マイクロ波を応用した義歯重合法

—特にマイクロ波重合用レジンを使用した場合の優位性について—

中 里 良 次

Microwave Polymerization of Acrylic Denture Resins

The Advantages of Using Microwave Cured Type Resin with This Technique

Ryoji Nakazato

It has been reported that the polymerization time of acrylic resins is reduced considerably by application of microwave energy to the FRP dental flask during denture processing. However, a superior quality denture may not be obtained when conventional heat curing resins are used with this microwave polymerization process.

We have developed a new acrylic denture resin for use especially with microwave polymerization. We found no problems with denture porosity or heterogeneous polymerization when this microwave resin was used in place of conventional ones. Microwave irradiation also makes possible a very short curing time of only three minutes and produces an excellent polymer.

The denture fabricated using this process has superior adaptability and the bond strength with resin teeth exceeded our expectations. It is thus possible to make a denture in a very short time using the microwave curing technique. This is considered a very useful technique.

1. はじめに

義歯床用材料の主流は依然としてアクリルレジンである。そして、その操作方法は粉末状ポリマーと液状モノマーの形で供給された両者を混和

し、餅状にしてから石こうで作製した分割型の義歯陰型に填入し、加熱重合するという方法が一般的であり長年用いられてきている。

この加熱重合法による義歯の作製はいくつかの問題を含むものの、その周辺の技術は確立されてきつつあり、臨床的にもほぼ満足できるものとなっている。

しかし、この方法はアクリルモノマーを使用す

図 1 従来の加熱重合型レジンを使用してマイクロ波重合法により重合した厚めのレジンの断面

ることから、残留モノマーを最少にし物性の優れたポリマーとするためには十分な加熱時間が必要である。しかも無気泡性・適合性などの面からみると、できるだけ低い温度で長時間加熱しなければならないため義歯の重合工程に時間がかかり過ぎるという難点がある。

この加熱重合時間を短縮するためにいくつかの方法がとられてきたが、最近にいたり FRP 製のフラスコを併用しマイクロ波を応用した加熱重合型アクリルレジンの短時間重合法の研究が大阪大学の木村教授ら¹⁻⁴⁾によって精力的に進められてきた。これは FRP 製の分割型のフラスコを使用して従来と同様の石こう型を作製し、餅状になったレジンを填入し、500W 出力でマイクロ波を3～5分間照射して重合を完結させるという方法である。

ただし、このマイクロ波重合法にそのまま従来の加熱重合型レジンを使用した場合には種々の問題があり、優れた義歯の作製が容易であるとはいえない。すなわち、マイクロ波重合法にはこの方法に適したレジン組成の選択が必要である。

今回、マイクロ波重合用レジンとしてアクロン MC を作製することができたので、このレジンを使用してマイクロ波重合法によるいくつかの実験を行い、興味ある結果を得たので報告する。

2. マイクロ波重合法におけるレジンの重合性と気泡について⁶⁾

1. 従来の加熱重合型レジンを使用した場合

レジンにマイクロ波が照射されるとレジン自体が加熱されるため、従来のようなフラスコ外部からの間接加熱の場合と異なりレジンの温度上昇は効率よく急速に行われ、重合は短時間で完了することになる。このときレジンは湿式重合法と違って内部から加熱されることから、重合が均一に進行して均質な重合体に仕上げるはずである。

しかし、実際に従来の加熱重合型レジンを使用してこのマイクロ波重合法により比較的厚めのレジンを重合してみると図1のように内部に著しい気泡を生じる。またマイクロ波を数分間照射したのち、ただちに冷却してレジンを取り出すとレジンの外側は硬いが内部が未重合で軟らかいことがある。

このことはマイクロ波重合法が、まずレジン内部から加熱重合されるのではなく、湿式重合法の急加熱法に近い外部加熱法とみなされる可能性がある。

たとえば、練和時の水分を含む石こうと、メタアクリレートモノマーとポリマーからなる餅状レジンとでは誘電加熱の効率が異なり、マイクロ波が照射されたとき、両者の加熱速度に差が生じてくる。図2は同体積(30×30×15 mm)の石こう(硬化1時間後の普通石こう)および餅状レジン(アクロン)にそれぞれマイクロ波を500W出力で15秒間照射してそれらの上昇温度を測定したものであるが、石こうの方が餅状レジンより急速に加熱されることが明らかである。

つまり餅状レジンが石こうに包埋された状態でマイクロ波が照射されると、石こうは急速に加熱されるが、餅状レジンはマイクロ波による加熱効率が石こうよりも低いというえにマイクロ波が石こうを通過してレジンに到達する間にかなりのエネルギーの減衰があるため、石こうよりも相当遅れて加熱されるようである。

したがって、この場合のレジンの重合は、急速に加熱された石こうからの熱伝導による間接加熱によりおもに行われるものであり、レジンの外面

図 2 同体積 (30×30×15 mm) の石こうおよび餅状レジンにマイクロ波を 500 W 出力で15秒間照射したときの上昇温度

から急速に重合が開始されるためレジンの収縮が内部に集中して著しい内部欠陥（気泡）を生じたり、重合が不均一に進行して重合レジンが不均質になり内部応力を生じて変形したりする。

図3は従来の加熱重合型レジン（アクリン）を使用してマイクロ波重合法により実際の義歯を重合したものであるが、切断面をみると人工歯の基底面下のレジン内部に多数の気泡がみられる。表面からはみえにくい部位におもに生ずるので見逃されがちであるが、咬合力が垂直に加わるところであり義歯の耐久性などに大きく影響すると思われる。

2. マイクロ波重合用レジンを使用した場合

マイクロ波重合用レジンであるアクリン MC ではマイクロ波のエネルギーを効率よく吸収し効果的に重合が行われるように組成が調整されている。

図4はアクリン MC およびアクリンを使用してマイクロ波重合法により重合を行い、マイクロ波の照射時間と重合レジンのヌープ硬さとの関係を調べたものである。

アクリン MC ではマイクロ波が照射されると急速に重合が行われ、2分以上の照射で硬さが一

図 3 従来の加熱重合型レジンを使用してマイクロ波重合法により作製した義歯の断面

図 4 アクリン MC およびアクリンのマイクロ波による重合特性

定になり重合が完了している。これに対し、アクリンでは重合の開始が石こうからの間接加熱に大きく依存するためヌープ硬さの発現が遅くなっていることがわかる。

また、アクリン MC を使用した場合、マイクロ波が照射されると重合はレジン自体の内部から急速に開始されると同時に、石こうからの間接加熱により石こうに接したレジンの外表面からも開始され、レジン全体の重合がほぼ同時に進行するものと思われる、その結果、収縮の局所的な偏在による内部欠陥（気泡）を生ずることなく均質な重合体が得られる。

したがって、図1、3と同一形状のレジンの重合にアクリン MC を使用した場合には、図5、

図 5 アクロン MC を使用してマイクロ波重合法により重合した厚めのレジンの断面

図 6 アクロン MC を使用してマイクロ波重合法により作製した義歯の断面

表 1 アクロン MC とアクロンの物性比較

試 験 項 目	アクロン MC	アクロン	試 験 条 件 <規 格 値>
曲げ強さ [kgf/cm ²]	1,090	995	37°C 水中浸漬24時間後
曲げ弾性率 ×10 ⁻⁴ [kgf/cm ²]	2.83	2.74	37°C 水中浸漬24時間後
スープ硬さ [Hk]	18.5	17.9	荷重 100 g, 負荷時間30秒
抗折たわみ [mm]	荷 重 1.5~3.5 kg	1.76	37°C 水中浸漬48時間後 <2.5 mm 以下>
	荷 重 1.5~5.0 kg	3.38	37°C 水中浸漬48時間後* <2.0~5.5 mm>
吸 水 量 [mg/cm ²]	0.67	0.71	37°C 水中浸漬7日間後* <0.8 mg/cm ² 以下>
溶 解 量 [mg/cm ²]	0.01	0.01	37°C 水中浸漬7日間後* <0.04 mg/cm ² 以下>

* 米国歯科医師会 (ADA) 規格 No. 12 (1976)

アクロン MC—マイクロ波重合 (500 W-3 分)

アクロン —湿式重合 (70°C-90分~沸騰水中-30分)

6のように従来の加熱重合型レジンを使用した場合に生じたような気泡はみられない。

さらに、表1に示したようにアクロン MC をマイクロ波3分間照射で重合したものの全体の物性は、アクロンを湿式重合したものと比べ全く遜色なく、優れた値を示している。

3. マイクロ波重合法による重合レジンの適合性について

レジンの加熱重合法では高温で急速に加熱するほど重合レジンの変形が大きく、適合性が悪くな

る傾向が示されており、このため、ときには低温長時間重合法が推奨されている。

マイクロ波重合法ではフラスコの内部温度がかなり高くなるため²⁾、適合性に不利であり、また重合後の冷却方法も大きく影響するであろうと考えられる。

そこで、冷却条件も含めて湿式重合法と比較した適合性を調べてみた。すなわち、図7のような寸法精度の評価によく用いられる山型模型⁵⁾を使用してマイクロ波重合法と湿式重合法とによる試験体を作製し、適合性の比較を行ってみた。

図 7 山型模型の寸法 [mm]

1. 湿式重合法との適合性の比較

(1) 実験材料および方法

山型模型（図 7）を超硬石こう（フジロック）で作製し，図 8 のように模型に適合させて厚さ 1.5mm のパラフィンワックスを圧接してワックスパターンを作製し，フラスコに模型ごと埋没した。石こうが硬化したのち通法に従い流蠟，レジン分離材の塗布を行い，餅状レジンを填入して重合した。

フラスコはマイクロ波重合法ではジーシー FRP フラスコを，湿式重合法ではハノウタイプの金属製フラスコを使用し，フラスコ下部には普通石こう，上部には埋没専用石こう（アドバストーン）を使用した。

レジンは，マイクロ波重合法ではアクロン MC を使用し，500W 出力 3 分間の照射で重合を行い，湿式重合法ではアクロンを使用し，JIS 重合法による 70°C で 90 分間加熱したのち沸騰水中で 30 分間加熱する方法と，別に 75°C で 8 時間加熱を行う低温長時間重合法との両方で重合を行った。

いずれの条件においても重合後のフラスコは室温中に 30 分間放置したのち流水中で 30 分間冷却し，試験体を取り出しバリの除去，トリミングを行い 37°C 水中に浸漬した。

7 日間浸漬したのち，それぞれの試験体を元の山型模型に戻して，図 8 に示した A～E の部位の浮き上がり量を測定し，A と E の 2 個所，B と D の 2 個所，および C₁～C₃ の 3 個所の測定値の平均値をそれぞれ算出し，3 点の浮き上がり量を比較した。

図 8 試験体および測定部位

図 9 各重合方法による試験体の適合性の比較

(2) 結果および考察

結果を図 9 に示した。標準偏差は 3 回の繰り返し実験によるものである。

アクロン MC を使用してマイクロ波重合法により作製した試験体は，通常の湿式重合法（JIS 重合法）により作製したものと比較して全体的に浮き上がり量が少なく良好な適合性を示した。また，一般に適合精度の優れた義歯が得られるといわれている低温長時間重合法による試験体と比較しても良好な結果であった。アクロン MC が急速な加熱重合法にもかかわらず，マイクロ波加熱に適した重合機構により均一に重合反応が行われたものとみなされる。

実際の義歯形態では厚さが一様ではないが均一な重合の進行により良好な適合性が得られるものと考えられる。

2. 冷却条件と適合性の比較

(1) 実験方法

① 3の1で行った、一般に推奨されている室温放冷後、水中冷却する方法、

② 重合後ただちにフラスコを約 20℃ の流水中に投入放置し、十分に冷却してから試験体を取り出す方法、

③ ②と同様に流水中に投入し、投入してから5分後のまだフラスコ内部が熱いうちに試験体を取り出し冷却する方法、

の計3通りの冷却方法による浮き上がり量を測定して適合性を比較した。

また、アクロン MC を使用したマイクロ波重合法とアクロンを使用した湿式重合法（JIS 重合法）との両者について同様の比較を行ったが、②の方法の冷却時間については FRP フラスコを使用したマイクロ波重合法では重合時の内部温度が高いのと FRP フラスコの熱伝導率が小さいこと

により内部の冷却速度が比較的遅いため、十分な冷却時間を45分間とし、湿式重合法では30分以内に内部まで十分に冷却されるため30分間とした。

(2) 結果および考察

マイクロ波重合法における比較結果を図10に、湿式重合法における比較結果を図11に示した。

マイクロ波重合法の場合は、フラスコ内部が十分に冷却されていないうちに試験体を取り出すと著しい変形が起こり適合性が極端に悪くなることが明らかである。しかし、水中に投入し急冷しても内部まで十分に冷却してから取り出した場合には適合性の劣化は少なく、かなり良好な適合性を示した。

湿式重合法の場合は冷却方法①<②<③の順で段階的に浮き上がり量が大きくなり、適合性が劣化する傾向を示したが、冷却不十分で取り出した場合の変形はマイクロ波重合法の場合ほど大きくはなかった。

マイクロ波重合法では内部温度がかなり高くな

〔アクロン MC マイクロ波重合〕

図 10 アクロン MC を使用してマイクロ波重合法により試験体を重合した場合の冷却方法の違いによる適合性の比較

〔アクロン湿式重合〕

図 11 アクロンを使用して湿式重合法により試験体を重合した場合の冷却方法の違いによる適合性の比較

るため、冷却不十分で型から取り出したときのレジンの熱収縮の影響は湿式重合法の場合より大きく、大きな変形を起こす危険性がある。しかし、十分に内部まで冷却してから取り出した場合には水中投入による急冷の影響はそれほど大きく現れないようである。

したがって、マイクロ波重合法では冷却不十分で重合レジンを取り出すことは絶対に避けなければならない。そして良好な適合性を得るためにはできるだけ徐冷することが好ましいが、やむを得ず水中急冷する場合にも内部まで完全に冷却させてから取り出すことにより、かなり良好な適合性が得られるものと考えられる。

冷却時間の短縮の意味からも適合性が満足できるなら水中急冷の方法をとりたいところであるが、実際の義歯の形状はさらに複雑であることを考慮すれば室温中で徐冷するのが最良の方法であるといえる。

4. レジン歯との接着性について

重合方法が異なるとレジン歯と重合レジンとの接着性が心配になる。一般に重合温度が低く重合時間が短いほど、接着強度は低下する傾向がみられる。

マイクロ波重合法の場合、重合時間が極端に短いため十分な接着強度が得られるかどうか不安であり、以下の実験によりその確認を行った。

(1) 実験方法および材料

レジン歯にジーシーリブデントプラスチックの形態記号4の中切歯を使用し、JIS 6511に準じて試験体を作製した。

試験体はアクロン MC を使用したマイクロ波重合法と、比較のためにアクロンを使用した湿式重合法とでそれぞれ5個ずつ作製した。

測定は試験体を室温水中に24時間浸漬したのちインストロン型万能試験機を使用してクロスヘッドスピード 0.5 mm/min で人工歯切端部に荷重をかけて行い、人工歯が破断するまでの最大荷重を求め、それぞれの重合法についての結果の平均値を算出して比較した。

(2) 結果および考察

日本顎咬合学会誌

図 12 リブデントプラスチック前歯 (111) と床用レジンとの接着強度

結果を図12に示した。アクロン-湿式重合法が 13.4 kgf であったのに対し、アクロン MC-マイクロ波重合法では 20.9 kgf と約1.5倍の接着強度を示した。

すなわち、急速ではあるが高温加圧と相まって湿式重合法に比べレジン歯との接着強度の優位性が確認された。

本実験では架橋密度の高いリブデントレジン歯を使用し、また基底面は粗面にせず滑沢面のままで測定したもので、条件としては比較的厳しいものである。アクロンを使用した通常の湿式重合法による義歯において臨床上問題が生じていないことから考えて、マイクロ波重合法によるレジン歯との接着はきわめて良好なものといえる。

5. ま と め

歯科においてはアクリルレジンの加熱重合は、

従来短い場合で1, 2時間, 長い場合で8~24時間かけて行われていたが, マイクロ波重合法により加熱時間が著しく短縮され, 数分間で重合を完了させることが可能となった。

そしてマイクロ波重合用レジンを使用することにより従来の内部気泡の発生や不均一重合の問題が解決され, 3分間のマイクロ波の照射で重合が完了し, しかも従来の湿式重合法に比べ同等以上の物性が得られるほか, 適合性, 人工歯との接着性においてはむしろ優位性が確認された。

したがって, マイクロ波重合用レジンを使用したマイクロ波重合法による義歯作製法は, その作業時間の短縮ばかりでなく, 得られた義歯は臨床上, 耐久性, 良好な咀嚼機能にも満足される可能性が大きく, 今後の新しい重合方法として十分に期待できるものと考えられる。

参考文献

- 1) 木村 博, 寺岡文雄, 斉藤隆裕, 大西寛保, 矢戸学: マイクロ波の歯科への応用 (その1), レジンのドウ化とキュアリング. 歯科材料・器械, 2(2): 253-257, 1983.
- 2) 木村 博, 寺岡文雄, 大西寛保, 斉藤隆裕, 矢戸学: マイクロ波の歯科への応用 (その2), レジンの適合性. 歯科材料・器械, 2(4): 451-457, 1983.
- 3) 木村 博, 寺岡文雄, 大西寛保, 斉藤隆裕, 矢戸学: マイクロ波の歯科への応用 (その3), レジンの表面粗さと石コウとの分離. 歯科材料・器械, 2(6): 772-776, 1983.
- 4) 木村 博, 大西寛保: 特殊フラスコを用いたマイクロウェーブ重合法について. 歯科技工, 12(8): 965-974, 1984.
- 5) 増原英一, 原田義雄: 義歯床用メタクリル樹脂の新乾熱重合法. 歯科技工, 5(9): 116-120, 1964.
- 6) John, L. S., Bernard, L., and Phillips, V. R.: Porosity in denture acrylic resins cured by microwave energy. Quintessence Int, 18(7): 453-456, 1987.