引抜き試験法を用いた接着性レジン の接着強度に関する研究

千葉 栄一 新谷 明喜 横塚 繁雄

Studies on Bond Strength of Adhesive Resin Cement using Pull Out Test

Eiichi Chiba, Akiyoshi Shinya and Shigeo Yokozuka

Abstract : The purpose of this research was to determine optimal specimen size for Pull-Out Test and to determine the bonding strength of adhesive resin cements to the metal (SUS 304). Three experiment were carried out using Panavia EX (PE) and Superbond C & B (SB).

The following results were obtained.

1. Breaking load increased with increasing length of the adhesive surface, and there was a significantly chose correlation between the length of the adhesive surface and breaking load in the specimen of a 10 mm in diameter.

2. The bond strength of PE was not influenced by the length of the adhesive surface when the diameter was 10 mm, whereas bond strength decreased with increasing length of adhesive surface when the diameter of SB was 6 mm.

3. The photoelasticity experiment revealed no difference in stress distribution, shear stress and the maximum stress between PE and SB.

4. The diameter of the specimen had an influence on the stress distribution and maximum stress. The specimen of 10 mm in diameter showed a shear stress distributed up to the superior region of the adhesive surface and maximum stress was a small value.

Key words : pull out test, bond strength, adhesive resin, photoelastic experiment, stress analysis

I. 緒 言

現在、歯科臨床において接着を利用した治療法が、広範囲に应用されている。補綴領域においても、従来の補綴物は支台歯と補綴物との間隙を満たした、合着材の嵌合効果によって機能させてきたが、歯質および金属と接

着する接着剤の研究、開発に伴い、嵌合効果に接着力が加わることによって、これまで以上に咬合およびその他の応力に対する抵抗性が増加した。また接着力を増加させるための支台歯形成理論、合金選択基準、表面処理法等も改良され、その結果接着ブリッジ^{1,2)}に代表される接着補綴法が、臨床に应用されるようになってきた。

接着補綴法には、歯質削除量を少なくできるといった大きな利点を有しているが、接着強度に関しては、現状ではまだ問題を含んでいる。すなわち、実験室のデータでは歯質-接着剤間よりも、接着剤-金属間がより大きな接着強さを示す³⁾が、臨床応用時には、主に接着剤-金属間の界面で剝離することが多い¹⁾という問題である。

日本歯科大学歯学部歯科補綴学教室第2講座（主任：横塚繁雄教授）

Department of Crown and Bridge, School of Dentistry at Tokyo, the Nippon Dental University (Chief: Prof. Shigeo Yokozuka)

そこで、接着剤—金属間について考えるならば、接着剤と金属の厚さ、接着面積など試験片の寸法が、接着強度にどのような影響を及ぼすのか、あるいは接着剤の変化が及ぼす効果について調べることは、このような臨床的な問題点を解決するためには、欠かすことのできない研究課題である。

またこれまで接着強さ (kgf/cm²) は、破壊荷重 (kgf) を接着界面での被着面積で除した単位面積あたりの値で比較されてきたが、この比較が可能であるためには、接着界面での破壊 (界面破壊) を起こし、なおかつ接着界面に均等な応力を加えることのできる試験法を用いた場合に限られるであろう。しかし、この 2 つの条件を満たすことは難しく、研究目的により各種の接着試験法を使っているのが現状である。

西島ら⁴⁾ は、各種接着試験法について比較検討した結果、せん断応力を加える引抜き試験法が、界面破壊を生じやすく、バラツキの少ない試験法であると報告した。2 次的な応力が少ないほど、バラツキが少なくなるという報告⁵⁾ とを考え合わせると、引抜き試験法は、上記の条件を満たす可能性のある試験法になる。

このような理由から、本研究では引抜き試験法を用いて、接着剤—金属間における接着界面の力学的破壊特性を明らかにすることを目的として、試験片の寸法変化が破壊強度ならびに破壊形態に及ぼす影響を調べ、さらにこのときの応力分布についても二次元光弾性実験法を用いて検討した。

II. 実験材料と方法

1. 実験計画および因子と水準

実験 I では、試験片の寸法が接着強度に及ぼす影響を調べるため、表 1 に示した因子と水準について、二元配置による要因配置実験法を採用した。すなわち、被着材料には 18-8 ステンレス鋼 (SUS 304) を用い、接着剤にはパナビア EX (以後 PE と略す) と、スーパーボンド C & B (以後 SB と略す) を用いた場合について、接着

剤の外径を 6, 10 mm の 2 水準に変え、接着面の長さを 5, 7, 9, 11 mm の 4 水準に変えた組合せ 8 条件について実験を行った。

実験 II では、弾性係数の異なる 2 種類の接着剤 PE, SB によって、接着界面に生じる応力分布の違いを調べた。すなわち、PE, SB の弾性係数を模した材料を用いて、10×11 cm の光弾性モデルを作製し光弾性実験を行った。

実験 III では、試験片の寸法変化が応力分布に及ぼす影響について調べた。すなわち、PE の弾性係数比を用いて寸法の異なる光弾性モデルを 8 種作製して光弾性実験を行った。

2. 実験材料

実験 I に用いた接着剤のメーカー、ロット No. を表 2 に示した。実験 II, III に用いた実物材料の弾性係数および弾性係数比と、それに準じて組合せた光弾性材料の弾性係数を表 3 に示した。

3. 試験片の作製

1) 試験片の形態

接着剤—金属間の接着強度測定に用いる実験 I の試験片の形態、寸法を図 1 に示した。実験 II, III では実験 I の寸法の 10 倍モデルを作製した。

これは岩間⁶⁾ が陶材—金属間の焼付強さの測定に用いた試験片形態を、接着剤—金属間に応用したもので、陶材—金属間の場合と同様に、金属棒を引抜くことにより、接着剤と金属の界面にせん断応力を加えて破断させ接着強度を測定する方法である。

表 1 実験 I の因子と水準

因 子	(mm)			
	水 準			
	1	2	3	4
A : 接着剤の外径	6	10		
B : 接着面の長さ	5	7	9	11

表 2 実験 I に使用した接着剤

商品名	略号	メーカー	ロット No.	
パナビア EX	P E	クラレ	粉	PN-0383
			液	PL-224
スーパーボンド C & B	S B	サンメディカル	粉	50801
			液 (MONOMER)	51002
			(CATALYST)	526

表 3 光弾性実験材料と弾性係数 (kgf/mm²)

実 物			モ デ ル		
材 料	弾性係数 (kgf/mm ²)	弾性係数比	材 料	弾性係数 (kgf/mm ²)	弾性係数比
SUS304	20400	30	アルミニウム	7200	30
PE	670	1	エポキシ	240	1
SUS304	20400	107	鉄材	21000	105
SB	190	1	ジアリル フタレート	200	1

図 1 試験片の形態

2) 試験片の作製

a) 実験 I

実験 I では、直径 3 mm の 18-8 ステンレス鋼 (SUS 304) 棒を被着材料として用い、これを長さ 30 mm に機械加工し、PE, SB を用いた場合とも 2 因子の組合せ 12 とおりについて、繰返し 3 回、計 48 本の試験片を作製した。接着部の合金表面は、# 600 耐水研磨紙で研磨し、直径 2.98 ± 0.01 mm とした。研磨、水洗後 99% アセトンおよび精製水中にて、それぞれ 15 分ずつ超音波洗浄を行って自然乾燥させ被着材料とした。

試験片は、二分割金型を用いて作製した。金型の溝の部分に前述した金属円柱棒を挿入し、実験 I では接着面の長さが 5, 7, 9, 11 mm、接着剤の外径が 6, 10 mm になるように、それぞれマトリックスとしてビニルシート、ビニルチューブを使用して寸法を規定した。

接着剤の填入に当たって、SB は付属のダッペンディッシュにまずモノマー 20 滴をとり、直ちにその中にキャタリスト 5 滴を落とし混和した。その後メーカー指示に従い、攪拌した混合液を金属円柱棒に一層塗布してから、筆積法にてバイブレーターを併用して金型内に填入した。

PE は付属の練和紙上にポリマー (1.3 g) をとり、モノマー 12 滴を加えて 30 秒間攪拌し、さらに 60 秒かけて乳状になるように練和した。その後 SB と同様に、バイブレーターを併用して金型内に填入した。この際嫌気性雰囲気にするために、ガラス練板上にて金型周囲をオキシガードで封鎖し、さらに封鎖性を確実にするため 150 gf の荷重を加え硬化させた。すべての試験片を 30 分間室温に放置したのち、37°C 水中に 24 時間保存した。

b) 実験 II, III

実験 II, III に用いた光弾性実験モデルは、弾性係数比が PE の弾性係数 (670 kgf/mm²) と SUS 304 の弾性係数 (20,400 kgf/mm²) の弾性係数比 1 : 30 になるように、エポキシ樹脂 (弾性係数 240 kgf/mm²) とアルミニウム (弾性係数 7,200 kgf/mm²) を用いて作製した。

SB モデルは、SB の弾性係数 (190 kgf/mm²) と SUS 304 の弾性係数 (20,400 kgf/mm²) の比 1 : 107 になるように、ジアリルフタレート樹脂 (弾性係数 200 kgf/mm²) と鉄材 (弾性係数 21,000 kgf/mm²) を用い、1 : 105 の弾性比として試験片を作製した。なお、PE および SB の弾性係数はメーカー公表値を用いた。

実験 II, III に用いた光弾性実験モデルの形態は、実験 I の試験片を平面モデルにしたものであり、大きさは実験 I の試験片の 10 倍モデルである。このうち実験 II では、接着剤の種類が応力分布に及ぼす影響を調べる目的で、10×11 cm の光弾性モデルに寸法を固定した。

実験 III では、実験 II の結果より接着剤は PE モデルのみとし、試験片の寸法変化が応力分布に及ぼす影響を調べる目的で、実験 I の 10 倍モデルを 8 種作製した。実

図 2 光弾性実験用試験片

験Ⅲに用いた試験片を図 2 に示した。

おのおのの光弾性モデルは、厚さ 6 mm の光弾性材料に初期応力の加わらないように切り出し、エポキシ系接着剤（セメダイン社製ハイスーパー）で強固に接着した。

4. 測定法

1) 破壊強度試験の測定法

接着強さの測定には、島津社製万能試験機オートグラフ IS 5000 型を使用した。接着剤と合金の界面にせん断応力が加わるように、試験機にステンレス製の引張装置を付属させ、装置下部と試験片の接着剤基底面との間には、厚さ 1.0 mm のエルコデント社製エルコレン・シートを敷き、接着界面全体に均一な荷重が加わるようにした。なお、試験機のクロスヘッドスピードは 0.5 mm/min と一定にした。実験 I では試験片の寸法効果を調べるために、このようにして測定した破壊荷重 P (kgf) にて比較検討し、次に破壊荷重 P (kgf) から、接着強さ S (kgf/cm²) を下記の式により算出した。

$$S = P / \pi d l$$

d : 接着界面における金属円柱棒の平均直径 (mm)

l : 接着面の長さ (mm)

2) 光弾性実験の測定法

光弾性縞（等色線縞）を測定するため、実験装置には図 3 に示した有効視野 420 mm、最大荷重 300 kgf の理光研社製散光式光弾性装置 DL-420 を用いた。载荷方法は、試験片の中心に実験モデルが変形を生じない最大重

図 3 光弾性実験装置

量、外径 6 cm モデルには 40 kgf、外径 10 cm モデルには 80 kgf を荷重し、最適な光弾性縞の出現する状態で実験を行った。光弾性縞の撮影には酒井特殊カメラ製作所製トヨ・ビュー D 45M に理光研社製モノクロームフィルターを付属させ、コダック社製トライ X フィルムを用いた。

実験Ⅱ、Ⅲの光弾性実験の測定には、作製した試験片に面外応力のかからないように、厚さ 6 mm の 2 枚のガラス板で保持し荷重を加えた。このとき生ずる等色線縞

表 4 PE の破壊荷重 (kgf) と接着強さ (kgf/cm²)

接着面の長さ	5 mm		7 mm		9 mm		11 mm	
測定単位	kgf	kgf/cm ²	kgf	kgf/cm ²	kgf	kgf/cm ²	kgf	kgf/cm ²
接着剤の外径	6 mm	35.0	75	54.5	83	55.8	66	81.0
		37.0	79	44.5	68	52.5	62	85.8
		40.5	87	42.0	64	75.0	89	73.3
10 mm		56.5	121	71.0	108	88.8	105	120.0
		37.0	79	70.8	108	87.3	104	111.5
		45.8	98	67.0	102	104.5	124	89.0

表 5 PE の破壊荷重の分散分析表

因 子	ss	df	ms	F ₀
A: 接着剤の外径	3089.5	1	3089.5	36.00**
B: 接着面の長さ	9031.4	3	3010.5	35.07**
A × B	451.6	3	150.5	1.75
e	1373.4	16	85.8	
T	13945.9	23		

**信頼率 99% で有意

図 4 PE の接着剤の外径と破壊荷重の関係

図 5 PE の接着面の長さとの破壊荷重の関係

を写真撮影し、同時に Tardy の方法⁷⁾を用い偏光板を回転して、等色線縞次数 f.o. (フリンジ数) を測定した。

さらに光弾性装置の偏光板を 10 度ずつ回転し、それぞれの角度における等傾線をプロットした。また等傾線図から、回転円盤を用いて主応力線を求めた。同一等傾線 θ 上では、主応力線の方向が等しく等傾線垂直方向で求められる最大主応力線 σ_1 と、最大主応力線に垂直方向で求められる最小主応力線 σ_2 の主応力線図を描いた。

せん断応力光弾性実験装置の荷重台にモデルをセットし、荷重を加え現れる等色線縞次数 N と、主応力 σ_1 と σ_2 との間には、

$$N = Kt(\sigma_1 - \sigma_2) \quad \text{①}$$

の関係があり、これより N が求められる。ただし実験定数の K は光弾性感度、 t は光弾性板の厚さである。

また、せん断応力 $\tau_{\max}$ と主応力差の間には、

$$\tau_{\max} = (\sigma_1 - \sigma_2)/2 \quad \text{②}$$

の関係があり、① 式に代入すると、

$$N = 2 Kt \tau_{\max} \quad \text{③}$$

となることにより、等色線縞からせん断応力を求めた。

本研究は応力値の比較であるので、応力の分布は等色線の縞次数で表した。

III. 実験結果

1. 破壊強度試験結果

1) PE の破壊荷重および接着強さ

表 4 に PE を用いたときの破壊荷重および接着強さを示した。表 5 にその破壊荷重における二元配置分散分析表を示した。表中の**は信頼率 99% で、要因効果が有意であったことを示す。すなわち、接着剤の外径 (因子 A) および接着面の長さ (因子 B) は信頼率 99% で有意となったが、交互作用効果 A × B には有意の差が認められなかった。縦軸に破壊荷重、横軸に接着剤の外径、接着面の長さを取り、破壊荷重の変化を示すとそれぞれ図 4, 5 のようになった。図中の細線は 95% 信頼区間で、

図 4 の 95% 信頼区間 Q_i は $\pm 8(\text{kgf})$ であった。同様に、図 5 の 95% 信頼区間 Q_j は $\pm 6(\text{kgf})$ であった。

表 6 に PE を用いたときの接着強さの二元配置分散分析表を示した。接着剤の外径 (因子 A) は信頼率 99% で有意となったが、接着面の長さ (因子 B) および交互作用効果 $A \times B$ には有意の差が認められなかった。図 6 に接着剤の外径 (因子 A) の効果を示した。95% 信頼区間 Q_i は $\pm 7(\text{kgf/cm}^2)$ であった。この結果、外径、長さの増加に伴い破壊荷重は増加し、接着剤の外径 10 mm、接

表 6 PE の接着強さの分散分析表

因 子	ss	df	ms	Fo
A : 接着剤の外径	5222	1	5222	34.16**
B : 接着面の長さ	26	3	9	0.06
A × B	345	3	115	0.75
e	2446	16	153	
T	8039	23		

**信頼率 99% で有意

図 6 PE の接着剤の外径、接着面の長さ と接着強さの関係

着面の長さ 11 mm の試験片が最大値 (120.0 kgf) を示した。接着強さは長さにより増加せず影響を受けなかった。

2) SB の破壊荷重および接着強さ

表 7 に SB を用いたときの破壊荷重および接着強さを示した。表 8 にその破壊荷重における二元配置分散分析表を示した。接着剤の外径 (因子 A), 接着面の長さ (因子 B), および交互作用効果 $A \times B$ すべての効果が信頼率 99% で有意となった。交互作用効果 $A \times B$ に有意の差が認められたため、図 7 には横軸に接着面の長さ (因子 B) の各水準をとり、接着剤の外径 (因子 A) 別に破壊荷重に対する効果を図示した。95% 信頼区間 Q_{ij} は $\pm 14(\text{kgf})$ であった。

表 8 SB の破壊荷重の分散分析表

因 子	ss	df	ms	Fo
A : 接着剤の外径	17442.0	1	17442.0	140.23**
B : 接着面の長さ	22353.8	3	7451.3	59.90**
A × B	10067.5	3	3355.8	26.98**
e	1990.2	16	124.4	
T	51853.5	23		

**信頼率 99% で有意

図 7 SB の接着剤の外径、接着面の長さ と破壊荷重との関係

表 7 SB の破壊荷重 (kgf) と接着強さ (kgf/cm²)

接着面の長さ		5 mm		7 mm		9 mm		11 mm	
測定単位		kgf	kgf/cm²	kgf	kgf/cm²	kgf	kgf/cm²	kgf	kgf/cm²
接着剤の外径	6 mm	104.5	223	121.5	185	130.0	154	128.0	124
		83.5	178	96.5	147	110.0	131	121.0	117
		95.5	204	113.0	172	101.0	120	125.0	121
10 mm	10 mm	105.0	224	123.5	188	185.0	220	215.0	209
		100.0	214	144.5	220	186.0	221	242.0	235
		105.5	225	125.0	191	200.0	237	245.0	238

表 9 に SB を用いたときの接着強さの二元配置分散分析表を示した。接着剤の外径 (因子 A), 接着面の長さ (因子 B), および交互作用効果 $A \times B$ すべての効果が信頼率 99% で有意となった。交互作用効果 $A \times B$ に有意の差が認められたため, 図 8 には横軸に接着面の長さ (因子 B) の各水準をとり, 接着剤の外径 (因子 A) 別に

表 9 SB の接着強さの分散分析表

因子	ss	df	ms	Fo
A: 接着剤の外径	23188	1	23188	98.08**
B: 接着面の長さ	4876	3	1625	6.88**
$A \times B$	8365	3	2788	11.79**
e	3783	16	236	
T	40212	23		

**信頼率 99% で有意

図 8 SB の接着剤の外径, 接着面の長さと接着強さの関係

接着強さに対する効果を図示した。95% 信頼区間 Q_{ij} は $\pm 18(\text{kgf/cm}^2)$ であった。この結果, 破壊荷重は PE と同じ傾向を示し, 接着剤の外径 10 mm, 接着面の長さ 11 mm の試験片が最大値 (245.0 kgf) を示した。接着強さは長さの影響を受け, 外径 6 mm の試験片は長さの増加に伴い接着強さが減少した。

2. 光弾性実験結果

1) 主応力線

図 9 に光弾性実験 (実験 II) の結果, 求められた PE および SB モデルの等傾線図と主応力線図を示した。

等傾線図中の数字は, その等傾線が出現した時の偏光板の主軸の角度を表している。また主応力線図中の実線は, 最大主応力 σ_1 を, 破線は最小主応力 σ_2 の応力方向を表している。図 9 から明らかなように, PE モデルと SB モデルの主応力線の走行はほぼ同じであり, 差は認められなかった。

2) 実験 II の応力分布

図 10 に PE モデルおよび SB モデルの等色線縞写真を示した。

等色線縞写真から, PE モデルと SB モデルに差はなく両者ともほぼ同様な応力分布であった。本研究は応力値の比較であるので, 応力の分布は等色線の縞次数で表した。

図 11 に等色線縞写真から求めた縞次数分布図を, 表 10 に計算したせん断応力値と最大応力値を示した。なお応力の大きさは, 接着界面から垂直に立てた垂線の長さによって表した。縞次数分布図, 応力値とも PE モデル

図 9 PE, SB モデルの等傾線図と主応力線図

PE モデルの等色線縞写真 SB モデルの等色線縞写真
図 10 実験Ⅱの等色線縞写真

と SB モデルに差はなかった。

3) 実験Ⅲの応力分布

実験Ⅱの結果、縞次数分布図、応力値とも PE モデルと SB モデルに差が認められなかった。そこで実験Ⅲでは、PE モデルについて接着剤の外径、接着面の長さによる影響を調べた。

図 12 に接着剤の外径 6 cm および 10 cm モデルの等色線縞写真を示した。これらの等色線縞写真から求めた縞次数分布図を図 13 に、せん断応力値と最大応力値を表 11 に示した。

接着剤の外径 6 cm モデルの応力分布はほぼ同じであり、接着面の長さの増加に伴い、引抜き方向底部の最大応力値が、接着面の長さ 5 cm モデルの 6.6 (f.o.) から 11 cm モデルの 4.3 (f.o.) まで減少した。

接着剤の外径 10 cm モデルの応力分布は、4 モデルとも接着面全体にほぼ均一に分布していた。せん断応力値は 1.4~1.6 (f.o.) とほとんど差がなかったが、引抜き方向底部の最大応力値は接着剤の外径 6 cm モデルと同様に、接着面の長さ 5 cm モデルの 3.8 (f.o.) から 11 cm モデルの 2.7 (f.o.) まで減少した。

また、外径 6, 10 cm のすべての試験片の最大応力値は、引抜き方向底部より算出された引張応力であった。

接着面に働く応力は、引抜き方向底部には引張応力が、接着界面にはせん断応力が認められた。

IV. 考 察

1. 破壊強度に及ぼす試験片の寸法効果

実験Ⅰでは、18-8 ステンレス鋼 (SUS 304) 棒の周囲に接着剤を配置し、鋼棒を引抜くことによって接着強度を測定する、いわゆる引抜き試験法を用いた。鋼棒に鋳

図 11 実験Ⅱの縞次数分布図

表 10 PE と SB モデルの応力値 (f.o.)

応 力 値	接 着 剤	
	PE	SB
最大応力値	2.7	2.7
せん断応力値	1.4	1.6

造体を用いなくて、加工した 18-8 ステンレス 鋼 (SUS 304) 棒を用いたのは、被着面の性状を一定にし、不均質な鑄造組織による影響を除くためである。実験Ⅰによると、PE, SB とも破壊荷重、接着強さに接着剤の外径が影響し、接着剤の外径 10 mm の試験片がより大きな値を示した。しかし PE と SB では、材質が異なるため同一には扱えない。

PE の外径 6 mm の試験片の場合は、界面破壊のみではなく、PE 自体に亀裂 (Crack) が入り破壊するか、あるいは破断した時点で亀裂が入っていた試験片が少なくない。図 14 にその 1 例を示した。したがって PE の外径 6 mm の試験片においては、純粋な界面破壊ではなく、凝集破壊も含まれた破壊が生じたと考えられる。このために、界面破壊を起こした外径 10 mm の試験片とは、違った挙動を示したものと考えられる。

一般に破壊が起こるのは、材料中での亀裂の発生と伝播によるものであるが、実際の材料 (接着剤) ではす

に介在物や析出物、微小空胞などから、多くの微小亀裂が発生しており、外部から応力が負荷されると、応力の方向によりその中の特定の亀裂のみが成長し、外部応力の方向に対し直角方向に数倍の内部応力を集中、伝播して破壊に至る。じん性の高い材料では、亀裂の存在は破壊強度に影響を比較的及ぼさないが、コンポジットレジ

ンの性質を持つ PE はぜい性材料であり、その破壊強度は亀裂寸法の増加とともに急激に低下する。したがって亀裂を含んだぜい性材料においては、材料に加わる応力の方向、強さにより、同一荷重点においても異なった破壊挙動を示す。

凝集破壊を起こした原因を解明するため、破断面を日

立社製 X 560 型走査型電子顕微鏡を用いて、加速電圧 20 KV にて電子顕微鏡像より検討した。図 15 に PE 外径 6 mm の試験片から、PE 自体が破断した試験片破壊面の電子顕微鏡写真を示した。この電子顕微鏡写真より、巨視破面解析（マクロフラクトグラフィ）を応用し解析した。破面解析は、亀裂伝播の理論である破壊力学の直接的証拠を与えるものであり、破面解析により、破壊形式、破壊の原点、作用応力を推定することができる。

破断面には、矢印で示したぜい性破壊時に特徴的に現れ、山形模様（Chevron Pattern）と称される放射状条痕が生じており、この条痕は破壊の進展時における、亀裂のマクロ的な合体により生じた段差を示すものである。この条痕を、発散した方向から逆にたどることにより、破壊の原点に到達することができる⁸⁾。

この写真から、条痕の原点は底部を示しており、また底部には別の小さな破断も起こしていることから、底部付近に応力が集中したものと推定された。この試験片に

加わった作用応力は、せん断応力により延性破壊が、引張応力によりぜい性破壊が生じやすい⁹⁾ことから、底部付近に引張応力が加わり、その結果亀裂が発生し、成長し、最終的にせん断応力の合体により、応力が伝播して破壊したものと推察された。

亀裂の成長は、亀裂と平行に加わる応力に依存する¹⁰⁾ことから、PE 外径 6 mm の試験片が凝集破壊を起こした原因は、引張応力による可能性が大きいと考えられる。すなわちぜい性材料の破壊は、もっぱら内部に生じた引張応力が、その物質の張力に対する強度を超えたときに発生することが明らかにされている¹¹⁾。

これらのことより、PE においては同一被着面積にもかかわらず、外径 6 mm の試験片においては、強い引張応力が働いた結果 PE 内で亀裂が進展し、界面破壊を起こさず結果として小さな値を示したと考えられる。

つぎに SB の場合であるが、SB は PE とは逆に粘弾性であり、じん性の高い材料である。じん性の高い SB を用いた試験片においては、PMMA 系などの非晶性高分子破壊時の特徴である塑性変形や、亀裂先端でのクレイズの形成が起こり、亀裂の成長に余分なエネルギーが生じなくなるため、応力がさらに増加しないと亀裂の成長は続かない。したがって、PE のように接着剤層内の破壊は起こさなかったものと思われる。また、SB における亀裂の成長に関しては、試験片の厚さも亀裂先端の応力状態と関係し、亀裂先端での塑性変形の寸法、方向に影響を与える¹²⁾。すなわち、外径の小さな 6 mm の試

表 11 実験Ⅲの応力値 (f.o.)

接着剤の外径		接着面の長さ			
		5 cm	7 cm	9 cm	11 cm
6 cm	最大応力値	6.6	5.2	4.6	4.3
	せん断応力値	3.8	3.3	2.8	2.8
10 cm	最大応力値	3.8	3.3	3.0	2.7
	せん断応力値	1.6	1.6	1.5	1.4

図 14 実験後の試験片

図 15 PE 接着剤層内で破壊した外径 6 mm の試験片の 1 例

験片では、より大きな寸法の塑性変形を起こしうる。これは試験片外径が小さければ、その方向の変形の拘束が少なくなることによる¹³⁾。この外径 6 mm の試験片に、PE と同様に底部に大きな応力が加わった結果、SB では図 14 に示したような底部からのめくれ、あるいは裾開き状の、SB 自体の大きな変形が起こったものと考えられる。

しかし SB については、SB 自体が完全に破断した試験片がなく、PE のように作用応力までは推定できなかった。

これに対し PE, SB とも、接着剤の外径 10 mm の試験片では、引抜き試験後の試験片に変形がなく、このために同一被着面積においても強さに差が生じたものと思われる。

以上のことより、界面における接着強さ（せん断強さ）を調べるには、接着剤の外径 10 mm の試験片が適していると考えられる。

破壊荷重 (kgf) を単位面積あたりの値である接着強さ (kgf/cm²) に換算したところ、PE, 外径 10 mm の SB において接着面の長さによる接着強さの違いがあまりなく、グラフ上ではほぼ水平な関係になった。

またグラフより、PE, SB とも外径 10 mm の試験片における最大接着強さは接着面の長さ 9~11 mm の間と思われる。

この最大接着強さには、単純に強さのピークというだけでなく、単位面積あたりの値であるために別の意味も含まれる。すなわち本研究のように、破壊による接着強さの測定においては、接着面に生じる応力が平均化されれば、その破壊強さ（接着強さ）も当然向上する。したがって、最大接着強さを示した試験片の寸法が、最も均等な応力分布を持った試験方法である可能性が高い。

このことから、PE, SB とも接着剤の外径 10 mm, 接着面の長さ 9~11 mm の間の試験片が、引抜き試験法における最適条件になる可能性が示唆された。

また破壊荷重、接着強さの結果とも、交互作用効果が PE では有意でないのに対し、SB では高度に有意となった。これは接着剤の外径 10 mm の試験片は、PE, SB とも同様の傾向を示したのに対して、接着剤の外径 6 mm の試験片は、上述したように接着剤の材質によりその破壊挙動に差が生じたためと思われる。

2. 応力分布に及ぼす接着剤の種類の影響

光弾性実験は、応力複屈折現象を利用して、材料内の応力分布を実験的に解析する方法であり、接着により複

合化した 2 種の材料間の、応力分布の測定に適応できるため、接着構造物の応力解析に用いられる。これを光弾性応力解析といい、材料力学分野での有力な実験的応力解析法の 1 つである。

実験 II では、接着剤の種類の変化が荷重時の応力分布に及ぼす影響を、弾性係数比を用いて検討したのであるが、この弾性係数は高分子材料において、最も特徴的な力学的性質であると同時に、材料評価での重要な物性値でもある¹⁴⁾。そこで PE と SB の弾性係数を比較すると、SB よりも PE の方が大きな値を示している。これは、PE はフィラーを含有させることにより、複合化した材料のためである。

接着剤において、複合化には高剛性化、熱変形量（クリープ変形）の減少、金属との熱膨張係数差の減少、内部応力の発生を少なくするといった利点がある¹⁵⁾。口腔内では、接着剤は高温にさらされる機会が多く、中でも耐熱性に関する影響は重要である。したがって野口らの結果¹⁶⁾より、10 kgf/cm² の荷重条件において、60°C 近辺でクリープの始まる SB に対し、10 kgf/cm² 程度の荷重条件では変形傾向の認められなかった PE は、この点においては複合化が効を奏していると思われる。

光弾性実験にて現れる応力分布においても、接着剤の種類による変化が上記のような光弾性効果において、特異的な挙動を示すと考えられたが、実験 II の結果 PE, SB ともに、主応力線、縞次数分布図、応力値に差が認められなかった。これより PE と SB の弾性係数の差は、クリープ変形とは異なり、応力分布には影響する程の違いがないものと思われる。

実験 I の PE, SB の、10×11 mm 試験片の接着強さを比較してみると、PE が平均 104 kgf/cm² なのに対して、SB は平均 227 kgf/cm² と PE の約 2 倍の接着強さを示した。

以上のことより、PE, SB は同様な光弾性効果を持ちながら、接着強さには大きな差があるという結果になった。

PE と SB の差には、接着性モノマーの差などから、接着機構（接着力）そのものの違いが第一に考えられるが、接着剤の物理的性質、特に可撓性のある接着剤の方が、大きな破壊強さが現れるという報告¹⁷⁾から、弾性係数のみでは適応しきれない、接着剤の特性や材質の影響もあると思われる。具体的には、接着剤の複合化による構造変化は、接着剤自体の力学的性質の改質と同時に、界面における分子間力、稠度やぬれ性の変化による、界面の機械的結合力などを変化させ、その結果として接着

強度をも変化させたか、あるいは実験Ⅰで用いたクロスヘッドスピードなどの実験設定条件では、PEの接着強度特性が現れなかったものと思われる。すなわち、PEは構成成分が単なるポリメチルメタクリレートのSBとは違い、剛性と強度がそれぞれ異なるフィラーとマトリックスから構成される、三次元架橋構造を持つ複合材料であるので、複合材料の力学的特性としての変形、破壊挙動の他に、変形過程にも無数の累積損傷を生じることが考えられる¹⁸⁾。したがって、今後初期降伏から終極の破壊まで、これらの影響についても解明し検討する必要がある。

3. 応力分布に及ぼす試験片の寸法効果

実験Ⅲでは、接着剤-金属間における接着界面の力学的破壊特性を明らかにし、引抜き試験法の試験条件を検討するため、実験Ⅰの条件を光弾性実験にて応力解析により検討した。

実験Ⅲの結果、外径6cmモデルにおいては、縞次数分布図に差が認められず、長さ7cm以上のモデルでは、上部までせん断応力が分布していなかった。また、引抜き方向底部の小さい範囲に強い応力集中部が認められ、すべての試験片の最大応力値はここから算出された。

外径10cmモデルにおいては、4モデルともほぼ均等に試験片の上部までせん断応力が分布していた。最大応力値は、外径6cmモデルと同様に引抜き方向底部より算出されたが、外径6cmモデルと比較してその値は小さかった。外径10cmモデルにおける長さの関係は、外径6cmモデルと同様に長さの増加に伴い最大応力値が減少した。

引抜き試験法において、破壊を起こす応力については、

- (1) 引張応力による接着剤内部での破壊
- (2) 圧縮応力による接着剤内部での破壊
- (3) 接着剤-金属間に生じるせん断応力による界面の剝離

などが考えられる。このうち、接着剤の圧縮強さは引張強さに比較して大きい¹⁶⁾ことから、圧縮応力による破壊は生じ難いと思われる。

破面解析により、PE外径6mmの試験片には、引抜き方向底部に引張応力が働き、ぜい性破壊したものと推察されたが、光弾性実験結果でも外径6cmの試験片にはやはり底部に光弾性縞が集中しており、底部に生じた引張応力が大きく、接着剤内に亀裂が入ったか、あるいは破壊にまで及んだものと考えられる。

一方外径10mmにおいては、底部の引張応力が破壊を起こすほどの決定的な要因とはならず、引張応力成分が増加すると凝集破壊が、せん断応力成分が増加すると界面破壊が生じやすい¹⁹⁾ことから、主に接着剤-金属間の界面に生じたせん断応力による界面からの剝離(界面破壊)が起こったものと考えられる。底部に引張応力が現れた原因としては、金属円柱棒の直径が3mmなのに対して、測定ゲージ底部の円形空隙部(穴部)は、引抜き方向以外に力が加わらないように直径が4mmとっており、このために引張応力が大きく現れたものと思われる。空隙部を、金属円柱棒と一致させ封鎖すれば、引張応力の影響は減少するが、実際には接着強度の測定に必要不可欠なものであり、むしろより引張応力の影響の少ない試験片について検索するほうが有意義だと考える。

したがって、主にせん断応力が作用して界面破壊を起こしたと考えられる外径10mmの試験片が、引抜きせん断を加えるという、引抜き試験法の目的に合致していると考えられる。

4. 他の接着試験方法との比較

実験Ⅰの結果、PE、SBとも外径10mmの接着強さにおいて、長さに明確な違いが認められず、グラフ上の関係ではほぼ水平であることと、また実験Ⅲの結果から、外径10mmのモデルは最大応力値の違いはあるが、モデル上部までほぼ均等に応力が分布しており、せん断応力値にもほとんど差が認められなかった。したがって引抜き試験法においては、外径が10mmの試験片であれば、5~11mm間のどの長さの試験片を用いても、比較的応力集中の少ない試験方法だと思われる。このことを、他のせん断接着試験法(単純重ね合わせ引張せん断試験法、円筒突合せねじりせん断試験法)との比較により検討した。検討方法として、実験Ⅰの結果からPE、SBとも外径10mmの試験片における接着面の長さに対する破壊荷重の散布図(図16、17)を作製し用いた。散布図から接着面の長さ5~11mmの間では、破壊荷重 y と接着面の長さ x がPE、SBとも直線回帰した。またこのときの相関は、PEの外径10mmにおいて相関係数 $r=0.930$ 、SBの外径10mmにおいて $r=0.976$ となり、ともに高度に有意となった。

これまで、応力負荷方向に同じせん断応力を加える単純重ね合わせ法において、破壊荷重と接着面の長さとの関係を調べた報告では、接着面の長さの増加に伴い破壊荷重は増加するが、直線回帰はしておらず相関は認められていない²⁰⁾。これは、有限要素法により応力分布を解

図 16 PE の接着剤の外径 10 mm における回帰直線と散布図

図 17 SB の接着剤の外径 10 mm における回帰直線と散布図

析した結果²¹⁾、接着剤層の端面に応力集中部が生じ、逆に中央部近傍ではきわめて小さな値となっており、このために破壊荷重と接着面の長さとの間に、相関が認められないことが知られている。

これに対して、円筒突合せねじりせん断試験法は、被着面積と破壊荷重が直線回帰し²²⁾、なおかつ均等なせん断応力が加わる^{5, 23)}ことが報告されている。試験条件が異なるため、直接比較することはできないが、引抜き試験法を用いた本研究は、円筒突合せねじりせん断試験法と同様に、被着面積と破壊荷重が直線回帰し、なおかつ光弾性実験の結果、外径 6 mm に比べて引張応力の影響が小さかったことから、外径 10 mm、長さ 5~11 mm 間の試験片を用いた引抜き試験法は、円筒突合せねじりせん断試験法と同様に、応力をほぼ均等に加えることができる試験法だと考えられる。

また接着強さの結果から、接着剤の外径 10 mm、接着面の長さ 9~11 mm の試験片が最大接着強さを示し、接

着面の長さの増加により、せん断応力値、最大応力値も減少することから、引抜き試験法により、接着界面に最も均等な応力を加えることのできる試験片の寸法は、接着剤の外径 10 mm、接着面の長さ 9~11 mm と思われる。

接着に関する研究は、本研究のように破壊試験や応力解析から力学的特性を調べる方法と、接着界面の構造から接着のメカニズムを調べる方法とがある。力学的特性を調べた本研究により、接着剤—金属間における接着の直接的な強さの評価は得られたが、接着の原因(接着機構)までのすべてを論ずるには、残念ながら力学的特性からだけでは選択性に欠けるため問題が残る。したがって接着界面の構造を調べ、接着のメカニズムからの解明も、今後の研究課題になると思われる。

V. 結 論

パナビア EX (以後 PE と略す) およびスーパーボンド C & B (以後 SB と略す) 2 種の接着剤と、金属 (SUS 304) 間の接着強度に及ぼす接着界面の力学的特性を明らかにするため、引抜き試験法を用いて、実験 I では破壊強度に及ぼす試験片の寸法 (接着剤の外径、接着面の長さ) の影響を調べ、実験 II では二次元光弾性実験法を応用して接着剤の種類 (PE, SB) による影響を、実験 III では二次元光弾性実験法を応用して試験片の寸法 (接着剤の外径、接着面の長さ) による影響を調べた。

結果を要約するとつぎのようになる。

1. 接着剤の外径は、破壊荷重・接着強さに影響を与え、PE, SB とともに接着剤の外径 10 mm の試験片がより大きな値を示した。

2. 接着面の長さが増加するにつれ破壊荷重が増加し、接着剤の外径 10 mm の試験片は、接着面の長さで破壊荷重が高度に有意な相関を示した。

PE, SB の接着剤の外径を 10 mm としたときの接着強さは、接着面の長さによって影響されず、SB の接着剤の外径を 6 mm としたときの接着強さは、接着面の長さが増加するにつれて減少した。

3. 光弾性実験によると接着剤 PE, SB の応力分布・せん断応力値および最大応力値に違いが認められなかった。

4. 接着剤の外径は、応力分布・最大応力値に影響を与え、接着剤の外径 10 mm モデルでは接着面上部までせん断応力が分布しており、また最大応力値が小さかった。

5. 接着面の長さは、最大応力値に影響を与え、接着面の長さの増加につれて最大応力値が減少した。

稿を終えるに臨み、終始ご懇篤なるご指導、ご校閲を賜りました日本歯科大学新潟歯学部歯科理工学教室中村健吾教授に深甚なる謝意を表します。また、本研究に種々のご助言を頂いた、日本歯科大学付属歯科専門学校歯科技工士科尾崎順男講師に深謝致します。さらに、種々のご協力を頂きました日本歯科大学補綴学第2講座高橋英登講師ならびに日本歯科大学補綴学第2講座教室員諸兄に感謝の意を表します。

なお、本論文の要旨は昭和60年度日本補綴歯科学会関東支部学術大会、昭和61年度日本歯科大学歯学会第352回例会にて発表した。

文 献

- 1) 増原英一：歯科接着性レジン基礎と臨床（上巻），69～97，クインテッセンス，東京，1982。
- 2) V.P. Thompson, G.J. Livaditis, and E. Delcastillo: Resin Bond to Electrolytically Etched Non Precious Alloys for Resin-Bonded Prostheses, J Dent Res, 60 Special Issue A-C: 377, 1981.
- 3) 増原英一：接着歯学の概念，接着歯学，1: 6～11, 1983.
- 4) 西島奉一，新谷明喜，横塚繁雄：接着試験に関する基礎的研究，補綴誌，32: 137～150, 1988.
- 5) 宮入裕夫：構造用接着の理論と応用（5），接着，14: 411～417, 1970.
- 6) 岩間英仁：貴金属と陶材の焼付強さ（第1報）焼付強さの測定法，歯理工誌，14: 82～89, 1973.
- 7) 辻 二郎，河田幸三：光弾性実験法 第三版，28～29，理研計器，東京，1954.
- 8) 北川英夫，小寺沢良一：フラクトグラフィー，61～78，培風館，東京，1984.
- 9) 野口 徹：なぜ壊れたんだろう—破損解析のためのフラクトグラフィー—（その1），金属，53（2）: 40～43, 1983.
- 10) Viola, E., Pivaa: Crack paths in Sheete Brittle Material, Eng Fract Mech, 19: 1069～1084, 1984.
- 11) 桜岡 充：歯質と全補綴冠との間の接着剤中の破壊応力分布，日本歯科大学紀要，15: 15～24, 1986.
- 12) 黒田俊彦，滝澤 章，永澤 満：高分子の基礎物性と応用，67～90，シー・エム・シー，東京，1984.
- 13) 成沢郁夫：高分子および接着破壊への破壊力学の応用，日本接着協会誌，19: 285～292, 1983.
- 14) 黒田俊彦，滝澤 章，永澤 満：高分子の基礎物性と応用，34～52，シー・エム・シー，東京，1984.
- 15) 金丸 競：新版接着と接着剤，95～100，大日本図書，東京，1978.
- 16) 野口八九重，中村かおり，小園江芳之，越中 優：歯科用セメントの接着強さと圧縮強さ—温度依存性—，歯材器，4: 543～550, 1985.
- 17) 福村勉郎：金属の接着，日本接着協会誌，3: 90～98, 1967.
- 18) 金原 勲：複合材料 繊維強化複合材料の力学的性質，高分子，31: 1081～1087, 1982.
- 19) 永弘太郎，能野謙介，中条和雄：組合せ負荷における中実丸棒突合せ接着継手の強度，日本接着協会誌，20: 195～203, 1984.
- 20) N.A. De Bruyne, and R. Houwink: Adhesion and Adhesives, 91～143, Elsevier Pub. Co., Duxford, 1951.
- 21) 京極秀樹，杉林俊雄，池上皓三，非対称形状の単純重ね合わせ継手の強度評価（第1報，被着体の厚さが異なる場合），日本機械学会論文集（A編），51: 1461～1466, 1985.
- 22) T. Gillespie, and E. Rideal: The Deformation and Strength of Napkin Ring Metal-Adhesive-Metal Joints, J Col Sci, 11: 732～747, 1956.
- 23) 池上皓三：組合せ応力下における接着強度特性，日本接着協会誌，14: 104～110, 1978.