

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2020年10月8日(08.10.2020)



(10) 国際公開番号

**WO 2020/202666 A1**

(51) 国際特許分類:

*A61K 6/849* (2020.01) *A61C 5/77* (2017.01)  
*A61C 13/083* (2006.01)

MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/050162

(22) 国際出願日: 2019年12月20日(20.12.2019)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願 2019-069330 2019年3月29日(29.03.2019) JP

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(71) 出願人: 株式会社ジーシー (GC CORPORATION) [JP/JP]; 〒4101307 静岡県駿東郡小山町中日向584番1 Shizuoka (JP).

(72) 発明者: 加藤 克人 (KATO, Katsuhito); 〒1748585 東京都板橋区蓮沼町76番1号 株式会社ジーシー内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 山本 典輝, 外 (YAMAMOTO, Noriaki et al.); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目16番10号 オークビル京橋3階 東京セントラル特許事務所内 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS,

(54) **Title:** METHOD FOR MANUFACTURING BLOCK BODY FOR DENTAL PROSTHESES, AND METHOD FOR MANUFACTURING DENTAL PROSTHESIS

(54) 発明の名称: 歯科補綴物用ブロック体の製造方法、歯科補綴物の製造方法

(57) **Abstract:** A method for manufacturing a block body for dental prostheses includes the step of heating a glass blank having a temperature lower than a lithium metasilicate crystal generation temperature by exposing the glass blank to an atmosphere having a temperature equal to or higher than a lithium disilicate crystal generation temperature and lower than the melting point of a lithium disilicate crystal so that the main crystal phase in the glass blank can be composed of lithium disilicate.

(57) 要約: メタケイ酸リチウム結晶の生成温度未満のガラスブランクを、二ケイ酸リチウム結晶の生成温度以上融点未満の雰囲気中に晒して主とする結晶相が二ケイ酸リチウムになるように加熱する工程を含む。



WO 2020/202666 A1

## 明 細 書

発明の名称：

歯科補綴物用ブロック体の製造方法、歯科補綴物の製造方法

### 技術分野

[0001] 本開示は歯科補綴物用ブロック体の製造方法、及び歯科補綴物の製造方法に関する。

### 背景技術

[0002] 近年のCAD／CAM（コンピュータ支援設計／コンピュータ支援製造）技術の発達により、歯科補綴物の作製において、設計した歯科補綴物の形状を所定の形式に変換したデジタルデータで取り扱い、当該データを加工装置に送信することにより、加工装置は当該データに基づいて自動的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可能となっている。

[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求められている。

これに加えて歯科補綴物は複雑な凹凸を有しており、複雑な形状を例えばチッピ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及び切削性の向上を図っている。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0005] 特許文献1：国際公開番号 WO2016／031399

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0006] 本開示は、機械加工性が良好な歯科補綴物用ブロック体の製造方法を提供することを課題とする。

### 課題を解決するための手段

[0007] 本開示の1つの態様は、歯科補綴物とするための機械加工をする前のブロック体を製造する方法であって、メタケイ酸リチウム結晶の生成温度未満のガラスブランクを、ニケイ酸リチウム結晶の生成温度以上融点未満の雰囲気中に晒して主とする結晶相がニケイ酸リチウムになるように加熱する工程を含む、歯科補綴物用ブロック体の製造方法である。

[0008] 加熱する工程の後に徐冷する工程を有してもよい。

[0009] 加熱する工程では雰囲気の温度が750℃以上900℃以下であってもよい。

[0010] 上記の雰囲気に晒すことがガラスブランクを加熱装置に入れることであってもよい。

[0011] 前記歯科補綴物用ブロック体は、 $\text{SiO}_2$ を60質量%以上80質量%以下、 $\text{Li}_2\text{O}$ を10質量%以上20質量%以下、及び、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を3質量%以上15質量%以下、で含んだものであってもよい。

[0012] 本開示の他の態様は、上記製造方法により歯科補綴物用ブロック体を製造し、歯科補綴物用ブロック体を機械加工する工程を含む、歯科補綴物の製造方法である。この機械加工が切削加工であってもよい。

### 発明の効果

[0013] 本開示によれば、機械加工性が良好な歯科補綴物用ブロック体を得られる。

### 図面の簡単な説明

[0014] [図1]図1は歯科補綴物用ブロック体10の外観斜視図である。

[図2]図2は切断面の一部を拡大して結晶が見えるように表した図である。

[図3]図3は比率の測定の方法を説明する図である。

[図4]図4は比率の測定の方法を説明する他の図である。

## 発明を実施するための形態

[0015] 以下、具体的な形態例を説明する。ただし本発明はこれら形態に限定されるものではない。

[0016] 初めに、1つの形態にかかる歯科補綴物用ブロック体の製造方法により作製される歯科補綴物用ブロック体について説明する。この歯科補綴物用ブロック体（以下、「ブロック体」と記載することがある。）は、角柱、円柱、又は、板状（ディスク状）であり、ここから切削や研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とする。その中でも切削により歯科補綴物を作製する場合には角柱又は板状（ディスク状）とすることができる。角柱のブロック体は主に単品の歯科補綴物を削り出すために用いられることが多く、板状のブロック体は、1つのブロック体から複数の歯科補綴物を削り出すために用いられることがある。

[0017] 図1には角柱であるブロック体10の外観斜視図を表した。角柱の場合には、幅W、奥行きD、高さHのそれぞれが10mm以上35mm以下の範囲とすることができる。一方、板状のブロック体の場合には厚さが10mm以上35mm以下の範囲となるように構成することができる。

これにより、切削加工で歯科補綴物を作製しやすいブロック体となる。

[0018] 本形態に係るブロック体を作製するため、その材料は次の成分を含んで構成することができる。

$\text{SiO}_2$ を60質量%以上80質量%以下、

$\text{Li}_2\text{O}$ を10質量%以上20質量%以下、

$\text{Al}_2\text{O}_3$ を3質量%以上15質量%以下。

[0019] 上記各成分については次の通りである。

$\text{SiO}_2$ の含有量が60質量%未満、又は80質量%を超えると、均質なブロック体を得ることが困難となる。より好ましくは65質量%以上75質量%以下である。

$\text{Li}_2\text{O}$ の含有量が10質量%未満、又は20質量%を超えると、均質なブロック体を得ることが困難となるとともに、機械加工性が低下する傾向があ

る。より好ましくは12質量%以上18質量%以下である。

$\text{Al}_2\text{O}_3$ の含有量が3質量%未満であると、ニケイ酸リチウムが主とする結晶相として析出するが、機械加工性が低下する傾向がある。一方、15質量%を超えると、主とする結晶相がニケイ酸リチウムでなくなり、強度が低下する傾向がある。より好ましくは3質量%以上7質量%以下である。

[0020] さらに、歯科補綴物用ブロック体は、上記成分に加えて次の成分を含んでもよい。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。

[0021] 溶融温度を調整するための成分を0質量%以上15質量%以下で含有させることができる。これにより後述する製造において溶融温度を適切なものとすることが可能となる。それぞれについて15質量%より多く含有させてもよいが、その効果の向上は限定的である。溶融温度を調整する成分のための材料（溶融温度調整材）として具体的には、Na、K、Ca、Sr、Ba、Mg、Rb、Cs、Fr、Be、Raの酸化物を挙げることができる。さらに好ましくは次の通りである。

$\text{Na}_2\text{O}$  : 2.8質量%以下

$\text{K}_2\text{O}$  : 10質量%以下

$\text{CaO}$  : 3質量%以下

$\text{SrO}$  : 10質量%以下

$\text{BaO}$  : 10質量%以下

$\text{MgO}$  : 3質量%以下

$\text{Rb}_2\text{O}$  : 2.8質量%以下

$\text{Cs}_2\text{O}$  : 2.8質量%以下

$\text{Fr}_2\text{O}$  : 2.8質量%以下

$\text{BeO}$  : 3質量%以下

$\text{RaO}$  : 10質量%以下

[0022] また、結晶核を形成するための成分を合計で0質量%以上10質量%以下

の範囲で含有させることができる。これによりニケイ酸リチウム結晶を形成する核が効率よく生成される。ただし、これより多くの当該化合物を含有させても効果の向上は限定的であるため10質量%以下とした。ここで結晶核を形成するための成分のための材料（結晶核形成材）として機能する化合物としてはZr、P、Tiの酸化物（ $ZrO_2$ 、 $P_2O_5$ 、 $TiO_2$ ）を挙げることができる。その際には、 $ZrO_2$ 、 $P_2O_5$ 、及び $TiO_2$ から選ばれる少なくとも1つが含まれ、その合計が0質量%以上10質量%以下であることが好ましい。

[0023] ブロック体のための材料には、審美性を高める観点から、さらに公知の着色材を含めてもよい。これには例えば $V_2O_5$ 、 $CeO_2$ 、 $Er_2O_3$ 、 $MnO$ 、 $Fe_2O_3$ 、 $Tb_4O_7$ から選ばれる少なくとも1つを挙げることができる。

[0024] 次に、歯科補綴物を作製する方法の形態について説明する。ここには歯科補綴物用ブロック体を作製する方法の形態が含まれる。本形態の作製方法は、溶融工程、ガラスブランク作製工程、熱処理工程、及び加工工程を備えて構成されている。

[0025] 溶融工程は、上記説明した各成分を1100℃以上1600℃以下にて溶融する。これにより歯科補綴物用ブロック体のための溶融ガラスを得ることができる。この溶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。

[0026] ガラスブランク作製工程は、歯科補綴物用ブロック体の形状に近い形状を有するガラスブランクを得る工程である。溶融工程で得た溶融ガラスを型に流し込み、メタケイ酸リチウム結晶の生成温度未満、好ましくは400℃以下、より好ましくは100℃以下、さらに好ましくは室温にまで冷却することによりガラスブランクが得られる。材料の変質や割れを防止するため当該冷却はゆっくりとした温度変化により行われる。

[0027] 熱処理工程は、ガラスブランク作製工程で得られたガラスブランクをニケイ酸リチウム結晶の生成温度以上融点未満、より好ましくは750℃以上900℃以下の範囲内の温度にて加熱する工程である。

この工程では急加熱をすることがよいため、ガラスブランク製造工程にてメタケイ酸リチウム結晶の生成温度未満、好ましくは400℃以下、より好ましくは100℃以下、さらに好ましくは室温にまで冷却されたガラスブランクを、二ケイ酸リチウム結晶の生成温度以上融点未満、より好ましくは、750℃以上900℃以下の範囲の雰囲気中に晒すために、例えば炉等の加熱装置に入れることにより加熱を行う。加熱時間はガラスブランク内の主とする結晶相が二ケイ酸リチウムとなるまでである。従って限定されることはないが、20分以上とすることができる。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。

温度が二ケイ酸リチウム結晶の生成温度に満たないと、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が得られなくなる虞がある。一方、二ケイ酸リチウム結晶の融点以上の温度とすると軟化する虞がある。

そしてこの急加熱の後には加熱を停止し、室温にまで冷却することにより主とする結晶相が二ケイ酸リチウムである歯科補綴物用ブロック体を得られる。この冷却は炉内で行われ炉内の自然冷却の中でゆっくりとした温度変化による徐冷で行われることが好ましい。

ここで「主とする結晶相」とは、X線回折装置による分析により観測される結晶相中、結晶析出割合が最大の結晶相を意味する。

[0028] また、熱処理工程においては、上記の通り、所定の温度範囲内に急加熱する必要があるが、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く温度変化があってもよい。

[0029] 加工工程は、得られた歯科補綴物用ブロック体を機械加工して、歯科補綴物の形状に加工する工程である。機械加工の方法は特に限定されることはないが、切削や研削等が挙げられる。これにより歯科補綴物を得ることができる。

[0030] この加工は、生産性の良い条件で行うことができる。すなわち、これまで二ケイ酸リチウムが主結晶相である歯科補綴物用のブロック体は、機械加工

性が乏しいため、効率の良い切削をすることが難しかった。そのためニケイ酸リチウムを主とする結晶相としない加工し易いブロック体（例えばメタケイ酸リチウムを主結晶相とするブロック体。）を準備してこれを機械加工し、加工後にさらに熱処理をして主結晶相をニケイ酸リチウムに変えることで、後から強度を高める工程を経る必要があった。

これに対して本形態によれば、主とする結晶相がニケイ酸リチウムであるブロック体であっても、主とする結晶相がメタケイ酸リチウムである加工し易いブロック体の加工と同等以上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。

[0031] 本形態の製造方法により作製されたブロック体によれば次のような構造を具備している。図2に、図1に符号A1で示した点線に沿って切断したブロック体10の切断面のうち、その一部を拡大した図を表した。この図は縦（幅方向） $5\mu\text{m}$ 、横（奥行方向） $5\mu\text{m}$ の視野で拡大した図である。このような図は走査型電子顕微鏡（SEM）画像により得ることができる。

[0032] ブロック体10は、上記したようにその主とする結晶相がニケイ酸リチウムである。

[0033] そして、ブロック体10は、図2で示した視野範囲において、表れている結晶のうち $0.5\mu\text{m}$ 以上の長さを有する結晶の総面積が、図2で示した視野の面積（ $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ）に対して21%以下の比率であることが好ましいが、必ずしも21%以下である必要はなく、本形態の製造方法により、従来の作製方法に比べてこの比率を小さくすることができればよい。前記比率は10%以下であることが好ましく、1%以下であることがさらに好ましい。

なお、表れている結晶のうち、抽出すべき $0.5\mu\text{m}$ 以上の長さを有する結晶を、ニケイ酸リチウムによる結晶のみに限ってもよい。

これにより、主とする結晶相がニケイ酸リチウムであるブロック体としても、従来の加工し易いブロック体（例えば主とする結晶相がメタケイ酸リチ



ウムであるブロック体。)の加工と同等以上の条件で切削や研削が可能となる。そしてこれによれば、例えば主とする結晶相がメタケイ酸リチウムであるブロック体で必要とされる加工後の熱処理を必要としないので、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。

[0034] このような比率は次のように得る。

図1に示したブロック体10を例にすると、最も大きい方向(図1の例では高さ方向)において、中央 $A_1$ 、全高 $H$ に対して端面から10%の位置の2つの端部 $A_2$ 、及び端部 $A_3$ における3つの切断面を得る。図3には3つの切断面のうち中央 $A_1$ における切断面を示した。

そして中央 $A_1$ 、端部 $A_2$ 、端部 $A_3$ における切断面において、点線で示した中央 $B_1$ 、当該 $B_1$ に対して幅 $W$ 方向に隣り合い、全幅 $W$ に対して端部から10%の位置の2つの端部 $B_2$ 、及び、中央 $B_1$ に対して奥行き $D$ 方向に隣り合い、全奥行き $D$ に対して端部から10%の位置の2つの端部 $B_3$ のそれぞれについて、図2のような $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ の視野で走査型電子顕微鏡画像を得る。従って、1つの切断面当たり5つ、全部で15枚の当該画像を得る。得られる画像の例を図4の上部に示した。

[0035] 次に、各画像について、図4の下部に示したように、ここに表れている結晶のうち、結晶の長さが $0.5\mu\text{m}$ 以上のもの(図4の下部の図のうち塗りつぶした部分)を抽出し、その結晶の面積の総和 $S$ を求める。次に、当該面積の総和 $S$ を画像の視野面積 $S_0$ ( $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ )で除して百分率で表し、画像ごとに個別に比率を得る。従って全部で15個の個別の比率を得る。

そして、これら個別の比率の平均値を算出し、これを比率とする。

[0036] ここで、歯科補綴物用ブロック体には空隙が認められないことが好ましい。ただし、若干の空隙は影響が小さいと考えられるので、上記比率を測定した15か所において、縦(幅方向) $60\mu\text{m} \times$ 横(奥行き方向) $60\mu\text{m}$ の観察範囲で空隙が占める面積が平均で2%以下であることが好ましい。

また、上記比率を測定した15か所において、倍率200倍の顕微鏡写真

で着色材の粒状物が視認されないことが好ましい。

これら空隙や粒状物は、母材との界面を生じ、機械加工性に影響を与える虞がある。また、着色材の粒状物の存在は歯科補綴物の色むらの原因となる虞もある。

このような歯科補綴物用ブロック体は、粉末成型ではなく、上記のように材料の溶融によって成型することにより確実に実現が可能となる。

[0037] 以上の歯科補綴物用ブロック、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、加工後の熱処理が不要であるという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による歯科補綴物用ブロック体と同程度以上の加工条件で不具合を生じることなく機械加工することが可能となる。

## 実施例

[0038] 実施例 1 乃至実施例 7、及び比較例 1 乃至比較例 6 では、含まれる成分、熱処理温度を変更して上記説明した溶融成型法による作製方法でブロック体を準備し、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を評価した。

なおブロック体は幅Wが14mm、奥行きDが12mm、高さHが18mmの直方体である。

[0039] 実施例 1 乃至実施例 7、比較例 5、及び、比較例 6 にかかるブロック体は次のように急加熱の熱処理をして作製した。

各例について、表 1 に示した材料をその割合に応じて混ぜて1300℃にて3時間溶融し、溶融ガラスを得た（溶融工程）。次いで得られた溶融ガラスを型に流し込み、室温まで冷却することによりガラスブランクとした（ガラスブランク作製工程）。そして、表 1 に記載した熱処理温度に予熱した炉にガラスブランクを投入し、同熱処理温度にて30分間維持した（急加熱による熱処理）。その後室温まで徐冷し（冷却工程）ブロック体を得た。

[0040] 一方、比較例 1 乃至比較例 4 にかかるブロック体は次のように従来の熱処理をして作製した。

各例について、表 1 に示した材料をその割合に応じて混ぜて 1300℃にて 3 時間熔融し、熔融ガラスを得た（熔融工程）。次いで得られた熔融ガラスを型に流し込み、室温まで冷却することによりガラスブランクとした（ガラスブランク作製工程）。そして、得られたガラスブランクを加熱し、650℃で 60 分間維持し、続いて 850℃に昇温して 10 分間維持した（従来加熱による熱処理）。その後室温まで徐冷し（冷却工程）ブロック体を得た。

[0041] 表 1 には成分ごとにその含有量を質量％で表した。表 1 からわかるように、実施例 1 と比較例 1、実施例 2 と比較例 2、実施例 3 と比較例 3、及び実施例 4 と比較例 4 はそれぞれ着色材以外の成分が同じである。

また、表 1 には、熱処理の種類、急加熱の例では熱処理温度、得られたブロック体の主結晶相の種類（「LDS」は二ケイ酸リチウム、「LS」はメタケイ酸リチウム）、上記説明した方法により得た 0.5 μm 以上の長さの結晶が占める比率（％）、及び、機械加工性をそれぞれ表した。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。

[0042] 主結晶は、X線回折装置（Empyrean（登録商標）；スペクトリス株式会社製）を用いて測定し、リートベルト法による定量分析の結果、観測された結晶相中、結晶析出割合が最も高い結晶相とした。

[0043] 「比率」は上記した 0.5 μm 以上の長さを有する結晶の比率であり、上記した方法により得た面積比率（％）である。

[0044] 「機械加工性」は、従来における加工用のブロック体を参考 1、参考 2 として 2 種類準備した。それぞれ次のようなブロック体である。

（参考 1）メタケイ酸リチウムを主結晶相としたブロック体であり、SiO<sub>2</sub>が 72.3 質量％、Li<sub>2</sub>O が 15.0 質量％、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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ブロック体であり、 $\text{SiO}_2$ が56.3質量%、 $\text{Li}_2\text{O}$ が14.7質量%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 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、セラミック加工機（CEREC（登録商標）MC XL；シロナデンタルシステムズ株式会社製）で加工した際の参考1、参考2のブロック体に対する、加工時間、工具の消耗具合、及びチップングの程度をそれぞれ評価した。参考1、参考2のブロック体と比較して加工時間、工具の消耗具合、及びチップングのいずれについても良好であるものを「良好」、加工時間、工具の消耗具合、及びチップングのいずれかにおいて参考1、参考2のブロック体と比較して同等未満であったものを「不良」で表した。

[0045]

[表1]

| (表1)  |                                |      |      |      |      |      |      |      |       |       |       |      |      |             |
|-------|--------------------------------|------|------|------|------|------|------|------|-------|-------|-------|------|------|-------------|
| 成分    | 実施例1                           | 実施例2 | 実施例3 | 実施例4 | 実施例5 | 実施例6 | 実施例7 | 比較例1 | 比較例2  | 比較例3  | 比較例4  | 比較例5 | 比較例6 |             |
|       | SiO <sub>2</sub>               | 71.0 | 71.5 | 72.7 | 70.7 | 65.5 | 71.0 | 71.0 | 71.0  | 71.5  | 72.7  | 70.7 | 71.5 | 71.5        |
|       | Li <sub>2</sub> O              | 12.8 | 13.7 | 11.7 | 11.9 | 14.4 | 12.8 | 12.8 | 12.8  | 13.7  | 11.7  | 11.9 | 13.7 | 13.7        |
|       | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 5.2  | 5.3  | 5.3  | 5.2  | 5.0  | 5.2  | 5.2  | 5.3   | 5.3   | 5.2   | 5.3  | 5.3  | 5.3         |
|       | P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>  | 3.0  | 3.0  | 2.5  | 2.6  | 6.4  | 3.0  | 3.0  | 3.0   | 2.5   | 2.6   | 3.0  | 3.0  | 3.0         |
|       | K <sub>2</sub> O               | 1.4  | 1.4  | 2.5  | 2.4  | 2.0  | 1.4  | 1.4  | 1.4   | 2.5   | 2.4   | 1.4  | 1.4  | 1.4         |
|       | Na <sub>2</sub> O              | 2.1  | 2.1  | 1.2  | 1.1  | 1.3  | 2.1  | 2.1  | 2.1   | 1.2   | 1.1   | 2.1  | 2.1  | 2.1         |
|       | ZrO <sub>2</sub>               | 1.0  | 1.8  | 1.9  | 3.1  | 3.1  | 1.0  | 1.0  | 1.8   | 1.9   | 3.1   | 1.8  | 1.8  | 1.8         |
|       | SrO                            |      |      |      | 1.3  |      |      |      |       |       | 1.3   |      |      |             |
|       | TiO <sub>2</sub>               |      |      |      | 0.3  |      |      |      |       |       | 0.3   |      |      |             |
|       | La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> |      | 0.5  |      |      |      |      |      | 0.5   |       |       | 0.5  | 0.5  | 0.5         |
|       | BaO                            |      |      | 1.0  |      |      |      |      |       | 1.0   |       |      |      |             |
|       | V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>  | 1.1  | 0.2  | 0.2  | 0.4  | 0.6  | 1.1  | 1.0  | 0.6   | 0.4   | 0.1   | 0.2  | 0.2  | 0.2         |
|       | CeO <sub>2</sub>               | 0.7  | 0.2  | 0.1  | 0.1  | 0.5  | 0.7  | 1.0  | 0.1   | 0.1   | 0.4   | 0.2  | 0.2  | 0.2         |
|       | Er <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 0.6  | 0.4  | 0.3  | 0.4  | 1.1  | 0.8  | 0.5  | 0.1   | 0.4   | 0.2   | 0.4  | 0.4  | 0.4         |
|       | MnO                            | 0.1  |      |      | 0.1  | 0.1  | 0.2  | 0.4  |       | 0.1   | 0.1   |      |      |             |
|       | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 0.4  |      | 0.1  | 0.2  |      | 0.2  | 0.5  |       | 0.2   |       |      |      |             |
|       | Tb <sub>2</sub> O <sub>7</sub> | 0.7  |      | 0.5  | 0.1  |      | 0.6  | 0.2  |       |       |       |      |      |             |
| 熱処理   | 急加熱                            |      | 急加熱  | 急加熱  | 急加熱  | 急加熱  | 急加熱  | 従来加熱 | 従来加熱  | 従来加熱  | 従来加熱  | 急加熱  | 急加熱  | 急加熱         |
|       | 750℃                           |      | 850℃ | 800℃ | 820℃ | 850℃ | 830℃ | 900℃ |       |       |       | 700℃ | 950℃ | 950℃        |
| 主結晶相  | LDS                            | LDS  | LDS  | LDS  | LDS  | LDS  | LDS  | LDS  | LDS   | LDS   | LDS   | LS   | LS   | 軟化による<br>変形 |
| 比率    | 1%以下                           | 1%以下 | 1%以下 | 1%以下 | 1%以下 | 1%以下 | 1%以下 | 27%  | 50%以上 | 50%以上 | 50%以上 | —    | —    | —           |
| 機械加工性 | 良好                             | 良好   | 良好   | 良好   | 良好   | 良好   | 良好   | 不良   | 不良    | 不良    | 不良    | —    | —    | —           |

[0046] 表1 からわかるように、実施例の歯科補綴物用ブロック体によれば、主結

晶相が二ケイ酸リチウムであるにも関わらず、機械加工性が良好である。また実施例において「比率」は比較例における比率よりも低く抑えられていた。

実施例 1 と比較例 1、実施例 2 と比較例 2、実施例 3 と比較例 3、及び実施例 4 と比較例 4 は着色材以外の成分が同じであるにも関わらず、製造工程が異なることで機械加工性及び比率が大きく異なることもわかる。比較例 5 は主結晶相として二ケイ酸リチウムを得ることができず、比較例 6 では軟化が生じた。

なお、実施例及び比較例のいずれのブロック体も必要な強度は具備していた。また、空隙や粒状物についても上記した好ましい条件を満たしていた。

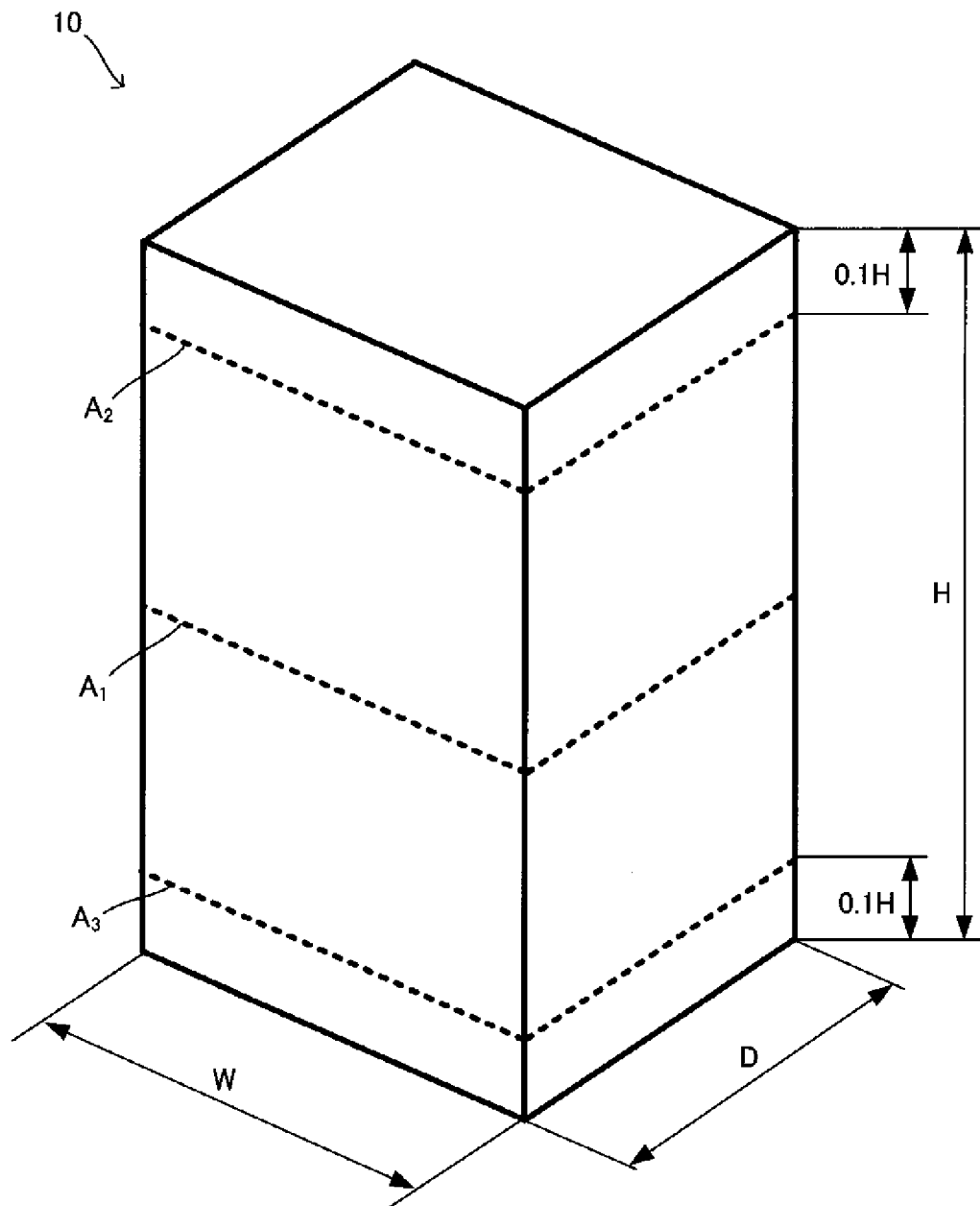
## 符号の説明

[0047]      10    歯科補綴物用ブロック体

## 請求の範囲

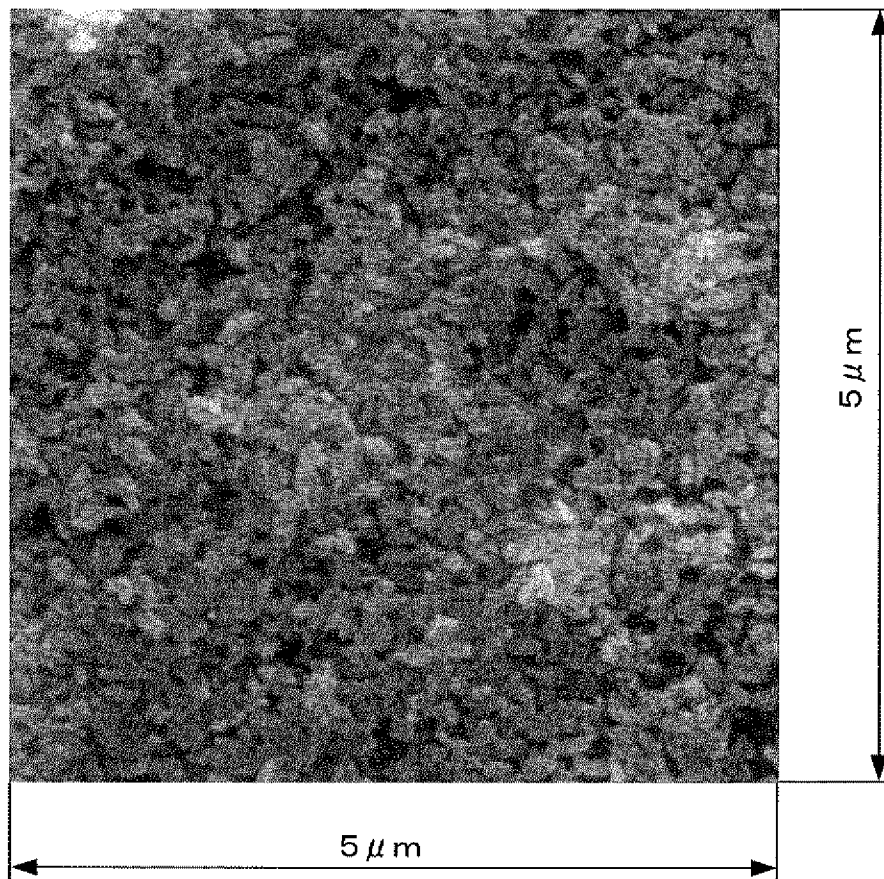
- [請求項1] 歯科補綴物とするための機械加工をする前のブロック体を製造する方法であって、
- メタケイ酸リチウム結晶の生成温度未満のガラスブランクを、ニケイ酸リチウム結晶の生成温度以上融点未満の雰囲気中に晒して主とする結晶相がニケイ酸リチウムになるように加熱する工程を含む、歯科補綴物用ブロック体の製造方法。
- [請求項2] 前記加熱する工程の後に徐冷する工程を有する請求項1に記載の歯科補綴物用ブロック体の製造方法。
- [請求項3] 前記雰囲気中の温度が750℃以上900℃以下である請求項1又は2に記載の歯科補綴物用ブロック体の製造方法。
- [請求項4] 前記雰囲気中に晒すことが前記ガラスブランクを加熱装置に入れることである請求項1乃至3のいずれかに記載の歯科補綴物用ブロック体の製造方法。
- [請求項5] 前記歯科補綴物用ブロック体は、 $\text{SiO}_2$ を60質量%以上80質量%以下、 $\text{Li}_2\text{O}$ を10質量%以上20質量%以下、及び、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を3質量%以上15質量%以下、で含む、請求項1乃至4のいずれかに記載の歯科補綴物用ブロック体の製造方法。
- [請求項6] 請求項1乃至5のいずれかに記載の製造方法により歯科補綴物用ブロック体を製造し、前記歯科補綴物用ブロック体を機械加工する工程を含む、歯科補綴物の製造方法。
- [請求項7] 前記機械加工が切削加工である、請求項6に記載の歯科補綴物の製造方法。

[図1]

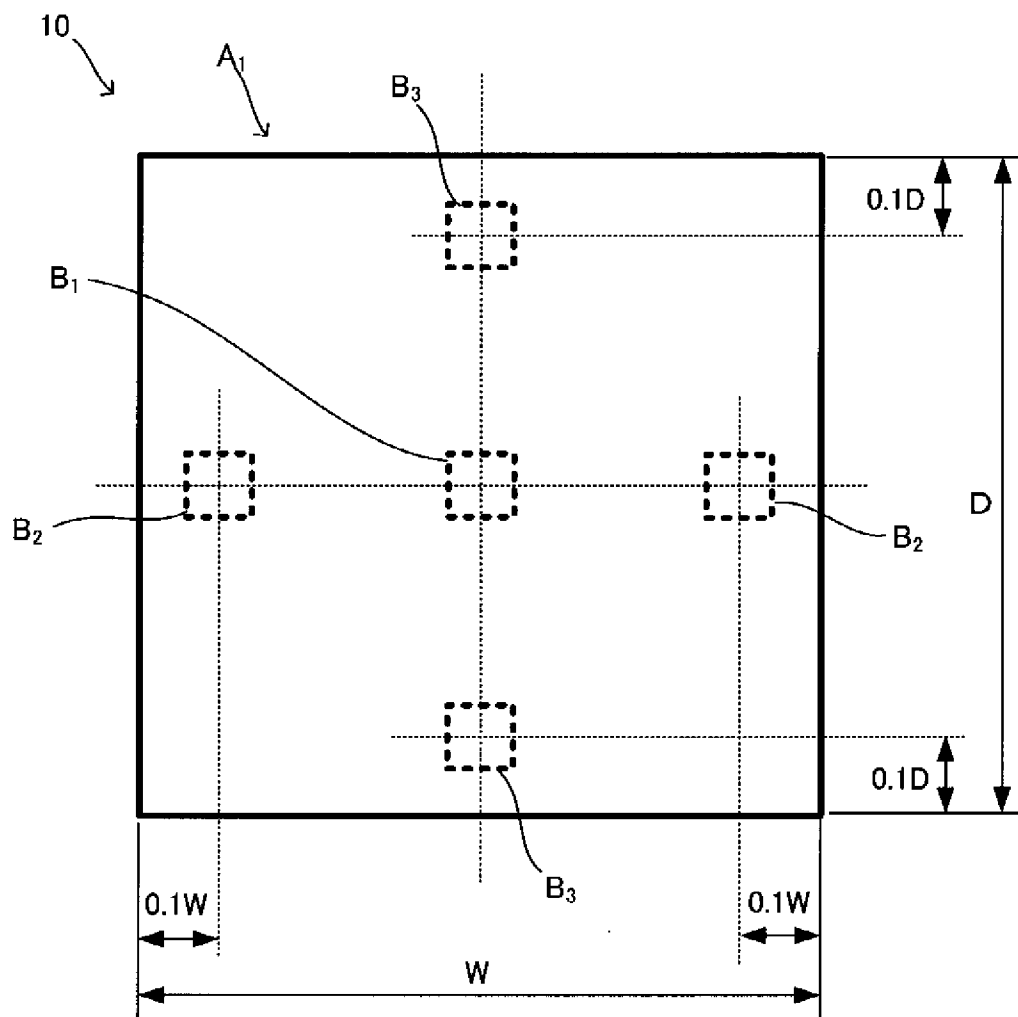




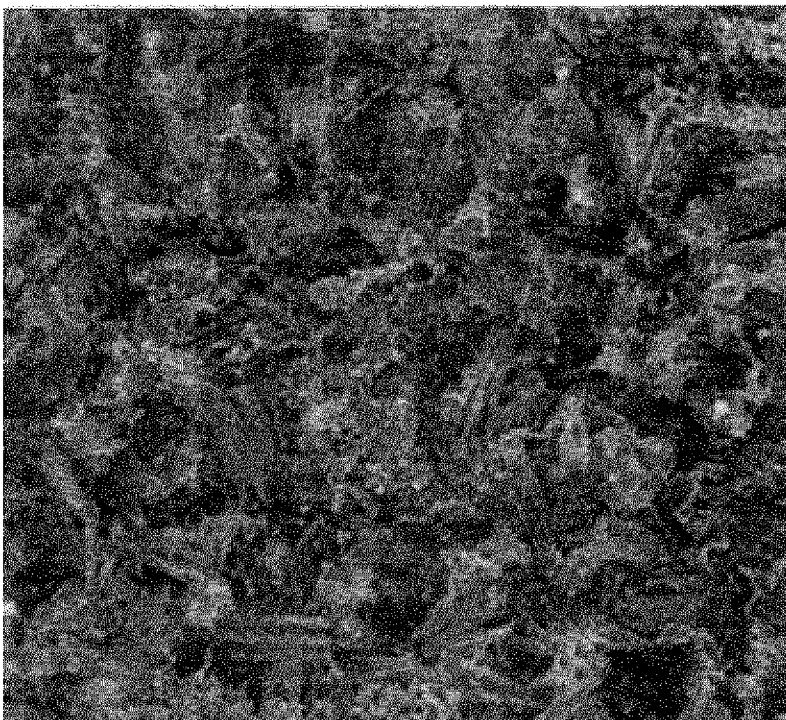
[図2]



[図3]



[図4]



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/050162

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

A61K 6/849(2020.01)i; A61C 13/083(2006.01)i; A61C 5/77(2017.01)i  
FI: A61C5/77; A61C13/083; A61K6/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

A61K6/849; A61C13/083; A61C5/77

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

|                                                          |           |
|----------------------------------------------------------|-----------|
| Published examined utility model applications of Japan   | 1922-1996 |
| Published unexamined utility model applications of Japan | 1971-2020 |
| Registered utility model specifications of Japan         | 1996-2020 |
| Published registered utility model applications of Japan | 1994-2020 |

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                     | Relevant to claim No. |
|-----------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X         | JP 2017-531607 A (HASS CO., LTD.) 26.10.2017<br>(2017-10-26) paragraphs [0001], [0011], [0029]-[0035]                                  | 1-7                   |
| A         | WO 2016/031399 A1 (GC CORPORATION) 03.03.2016<br>(2016-03-03) paragraphs [0019], [0029]-[0031]                                         | 1-7                   |
| A         | JP 2013-515659 A (FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR<br>FOERDERUNG DER ANGEWANDTEN FORSCHUNG E.V)<br>09.05.2013 (2013-05-09) paragraph [0017] | 1-7                   |
| A         | US 2016/0236971 A1 (IVOCLAR VIVADENT AG)<br>18.08.2016 (2016-08-18) paragraphs [0034], [0051]-[0052], [0068]-[0069]                    | 1-7                   |
| A         | JP 2014-520061 A (VITA ZAHNFABRIK H. RAUTER GMBH &<br>CO. KG) 21.08.2014 (2014-08-21) claim 3,<br>paragraphs [0025], [0029]            | 1-7                   |

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
25 February 2020 (25.02.2020)

Date of mailing of the international search report  
10 March 2020 (10.03.2020)

Name and mailing address of the ISA/  
Japan Patent Office  
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,  
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
Information on patent family members

International application No.  
PCT/JP2019/050162

| Patent Documents referred in the Report | Publication Date | Patent Family                                                                                                                                                              | Publication Date |
|-----------------------------------------|------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------|
| JP 2017-531607 A                        | 26 Oct. 2017     | US 2017/0057865 A1<br>paragraphs [0003],<br>[0014], [0041]-[0047]<br>WO 2017/034362 A1<br>EP 3135269 A1<br>KR 10-2017-0026697 A<br>CN 106536438 A                          |                  |
| WO 2016/031399 A1                       | 03 Mar. 2016     | US 2016/0287361 A1<br>paragraphs [0024]-<br>[0026], [0048]-[0050]<br>EP 3011929 A1<br>CA 2931076 A1<br>KR 10-2016-0105826 A<br>CN 106413626 A                              |                  |
| JP 2013-515659 A                        | 09 May 2013      | US 2012/0309607 A1<br>paragraph [0075]<br>WO 2011/076422 A1<br>DE 102009060274 A1<br>CA 2785348 A1<br>CN 102741186 A<br>KR 10-2012-0130088 A                               |                  |
| US 2016/0236971 A1                      | 18 Aug. 2016     | JP 2017-501098 A<br>paragraphs [0030],<br>[0047]-[0048],<br>[0062]-[0063]<br>WO 2015/067643 A1<br>EP 2868634 A1<br>CA 2926665 A1<br>KR 10-2016-0078995 A<br>CN 105683110 A |                  |
| JP 2014-520061 A                        | 21 Aug. 2014     | US 2014/0200129 A1<br>claim 3, paragraphs<br>[0028], [0031]<br>WO 2012/175450 A1<br>CA 2837973 A1<br>CN 103648467 A<br>KR 10-2014-0058503 A                                |                  |

| A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））<br>A61K 6/849(2020.01)i; A61C 13/083(2006.01)i; A61C 5/77(2017.01)i<br>FI: A61C5/77; A61C13/083; A61K6/06                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                                                     |                                                                |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------|
| B. 調査を行った分野<br>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））<br>A61K6/849; A61C13/083; A61C5/77<br>最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの<br>日本国実用新案公報 1922-1996年<br>日本国公開実用新案公報 1971-2020年<br>日本国実用新案登録公報 1996-2020年<br>日本国登録実用新案公報 1994-2020年<br>国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）                                                                                                                                                                                             |                                                                                                                     |                                                                |
| C. 関連すると認められる文献                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                     |                                                                |
| 引用文献の<br>カテゴリー*                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                                                                   | 関連する<br>請求項の番号                                                 |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | JP 2017-531607 A (ハス カンパニー リミテッド) 26.10.2017 (2017-10-26)<br>段落0001, 0011, 0029-0035                                | 1-7                                                            |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | WO 2016/031399 A1 (株式会社ジーシー) 03.03.2016 (2016-03-03)<br>段落0019, 0029-0031                                           | 1-7                                                            |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | JP 2013-515659 A (フラオンホファー・ゲゼルシャフト・ツァ・フェルデルング・<br>デア・アンゲヴァンテン・フォルシュング・エー・ファオ) 09.05.2013 (2013-05-<br>09)<br>段落0017 | 1-7                                                            |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | US 2016/0236971 A1 (IVOCLAR VIVADENT AG) 18.08.2016 (2016-08-18)<br>段落0034, 0051-0052, 0068-0069                    | 1-7                                                            |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | JP 2014-520061 A (ヴィタ ツァーンファブリク ハー, ラウター ゲーエムペーハー<br>ウント コー, カーゲー) 21.08.2014 (2014-08-21)<br>請求項3, 段落0025, 0029    | 1-7                                                            |
| <input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |                                                                                                                     |                                                                |
| * 引用文献のカテゴリー<br>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの<br>“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの<br>“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）<br>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献<br>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献<br>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの<br>“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの<br>“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの<br>“&” 同一パテントファミリー文献 |                                                                                                                     |                                                                |
| 国際調査を完了した日<br>25.02.2020                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |                                                                                                                     | 国際調査報告の発送日<br>10.03.2020                                       |
| 名称及びあて先<br>日本国特許庁(ISA/JP)<br>〒100-8915<br>日本国<br>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |                                                                                                                     | 権限のある職員（特許庁審査官）<br>胡谷 佳津志 3E 3944<br>電話番号 03-3581-1101 内線 3344 |

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2019/050162

| 引用文献 |              |    | 公表日        | パテントファミリー文献                  |                 |    | 公表日 |
|------|--------------|----|------------|------------------------------|-----------------|----|-----|
| JP   | 2017-531607  | A  | 26.10.2017 | US                           | 2017/0057865    | A1 |     |
|      |              |    |            | 段落0003, 0014, 0041-0047      |                 |    |     |
|      |              |    |            | WO                           | 2017/034362     | A1 |     |
|      |              |    |            | EP                           | 3135269         | A1 |     |
|      |              |    |            | KR                           | 10-2017-0026697 | A  |     |
|      |              |    |            | CN                           | 106536438       | A  |     |
| WO   | 2016/031399  | A1 | 03.03.2016 | US                           | 2016/0287361    | A1 |     |
|      |              |    |            | 段落0024-0026, 0048-0050       |                 |    |     |
|      |              |    |            | EP                           | 3011929         | A1 |     |
|      |              |    |            | CA                           | 2931076         | A1 |     |
|      |              |    |            | KR                           | 10-2016-0105826 | A  |     |
|      |              |    |            | CN                           | 106413626       | A  |     |
| JP   | 2013-515659  | A  | 09.05.2013 | US                           | 2012/0309607    | A1 |     |
|      |              |    |            | 段落0075                       |                 |    |     |
|      |              |    |            | WO                           | 2011/076422     | A1 |     |
|      |              |    |            | DE                           | 102009060274    | A1 |     |
|      |              |    |            | CA                           | 2785348         | A1 |     |
|      |              |    |            | CN                           | 102741186       | A  |     |
|      |              |    |            | KR                           | 10-2012-0130088 | A  |     |
| US   | 2016/0236971 | A1 | 18.08.2016 | JP                           | 2017-501098     | A  |     |
|      |              |    |            | 段落0030, 0047-0048, 0062-0063 |                 |    |     |
|      |              |    |            | WO                           | 2015/067643     | A1 |     |
|      |              |    |            | EP                           | 2868634         | A1 |     |
|      |              |    |            | CA                           | 2926665         | A1 |     |
|      |              |    |            | KR                           | 10-2016-0078995 | A  |     |
|      |              |    |            | CN                           | 105683110       | A  |     |
| JP   | 2014-520061  | A  | 21.08.2014 | US                           | 2014/0200129    | A1 |     |
|      |              |    |            | 請求項3, 0028, 0031             |                 |    |     |
|      |              |    |            | WO                           | 2012/175450     | A1 |     |
|      |              |    |            | CA                           | 2837973         | A1 |     |
|      |              |    |            | CN                           | 103648467       | A  |     |
|      |              |    |            | KR                           | 10-2014-0058503 | A  |     |