ポリエーテルサルホン樹脂の補綴臨床への応用に 関する基礎的研究 第1報

九州歯科大学歯科補綴学第1講座（主任：豊田静夫教授）

有田 正博・三宅 茂樹・篠原 功
栢植 伸平・佐藤 清高・豊田 静夫

昭和62年6月25日受付

Basic Study on Prosthetic Clinical Application of Polyethersulfone Resin (Part I)

Masahiro Arita, Shigeki Miyake, Isao Shinohara,
Shinpei Tsuge, Kiyotaka Sato and Shizuo Toyoda

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

Recently, polyethersulfone resin (PES), substituting for acrylic resin, has been introduced as a denture base material. PES excels in mechanical properties, thermal resistance, and abrasive resistance, and is stable chemically, and has no harmful effect on the oral mucosa. Thus, PES appears to have favorable properties for a denture base material. There are, however, some unclear aspects in its manageability and clinical applications. Therefore, an investigation was made of its plasticity, vertical dimensional change of artificial tooth at molding of the denture, bonding strength of artificial tooth to PES, deformation at molding.

The results were as follows:

1. The test portion was selected under the clasp tang where considered to be the most difficult to mold and the feasibility of packing was examined. As a result, it was found that relief of 0.65mm and over would be required to pack under the clasp tang completely.
2. Examination of rising of artificial tooth at molding the denture, the eliminable area changing to 3, 6, and 10mm, showed that increase in the width of eliminable area tended to increase the extent of rise of artificial tooth. Making the width of the eliminable area 3mm, resulted in 0.17 ± 0.09 mm rise and the effect on occlusal vertical dimension increase was made small.
3. The bonding material specified for PES did not produce satisfactory bonding strength of artificial tooth to PES. Only when undercut had been given on the base of the artificial tooth, the bonding strength of artificial tooth similared to that to heat-cured polymerized resin.

4. A mold shrinkage rate of PES was rather large with $4.4 \pm 0.3\%$.

Key words: PES/Denture base material/Plasticity/Vertical dimensional change

結 言

現在、歯科床用材料として一般に用いられているアクリリックレジン (PMMA) は、物性、操作性、色調などにおいてはほぼ満足できる材料であるが、機械的強度がやや劣ること、吸水性が大きくデンチャープラークが付着しやすいこと、未重合モノマーが残留することなど、いくつかの問題点も有している。そこで、アクリリックレジンの改良^{1,2)}、重合法の工夫³⁻¹¹⁾、アクリリックレジンに替わる樹脂材料の開発が行われている。

アクリリックレジンに替わる樹脂材料として、現在応用されているポリカーボネート樹脂^{12,13)}やポリサルホン樹脂^{14,15)}、機械的強度や化学安定性などの点で優れているが、射出成形機が大型で高価であることや、樹脂溶解時の高熱・高圧に関する対策が必要であること、修理やリライニングが容易に行えないことなど、いくつかの問題点がある。

最近、ポリエーテルサルホン樹脂 (PES) がアクリリックレジンに替わる材料の一つとして紹介された。これは、機械的強度、耐熱性、耐摩耗性に優れ、化学的にも安定し、生体に対する為害性もなく、義歯床用材料として好ましい性質を多く有していると思われる (表1)。しかし、その操作性や臨床応用するうえでの不明な点が

表1 PES の主な物性

試験項目	試料	PES	加熱重合 レジン	流し込み レジン
引 張 り 強 度 (kg/cm ²)	dry	860	620	560
	wet	790	610	530
伸 び (%)	dry	110	3	5
	wet	130	4	5
曲 げ 強 度 (kg/cm ²)	dry	1,230	900	870
	wet	1,140	860	850
曲 げ 弾 性 率 (kg/cm ²)	dry	29,300	31,400	30,000
	wet	28,100	28,300	27,600
アイゾット衝撃強 度(kgf・cm/cm)	ノッチ付	8.7	2.4	1.6
	ノッチ無	破折せず	16	12
抗 折 た わ み (mm)	3.5 kgf	1.5	1.8	2.0
	5.0 kgf	2.9	3.5	4.7

歯科技工 14:27-35, 1986 参照¹⁶⁾

いくつかあるので、成形性、成形時の人工歯の浮き上がり、人工歯 (レジン歯) との接着性、成形時の変形について検討し、いささかの知見を得たので報告する。

実 験 方 法

1. 成形性について

PES で義歯を作製するにあたっては、加熱して軟化した PES を石膏合わせ型により圧縮成形する方法を利用しているため、複雑な形態をした義歯の細部まで成形できるかどうかの問題である。そこで、臨床上最も成形困難と思われる鉤脚下を対象として、鉤脚の長径を10 mm、幅径を3 mmと5 mm、リリーフ量を0.35, 0.45, 0.55, 0.65mmとしたエーカースクラスプ (図1) を10

図1 填入試験に用いたエーカースクラスプの形態

a : 鉤脚長径 (10mm)

b : 鉤脚幅径 (3, 5mm)

c : リリーフ量 (0.35, 0.45, 0.55, 0.65mm)

個ずつ作製し、メーカー指示に従って PES を填入したときの鉤脚下への填入の可能性を検討した。

成形後、填入状態を肉眼的に観察し、鉤脚部の下に PES が完全に填入されなかった例 (図2) と完全に填入された例とに分類した。

2. 成形時の人工歯の浮き上がりについて

PES を成形する際は試圧することなく1度の圧迫で填入しなければならず、床辺縁から一定量の切除部を残して余剰の PES 材料を排出する部分 (オーバーフロースペース) を設けるよう指示されている (図3)。

図2 鉤脚下に PES が填入されなかった例

図3 義歯埋没法

この切除部の幅は PES の排出量に関連があり、人工歯の浮き上がりに影響を及ぼすと思われる。そこで、切除部の幅を 3, 6, 10mm として PES を成形したときの人工歯の浮き上がり量をピカ精工社製三次元読取顕微鏡で計測した。

3. 人工歯（レジン歯）との接着性について

PES とアクリリックレジン歯は化学的に結合しないので、専用の接着剤を使用するよう指示されている。そこで、人工歯基底面に表 2 に示す 4 種の処理を施し、この接着剤の接着力ならびに補助的維持機構として人工歯基底面に付与したアンダーカットの効果などについて検討した。

表2 人工歯接着試験のための人工歯処理法

(1)	流蠟+接着剤
(2)	流蠟+中性洗剤による洗浄+接着剤
(3)	流蠟+中性洗剤による洗浄+アンダーカット (直径 3 mm)+接着剤
(4)	流蠟+中性洗剤による洗浄+アンダーカット (直径 6 mm)+接着剤

なお、このとき歯冠軸に対して 45° の方向から、東京試験機製作所製簡易型デジタル引張圧縮試験機 PS-100 により 1 mm/sec で定速荷重を加え、人工歯が破折脱落したときの荷重を接着力とした (図 4)。

図4 人工歯（レジン歯）との接着試験

4. 成形時の変形について

a) 成形後の変形率

だんざく状試験片 (65×10×1 mm) を作製し、成形前と成形後の寸法をピカ精工社製読取顕微鏡で読み取り、変形率を算出した。

b) 適合性試験

定型金型試験片を印象採得して模型を作製し、パラフィンワックス 1 枚分の厚さの適合試験用試料を PES で成形した。これを定型金型試験片にかえて適合状態をニコン社製万能投影機で投影して検討した (図 5)。

図5 PESの適合性試験

実験結果

1. 成形性について

鉤脚部幅径が3mmであっても5mmであっても, 0.45mm以下のリリースでは鉤脚下への填入はほとんど不可能であった. 0.55mm以上リリースをとればほとんどの例で可能であり, 0.65mmでは100%可能であった(表3).

表3 鉤脚下へのPESの填入可能性に関する結果

リリース量	0.35mm	0.45mm	0.55mm	0.65mm
成形性	不可可	不可可	不可可	不可可
鉤脚部幅径	3mm	5mm	3mm	5mm
	10 0	7 3	2 8	0 10
	10 0	10 0	1 9	0 10

不可: 鉤脚下に填入できなかった例

可: 鉤脚下に填入できた例

2. 成形時の人工歯の浮き上がりについて

切除部の幅を3mmとした場合の人工歯の浮き上がり量は 0.17 ± 0.09 mmであった. また6mm, 10mmとした場合は, それぞれ 0.52 ± 0.16 mm, 0.75 ± 0.23 mmであり, 切除部の幅を大きくすれば人工歯の浮き上がり量も大きくなった(表4).

3. 人工歯(レジン歯)との接着性について

人工歯基底面にアンダーカットを付与しなかった例(処理法1, 2)では, 割り出しの時に人工歯が脱落していた. 人工歯基底面に直径3mmのアンダーカットを付与した例(処理法3)の接着力は 16.5 ± 4.1 kgf, 直径6mm(処理法4)では 15.1 ± 3.5 kgfであった(表5).

4. 成形時の変形について

表4 切除部の幅と人工歯の浮き上がり量

切除部回数	3mm	6mm	10mm
1	0.32	0.45	0.95
2	0.12	0.31	0.87
3	0.08	0.40	0.68
4	0.08	0.52	0.75
5	0.16	0.74	0.70
6	0.13	0.82	0.41
7	0.36	0.43	0.53
8	0.03	0.42	0.59
9	0.15	0.57	0.96
10	0.29	0.44	1.06
$\bar{X}$	0.17	0.52	0.75
S.D.	0.09	0.16	0.23

(単位 mm)

表5 人工歯の処理法と接着力

人工歯の処理法	接着力
(1)	脱落
(2)	脱落
(3)	16.5 ± 4.14
(4)	15.1 ± 3.54

(単位 kgf)

PESを成形すると $4.4 \pm 0.3\%$ の収縮がみられた. また適合性試験においては, 図6に示すようにかなりの不適合性を示した.

図6 成形後のPESの適合性

考察

現在, 義歯床用材料として広く用いられている材料はアクリリックレジンである. これは, 操作が簡便であること, 追加・修正が容易であること, 義歯が不適合になった場合リライニングが容易に行えること, 安価であることなどの多くの特徴を有している. しかし, 残留モノマーがあるため口腔粘膜を刺激したり, 患者によってはアレルギー症状があること, 機械的強度が理想的といえ

るほど大きくないことなどの欠点がある。そこでアクリリックレジンに替わる義歯床用材料がいくつか開発されている。

今回紹介するポリエーテルサルホン樹脂 (PES) は、アクリリックレジンについて指摘されている欠点をもたない素材であるため、義歯床として魅力ある材料であり、すでに臨床応用も試みられている^{16), 17)}。しかし、PES を臨床応用するうえでの問題点は完全に解明されているとは思われない。そこで、PES の問題点に着目し、成形性、成形時の人工歯の浮き上がり、人工歯 (レジン歯) との接着性、成形時の変形について、アクリリックレジンと比較して検討した。

1. 成形性について

加熱重合法でアクリリックレジンを重ね合する場合、まず手圧により細部へ填入した後、石膏合わせ型法で機械的加圧により填入を完成するため細部までレジンを入ることが可能である。しかし、PES は板状に成形された材料を 350°C で軟化して、石膏合わせ型法により 1 回で加圧成形するよう仕組まれている。そのため、PES が細部にまで確実に填入されるかどうか疑問である。

そこで技工上、最も材料填入が困難と思われる鉤脚下への填入の可能性について検討したところ、鉤脚幅を 3 mm と 5 mm とした場合では、鉤脚幅が小さいほど填入しやすいことが明らかとなった。また、鉤脚幅が 3 mm の場合も 5 mm の場合もリリーフ量が 0.35 mm ではほとんど全ての例で PES を填入できず、完全に填入するためには 0.65 mm のリリーフが必要であることが明らかとなった。しかし、顎間距離が小さい局部床義歯症例に対して人工歯排列をうまく行うためには、人工歯排列の余裕を確保するようにリリーフ量を可及的に小さくすることが得策である。

PES は前述したように加熱して可塑性を増し、加圧成形するタイプの材料であるため、PES の加熱温度を上昇させるか、石膏模型の温度を上昇させれば成形性が改善できると思われる。PES を加熱し過ぎると、沸騰して気泡が発生するので、加熱には限界があるが、加熱温度と成形性については詳細に検討する必要がある。

2. 成形時の人工歯の浮き上がりについて

アクリリックレジンに試圧を何度か行うことにより重合による人工歯の浮き上がり量は、約 0.33 mm にまですることができると岩谷 (1981)¹⁸⁾ は報告している。PES は 1 回の加圧で成形するため余剰材料を効果的に排除しなければ、石膏合わせ面にバリが残り人工歯が浮き上がる可能性がある。

切除部 (図 2) の幅を 3 mm とした場合の成形時の人工歯の浮き上がりは、 0.17 ± 0.09 mm であり加熱重合法によるアクリリックレジンの場合より小さくすることができた。切除部の幅を 6 mm とすると 0.52 ± 0.16 mm、10 mm にすると 0.75 ± 0.23 mm となり、切除部が大きくなるとそれだけ PES の流出が阻害され、その結果として咬合高径挙上量が大きくなった。そこで切除部の幅は 3 mm とすることが望ましいことがわかった。

2. 人工歯 (レジン歯) との接着性について

人工歯と床用材料とは化学的あるいは機械的に結合しなければならない。PES はレジン歯と化学的に結合しないので、専用の接着剤を利用するよう指示されている。そこで人工歯基底面のみが PES と接触するようにし、専用の接着剤を塗布して、その効果を検討したところ、割り出しの際に全ての人工歯が脱落した。このことは接着剤の接着力はほとんど期待できないことを示唆している。しかし、臨床においては人工歯カラー部を PES で被覆することが一般的であり、PES が人工歯を抱き込むことにより機械的維持はある程度期待できるであろう。

直径 3 mm のアンダーカットを付与すると 16.5 ± 4.1 kgf の接着力が得られ、レジン歯と加熱重合レジンとの接着力 (17~18 kgf) と同程度の値となった。宮津¹⁹⁾ は、12.5 kgf 以上の接着力があれば咀嚼圧に耐えると言っており、このことを参考にすると、アンダーカットを付与することとカラー部の抱き込みとにより、実際に義歯を使用する際の人工歯の脱落は防止できるであろう。

なお、アンダーカットを直径 6 mm にしても接着力はほとんど変わらず、逆にわずかに小さくなっており、アンダーカットは大きくしても効果がないことが明らかになった。

3. 成形時の変形について

加熱重合法によるアクリリックレジンの理論的重合収縮率は約 7% であると言われている。JIS 重合法で実際に重合すると約 0.47% の収縮率であったと岩谷 (1981)¹⁸⁾ は報告している¹⁸⁾。

PES で成形した場合の収縮率は 4.4 ± 0.3 % であり、かなり大きな収縮率であることが明らかとなった。その結果として図 5 に示すような不適合試料が成形できたのであろう。

この原因としては、耐熱性石膏の熱膨張率、加圧成形後の冷却法などが考えられるが、今後詳細な検討をする予定である。

ま と め

ポリエーテルサルホン樹脂 (PES) は、義歯床用材料として好ましい性質を多く有し、その成形法も比較的容易である。そこで今回、その PES による義歯作製に関するいくつかの問題点について検討し、つぎのような結果を得た。

- 1) 鉤脚下への填入を完全に行うためには、脚下に0.65 mm以上のリリーフを施す必要があることがわかった。
- 2) 切除部の幅を大きくすると、人工歯の挙上量も大き

くなる傾向にあるが、切除部の幅を3 mmにすれば挙上量は $0.17 \pm 0.09 \text{ mm}$ となり、咬合高径に与える影響を小さくすることができた。

- 3) 専用の接着剤では、人工歯 (レジン歯) との接着力はほとんど期待できず、人工歯基底面にアンダーカットを付与することで、加熱重合レジンと同程度の接着力を得ることができた。
- 4) 成形時の収縮率は $4.4 \pm 0.3\%$ とかなり大きく、また適合試験においてもかなり不適合であることがわかった。

引 用 文 献

- 1) 堀内 章：常温重合レジンの機械的性質の経時的变化について 第2報 架橋剤ネオペンチルグリコールジメタクリレートの影響。歯理工誌 20:162—166, 1979.
- 2) 安田清次郎・松川正一郎：歯科用レジンの物性改良に関する研究。エポキシジメタクリレートの合成とその基礎物性について。歯材器誌 3:270—283, 1984.
- 3) 平澤 忠・原嶋郁郎：義歯床用常温重合アクリルレジン。歯科技工別冊／義歯床用レジンと歯科技工, 38—47, 1982.
- 4) 森 博史・安藤一郎・佐藤秀樹：SR-Ivocap システムを用いた加熱重合レジン床義歯の製作。歯科技工別冊／義歯床用レジンと歯科技工, 119—134, 1982.
- 5) 児玉二三夫：床用レジンの射出填入法について。歯科技工 2:11—20, 1974.
- 6) 丸山松司：低温長時間重合および湿潤環境下での重合後作業による加熱重合レジン床義歯の製作。歯科技工 11:125—134, 1983.
- 7) 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。歯材器誌 2:253—257, 1983.
- 8) 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。歯材器誌 2:451—457, 1983.
- 9) 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こうの分離性。歯材器誌 2:772—776, 1983.
- 10) 畑 龍治・宮川千市・長田 悟・大成治義・笹倉泰彦：高圧持続式加熱重合法応用によるレジン床義歯作製の一貫工程システムとは。歯科技工 13:14—20, 1985.
- 11) 村岡 博・石川功和：光重合レジンによる有床義歯製作システム トライアドシステムの特徴とその物性。歯科技工 13:529—536, 1985.
- 12) 青木資明：義歯床用材料としてのポリエーテル樹脂, ポリカーボネート樹脂の歯科理工学的研究。歯科医学 30:753—764, 1967.
- 13) 住井泰之：射出成形法によるポリアセタール, ポリカーボネイト樹脂の歯科理工学的研究。歯科学報 63:231—253, 1963.
- 14) 徐 崇仁・護得久朝保・長沢 亨・津留宏道・若狭邦男・山下昌雄：ポリサルフォン床用レジンに関する研究 第1報 耐摩耗性。広歯誌 14:36—41, 1982.
- 15) 斉藤隆裕：ポリサルホン床義歯のプレフォーム圧縮成形法に関する基礎的研究。阪大歯誌 30:10—27, 1985.
- 16) 井上眞一・石田博士・後藤達男：新しい義歯床用材ポリエーテルサルホンの特徴と物性ならびにその義歯製

作システム．歯科技工 14：19—26，1986．

- 17) 奥野善彦・野首孝祠・前田芳信・小野高裕・津留宏道・吉田耕一郎・大川周治：ポリエーテルサルホン義歯の臨床的評価．歯科技工 14：27—35，1986．
- 18) 岩谷秀明：義歯の適合を阻害する因子に関する基礎的研究．九州歯会誌 34：696—719，1981．
- 19) 宮津 一：二つの新しい歯科材料．日本歯科評論 275：10—16，1965．