

行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告
各種纖維之添加對義齒床用樹脂強化效果之評估
The evaluation of the effect of denture base resin reinforced by incorporationg various fibers

計畫編號：NSC 87-2314-B-039-016

執行期限：86年8月1日至87年7月31日

主持人：陳三餘 中國醫藥學院 牙醫學系

一、中文摘要

爲求改善義齒床用壓克力樹脂之機械性質，本實驗選用環氧樹脂、聚酯樹脂及玻璃纖維分別作爲強化材料。實驗步驟爲：首先依廠商指示將壓克力樹脂、環氧樹脂、聚酯樹脂各自作成70mm長x25mm寬x15mm 厚之試樣塊，再依ASTM256號及ISO1567號規格所述之方法分別切取測試撞擊強度及彎曲強度所需之試樣，測試過之撞擊強度試樣再用來測諾氏硬度。其次將壓克力樹脂分別與環氧樹脂或聚酯樹脂以2:1，1:1，1:2之重量比相混合後，依前法製作及測試試樣。最後再將長6mm之玻璃纖維3wt%添加於前項各種不同條件之樹脂混合液中並依同法製作及測試。實驗結果爲：(1)壓克力樹脂、環氧樹脂及聚酯樹脂中以壓克力樹脂之彎曲強度($1048.7 \pm 51.0 \text{ Kg/cm}^2$)及諾氏硬度($18.8 \pm 0.7 \text{ Kg/mm}^2$)最大，環氧樹脂則撞擊強度最高 $1.743 \pm 0.20 \text{ KJ/m}^2$ (2)壓克力樹脂與環氧樹脂之混合物除以2:1重量比混合之一組外，其他各組之機械性質均明顯下降，與聚酯樹脂之混合物則撞擊強度及諾氏硬度不變，彎曲強度減小。(3) 壓克力樹脂添加纖維後依所添加纖維之量不同可使撞擊強度呈倍數增加($1.43 \pm 0.19, 2.54 \pm 0.40, 3.92 \pm 0.94 \text{ KJ/m}^2$)，彎曲強度及諾氏硬度則無明顯變化。壓克力樹脂與環氧樹脂或聚酯樹脂混合之試樣於添加纖維後則呈撞擊強度增加，但不如單獨壓克力樹脂添加等量纖維之效果，而彎曲強度減小，諾氏硬度除了壓克力樹脂與聚醋樹脂混合之一組增大以外，其他均變小。由本實驗之結果可獲得以下結論：(1)玻璃纖維之添加可提高壓克力樹脂之撞擊強度而不影響彎曲強度及諾氏硬度。(2)添加環氧樹脂或聚酯樹脂則未見任何加強效果。

關鍵詞：壓克力樹脂強化材料、撞擊強度、彎曲強度、諾氏硬度

Abstract

This study was designed to evaluate effects using of epoxy resin, polyester resin and glass fiber asreinforcing materials to improve the mechanical properties of acrylic denture base resin. This study was divided inyo 3 groups. In Group 1, resin blocks were prepared with three different resins (acrylic, epoxy and polyester) according to manufacturers' instruction. In Group 2, various concentrations of epoxy resin or polyester resin were mixed into acrylic resin. In Group 3, 6mmlong glass fiber were incopor- ated into all test conditions to a concentration of 5wt%. Samples were then cut to correct size from resin blocks ($70 \times 25 \times 15 \text{ mm}$) according to ASTM No.256 and ISO No.1567 specifications to test impact strength and bending strength. Samples used for impactstrength were then retested using the Knoop hardness number test. Results showed that (1) Acrylic resin had the best bending strength and Knoop hardness, and epoxy resin had the highest impact strength. (2) Decreased mechanical properties were found when acrylic resin was mixed with with epoxy resin. Decreased bending strength, but no change for impact strength and Knoop hardness, was found when acrylic resin was mixed with polyester. (3) The Impact strength increased severaltimes when glass fibers were incorporated into the acrylic resin, but no effect was found for bending strength and

Knoop hardness. The incorporation of glass fiber into the resin mixture also increased the impact strength but decreased the bending strength and Knoop hardness significantly. We thus conclude that (1) by incorporating an appropriate volume of 6mm long glass fibers, the impact strength of resins could be increased remarkably without changes in bending strength and Knoop hardness. (2) There was no improvement in the mechanical properties by mixing epoxy or polyester resins with acrylic resin.

Key words: acrylic resin, impact strength, bending strength, Knoop hardness,

二、緣由與目的

牙科臨牀上可撤性義齒之製作目前仍以壓克力樹脂材料為主，然實用上最大之問題在於義齒可能會因材料本身強度之不足，致因咬合力之分佈不均或取出清洗時不慎掉落而斷裂⁽¹⁾，雖然此種情形可用溫聚合型樹脂再黏合^(2,3,4,5)，但因材質不同故，常於原斷裂處重新裂開。目前被用來解決此一問題之方法大致可分成三種：(1)添加化學物質使形成共聚合體以增加強度⁽⁶⁾。(2)使用金屬線加強，或部份結構用金屬取代^(7,8,9)。(3)添加各種纖維材料於樹脂材料中^(10,11,12)。第一種方法雖可利用各種多官能基之架橋劑(cross linking agent)或彈性體(lastomer)來增加其硬度或韌性，但硬度增加時脆性也相對增大，同時韌性之提高效果似乎不明顯^(13,14)，故並不十分理想。第二種方法歷年來雖有壓印床(press denture plate)或鑄造金屬床之開發，但因製作手續繁雜，所需之設備昂貴，相對成本也提高，不符經濟效益^(15,16)。至於添加金屬線之方法則需要熟練技巧，操作並不容易。第三種方法則多年來各種纖維材料如：碳纖維、玻璃纖維、或各種纖維布等均曾被使用過，強度也見略有增加者，但仍因操作性及美觀等問題而無法達到實用化程度^(17,18,19)。綜上理由，個人曾嘗試選用淡色或透明之纖維預先裁成不等長度，並依不同重量添加於義齒床用壓克力樹脂

中以求增加強度及克服美觀及操作性等問題，實驗結果顯示雖然影響美觀之問題可以獲得解決，但對於彎曲強度、抗壓強度、巴氏表面硬度等機械性質卻未有明顯之增強效果⁽²⁰⁾。觀察測試過標本之破斷面，發現添加之纖維並未斷折而只是被拉抽來，由此判斷機械性質之未見增加可能係纖維與樹脂材料間接著不良或所選用之測試性質無法表現出其效果，故本實驗選用聚酯樹脂與環氧樹脂作為強化劑，並改測試與臨床較有關係之機械性質，如仿瞬間掉落情形之撞擊強度，或抵抗咬合力所引起變形之彎曲強度及與耐磨鬥性有關之諾氏表面硬度等，期能尋得加強義齒床用壓克力樹脂材料本身之強度以減少斷裂之發生。

三、結果

(1)基本機械性質測試

利用單因子變異數分析及事後多重檢定分別對撞擊強度、彎曲強度及諾氏硬度探討各種樹脂機械性質測試結果得知撞擊強度以環氧樹脂($1.74 \pm 0.20 \text{KJ/m}^2$)顯著地($p < 0.001$)比其他均強，其餘二者為壓克力樹脂($1.29 \pm 0.16 \text{KJ/m}^2$)、聚酯樹脂($1.28 \pm 0.06 \text{KJ/m}^2$)彼此間並無明顯差異。彎曲強度則以壓克力樹脂($1048.7 \pm 51.0 \text{Kg/cm}^2$)明顯地($p < 0.001$)比其他組高，其次依序為環氧樹脂($864.6 \pm 61.6 \text{Kg/cm}^2$)及聚酯樹脂($696.8 \pm 49.1 \text{Kg/cm}^2$)。諾氏表面硬度則以壓克力樹脂為最大($21.8 \pm 1.0 \text{Kg/mm}^2$)其次為聚酯樹脂($20.0 \pm 1.0 \text{Kg/mm}^2$)及環氧樹脂($17.8 \pm 0.9 \text{Kg/mm}^2$)。

(2)混合機械性質之變化

材料互相混合後機械性質的變化結果顯示壓克力樹脂添加聚酯樹脂後其撞擊強度略為增加($1.47 \pm 0.15 \sim 1.21 \pm 0.06 \text{KJ/m}^2$)，彎曲強度則呈現減小之傾向($951.1 \pm 55.9 \sim 572.3 \pm 17.1 \text{Kg/cm}^2$)，諾氏硬度則無明顯變化($22.5 \pm 1.3 \sim 20.5 \pm 1.2 \text{Kg/mm}^2$)。添加環氧樹脂之結果則撞擊強度變化不大($1.15 \pm 0.02 \sim 1.08 \pm 0.18 \text{KJ/m}^2$)，而彎曲強度則不變或

呈減小之現象(1130.2 ± 39.3 ~ $698.41 \pm 53.6 \text{Kg/cm}^2$)，諾氏硬度(19.9 ± 1.1 ~ $18.1 \pm 0.8 \text{Kg/mm}^2$)略微下降。

(3)添加纖維之機械性質變化

壓克力樹脂中添加1wt%，3wt%，5wt%後其撞擊強度呈明顯之倍數增加(1.459 ± 0.171 , 2.36 ± 0.37 , $4.26 \pm 0.76 \text{KJ/m}^2$)而彎曲強度則無明顯之變化(1080.2 ± 2.3 , 1111.3 ± 59.3 , $165.1 \pm 73.2 \text{kg/cm}^2$)，諾氏硬度則略為下降或變化不大(17.0 ± 1.8 , 19.6 ± 0.8 , $19.1 \pm 1.3 \text{Kg/mm}^2$)。而壓克力樹脂中添加聚酯樹脂或環氧樹脂再添加3wt%玻璃纖維之結果雖然撞擊強度比單純之壓克力樹脂較高(2.01 ± 0.57 ~ $1.35 \pm 0.13 \text{KJ/cm}^2$)但不如壓克力樹脂單獨添加等量纖維之結果。彎曲強度則大都呈現明顯下降之情形(1005.0 ± 72.0 ~ $518.4 \pm 31.5 \text{kg/cm}^2$)，諾氏硬度則添加聚酯樹脂及纖維者無大變化外(22.1 ± 0.6 ~ $18.6 \pm 2.3 \text{Kg/mm}^2$)，添加環氧樹脂及纖維者略為減低(19.8 ± 1.0 ~ $16.8 \pm 0.8 \text{Kg/mm}^2$)。

四、討論

壓克力樹脂自1937年開始被應用於義齒之製作以來，因具質輕、美觀、易操作等優點，至今仍廣被採用⁽²¹⁾；然為克服使用中常因反覆咬合施壓或因不慎掉落所產生斷裂之情形，本實驗企圖以製作樹脂共聚合體及添加玻璃纖維之方式來改善壓克力樹脂之機械性質。

根據文獻資料顯示：聚酯樹脂與環氧樹脂具有強韌性及耐摩耗性等優點⁽²²⁾，更是纖維強化塑膠之常用材料⁽²³⁾，故本次實驗選用此兩種材料為添加劑，除分別探討其各自的基本性質外，並以不同之重量比與壓克力樹脂相混合，再以加熱聚合之方式實施聚合反應，所得之聚合物依相同之條件製作撞擊強度、彎曲強度、及表面硬度之試樣，希望經由撞擊強度之測試來瞭解材料之組成改變後對瞬間加壓之抵抗力，同時調查其彎曲強度的變化是否仍在ADA Specification 所要求之範圍內，另外因撞擊強度與脆性有關，脆性又與硬度有

關連故也同時測試表面硬度以作為材料性質是否改善之參考。

由初步實驗結果得知：環氧樹脂比壓克力樹脂具較大之撞擊強度，但彎曲強度則較小，諾氏硬度也明顯比壓克力樹脂小，聚酯樹脂之撞擊強度與諾氏硬度與壓克力樹脂差不多，但彎曲強度則大約只有一半。其次為求究明壓克力樹脂與聚酯樹脂或環氧樹脂所產生之共聚合效果，故將液體與另兩類樹脂互相混合後加熱聚合，所得之結果雖然與聚酯樹脂混合後撞擊強度略為增加，但如與單獨的壓克力樹脂相比卻是明顯減低，其他混合結果機械性質也均未見明顯增加，此或因本次所選用之聚酯樹脂或環氧樹脂基本上屬常溫聚合型樹脂但為求較佳之物性，改成與壓克力樹脂混合後，用加熱聚合方式使其硬化，致反應開始劑添加量不夠（被稀釋）產生不完全聚合之結果，或因加熱聚合之條件不對，或為選用材料種類之間題⁽²⁴⁾，此點仍待進一步之探討。因本實驗所選用之聚酯樹脂及環氧樹脂材料未能促進壓克力樹脂材料之機械性質，故再以添加玻璃纖維之方法企求改善其強度。

雖然自1960年代起陸續有人使用各種纖維材料添加於壓克力樹脂中⁽²⁵⁾，其中以碳纖維最廣被採用，然因對美觀問題之影響，致未被廣泛接受^(26,27,28,29)。文獻上也有見到使用玻璃纖維、克維拉纖維、聚乙烯纖維等，其結果都說有效但卻未見普及化^(30,31,32)，究其原因可能為操作困難及影響美觀等問題最為嚴重，有鑑於此本次實驗選用顏色透明長度為6mm之玻璃纖維來做為添加劑，且利用電動混合器將樹脂粉末、液體及纖維三種成份同時混合，因此操作簡單且容易混合均勻，對美觀之間題也可獲得解決。而在工業上製作纖維強化塑膠時，聚酯樹脂與環氧樹脂常被用來作為對玻璃纖維之強化劑⁽³³⁾，故仍依第二項實驗步驟之組成條件繼續使用以作比較。

壓克力樹脂添加1wt%，3wt%，5wt%玻璃纖維後，撞擊強度呈現明顯的倍數增加，彎曲強度與諾氏硬度則無大變化，但如纖維添加過多則易引起美觀及操作困

難等問題，故對其他混合樹脂之組成條件均以添加3wt%玻璃纖維來做比較。所得結果發現樹脂之共聚合物添加纖維後雖然比不含纖維時之撞擊強度較大，但若與單純之壓克力樹脂添加等量之纖維相比，撞擊強度仍是較低，且彎曲強度與諾氏硬度仍是明顯降低，此一現象與本實驗之第二項實驗步驟結果相符。由測試方法來比較，彎曲強度測試係遲緩增加外力，故似乎對物體組成結構之結合強度關係較大，若非樹脂與纖維間之結合力很強，似乎顯現不出增強效果，反而易因不均質之關係而使物性明顯下降。而撞擊強度測試因係瞬間施予外力之關係，雖然由試驗後之標本破斷面可看到纖維的一端被抽離，但仍顯示出明顯的強化作用。本次實驗雖然利用樹脂共聚合之方式不太理想，但添加玻璃纖維後可增加撞擊強度之效果極為明確。

參考其他已發表之文獻得知1985年Yazdanie等人發表碳纖維之添加量增加則壓克力樹脂之彎曲強度也增加⁽³⁴⁾，但顏色是問題。1988年Braden等人認為超高應力聚乙烯纖維可增加壓克力樹脂之撞擊強度，但對彎曲強度之提高則無明顯效果⁽³⁵⁾。同年Guterid-ge之研究認為超強應力聚乙烯纖維可增加撞擊強度但添加量超過3wt %即不易操作故只要添加1wt%即可⁽³⁶⁾。1992年Goldberg及Burstone也發表玻璃纖維之添加可提高撞擊強度⁽³⁷⁾，1993年Ladizesky發表聚乙烯纖維之添加可提高撞擊強度，但如添加量過多則彎曲強度明顯減低⁽³⁸⁾。以上結果雖是使用之纖維種類、形狀及測試條件與本次實驗不盡相同，但結論大致都與本次實驗相符合，故經由本次實驗之結果可得到以下之結論：(1)玻璃纖維之適量添加可提高壓克力樹脂之撞擊強度，且不影響彎曲強度及諾氏硬度。(2)聚酯樹脂或環氧樹脂之添加可能因選用樹脂之種類或因採用聚合方法之不同，故不一定能提高壓克力樹脂之機械性質。(3)其他種類之纖維是否與玻璃纖維具有相同之效果將再做進一步之檢討。

五、計畫成果自評

本次計畫由於有專任助理幫忙，故一切進行順利，目前已將其整理歸類，並擇其中部份較具參考價值數據寫成稿件，準備發表牙醫學會之雜誌。

本實驗之主要發現為雖然成書上載有環氧樹脂與聚酯樹脂可增加壓克力樹脂之機械強度，但本次實驗之結果卻證明事實上並非一定如此。另一重點為發現三種測試項目中撞擊強度增加，彎曲強度不變而諾氏硬度卻減小，故要討論機械性質之變好或變壞不能僅依一種性質來判斷否則有可能得到錯誤之結論。

六、參考文獻

1. Darbar UR, Huggett R, Harrison A. Denture fracture: a survey. Br Dent J ,176: 4342-345 ,1994.
2. Beyli MS, von Fraunhofer JA. Repair of fracture acrylic resin. J Prosthet Dent ,44:497 -503, 1980.
3. Harison A,Belton EL,Meades K. Do self-curing acrylic resin repairs gain strength with age? J Dent ,5:334-338, 1977.
4. Stipho HD, Stipho AS. Effectiveness and durability of repaired acrylic resin Joints. J Prosthet Dent ,58:249-253,1987.
5. Norma O., Waldemar G. de Rijk. Effect of surface treatments on the repair strength of a light activated denture repair resin using censored data. Dent Mater, 10:122-127,1994.
6. Matsukawa S. , Hayakawa T., Nemoto K. Development of high-toughness resin for dental applications. Dent Mater, 10:343-346 ,1994.
7. Carroll CE, von Fraunhofer JA. Wire reinforcement of acrylic resin prostheses. Jn prosthodont,52:639-641, 1984.
8. Ruffino AR. Effect of steel strengtheners on fracture resistance of the acrylic resin complete denture base. J Prosthet Dent ,54:75-78, 1985.
9. Vallittu PK. Effect of some properties of metal strengtheners on the fracture resistance of acrylic denture base material construction. J Oral Rehabil ,20:241-248, 1993.

10. Grave AM, Chandler HD, Wolfaadt JF. Denture base acrylic reinforced with high modulus fiber. *Dent Mater*, 1:185-187, 1985.
11. Manley TR, Bowman AJ, Cook M. Denture base reinforced with carbon fibers. *Br Dent J*, 146:25-28, 1979.
12. Goldberg AJ, Burstone CJ. The use of continuous fiber reinforcement in dentistry. *Dent Mater* 8:197-202, 1992.
13. Robinson, McCabe JF. Impact strength of acrylic resin denture base materials with surface defects. *Dent Mater* 9:355-360, 1993.
14. Craig RG. Restorative dental materials. Mosby 8th edition P.515, 1989.
15. Vallittu PK, Lassila VP. Effect of metal strengtheners' surface roughness on fracture resistance of acrylic denture base material. *J Oral Rehabil*, 19:225-230, 1992.
16. Hero H, Ruyter IE, Waarli ML, Hultquist. Adhesion of resins to Ag-Pd alloys by means of the silicoating technique. *J Dent Res*, 66: 1380-1385, 1987.
17. Nikos GK, Robin H, Alan H, Richard WV. The effect of esthetic fibers on the properties of an acrylic resin denture base material. *Dent Mater*, 10:2-5, 1994.
18. Vallitu PK, BOdont DT, Lassila VP, Lappalainen R. Acrylic resin-fiber composite-Part I :The effect of fiber concentration on fracture resistance. *J Prosthet Dent*, 71:607-612, 1994.
19. Vallitu PK. Comparison of two different silane compounds use for improving adhesion between fibres and acrylic denture base material. *J Oral Rehabil*, 20:533-539, 1993.
20. 陳三餘. 纖維強化塑膠在義齒床之應用。中國醫藥學院研究年報第十七期 pp.184-195, 1991.
21. Jean-Francois Roulet. Degredation of Dental Polymers. Basel; New York: Karger, pp.4, 1987.
22. 楊思廉，甘炳陽，王東源，戴瑞益，賴義成。塑膠(增訂版)，中國化工研究所編印，台北 pp.127-137, 1976。
23. 廣惠章利，本吉正信。塑膠物性入門(成型加工技術參考)。復漢出版社，台南，pp.118, 1984.
24. Vallitu PK, Miettinen V, Alakuijala P. Residual content and its release into water from denture base materials. *Dent Mater*, 11:338-342, 1995.
25. Grant AA, Greener EH. Whisker reinforce- ment of polymethyl methacrylate denture base resin. *Aust Dent J*, 12:29, 1967.
26. Schreiber CK. Polymethyl methacrylate reinforced with carbon fibers. *Br Dent J*, 130:29-30, 1971.
27. Wylegala RT. Reinforcing denture base material with carbon fiber. *Dent technol*, 26:97-100, 1973.
28. Bowman AJ, Maneley TR. The elimination of breakage in upper dentures by reinforcement with carbon fiber. *Br Dent J*, 156:87-89, 1984.
29. De Boer J, Vermilyea SG, Brady RE. The effect of carbon fiber orientation on the fatigue resistance and bending properties of two denture resins. *J Prosthet Dent*, 51:119 - 121, 1984.
30. Inamura M, Nagato H, Aide E, Adachi T, Isiguro H, Ono T, Kurosu K. Self-cure dental acrylate resin reinforced with glass fiber - Part 1:Bending and tensile test. *Jpn J Pedodontics* 26:328-335, 1988.
31. Berrong JM, Weed RM, Young JM. Fracture resistance of Kevlar-reinforced polymethyl methacrylate resin: a preliminary study. *int J Prosthodont*;3:391-395, 1990.
32. Gutteridge DL. Reinforcement of polymethyl methacrylate with ultra-high-modulus polyethylene fiber. *J Dent Res* 20:50-54, 1992.
33. 張志純. :FRP設計手冊。正中書局出版。P.9, 1975.
34. Yazdanie N, Mahood M. Carbon fiber acrylic resin composite: An investigation of transverse strength. *J Prosthet Dent* 54: 543-5471985.
35. Braden M, Davy KWM, Parker S, Ladizesky NH, Ward IM. Denture base poly(methyl methacrylate) reinforced with ultra-high modulus polyethylene fibers. *Br Dent J*, 164:109-113, 1988.
36. Gutteridge DL. The effect of including Ultra-high modulus polyethylene fiber on the

impact strength of acrylic resin. Br Dent J 164:177-180 ,1988.

37. Goldberg AJ, Burstone CJ. The use of continuous fiber reinforcement in dentistry. Dent Mater 8:197-202,1992.

38. Ladizesky NH, Cheng YY, Chow TW Ward IM. Acrylic resin reinforced with chopped high performance polyethylene fiber properties and denture construction. Dent Mater 9:128-135, 1993.