機能的印象材の物性に関する基礎的研究

九州歯科大学第1補綴学教室 (指導: 豊田静夫教授)

帆 鷺 郷 一

(本論文の要旨は昭和53年度九州歯科学会総会, 昭和54年度日本補綴歯科学会九州支部会および昭和54年度九州歯科学会7月例会において発表した)

Fundamental Studies on Physical and Mechanical Properties of Functional Impression Materials

Goichi Howashi

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

At present time, the functional impression materials have been willingly used for performing the tissue treatment and taking the dynamic impression. However, the physical and mechanical properties of these materials in oral cavity are not elucidated sufficiently as yet. So the author measured the variation of the coefficient of viscosity and torsional shear modulus with time of the mixture mixed in various ratios at 23°C and 37°C for five commercial functional impression materials (Hi-soft, Hydro-cast, Tri-plastic, Visco-gel, Tempo). In addition, the swelling of powder to liquid was examined by microscope and the water absorption of the functional impression material (powder-liquid mixture) was investigated by using gas chromatograph.

The results obtained were as follows:

1. The working time of Hydro-cast, Hi-soft and Visco-gel was longer than that of Tri-plastic and Tempo, and the variation of torsional shear modulus and the coefficient of viscosity within working time were smaller.
2. The working time of the materials used was varied by mixing temperature and mixing ratio (P/L). When the temperature of mixture rose and ratio (P/L) increased, the working time was shortened.
3. The torsional shear modulus at 60 min from start of mix was $49.7 \times 10^4 \text{ dyne/cm}^2$ for Tri-plastic, $41.5 \times 10^4 \text{ dyne/cm}^2$ for Visco-gel, $22.4 \times 10^4 \text{ dyne/cm}^2$ for Hydro-cast, $21.0 \times 10^4 \text{ dyne/cm}^2$ for Tempo and $17.5 \times 10^4 \text{ dyne/cm}^2$ for Hi-soft.
4. The materials used in this investigation lost ethanol and absorbed water by soaking in distilled water.

I は じ め に

有床義歯, とくに全部床義歯の製作にあたっては, 義

歯機能時における顎粘膜の状態をいかに義歯粘膜面に取
り入れるかがその義歯の良否を決定する重要な一要因と
なる。

顎粘膜は、口腔の部位により著しくその被圧縮性を異にし¹⁻³⁾、機能時と非機能時では全く様相が異なるため、従来より加圧印象を是とするものと無圧印象を是とするものの間にも論議がたえない⁴⁻⁸⁾。

佐久間⁹⁾は“適合のよい、十分使いこなされた義歯装着者の顎粘膜にはわずかな圧痕が認められるが、これは加圧による状態でも、また無圧の状態でもなく、顎粘膜がさまざまな荷重を受けて変形と回復を繰り返すうちに、クリープとその回復とが平衡状態になった結果である”と述べている。

この顎粘膜の状態を得ることが無歯顎印象の現想とするならば、従来の印象法ではこの状態を十分に再現することはできない。

また適合不良の義歯を長期間装着していた患者の顎粘膜は非生理的に圧迫変形されていることが多いが、¹⁰⁻¹²⁾ 新義歯作製時には、これらの非生理的に変形した顎粘膜を生理的な状態にまで回復した状態で印象採得をなくてはならない。近年開発された機能的印象材ならびに術式は、これらの問題点を解決する上で効果的な材料として注目されている。この印象材は、練和直後は非常に流動性に富むが、数分後には粘弾性のあるゲル状物質となり、この粘弾性の性質が数時間あるいは数日間持続する。この間に非生理的に圧迫変形されていた顎粘膜は健全な状態にまで回復し、いわゆる組織調整と機能圧下の印象を効果的に行うことができると考えられており数多くの報告がなされている¹³⁻²⁴⁾。

しかし、この印象材の臨床的な応用には、それを用いる臨床家の経験と勘によるところが多く、必ずしも確実な方法ではない。この材料を用いて、より確実で効果的な印象を行うには、被印象体である顎粘膜の粘弾性の性質²⁵⁻²⁷⁾ならびに印象材自体の物理的性質を究明する必

要がある。

機能的印象材に関しては、その組成²⁸⁻³⁰⁾ならびに粘弾性等の物理的性質³¹⁻⁴¹⁾についての研究はあるが、不明な点も多く、まだ臨床的操作の上に十分活かされているとは言えない。

著者は、機能的印象材を用いて、印象採得を行う場合、比較的短時間内で、その効果が発揮されるものと考え、その間の経時的な粘弾性挙動を究明した。

II 実験材料と実験方法

材料：本実験に使用した材料は、現在市販されている機能的印象材、Hi-soft, Hydro-cast, Tri-plastic, Visco-gel, Tempo (以下それぞれ順に HS, HC, TP, VG, TM と略記する)の5種類である。その製造会社名、製造番号およびメーカ指示の重量粉液比については Table 1 に示す。

実験 1 (粘度の測定)

1) 測定装置

実験に使用した測定装置はE型粘度計(コーン・プレート式、東京計器社製)にST型アダプターを装着したもので $0 \sim 1.86 \times 10^7 \text{cp}$ までの広範囲の粘度を少量の試料で測定できるようにしたものである。装置ならびに機構については Fig. 1, 2 に示す。また粘度計の作動原理図は Fig. 3 に示す。

この粘度計は、同期モータの回転を変速機構およびベルトを介して目盛板に伝える。目盛板にはスプリングを介してロータが取付けられており、目盛板が回転するとロータも同じ速度で回転する。サンプルカップ中に試料を入れ、モータを回転させると、その試料の粘性のためにロータに抵抗が生じてスプリングがねじられる。このねじれはロータに働く試料の粘性トルクとスプリングの

Table 1 Materials used

Material	Manufacturer	Batch No.	Mixing ratio recommended by manufacturer
			Powder (g) : Liquid (g)
Hi-soft	Shofu Dental Mfg. Co., Ltd. (JAPAN)	107836	1.7 : 1.0
Hydro-cast	Kay See Dental Mfg. Co., Ltd. (U.S.A.)	21378	0.8 : 1.0
Tri-plastic	Opotow Dental Mfg. Co., Ltd. (U.S.A.)	6353013030	1.4 : 1.0
Visco-gel	Amalgamated Dental (ENGLAND)	WE7 WC7 WE	1.3 : 1.0
Tempo	Lang Dental Mfg. Co., Ltd. (U.S.A.)	92377	1.3 : 1.0

Fig. 1 Apparatus used for measurement of viscosity.

Fig. 2 Line diagram of ST adaptor.

復元トルクとが互いに平衡状態になるまで続く。この平衡状態でのスプリングのねじれ角度を目盛板上で読み取る。

指針の示す目盛数はデジタル式表示器に表示される。サンプルカップ（ST型）の外周にはジャケットが付与され（Fig. 2），外部循環式恒温槽から熱媒を循環させてサンプルカップ中の温度を一定に保つようにしてある。その温度は銅-コンスタンタン熱電対を用いて温度記録計に直接記録する仕組みになっている。

2) 実験方法

すべての材料について、メーカー指示の粉液比で練和した基準試料と、これより液に対する粉末の量を多くした試料と少なくした試料の3種類を作製して測定に供し

Fig. 3 Diagrammatic representation of viscometer.

た。各試料は室温 23°C のもとで30秒間練和した。試料を注入するサンプルカップの温度，すなわち試料雰囲気温度は 23°C と 37°C の2通りとした。

練和した試料をプラスチック製のシリンジを用いて 2 ml 採取し、可及的短時間内にサンプルカップに注入し、粘度計本体にセットした。全ての試料は練和開始後 1 分30秒から測定した。

3) 粘度の決定

本実験に使用した粘度計はコーン・プレート式回転粘度計のコーン・プレート部を Fig. 2 に示す ST 型ロータに変えたもので、そのときの粘度 (η) は次式で示される⁴²⁾。

$$\eta = K \cdot \frac{\theta}{N} \quad (\text{cp}) \quad (1)$$

ただし K は計器常数

θ は目盛読取値

N はロータの回転数

である。本実験においては回転数を 0.5 r.p.m. 一定としたため、(1)式の $\frac{K}{N}$ は 1.86×10^5 となり

$$\eta = 1.86 \times 10^5 \theta \quad (\text{cp}) \quad (2)$$

で表わされる。

実験2（弾性率の測定）

1) 測定装置

実験に使用した測定器は英国規格（BS 5199：1975）に示されているコンポジットレジン用の測定器を印象材用に改良した Wilson 一井上式レオメーターである。⁴³⁻⁴⁶⁾ 装置ならびにその機構については Fig. 4, 5 に

Fig. 4 Apparatus used for measurement of torsional shear modulus.

Fig. 5 Modified oscillating rheometer.

示す。装置の主要部分は 2 枚の試料保持用金属プレート (A, B), ストレンゲージを接着した固定ビーム (C), 差動トランス (D), 駆動用モータ (E), 振動伝達用アームおよびバネ (F) より構成されている。試料を 2 枚の金属プレート間におき, 毎分 12 回のねじり振動を与える。このねじり振動は駆動用モータから振動伝達用バネならびにアームに及び, 下部金属プレートを通して試料に伝達される。そのねじり振動によって試料中に生じた応力は上部金属プレートの固定ビーム上に接着されたストレインゲージで電気信号に変換した後, レコーダで記録する。また試料に与えるひずみの大きさは, 振動伝達用アームにとりつけた差動トランスで電気信号に変換した後, 応力とともに同時記録する。

印象材の硬化にともなって試料はひずみにくくなり, 駆動用モータによって与えられるひずみ (一定) はモータと下部金属プレート間にセットした振動伝達用バネにより補われる。従って硬化反応がほぼ完了したと思われる時期では, 両者のひずみはともに一定値を示すようになる。

なお測定に際しては試料の雰囲気を一一定に保つためにレオメータを恒温空気浴槽にセットした。

2) 実験方法

5 種類の機能的印象材についてメーカー指示の粉液比 (Table 1) で室温 23°C のもとで 30 秒間練和して測定に供した。練和後直ちに試料保持用金属プレート (A, B) 間に試料を置き, 1 分間そのままの状態に放置した後, 測定を開始した。

試料雰囲気温度は 23°C, 37°C の 2 通りとした。

3) 弾性率の決定

2 枚の試料保持用金属プレート間に置いた試料は下部金属プレートによりねじられる。その状態を Fig. 6 に示す。

Fig. 6 Model of specimen in torsion.

この図から明らかなようにねじりモーメントによる試料のひずみ r は

$$r = \frac{bb'}{ab'} = \frac{1}{2} \frac{d\phi}{dx} d = \frac{1}{2} \theta d \quad (1)$$

で表わされる。ここで θ は厚さ dx だけ隔った 2 面の相対ねじれ量 $\frac{d\phi}{dx}$ を示す。

またねじれによって生ずるずり応力 τ はフックの法則により次式で導かれる。

$$\tau = G r = \frac{1}{2} G \theta d \quad (2)$$

直径 d の円柱状試料にかかるトルク M は

$$M = G \theta I_p \quad (3)$$

で表わされる。ここで I_p は断面 2 次モーメントで $\frac{\pi d^4}{32}$ で示される。よって (3) 式は

$$M = \frac{G \theta \pi d^4}{32}$$

と書き換えられ

$$\theta = \frac{32 M}{G \pi d^4} \quad (4)$$

となる。(2), (4) 式から試料中に生ずるずり応力 $\tau_{\max}$ は

$$\tau_{\max} = \frac{1}{2} G \theta d = \frac{16M}{\pi d^3} \quad (5)$$

で求めることができる。

$$G = \frac{\tau_{\max}}{\gamma}$$

であるから、試料のずり弾性率 G は(1), (5)式から求められる。⁴⁷⁻⁴⁹⁾

実験3 (顕微鏡による観察)

1) 顕微鏡

実験に使用した顕微鏡は生物顕微鏡 L 型(ニコン社製)に AFM 型写真撮影装置を装着したものである。

2) 実験方法

室温 23°C のもとで HS, TP の粉末を少量スライドガラス上にとり、練和液を滴下した。

液を滴下した後 2, 3, 5, 10, 15 分の各時点における顕微鏡像を 10×10 の倍率で観察した。

実験4 (水分, エタノールの検出)

1) 測定装置

実験に使用した装置はガスクロマトグラフ GC-5A 型(島津製作社製)である。その装置ならびに原理図については Fig. 7 および Fig. 8 に示す。本装置は主としてキャリアガス流量制御部、試料導入部、カラム、カラム流路系、恒温槽、検出器および記録計により構成される (Fig. 8)。本実験では、検出器に熱伝導度検出器 (TCD) を使用した⁵⁰⁾。

2) 実験方法

試料作製にあたってはすべての材料をメーカー指示の粉液比 (Table 1) で練和した。室温 23°C のもとで 30 秒間練和したのちサンプルビン (50mm×24mmφ) に 1 ml をとり、練和開始から 5 分のちに 37°C の蒸留水 5 ml を加えた。密閉した状態で更に全体を 37°C 恒温槽

Fig. 7 Apparatus used for gas chromatography.

Fig. 8 Diagrammatic representation of gas chromatography.

A : bomb (N₂) B : control part of carrier gas C : injection part of sample D : column E : detector F : recorder G : air bath for column H : air bath for detector

中に保存した。各試料の浸漬時間は 10 分, 30 分, 1 時間, 5 時間, 24 時間, 72 時間, とした。

所定の時間浸漬後サンプルビンの中の各試料上の水分を取り除き、水のかわりにアセトン 90% とメタノール 10% を混和した溶媒 10ml を加え、密封した状態で 24 時間放置した。これにより完全に溶解した試料 2 μl をマイクロシリンジを用いて採取し、ガスクロマトグラフの試料導入部に注入して測定に供した。

本実験におけるガスクロマトグラフの測定は次の分析条件で行った。

カラム : ポラパック N 80/100 3 mmφ × 3 m
 カラム温度 : 140°C
 気化室温度 : 140°C
 検出器温度 : 150°C
 キャリアガス : N₂ 60ml/min
 検出器 : TCD
 レンジ : 2 mV
 チャートスピード : 5 mm/min

3) 相対重量感度の決定および定量分析の方法

使用する充てん剤の種類によって試料中の各成分の相対重量感度が異なるため、記録されたチャートから定量分析を行う場合には、あらかじめ成分相対重量感度の補正 (補正係数の決定) を行う必要がある。

いま Fig. 9-I に示すように A₁ ~ A₄ の成分を全て 1 g 当量ずつ混和した試料をクロマトグラフで分析したとすると、A₁ ~ A₄ のピーク面積は半値幅法により、それぞれ w₁'h₁' ~ w₄'h₄' と表される。ここで A₃ のピーク面積に対する A₁ ~ A₄ のピーク面積の比をとると

Fig. 9 I : Diagrammatic representation of gas chromatogram chart obtained by four solvents (which contain every 1 gram equivalent).

II : Diagrammatic representation of gas chromatogram chart for quantitative analysis.

$$\frac{w_1' h_1'}{w_3' h_3'} = a', \quad \frac{w_2' h_2'}{w_3' h_3'} = b', \quad \frac{w_3' h_3'}{w_3' h_3'} = 1, \quad \frac{w_4' h_4'}{w_3' h_3'} = d'$$

と表すことができる。ここで得られた a' , b' , 1 , d' の値を相対重量感度といい、補正係数として定量分析に使用した。

たとえば実際の試料を測定した時に $A_1 \sim A_4$ の成分は Fig. 9-II に示すように表されたとすると、 $A_1 \sim A_4$ のピーク面積は $w_1 h_1 \sim w_4 h_4$ となり、 A_1 の場合は

$$\frac{w_1 h_1}{a'} + \frac{w_2 h_2}{b'} + \frac{w_3 h_3}{1} + \frac{w_4 h_4}{d'}$$

$$\times 100 = A_1 \text{ ピーク (\%)}$$

と求めることができる。以下 $A_2 \sim A_4$ についても同様に定量分析される。

本実験においてはあらかじめ水、メタノール、エタノール、アセトンに 1 g 当量ずつ混和した試料を測定し、メタノールに対する相対重量感度を求め、定量分析の際の補正係数として使用した。その記録したチャートを Fig. 10 に示す。このチャートから得られた各成分のピーク面積および相対重量感度（補正係数）については Table 2 に示す。

Fig. 10 Gas chromatogram chart obtained by four solvents (which contain every 1 gram equivalent).

Table 2 Relative weight sensitivity of water, ethanol and acetone against methanol.

	Water	Methanol	Ethanol	Acetone
Peak area (cm ²)	3.49	1.61	2.11	1.66
Relative weight sensitivity (calibrate factor)	2.17	1.00	1.31	1.03

Ⅲ 実験結果

1) 粘度測定

すべての材料をメーカ指示の粉液比で練和して測定した時の練和開始からの粘度の変化を Fig.11 に示す。こ

Fig.11 Variation of viscosity with time from start of mix for functional impression materials at 23°C and 37°C.

の図によると 23°C 雰囲気中で測定した試料（以下単に 23°C 試料と呼ぶ）は 37°C 雰囲気中で測定した試料（以下単に 37°C 試料と呼ぶ）に比べ、練和開始から急激な粘度上昇がみられるまでの時間が長く、最も短いもので 4 分、長いものでは 10 分であった。各試料とも粘度がほぼ直線的な上昇を示すようになる時間（粘度値では 10^7 cp）で比較すると、TM 試料 7.2 分、TP 試料では 12.2 分、HC 試料では 17.7 分、VG 試料では 18.2 分、HS 試料では 24.6 分となり HS 試料が他の試料に比べて最も長い時間を要した。

37°C 試料では測定開始と同時に著しい粘度変化がみられ、23°C 試料と同じく 10^7 cp に達する時間で比較すると TM 試料が 3.5 分で最も短く、TP 試料では 4.9 分、VG 試料では 5.3 分、HC 試料 6.5 分、HS 試料 11 分の順に長くなった。HS 試料の粘度上昇の傾向は他の 4 試料と異なり練和開始後約 12 分 (1.1×10^7 cp) から粘度上昇率 $\left(\frac{d\eta}{dt}\right)$ はやや小さくなる傾向を示した。

メーカ指示の粉液比を基準に臨床で使用し得ると思われる程度に粉液比を変えて練和した試料（Table 3）の粘度—時間曲線を Fig.12~16 に示す。これらのグラフによると、いずれの試料もメーカ指示の粉液比のものに比べて粉末を多くすると練和開始後の粘度上昇が早く現われるとともに、その上昇率も大きくなり、粉末を少なくするとその逆の傾向を示した。この粉液比の影響を

Fig.12 Variation of viscosity with time from start of mix for various P/L ratio of HS at 23°C and 37°C.

Fig.13 Variation of viscosity with time from start of mix for various P/L ratio of HC at 23°C and 37°C.

Fig.14 Variation of viscosity with time from start of mix for various P/L ratio of TP at 23°C and 37°C.

Fig.15 Variation of viscosity with time from start of mix for various P/L ratio of VG at 23°C and 37°C.

Fig.16 Variation of viscosity with time from start of mix for various P/L ratio of TM at 23°C and 37°C.

比較検討するために一定粘度 10^7cp に達する時間と、その時間と粉液比の関係を Table 3 および Fig.17 に示す。Fig.17 では横軸の中央がメーカー指示の粉液比(P/L)を示し、右方が粉末を多くした場合で左方が粉末を少なくした場合を示す。これによると HS 試料では 23°C 試料、37°C 試料ともに粉液比によって粘度が 10^7cp に達するまでの時間に差異が認められた。これに対し他の 4 試料では 23°C 試料の場合にはその差異が認められるが、37°C 試料の場合には大きな差異は認められなかった。

2) 弾性率の測定

23°C 試料の場合の練和開始から 15 分までのねじり振動によるずり弾性率（以下単に弾性率と呼ぶ）の変化を

Table 3 Time when the viscosity of mixture of various functional impression materials come to 10^7cp .

Material	P/L	Time (min)	
		23°C	37°C
HS	1.6	26.62	14.25
	1.7	24.55	11.00
	1.8	21.65	10.17
HC	0.7	21.70	7.10
	0.8	17.65	6.50
	1.0	13.10	5.55
TP	1.2	15.18	5.87
	1.4	12.10	4.90
	1.6	8.62	4.18
VG	1.1	23.00	6.00
	1.3	18.13	5.28
	1.4	14.95	5.03
TM	1.1	9.10	3.95
	1.3	7.15	3.55
	1.4	5.40	3.13

Fig.17 Variation of time when the viscosity comes to 10^7cp with power-liquid ratio (P/L) at 23°C and 37°C.

Table 4 および Fig.18 に示す. これによると HC 試料, HS 試料, VG 試料の弾性率の上昇は TP 試料, TM 試料に比べて小さく, 練和開始から15分後の弾性率はそれぞれ 9.29×10^4 , 6.35×10^4 , 4.5×10^4 dyne/cm² となった.

TP 試料および TM 試料では測定開始直後から弾性率の上昇を示し, 練和開始から3分のちにその上昇は一段と著しくなった. 特に TP 試料ではその後ほぼ直線的に

Table 4 Torsional shear modulus of mixture of various functional impression materials at 23°C.

Time (min)	Torsional shear modulus ($\times 10^4$ dyne/cm ²)				
	HS	HC	TP	VG	TM
2	0.08	0.03	0.32	0.02	0.16
3	0.18	0.13	1.42	0.05	0.92
4	0.32	0.36	3.52	0.12	2.43
5	0.52	0.78	6.00	0.22	4.13
6	0.76	1.36	8.86	0.37	5.83
7	1.19	2.10	11.6	0.59	7.38
8	1.67	2.91	14.0	0.86	8.49
9	2.22	3.81	16.9	1.23	9.75
10	2.86	4.68	19.6	1.66	10.9
11	3.55	5.61	21.6	2.13	11.7
12	4.23	6.55	24.1	2.63	12.3
13	4.93	7.43	26.1	3.23	13.0
14	5.67	8.26	28.2	3.82	13.4
15	6.35	9.29	30.5	4.50	14.0

Fig.18 Variation of torsional shear modulus with time from start of mix for functional impression materials at 23°C.

上昇し, 練和開始後15分の弾性率は同時点で最も低い値を示した VG 試料の弾性率に比べて約7倍の値 (30.5×10^4 dyne/cm²) となった. それに比して TM 試料では練和開始後約7分から上昇率は徐々に低下して緩やかな S 状のカーブを示し, 15分後の弾性率は VG 試料に比べて約3倍の値 (14.0×10^4 dyne/cm²) となった.

Fig.19 は室温 23°C のもとで30秒間練和したのち, 37°C の恒温空気浴中にセットされているレオメータ上に移して測定した弾性率—時間曲線である. その測定値については Table 5 に示す. これによると各試料とも測定直後から曲線は急激な立ち上がりを示し, 弾性率の著明な上昇が認められた. VG 試料を除く他の試料では練和開始後約20分までは著しく上昇するが, その後は緩やかなカーブを示し, 約39分経過後はほぼ一定の弾性率を示すようになった. その変化は TP 試料が最も著しく. 最も変化の少なかった HS 試料に比べて, その弾性率 (Table 5) は10分後では3.3倍, 60分後では2.8倍となった. VG 試料は練和開始後約8分までは他の試料に比べて最も低い弾性率を示したが, その後は急激に上昇し, 約12分後には TP 試料に次いで大きい弾性率を示すようになった. しかも他の試料に比べて60分経過後もその弾性率は増加する傾向を示した. 練和開始後60分の弾性率 (Table 5) は TP 試料が最も大きく, 次いで VG 試料, HC 試料, TM 試料, HS 試料の順に小さい値を示した.

Fig.19 Variation of torsional shear modulus with time from start of mix for functional impression materials at 37°C after mixing at 23°C for 30 sec.

Table 5 Torsional shear modulus of mixture of various functional impression materials at 37°C.

Time (min)	Torsional shear modulus ($\times 10^4$ dyne/cm ²)				
	HS	HC	TP	VG	TM
2	3.76	1.13	8.36	0.12	3.33
3	6.13	3.35	15.2	0.86	8.24
4	7.19	5.71	22.0	1.99	11.3
5	8.63	7.80	26.7	4.02	13.5
6	9.23	9.64	30.0	6.15	14.9
7	9.80	11.2	32.6	8.49	15.8
8	10.4	12.5	34.9	10.7	16.6
9	10.9	13.9	36.4	13.0	17.3
10	11.4	14.5	37.9	15.0	17.5
15	12.8	17.8	42.1	23.3	18.5
20	13.9	19.3	44.3	29.2	19.1
30	15.6	21.0	46.4	35.3	19.7
45	16.8	21.7	47.8	39.0	20.6
60	17.5	22.4	49.7	41.5	21.0

Fig. 20はFig. 19に示された各試料の弾性率—時間曲線を図上微分して得られた練和後の時間に対する弾性率の変化率 $\left\{ \frac{d\{G(t)\}}{dt} \right\}$ をプロットしたものである。これによると各試料の曲線のピークは比較的短時間に現われ、TM試料、HS試料では練和開始後2分、TP試料では3分、HC試料では3.2分、VG試料では6分であった。そのピークはTP試料が最も幅の狭いシブな形を示し、TM、HS、HC、VG試料の順に幅広くなった。

23°C試料の場合と37°C試料の場合とでは、練和開始

から同一時点における弾性率に著しい差がみられた。Fig. 21は練和開始後15分における弾性率を比較したものである。いずれの試料においても23°C試料に比べて37°C試料の方が高い弾性率を示し、VG試料では特に著明な差がみられた。

Fig. 21 Variation of torsional shear modulus with temperature at 15 min from start of mix.

3) 顕微鏡による観察

粘度および弾性率の測定の結果、最も著しい差を示したTP試料とHS試料について顕微鏡による観察を行った。Fig. 22～33は粉末に十分な量の練和液を加えた時の粉末粒子の形状の経時的変化を示したものである。

TP試料の場合は比較的大きい粒子では液滴下直後より明らかな膨潤を示し、1～2分後には一部崩壊を始め、15分にはほぼ完全に形状を消失して液中に溶解した。しかし比較的小さい粒子では液滴下15分後にも形状の変化は全くみられなかった。

HS試料ではすべての粒子が液となじみ、膨潤していく状態が観察された。その膨潤は液の滴下約2分後に、液に接触した表層から起こり、次第に内部に移行していくのが観察された。約5分後には外層の可溶性部分と中

Fig. 20 Variation of $\frac{d\{G(t)\}}{dt}$ with time after start of mix at 37°C.

Fig. 22 HS Powder.

Fig. 25 HS— 5 minutes.

Fig. 23 HS— 2 minutes.

Fig. 26 HS—10 minutes.

Fig. 24 HS— 3 minutes.

Fig. 27 HS—15 minutes.

Fig.28 TP Powder.

Fig.31 TP— 5 minutes.

Fig.29 TP— 2 minutes.

Fig.32 TP—10 minutes.

Fig.30 TP— 3 minutes.

Fig.33 TP—15 minutes.

心部の不溶性部分の分離が明瞭になり，外層の一部が崩壊して液中に溶解していくのが観察された．液滴下15分後には外層は完全に崩壊したが，不溶性部分の形状の変化は全く認められなかった．

TP, HS試料の変化の状態の模式図を Fig. 34 に示す．

Fig. 34 Swelling and dissolution of powder of functional impression materials to its proper mixing liquid.

I : HS powder. II : TP powder.

4) 水およびエタノールの検出

ガスクロマトグラフによる分析の結果，各試料とも水，エタノール検出のための溶媒中に含まれるエタノール，アセトンの4つの成分のピークがチャート紙上に記録された．水中浸漬時間が長くなるに従い水のピーク面積は大きくなり，エタノールでは小さくなる傾向を示した．

Table 6 および Fig. 35 は練和開始後5分の試料に溶媒 10ml を加えてガスクロ分析を行った場合の水とエタノールの含有量(%)を示す(以後この試料を規準試料と呼ぶ)．これによると各試料の水の含有量はエタノール含有量に比べて少なく，試料別では HS 試料が最も多く，TP, TM, VG, HC 試料の順に少なくなった．またエタノールの含有量は HS, TM, TP, HC, VG の

Table 6 Percents of water and ethanol in solutions of functional impression materials (dissolved 5 min after mixing).

	Water (%)	Ethanol (%)
HS	2.11	4.35
HC	1.22	2.76
VG	1.27	1.72
TP	1.49	3.90
TM	1.29	4.21

Fig. 35 Percents of water and ethanol in solutions of functional impression materials (dissolved 5 min after mixing).

順に少なくなり，最も多い含有量を示した HS の値は VG のそれに比べて約2.5倍であった (Table 6)．

各水中浸漬時間における試料の含水量(%)から前述の水中浸漬をしなかった場合の規準試料の含水量(%)を差し引いた値を試料の水分吸収量(%)とした．その結果を Table 7 ならびに Fig. 36 に示す．これによると各試料とも時間の経過とともに吸水量は増加する傾向を示した．VG, TP, HS の3試料は浸漬時間10分から5時間(300分)までの吸水量の増加は非常に少ないが，

Table 7 Water absorption (%) of various functional impression materials.

Time (min)	HS	HC	VG	TP	TM
10	0.08	0.24	0.04	0.01	0.10
30	0.09	0.35	0.07	0.04	0.14
60	0.09	0.42	0.08	0.06	0.18
300	0.15	0.53	0.14	0.12	0.28
1440	0.41	0.69	0.46	0.28	0.39
4320	0.57	1.36	0.90	0.60	0.50

Fig. 36 Variation of water absorption with soaking time in water.

それ以後では著しい増加を示した。TM 試料の場合は浸漬時間 5 時間までは前 3 試料に比べて、やや著しい増加を示したが、その後の増加は少なく、浸漬時間 72 時間ではすべての試料のうち最も少ない含水量を示した。HC 試料はすべての試料のうち最も著しい増加を示し、浸漬時間 72 時間目の試料は TM 試料の約 3 倍の値を示した。また浸漬時間 5 時間の試料と 72 時間の試料とを比較すると、VG 試料では 6.4 倍、TP 試料では 5 倍、HS 試料では 3.8 倍、HC 試料では 2.6 倍、TM 試料では 1.8 倍に増加した。

各浸漬時間における各試料と溶媒に含まれるエタノール含有量と、規準試料の場合のエタノール含有量とを比較し、各浸漬時間によってエタノールが水中に溶出した量 (%) の変化を Table 8 および Fig. 37 に示す。

これによると各試料とも浸漬時間が長くなるに従い、エタノール溶出量は増加する傾向を示した。その変化は HC 試料が最も著しく、浸漬時間 72 時間 (4320 分) では 100 % の溶出を示した。以下 TM (85%)、VG (81%)、TP (71%)、HS (52%) 試料の順に小さくなった。

Table 8 Ethanol elution (%) of various functional impression materials.

Time (min)	HS	HC	VG	TP	TM
10	0.9	14.5	6.4	9.7	8.1
30	3.2	21.7	11.0	14.1	10.0
60	5.1	26.8	15.7	16.9	16.4
300	10.6	31.9	33.1	19.5	30.6
1440	30.6	83.7	51.7	50.2	61.5
4320	52.0	100.0	80.8	70.5	85.0

Fig. 37 Variation of ethanol elution with soaking time in water.

Fig. 38 Percents of water and ethanol in solutions of functional impression materials (dissolved 5 min after mixing) at 72 hours from start of soaking in water.

Fig. 38 は 72 時間水中浸漬した場合の各試料と溶媒中に含まれる水分およびエタノールの含有量 (%) を示す。各試料とも水分含有量はエタノール含有量に比べて多く、規準試料のそれと比べると、HC 試料では 2.11 倍、VG 試料では 1.70 倍、TP 試料では 1.40 倍、TM 試料では 1.39 倍、HS 試料では 1.27 倍に増加した。エタノール含有量はそれぞれ HS 試料 2.09%、TP 試料 1.15%、TM 試料 0.63%、VG 試料 0.33%、HC 試料においてはエタノールは全く検出されなかった。

IV 考 察

1) 粘度測定について

臨床家の立場から使用しやすい機能的印象材とは、印象採得時に、患者の口腔内にセットしやすい適度の粘性を有し、かつセットが完了するまでは粘性、弾性などのレオロジカルな性質の変化が小さい材料である。

HC, VG, HS の3試料は TM, TP 試料に比べて室温 23°C では低粘度を示す時間が比較的長く、練和開始から10分経過後においても練和直後の粘度の約10倍にしかならない (Fig.11)。

豊田²³⁾ は上顎と下顎ではセットに適する印象材の粘度は異なる。下顎の義歯の場合、上顎の義歯の場合に比べてやや硬く、クリーム状から軟らかい餅状の状態がよいと述べている。従って、これらの3試料を使用して印象採得を行う場合には、その操作時間、即ち練和物がクリーム状から軟らかい餅状 (粘度では $1.0 \times 10^6 \text{cp} \sim 2.0 \times 10^6 \text{cp}$) に達するまでの時間は著しく長くなることが予想される。

一方これらの3試料の練和物は、雰囲気温度の影響を受けやすく、温度が高くなると練和開始後ごく短時間のうちに著しい粘度上昇がみられるようになる (Fig.12～16)。従って HC, VG, HS などの材料を使用する場合には、症例に応じて練和時の温度を変え、適当な操作時間にする工夫が必要であろう。

練和物の粘度が 10^7cp に達するまでの時間と粉液比の関係では、実験に使用したいずれの試料も粉液比の影響を受けるが、雰囲気温度が低いほどその影響は大きい (Fig.17)。このことは粉末中への液の拡散によって起こる膨潤あるいは粉末の一部溶解の結果として生ずる粘度上昇を考えれば当然のことといえよう。

2) 弾性率の測定について

本実験では毎分12回のねじり振動を試料に与え、その時に生じる応力—ひずみの比より弾性率を求めた。これによると、TP, TM, HC, HS, VG 5試料とも練和直後より弾性率の増加がみられたが、中でも口腔内温度 37°C では VG 試料の弾性率の増加が最も著しく、練和開始から60分後の弾性率は練和後2分 (患者の口腔内にセットする前の時間) でのそれに比べて346倍に達した (Fig.18, 19)。これに対し、HC, TM, TP, HS 試料の弾性率変化は小さく、HC 試料では19.8倍、TM 試料では6.3倍、TP 試料では6.0倍、HS 試料では4.7倍となった。従って本実験に使用した5試料の中では、VG 試料が最も弾性に富む粘弾性体に変化するといえる。ま

た練和開始から60分後の弾性率では TP 試料が最も大きい値 $49.7 \times 10^4 \text{ dyne/cm}^2$ を示し、VG 試料では $41.5 \times 10^4 \text{ dyne/cm}^2$, HC, TM, HS 試料ではそれぞれ $22.4 \times 10^4 \text{ dyne/cm}^2$, $21.0 \times 10^4 \text{ dyne/cm}^2$, $17.5 \times 10^4 \text{ dyne/cm}^2$ となった。このことから60分後の見かけの硬さは TP 試料の場合が最も大きいといえるが、試料が口腔内という特殊な条件下で使用される場合を考慮すると、本実験だけで結論づけることは非常に困難のように思われる。Fig.20 は練和物の弾性率がもっとも変化し始める時間を知るために Fig.19 をそれぞれ図上微分し、練和後の時間に対して弾性率の変化率 $\left\{ \frac{d\{G(t)\}}{dt} \right\}$ をプロットしたものである。これによると弾性率の増加が最も著しい時間は HS, TM 試料が最も早く (2分)、次いで TP (3分), HS (3.5分), VG (6分) 試料の順で遅くなった (Fig.20)。従って一度口腔内に装着したものである HS, TM 試料では装着後2分、TP 試料では3分、HC 試料では3.2分、VG 試料では6分経過しないうちに口腔外に撤去してトリミング等の操作を行うことは避けるべきであろう。

機能的印象材を練和し、患者の口腔内にセットするまでの操作時間を15分以上必要とする症例はほとんど考えられないため、15分後での弾性率を求め、23°C と 37°C の場合を比較した (Fig.21)。これによると、いずれの試料も弾性率の温度依存性は著しいが、中でも VG 試料がとくに著しいことがわかる。

3) 顕微鏡による観察について

実験1, 2で材料の粘度上昇、弾性率の増加の現われ方に材料間でかなりの差があることがわかった。そのため粘度変化が比較的大きく弾性率の最も高い TP 試料と、粘性、弾性ともに変化が少ない HS 試料について顕微鏡下で粉末の膨潤あるいは溶解の状態を観察した (Fig.22～33)。これによると TP 試料は液に非常に溶解しやすい粉末粒子と、膨潤や溶解を起しにくいわずかの微粉末粒子のブレンドであることがわかった。液滴下後15分では溶解性のある粉末は完全に溶解し、不溶性の微粉末粒子をとりまく組織のものになることがわかった。これに対し、HS 試料では粉末粒子は中心部に不溶性の部分と、それをとりまく可溶性の部分から成っていることがわかった。いずれのタイプも練和後十分時間が経過した後は同様な組織のゲルを形成するが、練和初期では、可溶性部分の溶解速度の差異が、粘度上昇、弾性率の増加の差異を引き起す結果になったものと考えられる。

4) 水分, エタノールの検出について

機能印象の採得は常に材料が口腔唾液に浸漬された状態で行われる。従って材料に適度の可塑性を与えるために加えられているエチルアルコールあるいはその他の可溶性成分は唾液中にとけ出し、さらに外部より唾液の混入なども加わり、実際では空気中で行う実験結果とかなり異った挙動を示すことが予想される。そこで練和開始から5分後の試料に水, エタノールの検出のための溶媒(アセトン90%, メタノール10%)を一定量(10ml)を加え、試料と溶媒中に含有する水とエタノール含有量を求めた(Fig.35)。この含有量を規準にして、各試料をそれぞれ一定時間水中浸漬した試料について規準試料の場合と同様に、試料と溶媒中に含まれる水, エタノールの含有量の変化を調べた(Fig.36, 37)。これによると、単に試料を水中(37°C)に浸漬しているだけで試料中への水の混入, アルコール分の溶出が生じていることがわかる。Fig.38は72時間水中浸漬した場合のグラフであるが、HC試料ではアルコール成分が全く検出されなくなる状態にまで変化した。72時間浸漬後の水分含有量は規準試料のそれに対して、HC試料では2.11倍となり最も大きく、VG試料では1.70倍、TP試料では1.40倍、TM試料では1.39倍、HS試料では1.27倍となった。実際の臨床的な条件下では咀嚼圧も加わるため、72時間よりも短時間の内にこの傾向は生じるものと予測される。従って、これらの材料を使用する場合(特にHCの場合)、セット後72時間にはセット後比較的短時間の内に見られるような挙動は期待できないことが予測される。

臨床では材料がセットに適した粘度を示すようになるまでの時間が長い材料に対しては、微温湯に浸すことにより、その操作時間を調節する方法をとるが、可溶性部分が完全に溶解し均一な組織になる以前に微温湯に浸漬して操作時間を短縮することは材料中の成分をより容易に溶出させる結果となり、材料の物性の立場からあまり好ましい方法とはいえないように思われる。

V む す び

近年、機能的印象材は、組織調整と機能印象採得を同時に行えるものとして臨床に好んで使用されるようになった。しかし、その物理的、機械的な性質については不明な点が多い。そこで著者は5種の市販機能的印象材について粘度および弾性率の経時的変化の測定、粉末が練和液を含んで膨潤し、溶解する状態の顕微鏡による観察、さらに練和物中に含まれる水分とエタノールをガス

クロマトグラフにより検出した。その結果、次のような結論を得た。

1. HS, HC, VGの操作時間はTP, TMより長く、その間の粘性、弾性率の変化は小さかった。

2. 実験に供したすべての材料の操作時間は雰囲気温度や粉液比の影響を受け、雰囲気温度を高くするか、粉液比(P/L)を大きくすることにより操作時間は短縮された。

3. 口腔内温度(37°C)における練和開始後60分の弾性率はTPでは 49.7×10^4 dyne/cm², VGでは 41.5×10^4 dyne/cm², HCでは 22.4×10^4 dyne/cm², TMでは 21.0×10^4 dyne/cm², HSでは 17.5×10^4 dyne/cm²であった。

4. 口腔内温度(37°C)にセット後は、すべての材料において、その直後より粘性、弾性の著しい上昇を示し、その反応は約6分以内にピークに達して20~40分には、ほぼ安定した。

5. 機能的印象材の粉末は練和液に対して、可溶性の粒子と不溶性の粒子より構成されるタイプと、すべての粉末粒子が可溶性の部分と不溶性の部分から成るタイプのものとがあった。

6. 練和物の物性の変化が早い機能的印象材ほど、練和液中に粉末粒子が膨潤あるいは溶解する現象が早くあらわれた。

7. 実験に供したすべての材料では、蒸留水に浸漬することにより水分を吸収し、エタノールを溶出するが、その量は浸漬時間の増加に従って多くなった。

稿を終わるにあたり、本研究に終始懇切な御指導と御校閲を賜った恩師豊田静夫教授に深甚な感謝の意を表わすとともに、実験上数多くの御教示をいただいた理工学教室林一郎教授ならびに井上勝一郎助教授に衷心より謝意を捧げます。また本研究に種々御協力をいただいた理工学教室、補綴学教室員の皆さまに対し、心から謝意を表わします。

引 用 文 献

1. 平田幹男：無歯顎粘膜の被圧縮度に関する臨床的研究，補綴誌，3：14—27，1959。
2. 大島健嗣：総義歯床座粘膜の被圧縮時における荷重量および圧縮量に関する研究，補綴誌，12：31—72，1968。
3. 宮下恒太：顎粘膜の局所被圧変位度と咬合力による義歯床の沈下度とに関する研究，歯科学報，70

- : 38—68, 1970.
4. **Tench, R. W.** : Afterthoughts concerning impressions for full dentures, *J. Amer. Dent. Ass.* 15 : 37, 1928.
 5. **Tench, R. W.** : Impression for dentures, *J. Amer. Dent. Ass.* 21 : 1005, 1934.
 6. **Addison, Pavl I** : Mucostatics impression, *J. Amer. Dent. Ass.* 31 : 941—946, 1952.
 7. **Tilton, G. E.** : A minimun pressure complete denture impression technique, *J. Prosthet. Dent.* 6 (1) : 6—23, 1956.
 8. **Apploby, R. C.** : A mandibular impression technique for displacement tissue, *J. Prosthet. Dent.* 4 : 335, 1954.
 9. 佐久間孔毅 : 無齒顎印象採得のレオロジーによる検討, *歯科器誌*, 12 : 79—124, 1965.
 10. **Lytle, R. B.** : The management of abused oral tissues in complete denture construction, *J. Prosthet. Dent.* 7 : 27—42, 1957.
 11. **Lytle, R. B.** : Complete denture construction based on a study of the deformation of the underlying soft tissue, *J. Prosthet. Dent.* 9 : 539—551, 1959.
 12. **Lytle, R. B.** : Soft tissue displacement beneath removable partial and complete dentures, *J. Prosthet. Dent.* 12 : 34—43, 1962.
 13. **Chase, W. W.** : Tissue conditioning using dynamic adaptive stress, *J. Prosthet. Dent.* 11 : 804—815, 1961.
 14. **Vig, R. G.** : A modified chew-in and functional impression technique, *J. Prosthet. Dent.* 14 : 214—220, 1964.
 15. **Pound, E.** : Conditioning of denture Patients, *J. Amer. Dent. Ass.* 64 : 461, 1962.
 16. **Pound, E.** : Preparatory dentures, *J. Prosthet. Dent.* 28 : 5—18, 1968.
 17. **Tassarotti, B.** : A clinical and histologic evaluation of a conditioning material, *J. Prosthet. Dent.* 28 : 13—18, 1972.
 18. **Tucker, K. M.** : Relining complete denture with the use of a functional impression, *J. Prosthet. Dent.* 16 : 1054—1057, 1966.
 19. **Watson, R. M.** : The use of tissue conditioner for obturator impression, *Brit. Dent. J.* 124 (5) : 226, 1968.
 20. **von Krammer, K.** : Tissue conditioner, *J. Prosthet. Dent.* 25 : 244—250, 1971.
 21. 松本直之・小田 稔・他 : いわゆる Dynamic Impression Material による粘膜の修復効果について, *補綴誌*, 6 : 234—239, 1962.
 22. 松元 誠・梶井 徹 : Dynamic impression material によって前歯義歯の口蓋形態を機能的に改善した1症例, *補綴誌*, 10 : 75—78, 1966.
 23. 豊田静夫 : リベースの時期と方法, *日本歯科評論*, 427 : 43—53, 1978.
 24. 清水 稔・豊田静夫・他 : ダイナミック印象法を応用した上顎金属床義歯について, *九州歯会誌*, 32 (6) : 852—856, 1979.
 25. 田中資郎 : 口蓋粘膜のクリープに関する研究, *補綴誌*, 16 : 358—379, 1973.
 26. 中島俊朗 : 口蓋粘膜の応力緩和に関する研究, *補綴誌*, 19 : 391—410, 1975.
 27. 三輪英則 : 断続荷重による口蓋粘膜のクリープ, *補綴誌*, 20 : 399—422, 1976.
 28. **Braden, M.** : Tissue conditioners. I. Composition and structure. *J. Dent. Res.* 49 : 145—148, 1970.
 29. **Braden, M.** : The composition, structure and flow properties of functional impression materials (tissue conditioners), *Dent. Pract.* 16 : 301—304, 1966.
 30. **Wison, H. J., Tomlin, H. R. et al.** : Tissue conditioners and functional impression materials, *Brit. Dent. J.* 121 : 9—16, 1966.
 31. **Braden, M.** : Tissue conditioners. III. Water immersion characteristics, *J. Dent. Res.* 50 : 1544—1548, 1971.
 32. **Stracke, E. N., Marcroft, K. R., et al.** : Physical properties of tissue conditioning materials as used functional impressions, *J. Prosthet. Dent.* 27 : 111—119, 1972.
 33. **McCarthy, J. A., and Moser, J. B.** : Mechanical properties. Part I. : Theoretical

- considerations, behavical characteristics, and tensil properties, J. Prosthet. Dent, 40 : 89—97, 1978.
34. McCarthy, J. A. and Moser, J. B. : Undercut reproducibility of functional impression materials (tissue conditioners), J. Oral. Rehab. 5 : 287—292, 1978.
 35. McCarthy, J. A. and Moser, J. B. : Mechanical properties of tissue conditioners Part II : Creep characteristics, J. Prosthet. Dent. 40 : 334—342, 1978.
 36. Ward J. E. : Effect of time lapse between mixing and loadig on the flow of tissue conditioning materials, J. Prosthet. Dent. 40 : 499—508, 1978.
 37. Braden, M. : Tissue conditioner. II. Rheologic properties, J. Dent. Res. 49 : 496—501, 1910.
 38. 川上道夫・竹花庄治 : Dynamic impression material のクリープとその回復, 歯理工誌, 6 (10) : 7—11, 1965.
 39. 関根篤治・他 : 動的印象材の粘弾性についての基礎的検討, 歯科学報, 68 : 1059—1070, 1968.
 40. 佐藤鎮城 : 機能印象材の粘弾性に関する基礎的研究, 九歯会誌, 26 (4) : 334—348, 1971.
 41. 三輪英則・服部正己・他 : 動的ならびに合成ゴム印象材のクリープに関する研究, 補綴誌, 20 : 393—398, 1976.
 42. 浜野 光・光永マサ子 : 涙液の粘度測定, 日本眼科紀要, 24 (4) : 435—444, 1973.
 43. Bovis, S. C., and Wilson, H. J. : Setting characteristics of composite filling materials, Brit. Dent. J. 131 : 352—356, 1971.
 44. Inoue, K. and Wilson, H. J. : Viscoelastic properties of elastometric impression material (Part 1), J. Oral Rehab. 5 : 89—94, 1978.
 45. Inoue, K. and Wilson, H. J. : Viscoelastic properties of elastometric impression material (Part 2), J. Oral Rehab. 5 : 261—267, 1978.
 46. 井上勝一郎・林一郎・他 : 弾性印象材に関する基礎的研究(第3報), 歯理工誌, 19 (45) : 48—52, 1978.
 47. 井本立也著 : 概説レオロジー, 東京化学同人, 1963.
 48. 吉識雅夫・金沢武著 : 材料力学明解, 養賢堂, 1967.
 49. 鶴戸口英善・国尾武沢 : チモシエンコ材料力学, 東京図書 1962.
 50. 松隈昭著 : ガスクロマトグラフィーの実際, 東京化学同人, 1978.