

歯科材料のレオロジー

井 上 勝 一 郎

鹿児島大学歯学部 歯科理工学講座

1. レオロジーとは何か

材料の物性を扱う人であればレオロジー (rheology) という言葉を1度は耳にしたことがあると思う。そもそもレオロジーという言葉はギリシャ語の $\rho\epsilon\omega$ (=flow, 流れる) にちなんで名づけられたようであるが、そのまま訳すと流動学である。しかし実際に取り扱っている内容からすれば“物質の流動ならびに変形に関する力学”といった方がよりの的を得ているかも知れない。固体系, 液体系, 気体系の全ての系が研究の対象となっているが, これだけではレオロジーがどのような学問かを十分理解することは難しいと思われるので身近な例をあげて説明しよう。われわれが日常使用している印象材の一つにポリサルファイドゴムがある。この材料は, 外部から荷せられる力あるいはひずみに対して, それらがごく瞬間的なものであればあたかも弾性体のように振舞う。臨床家の中で弾性印象材と呼ばれる所以は実はここにある。しかしこれらの力あるいはひずみが比較的長時間にわたって荷せられるとすれば, その間流動し続けあたかも液体のように振舞ってしまう。このように同じ材料であっても観察方法を変えることによって, 固体とも液体とも受け取れる力学的挙動を示す例は実に多い。単にポリサルファイドゴム印象材だけでなく, その他の印象材, レジン, ワックス, セメントなど殆んど歯科材料にこうした挙動がみられるとあってよいであろう。

固体に関しては弾性の法則, 液体に関しては粘性の法則, また気体に関しては気体の法則があることはすでに周知のことと思うが, 実際の物質ではこれらの諸

法則から遠く離れてしまう場合が殆んどである。したがってレオロジーでは, 力-ひずみと時間の関係を調べ変形の起り方を明らかにしようとするのが特色である。最終的に作り上げた歯科修復物の物性はもとよりそれに至るまでの操作過程における物性変化を研究する場合, レオロジー特有の考え方は問題解決への有力な手段になり得るといって間違いのないであろう。

近年では上記の材料一般に関するレオロジーだけでなく, 血液や筋肉あるいは歯牙, 骨など医学の面でのレオロジー (生体のレオロジー)¹⁾もさかんになりつつある。また極端な例としては, 食物の腰あるいは舌ざわり, さらに衣服などの風合といった, もともと人間の感覚的判断によって決定されていたものまでがレオロジーの対象となり, サイコレオロジー (psycho rheology)²⁾と称して研究されている。サイコレオロジーはそもそもイギリスの Scott Blair によって開拓された分野であるが, こうした人間の感覚と与えられる刺激との関連性を研究することは, 現代の歯科のいろいろな術式を考える際に大いに役立つものがあると考ええる。

しかし本誌では紙面の都合もあるのでレオロジーの一般的な考え方を述べ, それをもとに2~3の歯科材料のレオロジーを記すことにとどめたい。まずは材料の変形という問題から説明しよう。

2. 理想的な弾性変形

物質に引張り, 圧縮, ずり, ねじりなどの外力が作用すると, その外力の大きさに応じて伸び, 縮み, ず

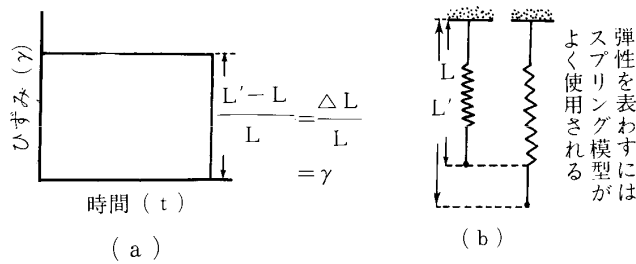


図1 理想的弾性変形

れ、ねじれが生じる。これらをまとめて物質の変形あるいはひずみと呼んでいる。外力の作用で瞬間的に変形し、外力の除去でその変形が瞬間的に消失してしまうような変形を理想的な弾性変形と呼んでいる。この変形は時間に全く無関係であるため変形－時間の関係を図示すると図1(a)に示すようになる。

理想的な弾性変形を示す物質では加えられた単位面積あたりの力を S ，それによって生じた単位長さあたりのひずみを γ とすると、

$$S = E \cdot \gamma \quad (1)$$

の関係が成り立つ。これをフックの法則という。比例定数 E は弾性の程度を表わす係数で弾性率と呼ばれる。またこのような法則に従う物質を理想的弾性体 (ideal elastic body), あるいはフッキアン (Hookian body) と呼んでいる。

一方図2に示すようなせん断力によって物質を変形させるとすればせん断ひずみ(ϵ)は次式で表わされる。

$$\frac{\Delta x}{y} = \tan \alpha = \epsilon \quad (2)$$

フッキアンではせん断応力(σ)とせん断ひずみ(ϵ)との間に比例関係が成り立つため(1)式と同様次式で表わされる。

$$\sigma = G \cdot \epsilon \quad (3)$$

G はせん断弾性率あるいは剛性率と呼ばれるものである。

3. 理想的な流動変形

理想的な粘性液体は極く小さな応力の作用で流動変形を起し、応力が作用している間に変形し続ける。また応力をとり去っても変形は全く回復しない。したがってひずみは応力の関数だけでなく時間の関数にもなっている。

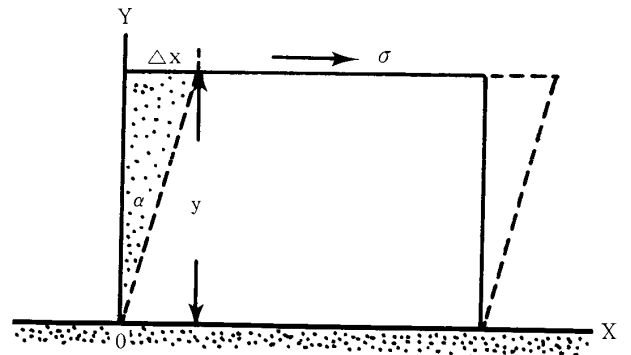


図2 せん断による弾性変形

流動変形は液体がもつ内部摩擦力すなわち粘性に抗して起り、流動速度があまり大きくなければ層流を形成する。この種の流動を粘性流動と呼んでいる。

液体の粘性流動に関してはニュートンの法則があるが、この法則では温度が一定である場合応力(S)は変形速度($\frac{d\gamma}{dt} = D$)に比例する。

$$S = \eta \frac{d\gamma}{dt} \quad (4)$$

ここで η は粘性係数と呼ばれる。またこの逆数を流動率 $\phi (= \frac{1}{\eta})$ という。

ニュートンの法則(4)式を図示すると図3で示されるが、この法則に従う液体を純粘性液体 (pure viscous liquid) あるいはニュートニアン (Newtonian liquid) という。

また(4)式は(5)式のように書き換えられるため時間－変形図に書き換えると図4に示されるようになる。

$$\gamma = \frac{1}{\eta} S t \quad (5)$$

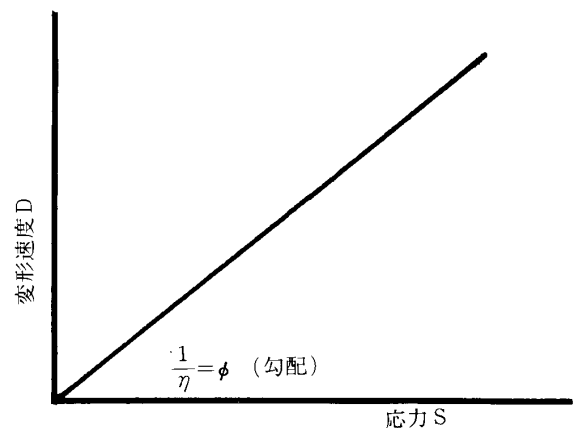


図3 ニュートン液体の流動

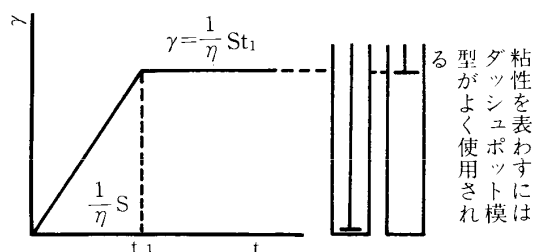


図4 ニュートン流動

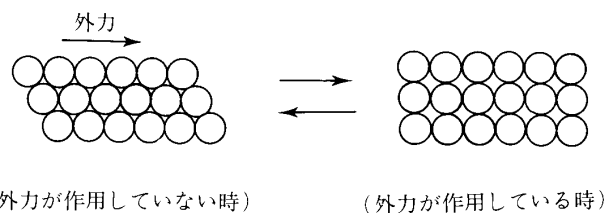
4. 理想的でない流動変形

ニュートン流体では流動曲線が原点を通る直線になるが、そうでない流動曲線が得られるような流体を総称して非ニュートン流体 (non-Newtonian fluid) と呼んでいる。これには図5に示すようにいくつかの形式がある。

図5 (A) に示すような形の流動曲線では

$$S^n = \eta' \frac{d\gamma}{dt} = \eta' D \quad (6)$$

の関係が成り立つ。ここで $n < 1$ の場合には非ニュートン流動, $n > 1$ の場合にはダイラタンシー (広義の非ニュートン流動), $n = 1$ の場合にはニュートン流動となる。ダイラタンシー (dilatancy)^{3,4,5)} についてはもう少しあとで触れることにする。図5 (B) はある応力が作用して初めて流動し始める場合で降伏値を持つ場合である。流動速度は全ての応力に比例せず, 降伏値を超える部分 ($S - S_0$) に比例する。したがってこの場合(6)式

図6 ダイラタンシーの説明図⁵⁾

$$S - S_0 = \eta' \frac{d\gamma}{dt} = \eta' D \quad (6)$$

で表わされる。ここで η' は偽粘性あるいは塑性粘性と呼ばれ, この(6)式に従う流動をビンガム流動あるいは塑性流動と呼んでいる。またこの種の流動を起す固体をビンガム固体または理想的塑性体と呼んでいるが, このような固体は実際にはほとんどみられない。実際には図5 (C) にみられるような流動 (非ビンガム塑性流動) が多く, 図に示すように下限降伏値, 上限降伏値を持つのが特徴である。

ここで図5 (A) で触れたダイラタンシーについてもう一度説明しよう。ダイラタンシーは濃厚な固体の懸濁液にみられる現象でずり応力が作用すると固体粒子の充てん状態が変わり, 図6に示すようにみかけ上体積が膨張したあたかも固体のような外観を呈することになることである。一般に応力が作用するとゲル類似のものになり, 応力を取り除くとゾルに変わるような性質をダイラタンシーと呼んでいる。歯科用陶材のコンデンス時によくみられる現象である。

一方これとは逆に応力が作用すると時間と共に粘性が低下するものがある。マヨネーズ, ケチャップなどは容器を傾けても容易に流出しないが軽くふると簡単に流出する。また静置すればもとの性質にもどってしまう。これと同じような現象は歯科用セッコウを練和した時にも経験することができる。練和直後のセッコウが入ったラバーボールをゆっくり傾けてもセッコウは流出しにくい, バイブレータを用いてそれに振動を加えると容易に流動する。このような性質をチクソトロピー (thixotropy) (揺変性)^{3,4,5)} と呼んでいる。チクソトロピーは外部からの力の作用で微粒子間にできた何らかの構造が破壊されゾル状になり, 静置すると再び構造が再建されゲル状を呈するようになる現象である。したがってその挙動は変形速度-応力-時間でみなければならない。図7はチクソトロピーを示す物

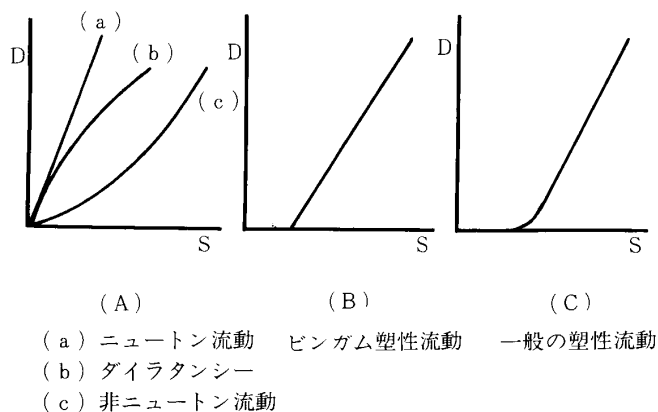


図5 非ニュートン流動曲線と塑性流動曲線

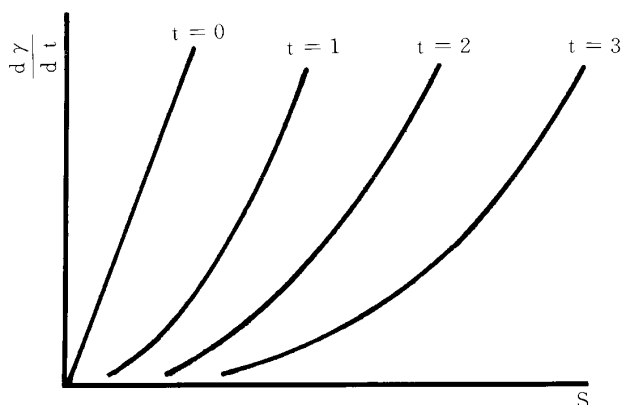


図7 チクソトロピー性物質の流動曲線

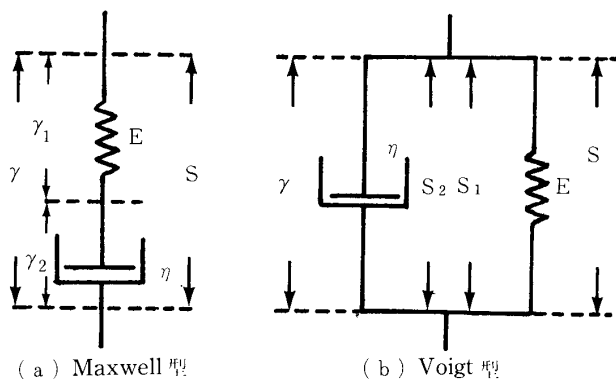
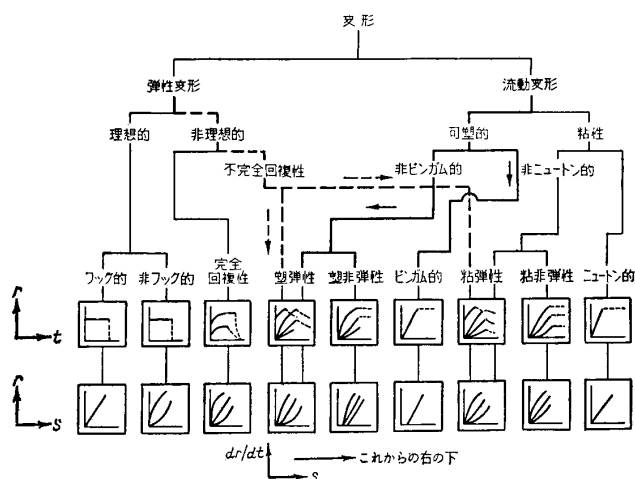


図9 力学模型

図8 レオロジー的性質の分類⁴⁾

質のD-S曲線を示したものである。

以上、フックアン、ニュートニアン、非ニュートニアンについて述べてきたがこれらの中でフックアン弾性、ニュートニアン粘性はいずれも理想的なもので実際には存在しない。実際の物質では、これら両者の性質を同時にそなえたものが殆んどである。英国のレオロジストクラブが発表したレオロジー的性質の一般的分類図を図8に示しておこう。

5. 粘 弾 性

これまで述べてきたように弾性、粘性をそれぞれ個々に使う段階では本当のレオロジー的考え方とはいえない。しかしレオロジー的考え方をおしすすめていくためにはこの弾性、粘性に関する知識は最小限度要求されるものであるためあえて記述した次第である。

レオロジーの基本的な考え方は、弾性、粘性双方の

性質が互いに重なり合ったもの（重畳の原理）としていろいろな物質の挙動を処理していくことである。弾性、粘性を組合せた最も簡単な型には図9で示すように2通りがある。(a)をMaxwell型力学模型、(b)をVoigt型力学模型と呼んでいる。

まずMaxwell型力学模型について考えてみよう。

弾性率Eのスプリングについては(1)式が成立するため、その両辺をtで微分すると

$$\frac{d\gamma_1}{dt} = \frac{1}{E} \frac{dS}{dt} \quad (7)$$

となる。一方粘性係数ηのダッシュポットについては(4)が成立するため

$$\frac{d\gamma_2}{dt} = \frac{1}{\eta} S \quad (8)$$

と書ける。この模型では2要素（スプリングとダッシュポット）が直列に接続されているため、全体のひずみ速度（ $\frac{d\gamma}{dt}$ ）は(7)、(8)式より次式で表わされる。

$$\frac{d\gamma}{dt} = \frac{d\gamma_1}{dt} + \frac{d\gamma_2}{dt} = \frac{1}{E} \frac{dS}{dt} + \frac{1}{\eta} S \quad (9)$$

これをMaxwellの粘弾性方程式と呼んでいる。

今Maxwell模型で表わされるような物質に一定ひずみを与えておく（応力緩和試験を行う）とすれば(9)式において $\frac{d\gamma}{dt} = 0$ になるため、 $t=0$ におけるSを $S=S_0$ として解くと

$$S = S_0 e^{-\frac{1}{\tau} t} \quad (10)$$

となる。ただし $\tau = \frac{\eta}{E}$ である。このτは緩和時間と呼ばれるが、応力が $\frac{S_0}{e} = 0.3679 S_0$ まで減少する時間を表わしているため材料の応力緩和の程度を比較する場合によく利用されるものである。相対応力（ $\frac{S}{S_0}$ ）－時間(t)の関係を図示すると図10のようになる。

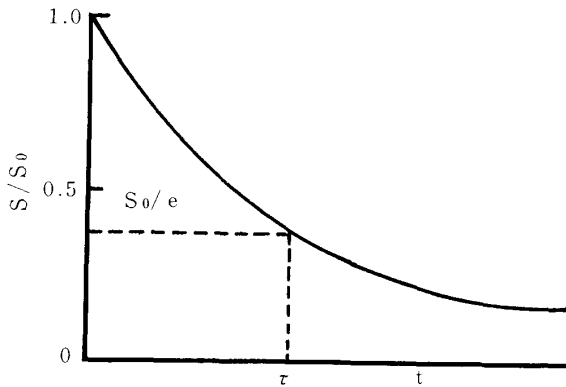


図10 応力緩和曲線

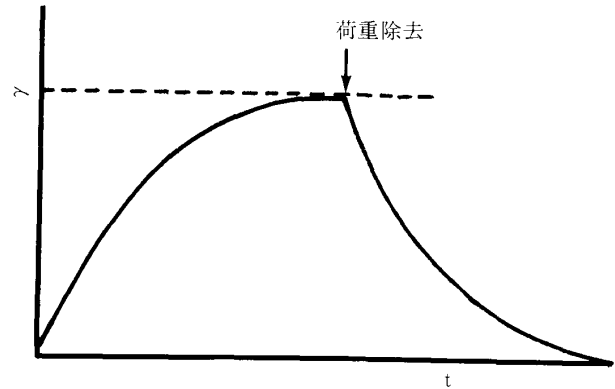


図12 遅延弾性変形

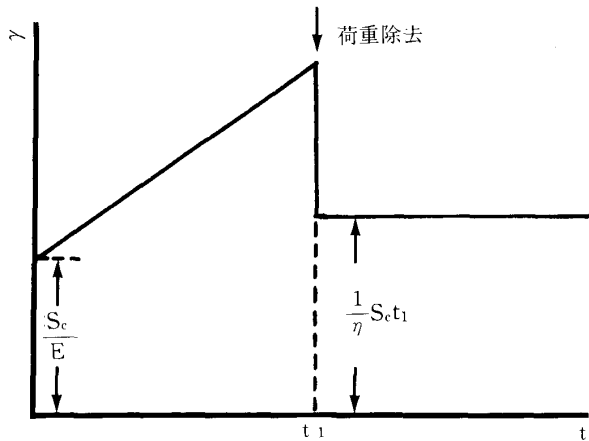


図11 流動曲線

またこの模型に一定荷重をかけておく（クリープ試験を行う）とすれば(9)式において S が一定であるため $S=S_c$ として解くと

$$\gamma = \frac{S_c}{E} + \frac{1}{\eta} S_c t \quad (11)$$

となり、図11に示すようになる。

次にもう一つの基本型 Voigt 型力学模型について考えよう。この模型では2要素が並列に組合されている。すでに記したようにスプリングに対しては(1)式、ダッシュポットに対しては(4)式がそれぞれ成立するため、次式のように表わされる。

$$S_1 = E\gamma \quad (12)$$

$$S_2 = \eta \frac{d\gamma}{dt} \quad (13)$$

全応力 (S) は $S_1 + S_2$ であるから

$$S = S_1 + S_2 = E\gamma + \eta \frac{d\gamma}{dt} \quad (14)$$

となる。この式は Voigt の粘弾性方程式と呼ばれ粘弾

性を扱う場合の基本式の一つである。Maxwell 模型の場合と同様に、この模型に一定荷重をかけておくとすれば、 $S=S_c$ で表わされるためひずみ(γ)は(14)式より

$$\gamma = \frac{S_c}{E} \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau}} \right) \quad (15)$$

となる。ただし $\tau = \frac{\eta}{E}$ である。今この式に $t = \tau$ を代入すると

$$\gamma = \frac{S_c}{E} \left(1 - \frac{1}{e} \right) = 0.632 \frac{S_c}{E} \quad (16)$$

となるため、 τ は $t=\infty$ におけるひずみの 0.632 倍になるまでの時間になる。この時間を遅延時間と呼び緩和時間の場合と同様、物質のクリープ挙動を比較する場合によく利用される。図12は一定荷重を加えたときのひずみ-時間曲線を示している。このような物質ではひずみが γ になるまでにかなりの時間を必要とし、また荷重を取り除くとひずみが0になってしまうことから遅延弾性体と呼んでいる。

以上、2つの基本型について述べたが実際の物質の挙動はこのように単純な力学模型では十分に記述できずかなりのずれを生じる。したがって、要素数を増し図13に示すように3要素、4要素模型を用いて近似させる方式がとられる。

要素数を増せば実際の物質の挙動に近似させることはできるが、むやみに要素数を増してもその一つの要素が観察される現象のどの部分に相当するかを説明することが困難になってくる。したがってこのような方法で模型解析を行う場合、通常4要素までの模型解析がよく使用されている。

しかし物質の複雑な挙動を忠実に模型に置き換えるとすれば無限の要素数が必要となってくる。そこで粘弾性の理論では、緩和時間、遅延時間が異なるものが図

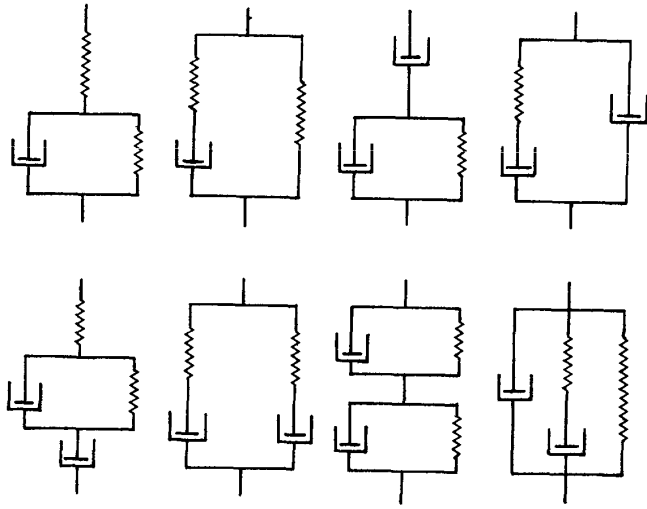


図13 3要素, 4要素模型のいろいろ

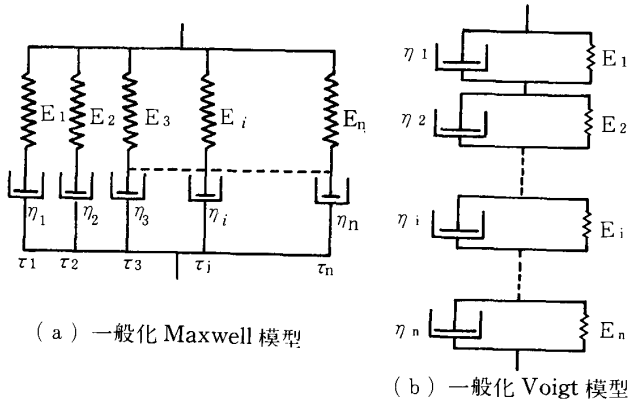


図14 一般化された力学模型

14に示すように並列あるいは直列に n 個連なった模型（一般化 Maxwell 模型，一般化 Voigt 模型）を考え，個々の模型の緩和時間あるいは遅延時間の分布を調べ分布関数で表わすようになった。

ここで図14(a)の模型に一定ひずみ γ を与え応力緩和を調べるとしよう。個々の模型については(9)式が成立するはずであるから i 番目の模型についてだけ考えると(17)式が成立する。

$$\frac{d\gamma_i}{dt} = \frac{1}{E_i} \frac{dS_i}{dt} + \frac{1}{\eta_i} S_i \quad (17)$$

$\frac{d\gamma_i}{dt} = 0$ として S_i を求めると

$$S_i = S_{i0} e^{-\frac{t}{\tau_i}} \quad (18)$$

となる。したがって応力 S は S_1, S_2, \dots, S_n の和であるから次式で表わされる。

$$S = \sum_{i=1}^n S_i = \sum_{i=1}^n S_{i0} e^{-\frac{t}{\tau_i}} = \gamma \sum_{i=1}^n E_i e^{-\frac{t}{\tau_i}} \quad (19)$$

ここでフックの法則を拡大解釈し，応力とひずみの比 $(\frac{S}{\gamma})$ を弾性率と定義すると，弾性率は

$$\frac{S}{\gamma} = \sum_{i=1}^n E_i e^{-\frac{t}{\tau_i}} = E_r(t) \quad (20)$$

で表わされる。この $E_r(t)$ を緩和弾性率と呼び，物質の緩和挙動を検討する際によく用いられる。

また図14(b)についても同じように考えることができる。今この模型に一定荷重をかけるとしよう。個々の模型に対しては(14)式が成立するはずであるから， i 番目の模型の挙動は次式で表わされる。

$$S_i = E_i \gamma_i + \eta_i \frac{d\gamma_i}{dt} \quad (21)$$

ここで， $S_i = S_c$ としてこの式を解くと

$$\gamma_i = \frac{S_c}{E_i} (1 - e^{-t/\tau_i})$$

となる。したがって全ひずみ γ はそれぞれのひずみ $\gamma_1, \gamma_2, \dots, \gamma_n$ の和で表わされるため

$$\gamma = \sum_{i=1}^n \gamma_i = S_c \sum_{i=1}^n \frac{1}{E_i} (1 - e^{-t/\tau_i}) \quad (23)$$

となる。Maxwell 模型の場合と同様，応力とひずみの比を弾性率と定義すると，弾性率の逆数 $\frac{\gamma}{S_c}$ は次式で与えられる。

$$\frac{\gamma}{S_c} = \sum_{i=1}^n \frac{1}{E_i} (1 - e^{-t/\tau_i}) = J(t) \quad (24)$$

この $J(t)$ はクリープコンプライアンスと呼ばれ，物質のクリープ挙動を検討する際によく用いられる。

これまで述べてきたことは，応力あるいはひずみが一方から与えられる場合の粘弾性（静的粘弾性）であったが，振動応力あるいは振動ひずみを与える場合も同様の結果が得られる。この場合の粘弾性を動的粘弾性と呼んでいる。ここで動的粘弾性について少し触れておこう。

いま単純 Maxwell 模型について考えるとすれば，(9)式の S の代りに振動ひずみ例えば $S = S_0 e^{i\omega t}$ を与えればよいから(9)式は次のように書き換えられる。

$$\frac{d\gamma}{dt} = \left(\frac{1}{\eta} + \frac{i\omega}{E} \right) S_0 e^{i\omega t} \quad (25)$$

ただし ω は角周波数である。この式から γ を求めると(26)式のようになる。

$$\gamma = \frac{1}{E} \left(1 - i \frac{1}{\omega \tau} \right) S_0 e^{i\omega t} \quad (26)$$

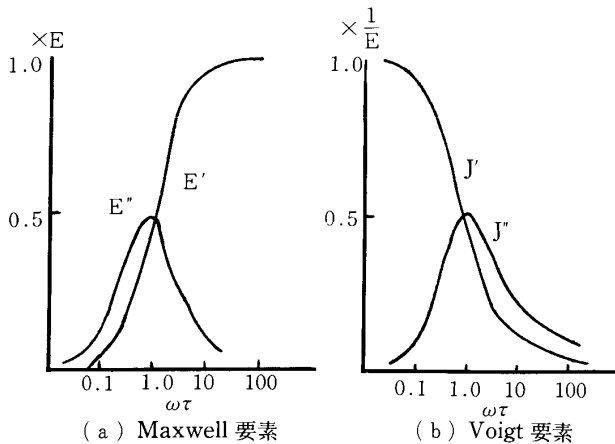


図15 動的弾性率 (E') および損失弾性率 (E'') の周波数依存性

したがって弾性率すなわち応力とひずみの比を求めると(27)式となる。

$$\frac{S}{\gamma} = E^* = E' + iE'' \quad (27)$$

ただし

$$E' = E \frac{\omega^2 \tau^2}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (28)$$

$$E'' = E \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (29)$$

である。(27)式の E^* は複素(動的)弾性率と呼ばれるもので、その実数部 E' を動的弾性率(貯蔵弾性率)と呼び、虚数部 E'' を動的損失(損失弾性率)と呼んでいる。 E' は文字通り位置のエネルギーとして蓄えられるエネルギー尺度を示すが、 E'' は互に分子の摩擦によって熱として失われるエネルギー尺度を示す。 E' 、 E'' と $\omega\tau$ の関係はそれぞれ図15(a)に示す。 $\omega\tau = 1$ のときに E' では変曲点、 E'' では極大値 $\frac{E}{2}$ となる。

以上 Maxwell 模型について述べたが、Voigt 模型についても同様に考えていくことができる。(14)式の γ に $\gamma = \gamma_0 e^{i\omega t}$ を代入して解くと、ひずみ、応力の比 ($J^* = \frac{\gamma}{S}$) は次式で与えられる。

$$J^* = \frac{1}{E} \frac{1 - i\omega\tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (30)$$

したがって、実数部 J' 、虚数部 J'' はそれぞれ式で示される。

$$J' = \frac{1}{E} \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (31)$$

$$J'' = \frac{1}{E} \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2}$$

図15(b)は J' 、 J'' と $\omega\tau$ の関係を図示したものである。

以上粘弾性についての考え方を一部紹介したが、2～5にわたって述べたことを基礎にして、2～3の歯科材料のレオロジーを説明しよう。

6. 印象材のレオロジー

操作中にレオロジカルな性質の変化がなく、口腔内に移した後は速かに硬化し、硬化後は撤去時に荷せられる力あるいはひずみに対して十分な強度を示すようになると共に撤去後経時的寸法変化を生じないような性質を有する印象材があるとすれば、使用者にとってこれほど有難いことはない。しかし残念ながら現在このような性質を有する印象材はないといってよい。現在最も多く使用されているアルジネート印象材、あるいは精密印象材と称して使用しているエラストマー印象材にしても、練和直後からすでに粘度の上昇を起している。また口腔内保持時間(硬化時間)は短いもので3分、長いものでは10～12分を必要とする。したがってこの間圧接した印象材が動かないように保持しておかなければ正確な印象は採得できない。反応開始の初期では印象材の粘性が小さいため外部からのわずかな力の作用で簡単に流動変形を起してしまうからである。したがって硬化時間が長い印象材はそれだけ使用しにくいといえよう。

また殆どどの印象材は口腔内から撤去したのちもそのレオロジカルな性質が変化し、程度の差はあるが経時的に寸法変化を引き起こしている。これは臨床的に差支えないとして定めた硬化時間が、化学反応という面からみればまだまだ不十分な時期であったということにはほかならない。したがって印象撤去後は、できるだけ速かに模型作製に移行することが大切であろう。

こうしたことから現在の印象材では、その精度は個々の印象採得に対する臨床的工夫によって向上もしまた逆に悪化もすることを十分知っておかなければならない。これから挙げるデータ(表1、図16～21)⁶⁻¹⁰⁾が、印象精度向上の一助になれば著者としてはこの上ない幸である。

7. 歯科用レジンのレオロジー

歯科用レジンには床用を初め、歯冠用、充填用などいろいろの種類があるが、それぞれの用途に応じて材料のレオロジカルな性質にはかなりの差異が認められる。しかし本稿では紙面の都合もあって比較的純粋なポリマーだけからなっている床用レジンについての説

表1 各種アルジネート印象材の操作時間と硬化時間

材 料	操作時間(分)	硬化時間(分)
アルジエース(ホワイト)	1.9	3.5
アルジネート	2.3	3.3
ハイテクニコール	1.6	3.3
ジェルセット	1.8	3.5
ジェルトレート(ヘビー)	2.0	3.5
ジェルトレート(レギュラー)	2.3	4.0
オルソジェル	1.7	3.3
ベリコール	1.8	3.5
キサンタルギン(ノーマル)	2.3	3.5
キサンタルギン(スナップ)	1.3	3.0
ゼルガン	2.2	3.5
アルジエース(レッド)	1.2	3.0
アルジペースト	1.2	3.0
アルジックス	1.3	3.0

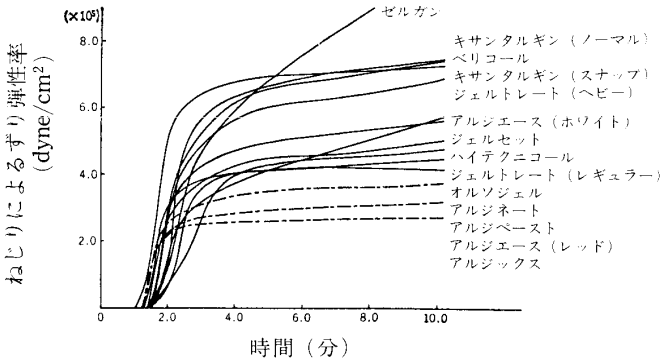
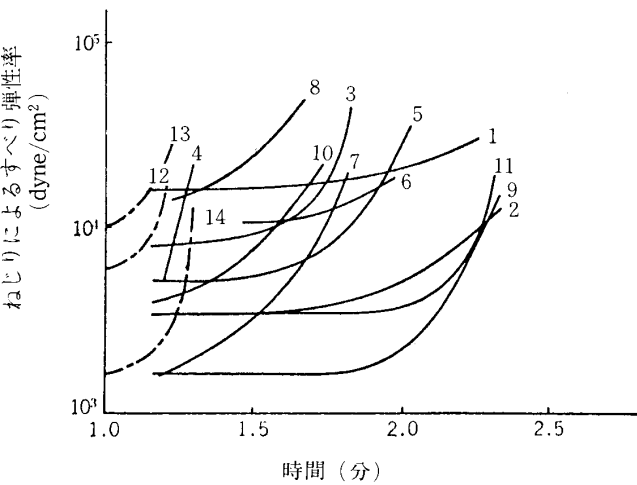


図17 硬化過程におけるずり弾性率の変化



- 1. ゼルガン
- 2. キサンタルギン (ノーマル)
- 3. ベリコール
- 4. キサンタルギン (スナップ)
- 5. ジェルトレート (ヘビー)
- 6. アルジエース (ホワイト)
- 7. ジェルセット
- 8. ハイテクニコール
- 9. ジェルトレート (レギュラー)
- 10. オルソジェル
- 11. アルジネート
- 12. アルジペースト
- 13. アルジエース (レッド)
- 14. アルジックス

図16 練和後の粘度変化 (23°C)

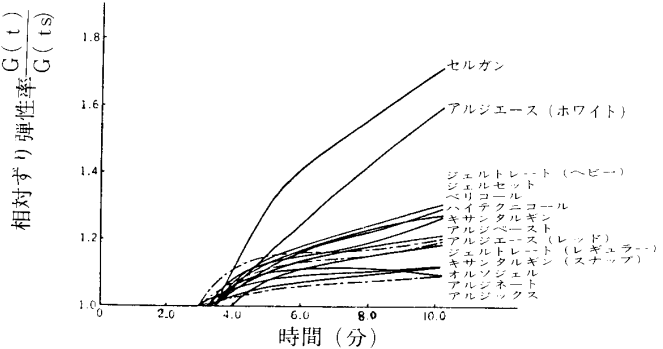


図18 硬化時間後の相対ずり弾性率

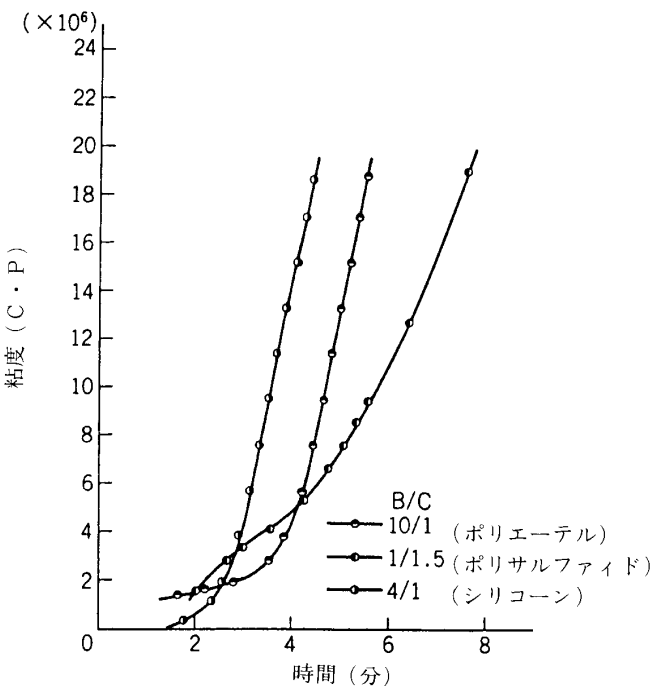


図19 ポリサルファイドゴム, シリコンゴム
ポリエーテルゴム印象材の粘度変化

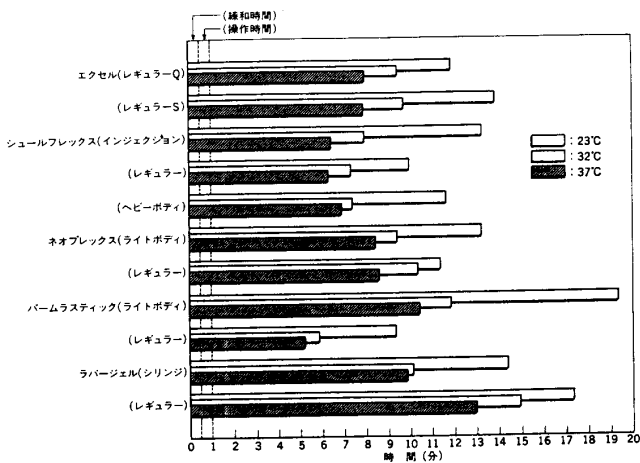


図20 (a) ポリサルファイドゴム印象材の硬化時間

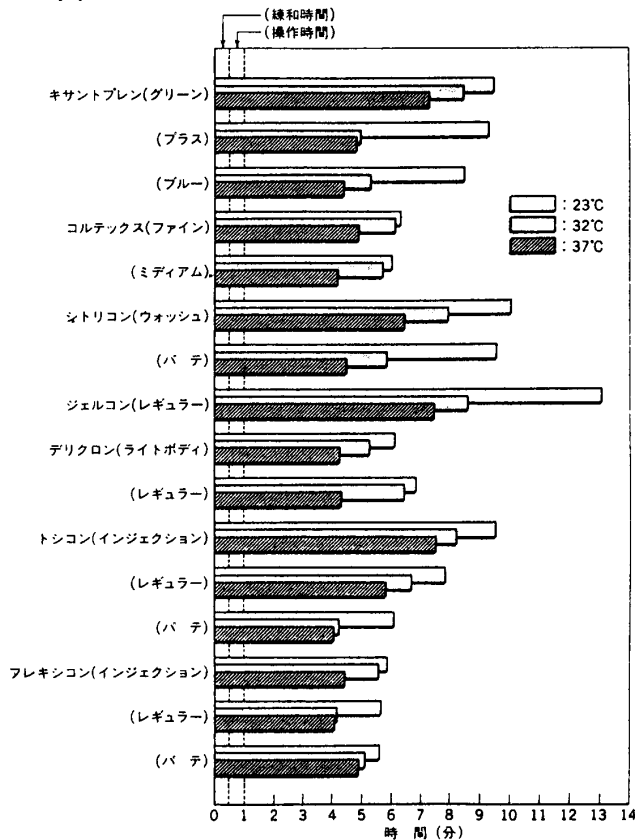


図20 (b) シリコンゴム印象材(縮合型)の硬化時間

明だけにとどめたい。

現在床用レジンはアクリルレジ、ポリサルフォンレジ、ポリカーボネートレジがそれぞれ用いられているが、その粘弾性挙動には大きな差異がみられる。図22は3種のレジンの動的粘弾性¹¹⁾を比較したものであるが、これによると23°C室温付近では加熱重合型アクリルレジの動的弾性率(E')が最も高く、続いて流し込み型アクリルレジ、ポリサルフォンレジ、ポリカーボネートレジの順序で弾性率が小さ

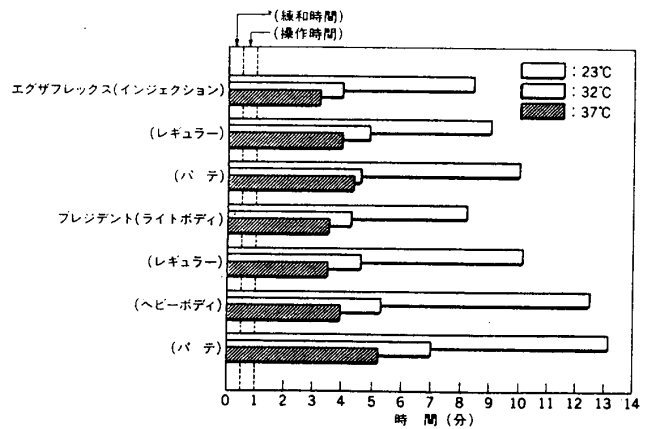


図20 (c) シリコンゴム印象材(付加型)の硬化時間

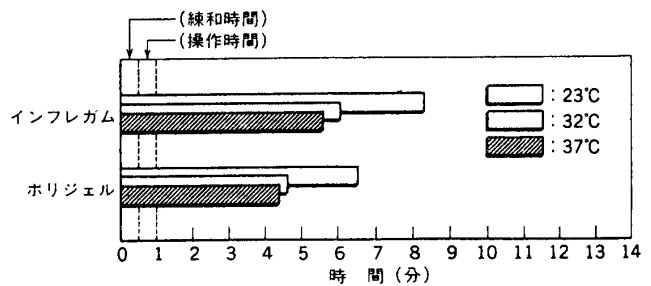


図20 (d) ポリエーテルゴム印象材の硬化時間

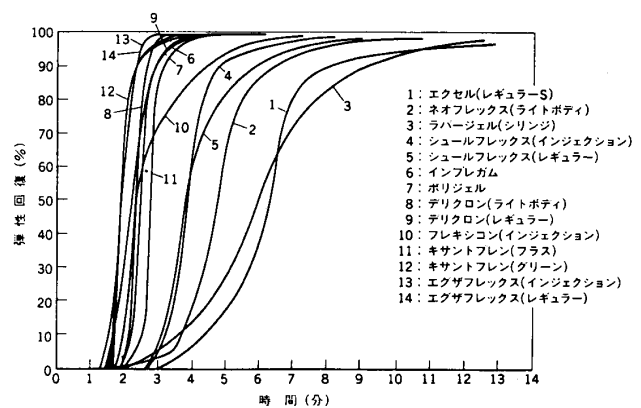


図21 硬化過程における弾性回復量の変化(32°C)

くなっている。しかし口腔内温度37°Cでは流し込み型アクリルレジの方がポリサルフォンレジよりも低い弾性率を示すようになる。また95°Cになると、アクリル系レジの動的弾性率は室温付近では最も小さい弾性率を示したポリカーボネートレジの場合よりもさらに小さくなってしまふ。一方ポリサルフォンレジ、ポリカーボネートレジの損失弾性率はアクリル系レジの場合よりもはるかに小さい。こうしたことからアクリル系レジは他の2レジに比べて温度の影響を受けやすく、軟化しやすい傾向を有するといえる。

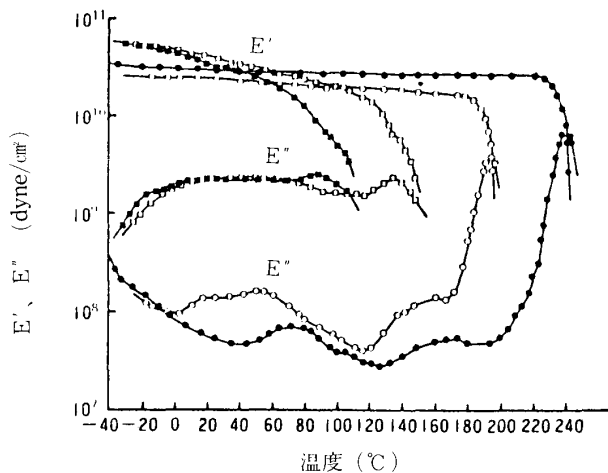


図22 各種床用レジンの動的粘弾性挙動

更にまた、義歯床の製作に関係する一連の技工操作の過程で床の内部に応力が蓄えられるようなことがあれば、アクリル系レジンの方が外部の温度変化によってその応力の解放が著しく、そのため変形する可能性も大きいことを示唆している。こうして述べてくると、ポリサルフォン樹脂やポリカーボネート樹脂の方がアクリル系樹脂よりも遥かに優れているという感じを受けるかも知れないがそうとばかりはいえない。なぜならばポリサルフォン樹脂、ポリカーボネート樹脂では、アクリル系樹脂のように比較的低温（実際には100℃あるいはそれ以下の温度）では義歯床の作製を行うことができない。これらの樹脂では、300～360℃の高温でポリマーを溶融し、鋳型内に直接射出するという方法で義歯床の作製を行っている。したがって作製温度（成形温度）と室温との温度差がアクリル樹脂の場合に比べて著しく高いため、冷却にともなう材料自体の収縮量も大きい。材料のレオロジカルな性質の上では優れた性質をもっている材料でも、床作製の立場からはまだまだ解決されねばならない多くの問題をかかえた材料といえよう。

図23は加熱重合型アクリル樹脂に対していろいろな温度で応力緩和試験を行い、測定開始後5秒後の緩和弾性率 $\{E_r(5)\}$ の温度依存性を調べたものである。これによると104.5℃付近にガラス転移温度（軟化温度）があることがわかる。

また図24は $\{E_r(5)\}$ —温度（T）曲線¹²⁾を図上微分して求めた緩和速度の温度変化とディラトメーターを用いて測定した比容積（ cm^3/g ）の温度変化をそれぞれ図示したものである。これによると緩和弾性率の温度依存性から求めたガラス転移温度と比容積の温度

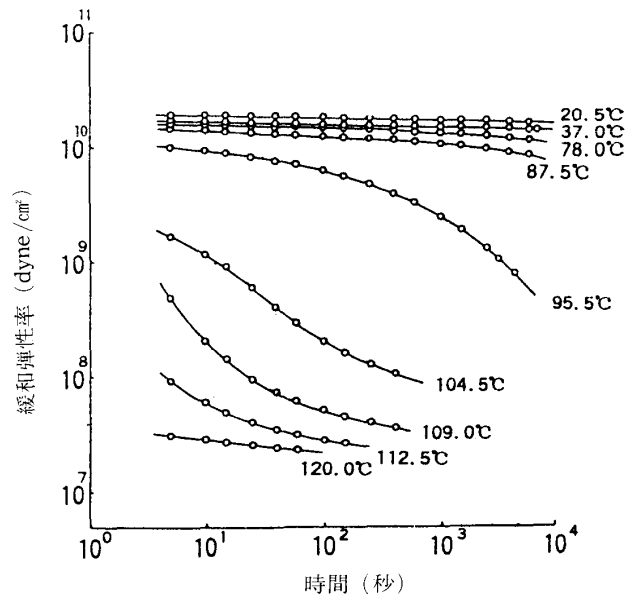


図23 加熱重合型アクリル樹脂の緩和弾性率の温度依存性

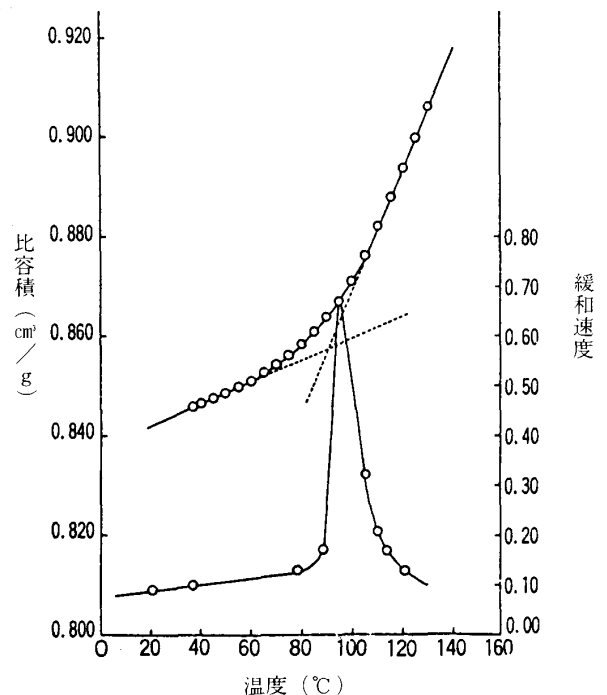


図24 加熱重合型樹脂の比容積と緩和速度の温度変化

変化から求めたガラス転移温度との間により一致がみられる。

以上のように床用樹脂一つの挙動を知るにも、応力—ひずみ—時間の関係を、単に口腔内温度だけでな

く、幅広い温度範囲にわたって調べなければ口腔内のレジン挙動を正しく理解することはできない。ここにレオロジーの面白さがあるといつてよいであろう。

更に話を一歩進めて、現在使用されている床用レジンが口腔内組織に対して適切なレオロジー的性質を有しているか否かについては口腔内の軟組織あるいは硬組織のレオロジカルな挙動に関する多くの情報を得たうえでなければ検討できないことである。こうした問題が今後の大きな課題であろう。

引用及参考文献

- 1 岡 小天：レオロジー，裳華房，308～333，1974.
- 2 G. W. Scott Blair：Measurement of mind and matter, Dennis dobson Ltd, 58—75, 1948.
- 3 Arnold G. Fredrickson：Principles and applications of rheology, Prentice-hall inc., 23—27, 1964.
- 4 小野木重治：レオロジー要論，楨書店，36～49，1960.
- 5 後藤廉平，平井西夫，花井哲也：レオロジーとその応用，共立出版株式会社，61～67，1964.
- 6 井上勝一郎・他：弾性印象材に関する基礎的研究（第3報），歯科理工学雑誌，19(4)48～52，1978.
- 7 K. Inoue and H. J. Wilson：Viscoelastic properties of elastomeric impression materials (1), J. Oral Rehab., 5, 89—94, 1978.
- 8 K. Inoue and H. J. Wilson：Viscoelastic properties of elastomeric impression materials (2), J. Oral Rehab., 5, 261—267, 1978.
- 9 K. Inoue and H. J. Wilson：Viscoelastic properties of elastomeric impression materials (3), J. Oral Rehab., 5, 323—327, 1978.
- 10 井上勝一郎・他：硬化時間からみた各種ゴム系印象材の正しい取扱い方，DE, 55, 1—11, 1981.
- 11 井上勝一郎・他：義歯床用材料に関する研究，歯科材料・器械，1(4)，369—372，1982.
- 12 K. Inoue：Fundamental studies on viscoelasticity of polymethyl methacrylate polymerized by monomer-polymer technique, J. Kyushu Dent Soc., 25(5), 443—464, 1972.