

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6347792号
(P6347792)

(45) 発行日 平成30年6月27日(2018.6.27)

(24) 登録日 平成30年6月8日(2018.6.8)

(51) Int.Cl.

F I

A 6 1 C 13/083 (2006.01)

A 6 1 C 13/083

請求項の数 2 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2015-551900 (P2015-551900)	(73) 特許権者	000181217
(86) (22) 出願日	平成27年7月8日(2015.7.8)		株式会社ジーシー
(86) 国際出願番号	PCT/JP2015/069695		東京都文京区本郷3-2-14
(87) 国際公開番号	W02016/031399	(74) 代理人	100129838
(87) 国際公開日	平成28年3月3日(2016.3.3)		弁理士 山本 典輝
審査請求日	平成27年10月16日(2015.10.16)	(72) 発明者	星野 智大
審判番号	不服2017-2523 (P2017-2523/J1)		東京都板橋区蓮沼町76番1号 株式会社
審判請求日	平成29年2月21日(2017.2.21)		ジーシー内
(31) 優先権主張番号	特願2014-172684 (P2014-172684)	(72) 発明者	眞塩 剛
(32) 優先日	平成26年8月27日(2014.8.27)		東京都板橋区蓮沼町76番1号 株式会社
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		ジーシー内
		(72) 発明者	藤本 達也
			東京都板橋区蓮沼町76番1号 株式会社
			ジーシー内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 歯科補綴物の製造方法、歯科補綴物用ニケイ酸リチウムブランクの製造方法、及び歯科補綴物用ニケイ酸リチウムブランク

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

歯科補綴物の製造方法であって、

SiO₂を60.0質量%以上80.0質量%以下、Li₂Oを10.0質量%以上20.0質量%以下、及びAl₂O₃を5.1質量%以上10.0質量%以下、ZrO₂を0.1質量%以上10.0質量%以下で含む材料を溶融する溶融工程と、
前記溶融した材料を冷却して固化し、ガラスブランクを得るガラスブランク作製工程と、
前記ガラスブランクを加熱して主とする結晶相がニケイ酸リチウムであるニケイ酸リチウムブランクを得るニケイ酸リチウムブランク作製工程と、
粉砕する工程を有することなく前記ニケイ酸リチウムブランクを切削加工し、後の熱処理をすることなく形状を確定する加工工程と、を含む、
歯科補綴物の製造方法。

【請求項2】

前記ZrO₂が3.1質量%以上10.0質量%以下である請求項1に記載の歯科補綴物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、歯科補綴物の製造方法、歯科補綴物用ニケイ酸リチウムブランクの製造方法、及び歯科補綴物用ニケイ酸リチウムブランクに関する。

【背景技術】

【0002】

近年のCAD、CAMの発展により、歯科補綴物の作製に際して当該歯科補綴物の形状をデータで取り扱い、該データを所定の形式に変換して加工装置に送信することにより、加工装置はデータに基づいて自動に切削や研削等の機械加工を行って歯科補綴物を作製する。これにより迅速に歯科補綴物を提供することができる。

【0003】

このような歯科補綴物は、歯科補綴物としての基本機能である強度、硬さ、口腔内環境に対する化学的耐久性、及び天然歯と同様の審美性（色合い、質感）を有していることが必要である。

10

これに加えて歯科補綴物は例えば咬合面等に複雑な凹凸を有しており、このような複雑な形状を例えば欠け（チップング）等の不具合を生じることなく短時間で機械加工することも重要である。このような短時間で加工できる材料とすることにより、さらに迅速な歯科補綴物の作製が可能となる。

【0004】

特許文献1には、所定の成分を含む歯科補綴物用材料が開示され、これにより上記基本機能と切削性の向上を図っている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

20

【特許文献1】特許第4777625号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかしながら、特許文献1に記載の発明は、切削性に優れるメタケイ酸リチウムを主結晶相とした状態で機械加工し、その後に熱処理をして硬い二ケイ酸リチウムを得る。この場合には機械加工の後に熱処理が必要なので、若干なりとも変形があった。

一方で、主とする結晶相が二ケイ酸リチウムであるときは機械加工性が乏しいため、実質上これを機械加工することはなかった。仮に加工しようとするれば二ケイ酸リチウムが主とする結晶相である状態では迅速な機械加工が困難であり条件が実際の製造に見合うものではなかった。

30

【0007】

そこで本発明は上記問題点に鑑み、精度良い歯科補綴物を迅速に作製する方法を提供することを課題とする。またこれに供する歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランクの製造方法、及び歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランクを提供する。

【課題を解決するための手段】

【0008】

以下、本発明について説明する。

【0009】

第一の本発明は、歯科補綴物の製造方法であって、 SiO_2 を60.0質量%以上80.0質量%以下、 Li_2O を10.0質量%以上20.0質量%以下、及び Al_2O_3 を5.1質量%以上10.0質量%以下で含む材料を熔融する熔融工程と、熔融した材料を冷却して固化し、ガラスブランクを得るガラスブランク作製工程と、ガラスブランクを加熱して主とする結晶相が二ケイ酸リチウムである二ケイ酸リチウムブランクを得る二ケイ酸リチウムブランク作製工程と、二ケイ酸リチウムブランクを機械加工する加工工程と、を含む、歯科補綴物の製造方法である。

40

【0010】

ここで「主とする結晶相」とは、多目的X線回折装置Empyrean(PANalytical)を用いて測定し、リートベルト法による高精度の定量分析の結果、結晶析出割合が最大の結晶相を意味する。以下同様である。

50

また、「ガラスブランク」は溶融した材料を冷却して固化し、未だ二ケイ酸リチウムを主とする結晶相が形成されていない状態のブランク（素材）を意味する。これに対して「二ケイ酸リチウムブランク」は二ケイ酸リチウムを主とする結晶相が形成された状態のブランク（素材）を意味する。

【0011】

第一の本発明は、機械加工が切削加工であってもよい。

【0012】

第二の本発明は、歯科補綴物の形状への機械加工に供される歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランクの製造方法であって、 SiO_2 を60.0質量%以上80.0質量%以下、 Li_2O を10.0質量%以上20.0質量%以下、及び Al_2O_3 を5.1質量%以上10.0質量%以下で含む材料を溶融する溶融工程と、溶融した材料を冷却して固化し、ガラスブランクを得るガスブランク作製工程と、ガラスブランクを加熱して主とする結晶相が二ケイ酸リチウムである二ケイ酸リチウムブランクを得る二ケイ酸リチウムブランク作製工程と、を含む、歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランクの製造方法である。

【0013】

第三の本発明は、歯科補綴物の形状への機械加工に供される歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランクであって、 SiO_2 を60.0質量%以上80.0質量%以下、 Li_2O を10.0質量%以上20.0質量%以下、及び Al_2O_3 を5.1質量%以上10.0質量%以下で含む、歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランクである。

【0014】

第三の本発明では、主とする結晶相が二ケイ酸リチウムであることが好ましい。

【発明の効果】

【0015】

本発明によれば、二ケイ酸リチウムブランクをそのまま機械加工することで歯科補綴物を得ることができるので、高い強度を有する精度よい歯科補綴物を迅速に提供することが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【0016】

【図1】歯科補綴物10の外観斜視図である。

【図2】歯科補綴物10の断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0017】

1つの形態にかかる歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランクは、角柱、円柱等のような柱状を有するブロック状の素材であり、ここから切削等の機械加工により変形や削り出しをして歯科補綴物を作製することができる。

図1、図2には1つの例である歯科補綴物10を示した。図1は歯科補綴物10の外観斜視図である。図2には図1にII-IIで示した線に沿って矢印方向に切断したときの歯科補綴物10の断面図を表した。図1、図2からわかるようにこの例の歯科補綴物10は歯冠であり、口腔内側面10a、及び側面10bは天然歯が模擬された形状とされている。一方、歯科補綴物10のうち口腔内側面10aとは反対側は支台側面10cとされ凹状である。当該凹状とされた内側に支台を挿入して口腔内に歯科補綴物10を保持する。

【0018】

歯科補綴物は複雑な形状を有するとともに、その一部が薄く形成されており、このような形状を精度よく、欠け（チップング）等を生じさせることなく、速く機械加工するためには、歯科補綴物を構成する材料の影響も大きい。これに対して本形態では歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランク及びここから作製される歯科補綴物は次のような歯科補綴物材料により形成されている。

【0019】

すなわち、歯科補綴物用材料は、次の成分を含んで構成されている。そして、その主とする結晶相が二ケイ酸リチウムである。

SiO_2 : 60.0 質量%以上80.0 質量%以下
 Li_2O : 10.0 質量%以上20.0 質量%以下
 Al_2O_3 : 5.1 質量%以上10.0 質量%以下

【0020】

これらが上記範囲を外れると機械加工性に不具合を生じる可能性が高くなる。

また、その他、 SiO_2 は、この範囲を外れると均質なガラスブランクを得ることが困難となる。好ましくは65 質量%以上75 質量%以下である。 Li_2O もこの範囲を外れると均質なガラスブランクを得ることが困難となる。好ましくは11 質量%以上17 質量%以下である。そして Al_2O_3 は、5.1 質量%より少ないと二ケイ酸リチウムが主とする結晶相として析出するが機械加工性に問題が生じ、10.0 質量%より多くなると主とする結晶相が二ケイ酸リチウムでなくなってしまう（例えばリチウムアルミノシリケートが析出する。）。 10

【0021】

さらに、歯科補綴物用材料は、上記に加えて次の成分を含んでいてもよい。ただしここに表される成分は0 質量%を含んでいることからわかるように、必ずしも含まれている必要はなく、いずれかが含まれてもよいという意味である。

Na_2O : 0 質量%以上2.8 質量%以下
 Rb_2O : 0 質量%以上2.8 質量%以下
 Cs_2O : 0 質量%以上2.8 質量%以下
 Fr_2O : 0 質量%以上2.8 質量%以下
 K_2O : 0 質量%以上10.0 質量%以下
 MgO : 0 質量%以上3.0 質量%以下
 CaO : 0 質量%以上3.0 質量%以下
 BeO : 0 質量%以上3.0 質量%以下
 SrO : 0 質量%以上10.0 質量%以下
 BaO : 0 質量%以上10.0 質量%以下
 RaO : 0 質量%以上10.0 質量%以下 20

【0022】

これらの成分により歯科補綴物用材料を作製する際における材料の熔融温度を調整することができる。ただし、これより多くの当該成分を含有させても効果の向上は限定的であるため上記した範囲であることが好ましい。 30

【0023】

また、結晶核形成材となる次の化合物を含めてもよい。結晶核形成材の材料の種類は特に限定されることはなく、公知の結晶核形成材を広く適用することができる。これにより二ケイ酸リチウム結晶を形成する結晶核が効率よく生成される。結晶核形成材の例示として P_2O_5 、 ZrO_2 、 TiO_2 、 Ta_2O_5 、 ZnO 、 Nb_2O_5 、 Y_2O_3 、 La_2O_3 等を挙げることができ、このような材料を0 質量%以上10.0 質量%以下の範囲で含有できる。

【0024】

これに加えて歯科補綴物用材料は、天然歯に対する審美性の観点からの違和感を解消するため、公知の着色剤を含めてもよい。これには例えば V_2O_5 、 CeO_2 、及び Er_2O_3 等を挙げることができる。 40

【0025】

以上の歯科補綴物用材料、歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランク、及びここから加工して作製された歯科補綴物によって、歯科補綴物としての基本機能である強度、硬さ、口腔内環境に対する化学的耐久性、及び天然歯と同様の審美性（色合い、質感）を備えることができる。これに加えて機械加工性も向上し、歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランクをそのまま切削する等して機械加工することができ、例えば粉碎して粉末としてから成形しなおしたり、加工後に熱処理する等の後処理が不要である。従って、十分な強度を有しているにもかかわらず、従来における切削用のセラミック材料と同程度の加工条件で不具 50

合を生じることなく機械加工することが可能である。

【 0 0 2 6 】

次に、上記した歯科補綴物を作製する方法の1つの例について説明する。ここには歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランクを作製する方法、及び歯科補綴物用二ケイ酸リチウムブランクも含まれる。本形態の作製方法は、熔融工程、ガラスブランク作製工程、二ケイ酸リチウムブランク作製工程（加熱工程）、冷却工程、及び加工工程を備えて構成されている。

【 0 0 2 7 】

熔融工程は、上記成分として説明した材料を調合し、1300 以上1600 以下にて熔融する。これにより歯科補綴物用材料の出発ガラスの熔融物を得ることができる。この熔融は十分に均一な性質を得るために数時間にわたって行われることが好ましい。

10

【 0 0 2 8 】

ガラスブランク作製工程は、熔融工程で得た出発ガラスの熔融物を型に流し込み冷却することによりガラスブランクが作製される。冷却する温度はガラス転移点以下が好ましく、室温とガラス転移点との間の温度がより好ましい。

【 0 0 2 9 】

二ケイ酸リチウムブランク作製工程（加熱工程）は、ガラスブランク作製工程で得られたガラスブランクを加熱し、主とする結晶相が二ケイ酸リチウムである二ケイ酸リチウムブランクを得る工程である。二ケイ酸リチウムブランク作製工程（加熱工程）は、結晶核形成工程及び結晶成長工程を含む。

20

【 0 0 3 0 】

結晶核形成工程は、ガラスブランク作製工程で得られたガラスブランクを加熱し、400 以上600 以下にて所定の時間維持する。これにより結晶生成のための結晶核が形成される。維持の時間は結晶核が十分に形成される時間であればよいので10分以上が好ましい。当該時間の上限は特に限定されることはないが、6時間以下とすることができる。

【 0 0 3 1 】

結晶成長工程は、上記結晶核形成工程から冷却することなくガラスブランクを加熱し、800 以上1000 以下にて所定の時間維持する。これにより二ケイ酸リチウムの結晶が成長し、主とする結晶相が二ケイ酸リチウムである二ケイ酸リチウムブランクを得ることができる。維持の時間は好ましくは1分以上、さらに好ましくは3分以上である。当該時間の上限は特に限定されることはないが、3時間以下とすることができる。

30

【 0 0 3 2 】

なお、結晶成長工程は温度が異なる中間の過程を設けてもよい。すなわち、上記のように800 以上1000 以下で維持する前に、結晶核形成工程に引き続き冷却することなくガラスブランクを加熱し、600 以上800 以下にて所定の時間維持する。これにより結晶が生成され中間物を得る。その際の維持の時間は10分以上が好ましい。当該時間の上限は特に限定されることはないが、6時間以下とすることができる。この中間の過程の後に冷却することなく上記のように800 以上1000 以下で維持する加熱を行ってもよい。

40

【 0 0 3 3 】

また、結晶核形成工程及び結晶成長工程においては、上記の通り、所定の温度範囲内に維持する必要があるが、所定の温度範囲内であれば、必ずしも一定の温度に維持する必要はない。即ち、昇温し続けてもよい。

【 0 0 3 4 】

ここで二ケイ酸リチウムブランクとは、二ケイ酸リチウムを主とする結晶相が形成された状態のブランク（素材）であるが、その形状が歯科補綴物の形状への機械加工を行うのに適したものであることがより好ましい。具体的には、歯科補綴物作製用ブロック体や、歯科補綴物作製のディスク体等がこれに含まれる。

【 0 0 3 5 】

50

冷却工程は、二ケイ酸リチウムブランク作製工程で得られた二ケイ酸リチウムブランクを常温にまで冷却する工程である。これにより二ケイ酸リチウムブランクを加工工程に提供することが可能となる。

【 0 0 3 6 】

加工工程は得られた二ケイ酸リチウムブランクを機械加工して、歯科補綴物の形にする工程である。機械加工の方法は特に限定されることはないが、切削や研削等を挙げることができる。これにより歯科補綴物を得る。特に切削加工に対しては欠け（チップング）を防止することができるなど、その効果は顕著である。

【 0 0 3 7 】

この加工は、従来よりも生産性の良い条件で行うことができる。すなわち従来において二ケイ酸リチウムを主とする結晶相に有する歯科補綴物用の材料は機械加工性が乏しいため効率の良い切削をすることができなかった。そのため従来では二ケイ酸リチウムを主とする結晶相としない加工し易い状態で加工を行い、これをさらに熱処理する等して後から強度を高める工程を経る必要があった。

これに対して本発明によれば、二ケイ酸リチウムを主とする結晶相を有する材料としても従来の加工し易い材質における加工と同等の条件で切削や研削が可能である。そして加工した後に熱処理が必要ないので形状が変わることなく機械加工の精度を維持したまま歯科補綴物とすることができる。また、材料を粉砕して再度成型する等の必要もなく、ブロック体のまま機械加工して直接最終の形態を形成することが可能である。

【 実施例 】

【 0 0 3 8 】

実施例（No. 1 ~ No. 9）では含まれる成分を変更して上記説明した作製方法により主とする結晶相が二ケイ酸リチウムである二ケイ酸リチウムブランクを準備し、切削加工により歯科補綴物を作製してその際の機械加工性及び強度を評価した。

【 0 0 3 9 】

表 1 には成分ごとにその含有量を質量％で表した。また比較例となる材料も準備し同様に評価した（No. 10 ~ No. 15）。また、表 1 には結果として主とする結晶相（主結晶相）の成分、機械加工性、及び強度をそれぞれ表した。なお、表 1 の成分の項目における空欄は 0 質量％を表している。

【 0 0 4 0 】

「主結晶相」は、多目的 X 線回折装置 Empyrean (PANalytical) を用いて測定し、リートベルト法により高精度の定量分析の結果、最も割合の高い結晶相とした。表 1 で「LS2」は二ケイ酸リチウム、「LAS」はリチウムアルミノシリケートをそれぞれ表している。

【 0 0 4 1 】

機械加工性は、従来における加工用の材料を参考 1、参考 2 として 2 種類準備した。それぞれ次のような材料である。

（参考 1）メタケイ酸リチウムを主結晶相とした材料であり、 SiO_2 が 72.3 質量％、 Li_2O が 15.0 質量％、 Al_2O_3 が 1.6 質量％の割合で含まれている。

（参考 2）メタケイ酸リチウムの結晶相と二ケイ酸リチウムの結晶相とが概ね同じ割合で含有された材料であり、 SiO_2 が 56.3 質量％、 Li_2O が 14.7 質量％、 Al_2O_3 が 2.1 質量％の割合で含まれている。

実施例及び比較例について、参考 1、参考 2 の材料に対する加工時間、工具の消耗具合、及び欠け（チップング）の程度をそれぞれ評価した。加工時間、工具の消耗具合、及び欠け（チップング）の程度のいずれについても参考 1、参考 2 に対して同等又は良好であるものを「良好」、加工時間、工具の消耗具合、及び欠け（チップング）の程度のいずれかにおいて参考 1、参考 2 に対して不具合を生じたものを「不良」で表した。

【 0 0 4 2 】

「強度」は、二ケイ酸リチウムブランクに対して ISO 6872 に従って二軸曲げ試験を行い、算出された二軸曲げ強度（MPa）で表した。参考 1 の材料の強度は 370 M

10

20

30

40

50

P a、参考 2 の材料の強度は 2 3 0 M P a であった。

【 0 0 4 3 】

【表 1】

(表 1)

	実施例										比較例				
	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	No.6	No.7	No.8	No.9	No.10	No.11	No.12	No.13	No.14	No.15
成分	SiO ₂	63.0	65.2	73.3	71.2	75.3	64.7	70.6	76.2	75.7	57.3	73.7	65.5	81.7	66.5
	Li ₂ O	19.6	18.0	17.0	15.3	15.2	12.5	12.1	11.0	10.1	15.4	13.8	14.5	10.6	11.6
	Al ₂ O ₃	5.1	7.3	5.3	6.8	6.1	9.1	7.0	7.8	6.3	12.8	3.5	11.3	2.5	13.3
	Na ₂ O		0.3	0.5			2.6		1.7	2.3		5.6	3.2		1.1
	K ₂ O	2.7		0.3	1.2	0.2	2.5	9.2			11.8	3.0		1.3	5.6
	MgO	2.1		2.5						0.3	0.2		0.4		
	CaO		2.8			1.2	0.4				0.5			3.4	
	SrO		3.1	1.0			2.2				0.2				
	BaO	1.3					0.9			5.1			2.2		
	P ₂ O ₅	4.1	1.5	0.1		2.0	2.7	1.1			1.0	6.0	3.4	1.3	0.8
	ZrO ₂	2.1	0.1		5.4				3.1	0.2	1.5	14.0	1.6		1.0
結果	TiO ₂		1.7		0.1		2.4		0.2		2.0			0.5	0.1
	主結晶	LS2	LS2	LS2	LS2	LS2	LS2	LS2	LS2	LS2	LAS	LS2	LAS	LS2	LAS
	機械加工性	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	不良	不良	不良	不良	不良
	強度	260	315	375	396	453	385	362	351	347	320	310	235	183	284

【 0 0 4 4 】

表 1 からわかるように、実施例による歯科補綴物作製によれば、主結晶相が二ケイ酸リ

10

20

30

40

50

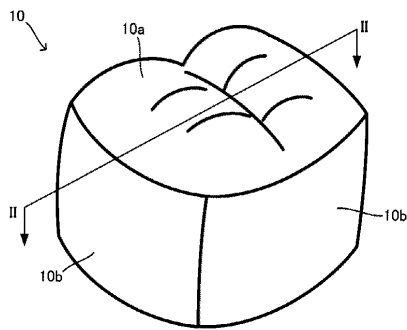
チウム（ＬＳ２）であることに加えて、機械加工性が良好であるとともに必要な強度を得られている。一方、比較例ではいずれも機械加工性が不良であり、強度が低い例もある。また、比較例のうちＮｏ．１０、Ｎｏ．１３、及びＮｏ．１５ではリチウムアルミノシリケートが生成されてしまい二ケイ酸リチウムを主結晶相とすることができなかった。

【符号の説明】

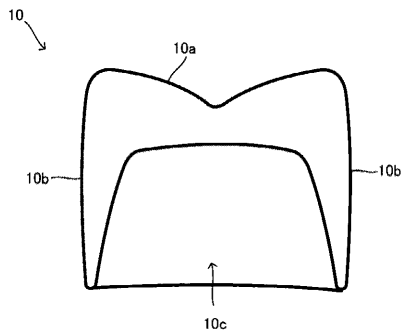
【 ０ ０ ４ ５ 】

１０ 歯科補綴物

【 図 １ 】



【 図 ２ 】



フロントページの続き

- (72)発明者 吉永 匡寿
東京都板橋区蓮沼町76番1号 株式会社ジーシー内
- (72)発明者 横原 隼人
東京都板橋区蓮沼町76番1号 株式会社ジーシー内
- (72)発明者 太田 大介
東京都板橋区蓮沼町76番1号 株式会社ジーシー内

合議体

審判長 内藤 真徳
審判官 熊倉 強
審判官 瀬戸 康平

- (56)参考文献 特開2012-223552(JP,A)
特表2015-519986(JP,A)
米国特許出願公開第2003/0073563(US,A1)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
A61C 13/083