学位論文題名

冷間等方加圧を利用した新しい陶材インレー作製法

学位論文内容の要旨

【緒言】

陶材は古くから生体親和性、化学安定性、審美性に優れた修復材料として評価されており、接着技術の進歩により近年、見直されている。しかし、従来の陶材インレー作製法は技工操作が煩雑で熟練を要するほか、製作者の技量により製作物のバラツキが大きい。また、多数回焼成を行うため強度の低下やマイクロクラック発生の危険性などの欠点がある。本研究では陶材成形の簡便化、製作物の均質化を図るため、一般工業界においてセラミックスの粉末成形に応用されている冷間等方加圧(CIP)法を導入し、CIPを利用した陶材インレー作製プロセスを確立、その物性を評価し、本方法に適する陶材粉末および模型材選定したのち、これらの材料を用いて作製した陶材インレーの寸法適合性を検討した。

【材料および方法】

実験1 CIPによる陶材成形と物性評価

陶材粉末として、G-CERA COSMOTECH II (以下CSと記す)、及びCSより有機物を除いた陶材(P0)を用い、耐火模型に乾燥状態のまま過剰に充填、密閉しCIP装置にて100, 200, 300, 400MPaで加圧成形を行った。これを形態修正後、真空焼成した(970℃)。また対照に、陶材粉末を手指圧で充填した0 MPaの試料と、従来のコンデンス法により築盛し一回焼成した試料(コンデンス法)を作製し、焼成収縮、密度、ビッカース硬さ、二軸曲げ強さ、SEM観察を評価した。

実験2 シリカ添加による影響

シリカ粉末に破碎状、球状、細粒状、フュームドシリカの4種を用い、P0と重量比で0, 10, 30, 50 %で配合し、各配合物を耐火模型に手指圧で充填、970-1130℃の焼成温度で焼成し、シリカ選定のため色調、収縮を比較した。また収縮率を定量的に測定するため破碎状シリカを同様に混合したものをを用い、400MPaで加圧成形後、焼成し(890-1130℃)、MMA樹脂に包埋、中央部で切断し図形計測プログラムにて焼成時の収縮率を算出した。

実験3 模型材の寸法変化

耐火模型材には、CVの粉末と専用練和液を用いたCV(30%コロイダルシリカ)、40%お

よび50%コロイダルシリカを用いたCV40, CV50を使用し, 硬化膨張, 熱膨張, CIP圧力による影響を調べたのち各過程での寸法変化を検討した。模型の寸法変化は $\phi 4 \times 8$ mmの円柱状試料を作製し, 直径及び長さの変化率から求めた。

実験4 インレー体の寸法適合性

上端の直径6 mm, 高さ2 mm, 片側傾斜角10度のテーパーを付与したインレー用金型, および同寸法の測定用金型を用意し, インレー用金型を印象採得後, CV50を使用して耐火模型を作製した。これに破碎状シリカを添加した陶材を用いCIP法によりインレーを作製し, 収縮率を測定用金型を用い, 沈下量から算出した。

【結果および考察】

CIPは「パスカルの原理」を利用し, 圧力媒体を通じすべての方向から等しい圧力を加える方法である。等方的, 静的圧力である静水圧を利用しているため, 通常の一軸圧縮に比べ破壊応力を越える超高压でも近似的に非破壊のまま圧縮可能であり, また複雑な形態にも応用できる。この性質を利用し, 模型を破壊することなく粉末のみを加圧成形するCIP法を確立し, 以下について調べた。

〔実験1〕従来のコンデンス法では微細な陶材粉末が耐火模型表面の凹凸に入り込み焼結したため, 全ての試料で陶材が耐火模型と焼き付き, いくつかの試料では中央部に亀裂が生じていたが, CIP法では陶材は均一に収縮し模型より離型し, 亀裂は観察されなかった。

400 MPaで加圧した圧粉体のSEM像では100 MPaより陶材粉末が緊密に充填されているのが観察され, CIP法で成形した場合, 圧力の上昇にともなって緻密化が進行し, 見かけ密度が大きくなる。このため内部空隙率が減少しCS, 100 MPaで12.7 %の収縮率が, 400 MPaで9.6 %と減少したと考えられる。一方, 焼成体のSEM観察では, 均一に焼成されており, 圧力による違いが見られなかった。これは焼成体の物性値に圧力依存性を認めず, 硬さHv 530-550, 曲げ強さ225-260 MPa, 密度 2.4 g/cm^3 とほぼ一定になった結果と一致した。また, CIP法に比較しコンデンス法では曲げ強さが低下し, バラツキが大きかった事実も, CIP法が均質な製作物を再現性よく得るのに優れた方法であることを示唆している。さらに陶材粉末中の有機物を除去したP0を用いると密度が高くなることから以後P0のみを用いた。

〔実験2〕CIP圧力の増加により焼成収縮はかなり減少するが臨床応用のためには不十分であり, さらに収縮を減少させることを目的として粒径, 形状, 結晶構造の異なるシリカを添加し, CIP法に有効な陶材粉末を検討した。

細粒状及びフュームドシリカを添加した試料は焼成収縮が他の二つに比較し大きく, 透明感が低下している他, かさ密度が大きく, 添加量が10 %以上になると充填時の取り扱いが困難であった。球状シリカでは焼成収縮が最も小さく有効に思えたが, 摩擦力が小さい

ため、400 MPaで加圧成形しても圧力を除去すると粒子間が分離し、圧粉体が容易に崩壊し形態付与が困難であった。破碎状シリカでは焼成収縮が比較的小さく、加圧により互いに差し込み合い、生じた嵌合効力により圧粉体の成形維持性が良く、形態付与が容易であった。そこで破碎状シリカを添加し、シリカ添加量が焼成温度と焼成収縮に与える影響について調べたところ、焼成収縮は焼成温度が高くなるにしたがって増加し、シリカ添加量の増加にともない減少を示した。P0の主成分はSiO₂ 61 %、Al₂O₃ 14 %、K₂O 19 %、Na₂O 6%であり、これに10、30、50 %のシリカを加えると、陶材粉末中のシリカの含有量は64、72、80 %となり、シリカは高融点のため、融解しにくくこのため収縮率が減少したと考えられる。

〔実験3〕 以上では耐火模型に対する陶材の相対的な収縮を測定したが、模型の寸法変化も陶材の寸法適合性に影響を及ぼすため、硬化膨張、熱膨張、CIP圧力の効果を調べた。

硬化膨張はCV、CV40で0.3 %、CV50で0.7 %と膨張が増大し有意に大きな値を示し、また熱膨張率では差を認めなかった。CIP圧力の増加により耐火模型は収縮し、CVを400 MPaで加圧すると約2.3 %の収縮を認めたことから、CVを使用した場合、硬化膨張を考慮しても約2 %の収縮が残り、ポーセレン自身の収縮と合わせCIP法ではかなりの収縮が起きることが予想される。一方、CV50の場合、硬化膨張が増加し、CIP加圧時の収縮が減少するため最終的に0.16 %の収縮になった。

〔実験4〕 現段階で最も有効な模型材を実験3で選択した後、原型に対する寸法適合性を評価した。テーパ一金型を用いた本方法では、耐火模型と陶材の間隙から算出した方法に比べ、より大きな収縮値を示したが、シリカ添加量の増加にともない収縮は減少する定性的な傾向は一致しており、890℃で焼成したP50では最小の1.6 %を示した。

【結 語】

コンデンス法を前提とした陶材粉末及び耐火模型材を、CIP法に適するように改良を加えた結果、焼成収縮の大幅な減少が可能となった。本方法では術者によらず簡便に再現性良く、均質な焼成体を得ることができ、接着性レジンセメントとの併用により臨床への応用も可能になると考えられる。

学位論文審査の要旨

主査 教授 亘理 文夫
副査 教授 大畑 昇
副査 教授 佐野 英彦
副査 助教授 小松 久憲

学位論文題名

冷間等方加圧を利用した新しい陶材インレー作製法

審査は主査、副査全員が一同に会して口頭でなされた。はじめに本論文の要旨の説明を求め、申請者から以下のような内容についての論述がなされた。

近年、接着技術の進歩により陶材は見直されているが、従来の陶材インレー作製法は技工操作が煩雑で熟練を要するほか、製作者の技量により物性に差がでる可能性がある。本研究では陶材成形の簡便化、製作物の均質化を図るため、一般工業界においてセラミックスの粉末成形に応用されている冷間等方加圧(CIP)法を導入し、CIPを利用した陶材インレー作製プロセスを確立、その物性を評価し、本方法に適する陶材粉末および模型材選定したのち、これらの材料を用いて作製した陶材インレーの寸法適合性を検討した。

【材料と方法】

CIP法の手順は耐火模型に陶材粉末を乾燥状態のまま過剰に充填、密閉しCIP装置にて100-400MPaで加圧成形を行い、これを形態修正後、真空焼成する。

〔実験1〕 G-CERA COSMOTECH II (CS)、及びCSより有機物を除いた陶材(P0)を用い、従来法とCIP法との比較、およびCIP圧力による影響を焼成収縮、密度、ビッカース硬さ、二軸曲げ強さ、SEM観察より評価した。

〔実験2〕 シリカ粉末に破碎状、球状、細粒状、フュームドシリカの4種を用い、P0と重量比で0-50%で配合し、シリカ選定のため色調、焼成収縮を比較した。また収縮率を定量的に測定するため破碎状シリカを同様に混合したのを用い、400MPaで加圧成形後、焼成(890-1130℃)し、MMA樹脂に包埋、中央部で切断し図形計測プログラムを用いて焼成時の収縮率を算出した。

〔実験3〕 耐火模型材の寸法変化を知るため、CVの粉末と専用練和液を用いたCV(30%コロイダルシリカ)、40%および50%コロイダルシリカを用いたCV40、CV50を使用し、硬化

膨張，熱膨張，CIP圧力による影響を調べた。

〔実験4〕原型に対する陶材の寸法変化を調べため，インレー用金型を印象採得後，CV50を使用して耐火模型を作製し，これに破碎状シリカを添加した陶材を用いCIP法によりインレーを作製した。なお，収縮率を同寸法の測定用金型を用い沈下量から算出した。

【結果および考察】

〔実験1〕コンデンス法では微細な陶材粉末が耐火模型表面の凹凸に入り込み焼結していたため，全ての試料で陶材が耐火模型と焼き付き，更にいくつかの試料では中央部に亀裂が生じていたが，CIP法では陶材は均一に収縮し模型より離型し，亀裂は観察されなかった。

焼成収縮はCIP成形の上昇に従って減少したが，焼成体の密度，硬さ，曲げ強さでは圧力による違いは認めなかった。しかし，コンデンス法では曲げ強さが低下し，バラツキも大きかった。また，有機物を除去した陶材を用いると密度が高い値を示した。

〔実験2〕収縮を減少させることを目的としてシリカを添加し，CIP法に有効な陶材粉末を検討した結果，細粒状及びフュームドシリカを添加した試料は焼成収縮が他のシリカに比較し大きく，透明感が低下し，シリカ添加量が10%以上になると取り扱いが困難であった。球状シリカでは焼成収縮が最も小さく有効に思えたが，400 MPaで加圧成形しても圧力を除去すると，圧粉体が容易に崩壊した。一方，破碎状シリカでは焼成収縮が比較的小さく，かつ圧粉体の成形維持性に優れていた。そこでこのシリカを添加し，焼成収縮を測定した結果，焼成温度が高くなるにしたがって収縮は増加し，添加量の増加にともない減少を示した。これは，シリカが高融点のため融解しにくくこのため収縮率が減少したと考えられる。

〔実験3〕模型の寸法変化も陶材の寸法適合性に影響を及ぼすため，硬化膨張，熱膨張，CIP圧力の効果を調べたところ，硬化膨張はCV50で他の二つに比較し膨張が倍以上増大した。一方，熱膨張率では差を認めなかった。CIP圧力による寸法変化は圧力の増加により模型は収縮し，コロイダルシリカの濃度の高いCV50では収縮が減少した。

〔実験4〕CV50を使用し，原型に対する寸法適合性を評価した結果，金型を用いた方法では実験2での値に比べより大きな収縮率を示したが，シリカ添加量の増加とともに収縮は減少する定性的な傾向は一致しており，890℃で焼成したP50では最小の1.6%を示した。

これらの結果よりCIP法を用いることにより，陶材成形を簡便かつ短時間で行い，均一な製作物を作製出来ることが示唆された。

以上の論文内容についてひきつづき各審査員と申請者のあいだで，実験方法，結果，考察，展望および関連分野の質疑応答がなされ，申請者はいずれにも明快な回答，説明を行った。本研究は，陶材成形へのCIP応用を可能にした点で独創的な研究であり，今後陶材のみならず他の材料への発展性も考えられる。これらから，歯科医学の発展に貢献する研究であり，博士（歯学）学位の授与に十分値すると認められた。