consolidated Structure by Layered Manufacturing System, Optimization of Laser Scanning Method, Proc. of ICPE2014, 査読有, (2014) pp.275-278.

〔学会発表〕(計4件)

- (1) 天野裕晴, 古本達明, 橋本洋平, 小谷野智広, 細川晃: 骨足場へのEr:YAGレーザー照射時の温度測定, 日本機械学会第11回生産加工・工作機械部門講演会, 2016年10月23日, 名古屋大学(愛知県名古屋市).

- (2) 松波宏幸, 古本達明, 橋本洋平: 生体用材料の積層造形に関する研究, 日本機械学会北陸信越支部第45回学生員卒業研究発表講演会, 2016年3月4日, 信州大学(長野県長野市).

- (3) 天野裕晴, 古本達明, 橋本洋平, 小谷野智広, 細川晃: 歯質表面に対するCO<sub>2</sub>レーザー照射時の赤外線・AE波測定による除去機構検討, 2015年度精密工学会北陸信越支部学術講演会, 2015年11月14日, 金沢工業大学(石川県金沢市).

- (4) 辺見慎吾, 古本達明, 細川晃, 小谷野智広, 上田隆司: レーザによる歯質除去に関する研究, 歯質の変性と表面温度の関係, 日本機械学会第10回生産加工・工作機械部門講演会, 2014年11月16日, 徳島大学(徳島県徳島市).

〔図書〕(計2件)

- (1) 古本達明, 天野裕晴: レーザ照射に起因した口腔内細菌の殺菌メカニズムの解明に関する研究, レーザ照射時の赤外線およびAE波測定による歯質除去機構の考察, 金沢大学ベンチャービジネスラボラトリー年報2016, 査読無 (2017), 掲載決定.

- (2) 古本達明, 辺見慎吾: レーザ照射に起因した口腔内細菌の殺菌メカニズムの解明に関する研究, 炭酸ガスレーザー照射時の歯質除去機構, 金沢大学ベンチャービジネスラボラトリー年報2015, 査読無 (2016) 75(17-18).

### 6. 研究組織

#### (1) 研究代表者

古本 達明 (FURUMOTO TATSUAKI)

金沢大学・機械工学系・教授

研究者番号: 60432134