九州歯会誌 32 (6) : 820~832, 1979.

定型試料（金型）を用いたレジン重合後の変形に関する研究

九州歯科大学大学院歯学研究科第一補綴学専攻（指導：豊田静夫教授）

滝 豊

昭和54年1月24日受付

（本論文の要旨は、昭和52年5月21日の第37回九州歯科学会総会、昭和52年11月24日の第64回日本補綴歯科学会総会において発表した。またこの論文の一部は博友会の援助によるものである。）

Fundamental Studies with Experimental Metal Models on Deformation after Polymerization of Dental Resins

Yutaka Taki

First Department of Prosthetic Dentistry (Director : Prof. Shizuo Toyoda)
Kyushu Dental College, Kitakyushu, Japan

In the course of some forty years since the adaptation of acrylic resin by liquid-powder polymerization in making dentures, modifications and improvements have been made in its properties and polymerization techniques. Although heat curing type resin with plaster cores is in main use currently, the use of pour type resin and self curing type resin is also on the increase clinically.

Many reports have been made to date on the studies of these resins, but the matter that which polymerization technique may be the most clinically favorable still remains unsettled.

In the present paper, therefore, an investigation was made of the effect on the resin test plates of the difference in the kinds of resin, cores, polymerization techniques. For the study, two types of experimental metal models of upper denture and resin test plates of heat curing type resin, pour type resin, and self curing type resin were prepared.

The results obtained were as follows :

1. Measurement of thermal conduction of plaster, silicone and agar, used for cores, revealed that plaster showed the best conduction, under given conditions, then agar and silicone followed in order.
2. In dimensional accuracy and adaptability, self curing type resin was superior to heat curing type resin in both plaster core method and silicone core method.
3. As the core materials, silicone core method has less inner stress because of its smooth surface. On the other hand, this method was slightly inferior to plaster core method in dimensional accuracy and adaptability.
4. Heating factor during polymerization affected the dimensional accuracy and adaptability of the polymerized resin test plates.

5. Higher temperature for water-bath for submersion of the test plates after polymerization released inner stress sooner and at a high rate in time.

6. In the form of the resin test plates, shallow palate type showed less deformation rate and less degree of change with time.

緒 言

歯科用アクリル樹脂は1936年にドイツでPaladon, 同じ頃イギリスで Kallodent, アメリカでは Vernonite という商品名で登場した. わが国では1940年に大阪工業試験所の大田がアクリル樹脂を紹介し, その後, 山本, 永井(1947)¹⁾らの研究発表がなされ今日に至っている. 歯科用アクリル樹脂が歯科臨床において重要な役割を持っている理由として, 何よりもすぐれた操作性, 審美性さらには口腔内における安定性などが挙げられる. しかしこの反面, 重合操作中に収縮, 変形するという欠点をもっており, これが義歯床不適合の原因の一つになっているとされている.

近年, 歯科用アクリル樹脂の利点をそのまま活かしてより有効に用いようとする研究がすすめられ, 短時間で加熱重合する方法^{2), 3)}, 全く加熱操作しない常温重合法⁴⁾や流し込み重合法⁵⁾などが開発された.

これまで, 常温重合型レジンは義歯床用材料として用いられなかったのは, Jeffreys(1952)⁶⁾, McCracken(1953)⁷⁾, Stanford and Burns(1955)⁸⁾, Brauer and White(1959)⁹⁾らが報告したように加熱重合型レジンより寸法精度は優れるが, 物理的性質が劣っているためであった. しかし, 歯科技術とくに印象材の進歩により床用材料においても寸法精度が問題にされ, Anthony and Peyton(1962)¹⁰⁾, Mowery and Burns(1958)¹¹⁾, Woelfel and Sweeney(1963)¹²⁾らは, 常温重合型レジンで全部床義歯を作製し加熱重合型レジンと比較した結果, 寸法精度に優れ, 4年間患者に使用させても破折は認められず結果は良好であったと報告している.

Shepard(1968)⁵⁾らによって流し込み法による義歯床の作製方法が報告され, 以来, 多くの技術的検討や評価がなされてきている¹³⁻¹⁸⁾. この方法の利点は, 常温重合型レジンであるため寸法精度が良いこと, 上下分割型のフラスコを用いないため咬合高径が増大しないこと, ろう義歯を寒天で埋没するためフラスコからの取り出しが容易であること, 重合後のレジンと埋没型材の分離がよいので表面研磨が容易であることなどである. これに対し欠点は, 人工歯の位置移動がおりやすいこと

と, 咬合高径の減少がほこること, さらにレジン歯と義歯床との接着が不確実なことなどが挙げられる. これらの欠点を補うため, 特殊石こうCore法¹⁶⁾, シリコンCore法¹⁷⁾が考案された.

以上のように各種レジンの開発, その重合技術の改良がすすめられてきたが, 臨床的立場からどのレジンの重合法が最も好ましいかは依然として疑問の余地がある. 今回, 上顎義歯床を模型化した二種類の定型試料(金型)を用いて, 加熱重合型と常温重合型レジンの場合は, 埋没型材をフラスコ上下盒とも石こうのみのCoreと, 下盒は石こうで上盒はシリコンコーティングを施した石こうCoreとし, 注入型レジンの場合は, 石こうと寒天Coreをそれぞれ用いて, レジン試験片を作製した. さらに, 埋没型材として用いた石こう, シリコン, 寒天の熱伝導を測定し, レジン, 埋没型材, 重合方法の相違が寸法変化, 口蓋相当プレート部の離開角度変化にどのような影響を及ぼすかを検討し興味ある知見を得たので報告する.

予 備 実 験

上顎両側遊離端義歯の適応となる母模型(図1)に対しレジン試験床を作製して, レジン重合後の経時的形状の変化について検討した.

A 予備実験の材料

使用したレジンは, 加熱重合型レジンであるG-C社製 Acron, 埋没型材は, G-C社製超硬石こう Surstone

図1 レジン試験床作製用の上顎母模型

をそれぞれ用い通法に従ってレジン試験床を作製した。

B 予備実験の方法

母模型上の標点間AA'~B'B, CC'~D'Dの形状を、小坂研究所製フォームコーダEF-10型と、これに連動する渡辺測器製作所製X-YレコーダWX432型で記録し(図2), 次に重合作製したレジン試験床粘膜面の同一標点間の形状を同様に記録した。この様にして記録された2つの図形(図3)から、標点AA', BB'をそれぞれ通る直線のなす角を離開角とし、この角度 θ_0 , θ を測定して比較した。

なお、レジン試験床の保存条件は、ヤマト工業社製恒

図2 フォームコーダEF-10型とX-YレコーダWX432型

図3 フォームコーダによりトレースした形状の比較

図4 恒 温 水 槽

温水槽(図4)を用いて、20°Cの水中浸漬とした。測定時点は、離型直後、1, 2, 3, 5, 7, 14, 21, 28日経過後の9回とし、レジン試験床は5個作製した。

C 予備実験

母模型の離開角度 θ_0 とし、レジン試験床粘膜面の離開角度 θ との差を θ_0 で割ったもの、すなわち $\theta_0 - \theta / \theta_0$ を変形率 r として、この変形率 r の経時的变化について調べた(図5)。

離型直後の変形率は、 $1.68 \pm 0.06\%$ であった。次に、離型直後の変形率と28日経過後の変形率の差は、 0.49% であった。

変形率 r の値は、離型直後から5日経過後まではかなり急速に変化し、その後は緩やかとなり7日以上経過すると変化は見られないようになった。

図5 レジン試験床離開角度の経時的变化

D 予備実験の考察

以上の結果から、レジン試験床は重合後離型すると、すでに変形をおこしていた。このため重合操作中に、何かの因子が作用して変形を引き起こしたのではないかと推測できる。この変形の原因の一つとして、Skinner and Phillips (1967)¹⁹⁾, Schroeder (1953)²⁰⁾ らが指摘している熱収縮が考えられる。しかし、熱収縮が生じててもレジンは、埋没型材で拘束の状態にあるため自由な変形をおこすことができない、したがってレジン試験床内部に応力が生じると考えられる、この内部応力の発生に関しては三宅(1978)²¹⁾の報告がある。この内部応力は、離型直後に全て解放するのではなく、その後も徐々に解放がすすむためかなり長時間変形がおこるものと思われる。

この予備実験を参考にして、次のような本実験を行った。

試料作製方法並びに実験材料

A 熱伝導測定用試料の作製

フラスコ内の埋没型材に填入された各種レジンとは、それ独自の重合操作が加えられるが、レジン重合時に関係する熱は、外部からの熱、レジンの反応熱である。この熱を埋没型材が吸収するか逆に断熱するかによって、レジンの熱収縮、重合度の進行に差が生じる、そこでまず埋没型材の熱伝導を測定した。

図6に示すように、高さ90mm、直径10mmの円柱状に、埋没型材として用いるG-C社製超硬石こう Surstone、東レシリコン SH-9550 R T V、寒天は松風社製 Cast Gel のそれぞれを作製し試料とした。なお、レジン床重合時には、フラスコ内の埋没型材の厚さは一定でないため、ここでも熱電対—水面間距離を7mm、21mmの二通りとした。

図6 熱伝導測定用試料と試料の測定部位

B 定型試料(金型)

レジン試験片作製の原型となる定型試料(金型)は、図7、8に示すように上顎義歯床を模型化したもので、口蓋相当プレート部の形状を変えて(深いタイプと浅いタイプ)二種類とした。プレート部には4個の標点を刻んである。なお、口蓋の浅いタイプをNo.1、深いタイプをNo.2とした。

C レジン材料

加熱重合型レジンにはG-C社製 Acron、注入型レジンには松風社製 Cast Resin、常温重合型レジンにはG-C社製 Repairsinを用いた。粉液比は、メーカーの使用説明書に従った。

D 埋没方法

加熱重合型と常温重合型レジンに関しては、(1)G-C社製超硬石こう Surstone で重合用フラスコの上下盒とも埋没したもの(Plaster core type)と(2)下盒は超硬石こうで埋没し、上盒は工業用シリコンである東レシリコン SH-9550 R T V で定型試料(金型)を2~3mmの厚さにコーティングし、その後に超硬石こうで埋没したもの(Silicone core type)の二種類とした(図9)。

注入型レジンでは、松風社製 Cast Gel と超硬石こうで通法に従って埋没した。なお、スプルーの位置は、気泡の発生、重合収縮に及ぼす影響の最も少ないとされている肉厚部に板状のスプルーをたてた¹⁵⁾。

図7 定型試料(金型) No.1タイプ

図8 定型試料(金型) No.2タイプ

図9 埋没型材として石こうとシリコーンを用いた重合法

E 重合方法

Acron は、モリタ製作所製キュアリングユニット NC-1 型（図10）を用い、60°Cで60分間繋留後、沸騰水中に60分間繋留して重合を行った。その後は、室温まで空中放冷した。

Cast Resin は、レジン注入後30分間空中放置し、松風社製Cast Resin用重合槽で50°C、30分間繋留して重合を行った。その後は、室温まで空中放冷した。

Repairsin は、室温で重合を行った。

実験方法

A 熱伝導の測定

本実験でレジン試験片作製時に埋没型材として用いた超硬石こう、寒天、シリコーンの熱伝導測定用試料のそれぞれに、銅—コンスタンタン熱電対を埋め込んだ。まづ、恒温水槽を30°Cとしたが、この温度は室温に近い

図10 キュアリングユニット NC-1 型

ため室温で重合する常温重合型レジンの埋没型材として用いる超硬石こう、およびシリコーンの試料について熱伝導を測定した。ついで恒温水槽を50°Cとして測定したが、これはこの温度で注入型レジンを重合させるため、試料としては注入型レジンの埋没型材として用いられる寒天、超硬石こうとシリコーンなどを用いた。さらに恒温水槽を100°Cとして測定したが、この温度では加熱重合型レジンを重合させるため、超硬石こう、シリコーンを用いた。さらに、熱電対—水面間の距離を7mm、21mmの二通りとし、この間の熱伝導を測定した（図11）。測定に際し他からの熱の影響をなくすため、水面上の試料を発ぼうスチロールでおおった。測定装置は、松下通信社製VP-653B型で、初めの試料温度を23°Cとし、測定を始めた（図12）。

B 寸法変化試験

歯科技術が精度の面で進歩をとげた現在、義歯床用レジンの寸法精度は、適合性に関して大きな鍵となる。そこで、重合操作中のさまざまな因子、例えば、粉液比、加熱、埋没型材などの相違が重合後の寸法変化にどのような影響を及ぼすのか、経時的に測定し検討した。

ここでは、定型試料（金型）に刻んである標点AとC、BとD間の距離29.95mm（図13）と、レジン試験

図11 熱伝導測定方法

図12 ペンレコーダ 653-B 型

片の同じ標点間距離を中村製作所製ピカ読顕微鏡PRM-3XYZ(図14)で、1/100mmの精度にて測定し収縮率を算出した。測定時点は、離型直後、1, 2, 3, 5, 7, 14, 21, 28日経過後の9回とし、レジン試験片の保存状態は20°C, 37°Cの環境温度とし、それぞれの温度で恒温水槽を用い水中浸漬を行った。各条件について、5個ずつのレジン試験片を作製し、重合収縮率の経時的变化、変化の浸漬温度依存性について調べた。

図13 定型試料(金型)の標点間距離

図14 読取顕微鏡 PRM-3XYZ

C 口蓋相当プレート部の離開角度変化試験

義歯床適合性の良し、悪しを把握するには、レジン重合後の寸法変化を知るだけではなく、形状の変化を知る必要がある。そこで、上顎義歯床の形状を単純模型化した二種類の定型試料(金型)を用いて、次のような実験を行った。

定型試料(金型)に刻んである標点AとB, CとD間の形状と、レジン試験片粘膜面の同じ標点間の形状を、小坂研究所製フォームコーダEF-10型と、これに連動する渡辺測器製作所製X-YレコーダWX432型でグラフ上に記録した。こうして得た二つの図形からそれぞれ

の口蓋相当プレート部の離開角度を求め、変形率を算出した。なお、定型試料(金型)のNo.1タイプの離開角度 θ_0 は146.21°, 同じくNo.2タイプは114.24°である(図15)。

レジン試験片の保存状態は、20°C, 37°Cの環境温度とし、それぞれの温度で恒温水槽を用いて水中浸漬とした。測定時点は離型直後、1, 2, 3, 5, 7, 14, 21, 28日経過後の9回とし、レジン試験片の定型試料(金型)に対する変形率の経時的变化、さらにその保存温度依存性についても調べた。

各条件について、5個ずつのレジン試験片を作製した。

実験結果

A 熱伝導について

最初の試料温度を23°Cとして測定を開始したが、試料浸漬温度30°C, 熱電対一水面間距離が7mmの場合、超硬石こう試料は約11分で27°C, シリコン試料は約13分で25°Cとなり、その後は一定温度となった。その温度差は2°Cであった。熱電対一水面間距離が21mmの場合、超硬石こう試料は約12分で25°C, シリコン試料は約14分で24°Cとなり、その後は一定温度となった。その温度差は、1°Cであった。

水中浸漬温度50°C, 熱電対一水面間距離が7mmの場合、超硬石こう試料は約8分で45°C, シリコン試料は約12分で34°C, 寒天試料は約11分で37°Cとなり、その後は一定温度となった。その温度差は、超硬石こう試料とシリコン試料間で11°C, 超硬石こう試料と寒天試料間で8°C, シリコン試料と寒天試料間で3°Cであった。熱電対一水面間距離が21mmの場合、超硬石こう試料は約10分で36°C, シリコン試料は約14分で30°C, 寒天試料は約14分で31°Cとなり、その後は一定

定型試料(金型) No.1 タイプ $\theta_0=146.21^\circ$

定型試料(金型) No.2 タイプ $\theta_0=114.24^\circ$

図15 定型試料(金型)の離開角度

図16 各埋没型材の熱伝導

温度となった。その温度差は、超硬石こう試料とシリコーン試料間で 6°C、超硬石こう試料と寒天試料間で 5°C、シリコーン試料と寒天試料間で 1°Cであった。

水中浸漬温度100°C、熱電対—水面間距離が 7 mmの場合、超硬石こう試料は約4分で94°C、シリコーン試料は約9分で80°Cとなり、その後は一定温度となった。その温度差は、14°Cであった。熱電対—水面間距離が 21mmの場合、超硬石こう試料は約7分で92°C、シリコーン試料は約11分で74°Cとなり、その後は一定温度となった。その温度差は、18°Cであった（図16）。

B 寸法変化試験

離型直後の収縮率は、加熱重合型レジンの plaster core type が $0.54 \pm 0.03\%$ 、silicone core type が $0.73 \pm 0.05\%$ 、注入型レジンの $0.35 \pm 0.03\%$ 、常温重合型レジンの plaster core type が $0.19 \pm 0.04\%$ 、silicone core type が $0.26 \pm 0.05\%$ であった（図17）。

離型直後と28日経過後の寸法変化率の差（経時的寸法安定性）は、レジン試験片を 20°Cの水中浸漬保存の場合、加熱重合型レジンの plaster core type が 0.17% 、silicone core type が 0.14% 、注入型レジンの 0.12% 、常温重合型レジンの plaster core type が 0.10% 、silicone core type が 0.09% であった。次に、レジン試験片を 37°Cの水中浸漬保存の場合、加熱重合型レジンの plaster core type が 0.18% 、silicone core type が 0.16% 、注入型レジンの 0.13% 、常温重合型レジンの plaster core type が 0.12% 、silicone core type が 0.11% であった（図18）。

経時的寸法変化をみると、各レジン試験片はいずれも膨張傾向にあるが、離型後5～7日以上経過すると膨張

図17 レジン試験片の経時的寸法変化

図18 レジン試験片の経時的寸法変化量

傾向が減少しほとんど変化しなくなった。

レジン試験片寸法変化の保存温度依存性をみると、20°Cよりも 37°Cの水中浸漬の方が、早い時期に膨張傾向を示し、経時的寸法変化量は大きくなった。

C 口蓋相当プレート部の離開角度変化試験

定型試料（金型）の口蓋相当プレート部離開角度を θ_0 とし、これを用いて作製したレジン試験片の離開角度を θ とした。 $\theta_0 - \theta / \theta_0$ を変形率 γ とし、この変形率の経時的変化、保存温度依存性について調べた。

離型直後の変形率は、No. 1 タイプのレジン試験片の場合、加熱重合型レジンの plaster core type が $1.21 \pm 0.05\%$ 、silicone core type が $1.42 \pm 0.04\%$ 、注入型レジンの $0.71 \pm 0.04\%$ 、常温重合型レジンの plaster core type が $0.42 \pm 0.03\%$ 、silicone core type が $0.51 \pm 0.04\%$ であった。No. 2 タイプのレジン試験片の場合、加熱重合型レジンの plaster core type が $1.99 \pm 0.06\%$ 、silicone core type が $2.32 \pm 0.05\%$ 、注入型

レジンが $1.19 \pm 0.05\%$ 、常温重合型レジンの plaster core type が $0.71 \pm 0.04\%$ 、silicone core type が $0.83 \pm 0.04\%$ であった(図19~24)。

離型直後と28日経過後の変形率の差(経時的変化量)は、No.1タイプのレジ試験片を20°Cと37°Cの水中浸漬保存の場合、加熱重合型レジンのplaster core type

がそれぞれ0.22%と0.23%、silicone core typeが0.20%と0.21%、注入型レジンが0.25%と0.26%、常温重合型レジンの plaster core type が 0.41%と0.42%、silicone core type が0.33%と0.34%であった。No.2タイプのレジ試験片を20°Cと37°Cの水中浸漬保存の場合、加熱重合型レジンの plaster core type がそれぞ

図19 加熱重合型レジンNo.1タイプ試験片離開角度の経時的変化

図22 加熱重合型レジンNo.2タイプ試験片離開角度の経時的変化

図20 注入型レジンNo.1タイプ試験片離開角度の経時的変化

図23 注入型レジンNo.2タイプ試験片離開角度の経時的変化

図21 常温重合型レジンNo.1タイプ試験片離開角度の経時的変化

図24 常温重合型レジンNo.2タイプ試験片離開角度の経時的変化

図25 No. 1 タイプ レジン試験片離開角度の経時的変化量

図26 No. 2 タイプ レジン試験片離開角度の経時的変化量

れ0.56%と0.58%, silicone core type が0.46%と0.48%, 注入型レジンが0.36%と0.37%, 常温重合型レジン plaster core type が0.30%と0.31%, silicone core type が0.28%と0.29%であった(図25, 26)。

変形率の経時変化をみると、各レジン試験片は離型後5～7日までにはかなりの変化を示すが、それ以後はあまり変化しなくなった。レジン試験片の変形率の保存温度依存性をみると、20°Cよりも37°Cの水中浸漬の方が、早い時期に変化を示し、経時変化量は大きくなった。

考 察

A 熱伝導について

試料浸漬温度30°C、熱電対一水面間距離が7mmと21mmの場合、超硬石こう試料はそれぞれ約11分で27°Cと約12分で25°C、シリコーン試料は約13分で25°Cと約

14分で24°Cとなりその後は一定温度となった。

試料浸漬温度50°C、熱電対一水面間距離が7mmと21mmの場合、超硬石こう試料はそれぞれ約8分で45°Cと約10分で36°C、シリコーン試料は約12分で約34°Cと14分で30°C、寒天試料は約11分で37°Cと約14分で31°Cとなりその後は一定温度となった。

試料浸漬温度100°C、熱電対一水面間距離が7mmと21mmの場合、超硬石こう試料はそれぞれ約4分で94°Cと約7分で92°C、シリコーン試料は約9分で80°Cと約11分で74°Cとなりその後は一定温度となった。

さて、レジンの本態はいずれもメタアクリレートであり、加熱重合型レジンが外部からの加熱により重合反応が進行するのに対して、常温重合型レジン化学的な反応によって重合が進行する。加熱重合型レジンポリマーには重合促進剤として0.5～1.0%の過酸化ベンゾイルが含まれており重合温度が60°C以上になるとこの促進剤が分解をおこし遊離基を作る。この遊離基にモノマー分子が順々に付加して重合体が成長する⁴⁾。この加熱重合型レジンの場合、外部からの熱とレジン自体の反応熱のためレジン内ではかなり高温となることが推測できるが、埋没型材の熱伝導の相違によりレジン重合時の温度環境が変化するため、重合度の進行が埋没型材の種類によって左右されることとなる。

今回、注入型レジン重合を50°Cの雰囲気下で行ったが、これにレジン自体の反応熱が加わっても加熱重合型レジンと比べるとかなり低温である。さらに埋没型材の寒天と超硬石こうに熱が奪われることでレジン重合度が加熱重合型レジンほど十分に進行せず、ポリマーに未膨化の部分が残ると考えられる。このため寒天よりも断熱効果の高いシリコーンを埋没型材に用いる重合方法が研究されているのもうなずけることである¹⁷⁾。

常温重合型レジン室温で重合させるため、加熱重合型レジンのように加熱操作で過酸化ベンゾイルを活性化するかわりに、モノマーに加えたジメチルトルイジンなどの第3級アミン類で過酸化ベンゾイルの分解を化学反応的に促進させレジン重合を進行させる。しかし、一般に化学的に活性化させたものの重合度は、加熱によって活性化させたものより低いといわれている²²⁾。このため、レジン自体の反応熱に埋没型材がどのような断熱効果(熱伝導)を示すかで、レジン重合度に差が生じることが考えられる。三宅(1978)²¹⁾は、埋没型材に石こうとシリコーンを用いて各種タイプのレジンで試験片を製作し、比容積Tgの値を比較した結果、常温重合型レジン石こうのみで埋没重合した場合にはTgが低い

が、シリコンで埋没重合すると、 T_g が非常に上昇し他のタイプのレジンの T_g に近づくと指摘している。

本実験でも型材にシリコンを用いた場合は、他の埋没型材よりも熱伝導が低く断熱効果がよいためレジンの重合反応熱が周囲の型材に奪われることが少なく、レジンの重合度が進行しやすいものと考えられる。

B 寸法変化試験について

寸法変化について重合直後の収縮率を比較すると、レジン試験片を 20°C の水中浸漬保存の場合、加熱重合型レジンの **plaster core type** が $0.54 \pm 0.03\%$ 、**silicone core type** が $0.73 \pm 0.05\%$ 、注入型レジンが $0.35 \pm 0.03\%$ 、常温重合型レジンの **plaster core type** が $0.19 \pm 0.04\%$ 、**silicone core type** が $0.26 \pm 0.05\%$ であった。加熱重合型レジンの収縮率に比べ注入型レジン、常温重合型レジンのその値は約 $\frac{1}{2}$ であった。理論的には、レジン重合時の粉液比を 2 とすると、7% の容積収縮と 2.3% の線収縮をおこすが、埋没型材や加圧方法あるいは重合方法に影響をうけるといわれている⁴⁾。一方、Skinner (1960)¹⁹⁾、Schroeder (1953)²⁰⁾、Mowery and Burns (1958)¹¹⁾ らが、レジン床作製過程中に生じる硬化収縮は、ガラス転移温度から室温までに冷却される間の熱収縮であると述べているように、本実験でも常温重合型レジンの収縮率が他のタイプのレジンより小さいのは、重合温度と室温との差が少ないことによるものと考えられる。

加熱重合型レジン、常温重合型レジンのどちらの場合もモノマーの重合収縮率は理論上同じであるが、加熱重合型レジンの方が収縮率が高いのは、硬化時に高温となり重合度がかかなり進み分子間の凝集力が高まったためであろう。

次に、注入型レジンと常温重合型レジンを比較してみると、注入型レジンの収縮率が常温重合型レジンの収縮率よりも大きいのは、 50°C 温水雰囲気下で重合したためにレジンの重合反応がこの外部温度変化に大きく左右されたこと、常圧下で重合したことや埋没型材の相違によるものと考えられる。

この寸法変化を加熱重合型、常温重合型レジンの重合に用いた埋没型材(超硬石こう、シリコン)の相違からみると、**plaster core** は表面が粗造なためレジンとの摩擦力が大きく自由な変形がおこらないが、**silicone core** は表面が滑沢なためレジンとの摩擦力が小さく自由な変形がおこりやすく収縮率が大きくなったものと考えられる。

離型直後と 28 日経過後の寸法変化率の差(経時的寸法

安定性)は、レジン試験片を 20°C の水中浸漬保存の場合、加熱重合型レジンの **plaster core type** が 0.17% 、**silicone core type** が 0.14% 、注入型レジンが 0.12% 、常温重合型レジンの **plaster core type** が 0.10% 、**silicone core type** が 0.09% であった。次に、 37°C の水中浸漬保存の場合、加熱重合型レジンの **plaster core type** が 0.18% 、**silicone core type** が 0.16% 、注入型レジンが 0.13% 、常温重合型レジンの **plaster core type** が 0.12% 、**silicone core type** が 0.11% であった。レジン試験片の寸法変化を 20°C 、 37°C での保存温度依存性についてみると、保存温度が 37°C の場合は、離型直後から 5 日経過後までにかかなり急速に変化したが、その後は緩やかになった。保存温度が 20°C の場合は、離型直後から 7 日経過後まで急速に変化したが 37°C の場合ほどではなく、その後は緩やかになった。経時的寸法変化量は、各レジン試験片とも保存温度が高い方が大きな値であった。埋没型材の相違から経時的寸法変化量をみると、加熱重合型レジン、常温重合型レジンでは、**plaster core type** の方が **silicone core type** よりも大きい値であった。これは、**plaster core** の表面が、**silicone core** に比べるとかなり粗造でレジンの重合収縮を阻止する摩擦力となるため、レジン内部に応力が生じると考えられる。

C 口蓋相当プレート部の離開角度変化試験について

レジン試験片の適合性判定法として、丸岡 (1971)²⁷⁾ は、(1)口腔内で直接判定する方法、(2)顎模型を用い口腔外で判定する方法、(3)顎の形状を単純化した定型試料(金型)を用い判定する方法などに分類した。(1)の方法については、Woelfel and Paffenbarger (1965)²³⁾、Young (1970)²⁴⁾ らが **indicator-paste** や石こうを用いてその厚さを肉眼的に計測している。この方法は、簡便で臨床に応用しやすいが条件を一定化するのが大いへん困難である。(2)の方法については、Anthony and Peyton (1962)¹⁰⁾ らが **comparator** で床粘膜面の形状を直接計測している。また、Woelfel and Paffenbarger らは、口蓋部においてレジン床と石こう模型との間隙を、模型を切断することにより計測している。(3)の方法については、Smith, *et al.* (1967)²⁸⁾、藤井ら (1968)³⁾、中井ら (1967)²⁹⁾、加藤ら (1968)²⁾ の報告があり、レジン試験片と定型試料とを合わせその間隙を測定している。また、原田 (1965)²²⁾ は、レジン試験片と定型試料との離開角度を計測することでレジン試験片の変形を追求した。

本実験は(3)の方法に属するものであるが、定型試料(金型)から直接レジン試験片を作製し、この形状をフォームコーダとX-Yレコーダで測定するため、たびたびもとの定型試料(金型)に合わせてその適合度を見るというようなレジン試験片の変形をおこし易い計測上の操作がないため、正確にレジン試験片の変形を測定できると思われる。

さて、No. 1 タイプのレジン試験片について離型直後の変形率をみると、20°Cの水中浸漬保存の場合、加熱重合型レジンの **plaster core type** が $1.21 \pm 0.05\%$ 、**silicone core type** が $1.42 \pm 0.04\%$ 、注入型レジンが $0.71 \pm 0.04\%$ 、常温重合型レジンの **plaster core type** が $0.42 \pm 0.03\%$ 、**silicone core type** が $0.51 \pm 0.04\%$ であった。加熱重合型レジンに比べ注入型、常温重合型レジンには、およそ $\frac{1}{2} \sim \frac{1}{3}$ の値を示した。埋没型材の相違からみると、加熱重合型、常温重合型レジンのどちらも **plaster core type** の方が、**silicone core type** より小さい値であった。

次に、No. 2 タイプのレジン試験片について離型直後の変形率をみると、20°Cの水中浸漬保存の場合、加熱重合型レジンの **plaster core type** が $1.99 \pm 0.06\%$ 、**silicone core type** が $2.32 \pm 0.05\%$ 、注入型レジンが $1.19 \pm 0.05\%$ 、常温重合型レジンの **plaster core type** が $0.71 \pm 0.04\%$ 、**silicone core type** が $0.83 \pm 0.04\%$ であった。このタイプの試験片も、No. 1 タイプのレジン試験片と同じく、加熱重合型レジンに比べ注入型、常温重合型レジンには、およそ $\frac{1}{2} \sim \frac{1}{3}$ の値を示した。これらは、Osborne (1947)³⁰⁾、Woelfel and Paffenbarger (1960)²⁶⁾ らが報告しているように、常温重合型レジンが加熱重合型レジンよりも内部応力の発生が少ないということに起因し、また注入型レジンと常温重合型レジンとを比較すると、注入型レジンの変形率が大きいのは、粉液比の差、50°Cの温水雰囲気下で重合したこと、加圧を行なわなかったことなどによるものと考えられる。

埋没型材の相違からみると、加熱重合型レジン、常温重合型レジンのどちらも **plaster core type** の方が **silicone core type** よりも変形率が小さいのは、**plaster core** の表面が粗造なためレジンとの摩擦力が大きく自由な変形がおこらないが、**silicone core** は表面が滑沢なためレジンとの摩擦力が小さく自由な変形がおこりやすいためであると考えられる。

同一条件下で重合したNo. 1、No. 2 タイプのレジン試験片を形状の相違からみると、No. 1 タイプのレジン試験片

の方が変形率は小さくなった。このことは、レジン試験片の形状の相違により、重合時に内部応力の発生に差が生じたためで、No. 2 タイプのレジン試験片の方が内部応力の発生が大きいと考えられる。

レジン試験片の離型直後と28日経過後の変形率の差(経時的変化量)をみると、No. 1 タイプのレジン試験片を20°Cの水中浸漬保存の場合、加熱重合型レジンの **plaster core type** が 0.41% 、**silicone core type** が 0.33% 、注入型レジンが 0.25% 、常温重合型レジンの **plaster core type** が 0.22% 、**silicone core type** が 0.20% であった。次に、水中浸漬保存を37°Cに変えると、加熱重合型レジンの **plaster core type** が 0.42% 、**silicone core type** が 0.37% 、注入型レジンが 0.26% 、常温重合型レジンの **plaster core type** が 0.23% 、**silicone core type** が 0.21% であった。これをレジンの種類別にみると、変化量の大きいものから順に、加熱重合型、注入型、常温重合型レジンとなり、前述のOsborneらの報告したように内部応力の発生の大きいものほど変化量が大きくなった。埋没型材の相違からみると、20°C、37°Cのいずれの水中浸漬保存の場合も、**plaster core type** の方が **silicone core type** よりも大きな変化量を示した。これは、**plaster core** が **silicone core** よりもレジンとの摩擦力が大きく、重合時の内部応力も大きくなったものと考えられる。

変形率の経時的変化を、保存温度依存性についてみると、37°Cの方が20°Cの場合よりも離型後早い時期により急速な変化をし、経時的変化量も大きくなった。

結局、加熱重合法よりも常温重合法、さらに **silicone core method** より **plaster core method** の方が、寸法変化試験、口蓋相当プレート部の離開角度変化試験により値を示した。しかし、経時的な変化量をみると、加熱重合法は、ガラス転移温度から室温までの温度差が非常に大きいためレジンの重合収縮が他の重合法に比べ大きくなり、このためレジンの内部応力も当然大きくなることが考えられる。また、**plaster core method** は、重合中に生じた変形とレジンの **dough** に対する融通性のないことのため内部応力の発生が大きく、経時的な変化量が大きくなった。一方、**silicone core method** は、レジンの **dough** に対する融通性が **plaster core method** の場合よりも高いため自由な変形が可能であり、離型直後の変形率は大きい内部応力の発生は小さくなったといえる。

結 論

上顎義歯を模型化した二種類の定型試料(金型)を用いて、加熱重合型、注入型、常温重合型レジンの試験片を作製し、レジンの種類、型材、重合方法の相違が、重合後のレジン試験片にどのような影響を及ぼすか検討して、次の結論を得た。

1. 型材として用いた超硬石こう、シリコーン、寒天の熱伝導を測定すると、同一条件下では、超硬石こうが最も熱伝導がよく、次に寒天、シリコーンの順であった。

2. レジン試験片の寸法精度と適合性は、plaster core method, silicone core method のいずれも加熱重合型レジンよりも常温重合型レジンの方が優れていた。

3. 型材の相違からみると、silicone core method は表面が滑沢なため、内部応力の発生量を抑えることができるが、寸法精度、適合性の面からは、plaster core method に比べやや劣っていた。

4. レジン重合に際しての加熱という因子が、重合後のレジン試験片の寸法精度、適合度に影響を及ぼした。

5. 重合後のレジン試験片の水中保存温度を高くすると、内部応力の解放は早く経時的な変化量は大きくなった。

6. レジン試験片の形状の相違からみると、口蓋の浅いタイプのレジン試験片の方が深いタイプのものより、離型直後の変形率と経時的な変化量は小さくなった。

稿を終るにあたり終始懇篤なご指導、ご校閲を賜った恩師豊田静夫教授に対し、深甚なる謝意を表しますとともに、実験上数多くのご教示をいただいた九州歯科大学理工学教室林一郎教授、井上勝一郎助教授に心から感謝の意を表します。また、終始実験にご協力いただいた、補綴学教室員諸兄に厚く御礼申し上げます。

引 用 文 献

- 永井一夫：アクリックレジンの再検討，歯界展望 4 : 16—17, 1947.
- 加藤仁朗・西井正道・他：各種ヒートショック型床用樹脂の比較検討，歯材器誌 17 : 51—60, 1968.
- 藤井正道・堀部隆・他：加熱重合法と義歯床用レジンの性質，歯材器誌 17 : 28—34, 1968.
- 金竹哲也：歯科理工学通論，末永書店，東京，1962, 229—256.
- Shepard, W. L. : Denture bases processed from a fluid resin, J. Prosthet. Dent. 19 : 561—572, 1968.
- Jeffreys, F. E. : Use of self-curing resins in repairing and relining denture, J. A. D. A. 44 : 298—301, 1952.
- McCracken, W. L. : Auxiliary uses of cold curing acrylic resins in prosthetic dentistry, J. A. D. A. 47 : 298—304, 1953.
- Stanford, J. W. and Burns, C. L. : Self-curing resins for repairing dentures, J. A. D. A. 51 : 307—315, 1955.
- Brauer, G. M. and White, E. E. : Denture reliners-direct, hard, self-curing resin, J. A. D. A. 59 : 270—283, 1959.
- Anthony, D. H. and Peyton, F. A. : Dimensional accuracy of various denture-base materials, J. Prosthet. Dent. 12 : 67—81, 1962.
- Mowery, W. E. and Burns, C. L. : Dimensional stability of denture base resins, J. A. D. A. 57 : 345—353, 1958.
- Woelfel, J. B. and Sweeney, W. T. : Some physical properties of organic denture base materials, J. A. D. A. 67 : 489—504, 1963.
- 河合庄治郎・野首孝祠：注入型レジンによる補綴について，歯科時報 24 : 12—19, 1970.
- 奥野善彦・丸岡寛昭・他：注入型レジンに関する基礎的研究，阪大歯誌 17 : 45—55, 1972.
- 安田 登・増原英一・他：流し込みレジンのスプルー形態と重合収縮，人工歯の移動，歯界展望 44 : 498—512, 1974.
- 奥野善彦・野首孝祠：特殊石こうを使用した新しい注入型レジン重合法，歯界展望 47 : 182—196, 1976.
- 熱田 充・増原英一・他：流し込み法による正確なレジン床のつくり方，DE 17 : 4—14, 1971.
- 鈴木 暎・宮治俊幸・他：寒天型によるレジン重合の2, 3の問題，歯材器誌 29 : 74—80, 1973.

19. 三浦維四・林一郎・他：スキンナー歯科材料学，医歯薬出版，東京，1969，131—182.
20. Schroeder, A. : Die Eignung der Methakrylate als Prothesenstoffe im Lichte neuer Untersuchung, Schweiz. Mschr. Zahnheilk. 63 : 961—971, 1953.
21. 三宅茂樹：歯科用レジン重合時に発生する内部応力に関する研究，九歯誌 31 : 471—485, 1978.
22. 原田義雄：義歯床用常温重合樹脂に関する研究，口病誌 32 : 291—312, 1965.
23. Woelfel, J. B. and Paffenbarger, G. C. : Pressure-indicator-paste patterns in duplicate dentures made by different processing techniques for the same patients, J. A. D. A. 70 : 339—343, 1965.
24. Young, J. M. : A study of the accuracy of the apposition of palatal tissues to complete dentures, J. Prosthet. Dent. 23 : 136—147, 1970.
25. Woelfel, J. B. and Paffenbarger, G. C. : Dimensional changes in complete dentures on drying, wetting and heating in water, J. A. D. A. 65 : 495—505, 1962.
26. Woelfel, J. B. and Paffenbarger, G. C. : Dimensional changes occurring in dentures during processing, J. A. D. A. 61 : 413—430, 1960.
27. 丸岡寛昭：石膏模型の膨張がレジン床の適合度に及ぼす影響に関する研究，阪大歯誌16 : 29—43, 1971.
28. Smith, D. E., Lord, J. L., et al. : Complete denture relines with auto-polymerizing acrylic resin processed in water under air pressure, J. Prosthet. Dent. 18 : 103—115, 1967.
29. 中井宏之・辻合和雄・他：義歯床作製時の諸条件がその再現性に及ぼす影響について（その2），歯材器誌 16 : 239—250, 1967.
30. Osborne, J. : Internal strains in acrylic denture base materials, Brit. Dent. J. 16 : 204—212, 1947.