原著論文

各種接着試験法における接着界面の破面解析および応力解析

倉治 七重 小城 研二 新谷 明喜 横塚 繁雄

Fractographical and Stress Analysis of Bonding Surface in Varieties of Bond Strength Testing

Nanae Kuraji, Kenji Kojo, Akiyoshi Shinya and Shigeo Yokozuka

Abstract : To clarify the differences in fracture mechanism when different modes of load were applied, two types of dental adhesives were used in various tests—for tensile strength, compressive shear strength, flexural strength and cleavage strength—and fractographical analyses of the bonding surface after breakage were performed by SEM. Furthermore, the distribution of stress in the adhesive layer subjected to tensile, compressive shear and torsion loads was examined by three-dimensional photoelastic analysis. The results were as follows :

1. The kind of fracture occurring in two types of adhesive was cohesive fracture due to a force induced in the adhesive layer.
2. Fractographical analysis of Panavia EX by SEM revealed the occurrence of a brittle fracture characterized by a river-like pattern in all but one of the tests for tensile strength.
3. Super Bond C & B presented a ductile fracture featuring elongated dimples in tests for tensile strength, 4-point flexural strength, and compressive shear strength. In cleavage strength and 3-point flexural strength test, the ductile fracture had tear dimples.
4. The compressive shear strength test revealed that the amount of stress was the smallest in the central area of the bonding surface and tended to increase toward the upper and lower margins.
5. In the torsion test, stress gradually increased from the center outward.

Key words : bond strength testing, bonding surface, fractographical analysis, stress analysis, dental adhesive

I. 緒 言

リン酸エステル系および4-META系の歯科用接着材を用いて、エナメル質と合金を強固に接着させる接着ブリッジが臨床応用されるようになってきた。このような接着ブリッジは歯質の削除量が少ないため、その維持を主に接着

力に依存している。そのため、接着ブリッジの接着強さを把握することは重要である。そして、接着強さを評価するために歯科用接着材の接着強さの測定が数多く行われている¹⁻¹¹⁾が、研究者により試験片の寸法・形態や試験法が異なっている。

接着強さは、接着系を外力で破壊するのに必要な力であり、接着力が大きくても接着材自体や被着体が脆弱な場合は高い接着強さは得られない。接着の破壊は、接着系の最も弱いところで起こるので、外力の加え方によって弱点が変わり、接着強さの値も変わってくる。合金に対する接着試験法として引張試験、圧縮せん断試験、曲げ試験、割裂試験などが行われている^{1,3,6,11)}が、試験法により接着界面

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, The Nippon Dental University, School of Dentistry at Tokyo (Chief: Prof. Shigeo Yokozuka)

平成9年10月1日受付

に働く応力分布が異なると考えられ^{6,11,12)}、それが接着強さの違いになっていると思われる。そのため、接着強度試験を行う場合には、その試験方法による接着界面の応力分布について理解していなければ他の試験法との比較検討はできないと考える。

ところが、同一寸法の試験片を用い各種の接着試験を行い、接着強さを比較した報告^{4,9)}はあるが、接着試験における接着界面の破面解析や、応力分布を比較した報告はあまりみられない。そこで、突合わせ接着した合金の接着界面に及ぼす引張応力、せん断応力、曲げ応力、割裂応力の影響による歯科用接着材の破壊のメカニズムを検討し素材特性を把握する必要がある。

このような理由から、本研究では接着試験法の荷重形態の違いによる、破壊のメカニズムを明らかにする目的で、10×10 mm の接着面形態を持つ 18-8 ステンレス鋼（以下 SUS 304 と略す）の引張、圧縮せん断、曲げ、割裂試験片を用いて 2 種の歯科用接着材、パナビア EX（以下 PE と略す）、スーパーボンド C & B（以下 SB と略す）との接着試験を行い、破断後の接着試験法における接着界面の走査型電子顕微鏡による破面解析を行った。さらに、接着強度試験として用いられている引張試験、圧縮せん断試験そしてせん断力のみが働くと考えられるねじり試験について、接着材層の応力分布を三次元光弾性実験により解析、検討した。

II. 実験材料と方法

1. 接着界面の走査型電子顕微鏡による破面解析

2 種の歯科用接着材 PE, SB を用い接着試験を行い、破断後の接着試験法における接着界面の走査型電子顕微鏡による破面解析を行った。

1) 実験材料

実験に用いた接着材のメーカーおよび Lot No. を表 1 に示した。図 1 に引張、圧縮せん断、曲げ、割裂の試験片を示す。試験片には SUS 304 を用いた。引張試験片は、10×10×20 mm に精密加工した角柱に直径 4 mm のロッドが入るように 10×10 mm の面の一方から 5 mm の位置を中心に保持孔を付与したものを製作した。圧縮せん断試験片は 10×10×20 mm, 10×10×10 mm の A, B 試験片

を、曲げ試験片は 10×10×30 mm の角柱を製作した。割裂試験片は 10×15×16 mm の角柱に 10×10 mm の接着面を精密加工し、直径 5 mm の保持孔を付与したものを製作した。各試験片の平行度は JIS R 1601 に従い 0.01 mm とした。試験片の被着面は、流水下で耐水研磨紙 # 600 を用い一方に研磨した後、99% アセトンで 15 分間、精製水で 15 分間超音波洗浄を行って自然乾燥させた。

2) 接着方法

PE では、付属の練和紙上にポリマー大カップ一杯（約 180 mg）、モノマー 2 滴（約 68 mg）をとり、90 秒間乳状になるように練和し、練和泥を試験片の両接着面に塗布した。SB では、付属のグッペンディッシュにモノマー 4 滴（約 97 mg）をとり、そのなかにキャタリスト 1 滴を滴下し攪拌した。このなかにポリマー小カップ 1 杯（約 70 mg）を加えて混和し、これを両接着面に塗布した。接着材を塗布した試験片は、セイキ社製定荷重試験機および位置規制ジグを用いて直ちに 15 kgf の一定荷重下で突合わせ接着した。接着後、PE では余剰部分を筆で除去し、専用オキシガードを接着界面周囲に塗布し硬化させた。また SB では 1~2 分経過後、技工用ナイフで余剰部分の接着材を除去した。接着時間は 15 分とし、雰囲気は JIS Z 8703 に基づく標準温湿度状態 3 級（20±5°C, 65±20% RH）とした。接着を完了した試験片は、直ちに 37°C 恒温槽内に水中浸漬し、24 時間保存した。

3) 試験方法

(1) 引張接着強さ試験法

引張接着強さ試験は、JIS K 6849 引張接着強さ試験法に準じた試験装置を製作した。装置全体は炭素鋼製である。この装置はユニバーサルジョイントが取り付けられており、試験片に荷重を加えると荷重方向が試験片の軸方向に一致するようになっている。直径 5 mm のロッドにて上下のジグに試験片を固定し、島津社製静的引張試験プログラムを用いローディングスピード 0.5 mm/min で引張試験を行った。

図 1 Test pieces for tensile, compressive shear, flexural and cleavage test
引張、圧縮せん断、曲げ、割裂の試験片

表 1 Adhesives for experiment
実験 I に使用した接着材

製品名	略号	メーカー	ロット No.
パナビア EX	PE	クラレ	ポリマー PN-754
			モノマー 2041
スーパーボンド C & B	SB	サンメディカル	ポリマー 71001
			モノマー 71001
			キャタリスト 720

表 2 Material for photoelastic experiment and elastic modulus (kgf/mm²)
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	弾性係数比	材 料	弾性係数	弾性係数比
SUS 304	20400	30	エポキシ+Al ₂ O ₃ 65%	12	20
PE	670	1	エポキシ	0.6	1

(2) 圧縮せん断接着強さ試験法

圧縮せん断試験は、長谷部¹⁾が用いた圧縮せん断試験装置を改良して行った。装置全体は炭素鋼製であり、荷重方向を試験片の軸方向に一致させ、接着界面の近くにせん断荷重が加わるように設計されている。この装置を材料試験機に固定し、島津社製静的圧縮試験プログラムを用いてローディングスピード 0.5 mm/min で圧縮せん断試験を行った。

(3) 曲げ接着強さ試験法

曲げ接着強さは、JIS R 1601 ファインセラミックス曲げ試験に準じた曲げ試験装置を用いて行った。装置全体は炭素鋼製であり、下部支点間距離は 30 mm で 3 点曲げではその中央に荷重を加え、4 点曲げでは中央から左右 5 mm 離れた 2 点に荷重を加えるようにした。装置全体の下部支点部には溝が付与してあり、そこに直径 4 mm の金属棒を支点としてはめ込み、試験片に均等に荷重が加わるように考慮した。また、荷重が接着界面と平行に加わるように試験片を正確に設置するガイドとして突起を 2 カ所付与した。そして下部支点と上部荷重部の金属棒が平行になるように設置した。曲げ接着強さは、この装置を材料試験機に固定し、島津社製静的圧縮試験プログラムを用いてローディングスピード 0.5 mm/min で曲げ試験を行った。

(4) 割裂接着強さ試験法

割裂接着試験は、引張接着強さ測定装置を用いて行った。この装置の上部にはユニバーサルジョイントが取り付けられており、試験片の接着接線端に垂直な荷重が加わるように直径 5 mm の保持孔の中心が引張方向と一致するようになっている。接着した試験片をピンで装着し、島津社製静的引張試験プログラムを用いてローディングスピード 0.5 mm/min で割裂接着試験を行った。

4) 走査型電子顕微鏡観察

各種接着試験後の試験片接着面をニコン社製メディカルニッコールで撮影し、さらに日立社製 X-560 走査型電子顕微鏡を用いて 20 kV にて電子顕微鏡像を撮影した。これらを印画紙上にプリントし、写真上で破断面の観察を行った。

2. 接着試験における接着界面の応力解析

引張試験、圧縮せん断試験、ねじり試験における接着界面に働く応力分布について検討するために、PE と SUS 304 の弾性係数を模した材料を用いて三次元光弾性

図 2 Illustration of experimental model
実験モデルの模式図

図 3 One of the completed experimental model
完成した実験モデルの 1 例

実験を行った。

1) 実験材料

実験に用いた材料の弾性係数および弾性係数比と、それに準じて組み合わせた光弾性材料の弾性係数を表 2 に示した。光弾性材料には、接着材層として、CIBA-GEIGY 社製熱硬化性エポキシ樹脂アラルダイト B に、硬化剤 HT-901 を重量比が 100 : 30 の割合で混合したものを、SUS 304 相当部にはこのエポキシ樹脂に関東研磨社製微細アルミナ粉末を 65% 加えたものを用いて、歯科用接着材と SUS 304 の弾性係数比に近似させた。歯科用接着材の弾性係数比は、SB と SUS 304 では弾性係数比が近似する光弾性材料がないため、弾性係数比を近似させやすい PE の値を用いた。

2) 実験モデルの製作

光弾性実験モデルの被着面の寸法は角棒モデルで 95 × 95 mm、丸棒モデルで直径 95 mm とした。接着材層相当部は、解析が可能な厚さを確保するために、9.5 mm の厚さとした。図 2 に実験モデルの模式図を、図 3 に完成した実験モデルの 1 例を示した。実験モデルの長さ (a, b) は引張試験では 220 mm、圧縮せん断試験では角棒、丸棒とも 140 mm、ねじり試験では角棒が 260 mm、丸棒が 370 mm とした。なお、引張試験では角棒モデルと丸棒モデルで差が出ないため、丸棒モデルのみ製作した。

図 4 Load method for tensile test
引張試験の荷重方法

図 5 Load method for compressive shear test
圧縮せん断試験の荷重方法

3) 荷重点および荷重方法

引張試験では、モデルの両端にアルミニウム板を接着して、アルミニウム板の中央に金属の棒を取り付け、その一端に 38.6 kgf の荷重を加えた。圧縮せん断試験は片方のモデルを荷重台に固定し、30 kgf の荷重を加えた。ねじり試験はモデルの両端の中心にシャフトを入れ、一端のシャフトを荷重台に固定し、他方にはアルミニウムの円盤を取り付け円盤に荷重を加えた。荷重方法の模式図を図 4～6 に示した。これらの荷重量は、実験モデル内に解析可能な光弾性縞が出現するように考慮して決定した。

実験モデルを以上のような荷重状態で、理光研社製応力凍結装置 SF-1 に入れ応力の凍結を行った。応力の凍結は、モデルに荷重を加えながら凍結装置を室温から 3 時間で 130°C まで昇温し、4 時間係留後 1 時間 2°C の割合で 100°C まで降温し、それ以後は 1 時間 4°C の割合で室温まで降温して行った (図 7)。

図 6 Load method for torsion test
ねじり試験の荷重方法

図 7 Stress freezing cycle
応力凍結サイクル

4) 測定方法および解析方法

応力凍結の終了した実験モデルは、荷重除去後直ちに接着材層をダイヤモンドスライサーによって切り出した。さらに図 8～10 のように主応力を含む断面を考慮して、厚さ 6 mm の 4～5 枚のスライス片にカットした。各スライス片は時間縁効果の影響を避けるため、直ちに等色線の測定および写真撮影を行った。等色線の測定は理光研社製散光式光弾性装置 DL-420 (図 11) を用いた。光弾性装置の 2 つの偏光板の間にスライス片を置き、等色線の測定および写真撮影を行った。写真撮影は、酒井特殊カメラ製作所製のトヨ・ビュー D 45 M に理光研社製モノクロームフィルターを装着し、5,461 Å の短波長として暗視野および明視野で行った。フィルムはコダック社製 Try-X を用いた。写真撮影後、それぞれの縞次数を測定した。

等色線の縞次数 N と最大主応力 σ_1 、最小主応力 σ_2 の間には、

$$N = kt (\sigma_1 - \sigma_2) \quad \dots\dots\dots \textcircled{1}$$

N : 縞次数, k : 光弾性感度 (mm/kgf), t : スライス片の厚さ (mm)

の関係があり、本実験では、光弾性感度は、44 mm/kgf、スライス片の厚さは 6 mm である。光弾性実験では、求めた応力値からその部にかかる可能性のある最大せん断応力値を計算することができる。最大せん断応力 $\tau_{\max}$ と主応力 σ_1 , σ_2 の間には、

図 8 Slice position of tensile test
引張試験のスライス片のカット位置

図 10 Slice position of torsion test
ねじり試験のスライス片のカット位置

図 9 Slice position of compressive shear test
圧縮せん断試験のスライス片のカット位置

$$2 \tau_{\max} = \sigma_1 - \sigma_2 \quad \dots\dots\dots ②$$

という関係があり、 σ_1 または σ_2 が 0 であれば、

$$\tau_{\max} = \sigma_n / 2$$

となり、 σ_1 または σ_2 がどちらも 0 にならない場合は、①式、②式から、

$$N = 2 k t \tau_{\max} \quad \dots\dots\dots ③$$

となり、③式により最大せん断応力が求められる。このとき、 $\tau_{\max}$ は主応力が引張応力か圧縮応力かには関係なく、応力値の絶対値の 1/2 の値となる。

引張試験では、接着材層の半径方向の応力 σ_2 は 0 となるため、

$$N = k t \sigma_1$$

となり、応力値が求められる。

圧縮せん断試験では、③式を使って接着材層の中央断

面の最大せん断応力を求めた。

ねじり試験では、主応力と最大せん断応力は、

$$\sigma_1 = -\sigma_2 = \tau_{\max} \quad \dots\dots\dots ④$$

の関係があり、①式から応力値が求められる。

III. 結 果

1. 接着界面の走査型電子顕微鏡による破面解析

1) 破壊形態

図 12 に引張、圧縮せん断、図 13 に 3 点曲げ、4 点曲げ、割裂の破断後の破壊形態を示す。なお各図において引張試験片を除く試験片の上縁が荷重側を示している。

引張試験の破壊形態は、PE では接着面の周囲に一部界面破壊を認めるものの、大部分が凝集破壊であった。SB では接着材層内で生じる凝集破壊を示した。接着材の付着状態は、PE は均等な平滑状、SB は引き伸ばされた凹凸状であった。

圧縮せん断試験の破壊形態は、PE では上縁と下縁の一

図 11 Photoelastic apparatus DL-420
光弾性装置 DL-420

図 12 Variety of fracture in test for tensile and compressive shear
引張, 圧縮せん断の破断後の破壊形態

部が界面破壊, ほかは凝集破壊であった。上縁の界面破壊は広い範囲に及び, 荷重側を底辺とする三角形を示した。SB でも, 接着面の周囲と中央付近の一部が界面破壊を示したが, 全体は凝集破壊であった。

3点曲げ試験の破壊形態は, 全体は凝集破壊を示し, PE では上縁と下縁の一部が界面破壊を示す混合破壊であった。SB でも接着面の周囲が界面破壊を示すが, 全体的には凝集破壊であった。

4点曲げ試験の破壊形態は, PE, SB ともに凝集破壊を示した。

割裂試験の破壊形態は, PE では凝集破壊を示し, SB では上縁の一部が界面破壊を示し, 全体的には凝集破壊であった。接着材の付着状態は PE で平滑, SB では凹凸状であった。

2) 破面形態

図 14 に SEM における引張, 圧縮せん断, 図 15 に 3点曲げ, 4点曲げ, 図 16 に割裂の破面形態を示す。各図において, SEM 像の上縁がそのまま試験片の上縁で引張試験片を除き荷重側を示し, 右下のミクロンマーカー500 μm であることを示す。引張試験の SEM 像において, PE では不定形な亀裂が細かく走行し, 結晶粒にほぼ対応するファセット (facet) が観察された。SB では, 比較的大型な等軸ディンプルが認められる微小空洞の合体破面であった。

圧縮せん断試験の SEM 像において, PE では, 荷重方向と垂直に走行する川状模様すなわちリバーパターン

図 13 Variety of fracture in test for 3-point flexural, 4-point flexural and cleavage
3点曲げ, 4点曲げ, 割裂の破断後の破壊形態

(river pattern) が認められる, へき開破面であった。SB では, 荷重側から荷重反対側に向かってディンプルの縦径の増加が認められる, いわゆる伸長ディンプルが観察された。

3点曲げ試験の SEM 像において, PE では, 荷重側より荷重反対側に向かって亀裂が伝播しているへき開破面であった。SB では, 荷重点直下を中心として放射状にディンプルが配列している。その縦径は荷重反対側, 外側に向かうほど増加しており, 伸長ディンプルに分類される。

4点曲げ試験の SEM 像において, PE では, 荷重点付近に平滑な破面が観察され, その下方では荷重方向と垂直に走行するリバーパターンが認められる。SB では, 荷重方向に延ばされた伸長ディンプルが観察されたが, 縦径の増減傾向についての規則性は認められなかった。

割裂試験の SEM 像において, PE では, リバーパター

図 14 Variety of fracture in test for tensile and compressive shear by SEM

SEM による引張，圧縮せん断の破面形態

図 15 Fracture surface in test for 3-point and 4-point flexural by SEM

SEM による 3 点曲げ，4 点曲げの破面形態

ンが荷重方向に対してやや斜めに走行しているのが観察された。SB では、伸長ディンプルが観察され、その縦径は荷重側から荷重反対側に向かうに従って増加する傾向を認めた。

2. 接着試験における接着界面の応力解析

図 17 に引張試験，圧縮せん断試験，ねじり試験の暗視野等色線縞写真を示した。

引張試験における応力分布を図 18 に示した。引張試験では接着材層の半径方向の応力は 0 となり、長軸方向の引張応力だけになり縞次数を測定すると応力値が求められる。引張試験では $0.5 \sim 0.7 \text{ kgf/cm}^2$ となり、接着材層全体にほぼ均等な引張応力が働いていた。

圧縮せん断試験における角棒，丸棒試験片の最大せん断応力分布を図 19 に示した。圧縮せん断試験では縞次数を測定しても主応力差 ($\sigma_1 - \sigma_2$) しか求められず、個々の主応力はわからないため、被着面の中央断面の最大せん断応力を求めた。角棒モデルでは接着材層の中央よりやや下方が 0.2 kgf/cm^2 と最も小さく、そこよりも上方および下

図 16 Fracture surface in test for cleavage by SEM

SEM による割裂の破面形態

図 17 Dark field isochromatics fringe photograph of tensile, compressive shear and torsion test
引張, 圧縮せん断, ねじり試験の暗視野等色線縞写真

図 18 Stress distribution of tensile test
引張試験の応力分布

角棒モデル

丸棒モデル

図 19 Stress distribution of compressive shear test
圧縮せん断試験の応力分布

方にいくに従い応力値が大きくなり, 荷重点の上縁の応力値が最も大きく 1.0 kgf/cm^2 を示した。丸棒モデルも, 接着材層の中心部から外側にかけて $0.2 \sim 0.5 \text{ kgf/cm}^2$ と最も小さく, そこよりも上縁, 下縁にいくに従い応力値が

大きくなり, 荷重点である上縁で 3.0 kgf/cm^2 以上と応力が集中している。ねじり試験における応力分布を図 20 に示した。ねじり試験では $\sigma_1 = -\sigma_2 = \tau_{\max}$ である。ねじり試験では, トルクが働くため角棒モデルでは中心は応力値が 0 でモデルの外側にいくに従い大きくなり, モデルの

図 20 Stress distribution of torsion test
ねじり試験の応力分布

外縁で 0.49 kgf/cm^2 で、丸棒モデルでは中心は応力値が 0 で外側にいくに従い応力が大きくなり、モデルの外縁で 0.52 kgf/cm^2 であった。

IV. 考 察

1. 接着試験法における破壊形態

接着試験法による破壊形態を肉眼により観察した結果、接着材と接着試験法の組合せにおいて、そのほとんどが凝集破壊を示した。それ以外のものも、凝集破壊の部分の比率が高い混合破壊であり、いずれの試験法においても接着材と SUS 304 の接着力が十分発揮されているといえよう。これは本研究における、試験片の保存条件、試験時の環境等、実験条件が穏やかなものであったためと考える。しかしながら破壊形態が同一傾向でも、実際の接着強さは各試験法により大きく異なったものとなっている。本研究とほぼ同条件で接着試験を行った朝田ら⁷⁾、小城ら⁶⁾、堀川ら¹¹⁾の報告を検討すると、最大は 3 点曲げ接着強さの SB で $782 \pm 63.0 \text{ kgf/cm}^2$ ⁶⁾、最小は割裂接着強さの SB で $168 \pm 13.2 \text{ kgf/cm}^2$ ¹¹⁾ であった。すなわち、各種接着試験法において、破壊形態が凝集破壊もしくはそれに近い混合破壊というように同一傾向であったとしても、得られる接着強さまでもが近似するわけではない。接着面に加わる応力分布は各試験法により異なっており^{6,11,12)}、このことが接着強さに大きく反映しているのであろう。したがって、単に肉眼による破壊形態を分析しただけで、接着強さの大小に及ぼす破壊のメカニズムを論ずることはできない。破壊形態は、接着材と被着体の接着力を示す一指標ではあるが、より詳細な情報を得るためには、破面の微視的視野による検討が必要である。

2. 走査型電子顕微鏡による破面解析

前項で述べたように、肉眼による破壊形態の分析では混合破壊や凝集破壊を示していた。そこで本研究では、各接着試験法の破断面の SEM による解析を試み、歯科用接着

材の破壊のメカニズムおよびその素材特性について検討を加えた。

1) 接着試験法における PE の破面解析

PE は、リン酸エステル系のコンポジットレジンセメントであり、凝集力は大きい弾性限界が低い脆性材料的な性格の強い接着材である。本研究で行ったいずれの試験法においても、PE の破面にはファセット、リバーパターンといった脆性破壊の特徴的所見がみられ、いわゆるへき開破壊を示していた。しかし、それらの様相は各試験法によって異なっており、応力分布の違いが反映している。例えば引張試験では、数多くのリバーパターンが不規則的に走行しており、破壊の起始点の存在が不明確である。つまり、均等に応力が加わった結果、点でなく面を単位として接着系の破壊が生じたと想像できる。これに対し、割裂試験ではリバーパターンが荷重側から荷重反対側に向かって規則性を持って走行しており、荷重側から亀裂が伝播したといえよう。3 点曲げ試験および 4 点曲げ試験は割裂試験に比較的近い破面形態と考えられる。また、圧縮せん断試験ではリバーパターンが荷重方向と直角に走行しており、割裂試験とは正反対となっており興味深い。せん断力特有の現象、あるいは引張、圧縮という荷重の負荷方法による影響と推測するが、今後引張せん断試験を行い、さらに検討する必要がある。

2) 接着試験法における SB の破面解析

SB は 4-META 含有の PMMA-MMA レジンであり、硬化体は比較的柔らかいが粘弾性に富み靱性が高い弾性材料的な特性を持つ。したがって、その破面形態も PE とは大きく異なり、いずれの試験法においても、ディンプルと呼ばれる多数のくぼみを持つ微小空洞の合体破面像が認められた。ディンプルは、その形成機構から図 21 に示すような 3 つのパターンに分類される¹³⁾。単軸引張荷重のもとで均一な変形を受ける場合には (a) のような等軸ディンプルが形成され、(b) のようなせん断変形を受けるときにはせん断方向に伸ばされた伸長ディンプルが作られる。また (c) のように引き裂かれるときも伸長ディンプルが形成されるが、(b) と (c) ではディンプルの成長方向が異なる。すなわち、(b) では一対の破面上で逆方向に伸ばされたせん断ディンプルが、(c) では同方向を向いた引き裂きディンプルが形成される。本研究においても、上記の理論を裏づけるように各試験法による破面形態の違いが明確に現れていた。さらにこれらの結果より、破面形態、応力分布傾向、接着強さの 3 者の関係について考察することができ

る。引張試験は、引張応力による比較的大きな (a) の等軸ディンプルを持つ破面であった。負荷する応力が引張のとき、ディンプルが大きく引き伸ばされているということは、接着材自体が弾性材料としての特性を発揮し、応力に対しては十分抵抗し引き伸ばされた結果と考える。それが

図 21 Illustration of dimples

a : Equiaxed dimple by tensile stress

b : Elongated dimple by shear stress

c : Elongated dimple by tear stress

応力別ディンプルの模式図

a : 引張応力による等軸ディンプル

b : せん断応力による伸長ディンプル

c : 引き裂き応力による伸長ディンプル

接着界面全体に現れていれば当然接着強さも大きなものになるはずである。SB の引張接着強さは同じ引張応力を負荷する割裂接着強さの約 2 倍を示している¹¹⁾。

圧縮せん断試験はせん断応力による (b) の伸長ディンプルといえよう。ディンプルの上方は圧平した楕円形であるが、下方に向かうほど圧平傾向は弱まり、最終的には一挙に引き伸ばされたような破面を示している。負荷される応力が圧縮のため、ディンプルの様相も引張試験とは異なってくる。最大の荷重が負荷されている上方ほどディンプルの圧平傾向が強く、大きさも小さい。つまり、引張試験とは逆であり、応力に対してどのくらい抵抗したかを判断する基準は、圧平したディンプルの数、あるいはその存在する範囲に求めるべきであろう。割裂試験は引き裂き応力による (c) の伸長ディンプルに分類される。割裂接着強さ試験は引張応力による試験であり、SB の延性材料としての利点が有効に働いていれば、引張試験のように大きなディンプルが存在するはずである。しかしながら、集中荷重が負荷されている上方においてもディンプルはさほど、引き伸ばされておらず、下方よりわずかに大きい程度である。割裂接着強さ試験のように、試験片の接着接線端に集中荷重が加わる試験法では、SB 自体の弾性が発揮される以前に一挙に破壊が生じ、ディンプルの伸長傾向も小さくなるのであろう。接着強さが引張接着強さを大きく下回ったことと合わせて考え、SB の引張試験、割裂試験では、ディ

ンプルの大きさから接着強さの傾向を知ることが可能と考える。

3 点曲げ試験では SEM 像上方中央部を起始点として破壊が生じている様相がうかがえる。ディンプル縦径は上方ほど短く内側ほど長くなっており、起始点を中心に扇状にディンプルが配列されている。3 点曲げ試験は線状に圧縮応力を負荷する試験法であるが、実際の破壊は 1 点から発生することが示唆された。

4 点曲げ試験ではディンプルが比較的規則性を持って配列されており、3 点曲げ試験のように 1 点より破壊が生じているとは考えにくい。小城ら⁶⁾は、4 点曲げ試験の応力分布は 3 点曲げ試験より均等であったと述べており、破面解析の結果もこれを裏づけた。個々のディンプルは、縦長で引張試験のような等軸ディンプルとはいえず、引張試験と 3 点曲げ試験の中間的な位置にあると考える。

3. 破面解析の臨床的意義

前項で述べたように、PE および SB の接着材の破面は試験法における応力分布によりその様相が異なってくる。各種試験法と破面の関係を把握することにより、脱離した接着ブリッジの破面解析が意味あるものとなる。脱落した接着ブリッジの破面解析により、どのような荷重が加わりどのような応力が作用して接着系が破壊されたのかを推測することができる。場合によっては破壊の起始点を特定することもでき、これらのことが明らかとなれば、メタルフレームの設計が効果的に行える。また、解析を積み重ねることにより、実際に臨床応用されている接着ブリッジがどのような応力に対して弱いのかといったようなことも明らかとなってくるであろう。

4. 引張試験、圧縮せん断試験における接着界面の応力分布について

歯科用接着材の接着試験として多くの研究が行われている。そして、各接着材の接着強さのデータはその負荷形態および接着試験法によって異なっている。これは、試験法によって接着界面に生じる応力が異なるためと思われる。

実際、口腔内に装着された接着補綴装置には種々の応力が働いており、負荷形態の異なる接着試験法について応力分布を比較検討することは試験結果を評価する上で重要であると考えられる。接着ブリッジ等の接着補綴装置の接着に用いる代表的な試験法は引張試験と圧縮せん断試験であり、この 2 つの試験法について三次元光弾性実験により接着界面の応力分布を解析した。

引張試験法は、接着界面に垂直な応力が加わる試験法で、接着材自体の接着強さの測定に適するといわれている。このため、接着材の接着試験法として引張試験が多く用いられている。試験片を丸棒のみとしたのは、引張試験では接着界面に垂直な荷重が加わることで、荷重を接着界

面に直接加えないため、試験片の形態による影響がないと判断したためである。引張試験の応力分布は0.5~0.7 kgf/cm²となり、界面全体にほぼ均等な引張応力が認められた。本実験では、モデルの両端にアルミニウム板を接着してその中心に荷重を加えたため界面に垂直な応力が働いたと考える。実際の接着試験においても、引張試験は偏心荷重とならないようにしなければ均等な応力分布とならず、ばらつきが多くなると思われる。

圧縮せん断試験の応力分布は角棒試験片、丸棒試験片とも荷重点であるモデルの上縁の応力値が最も高く中央部にいくに従い小さくなり、中央部からモデルの下縁にいくに従い大きくなる傾向を示した。小長井ら¹⁴⁾は、圧縮せん断試験の接着界面の応力分布を二次元光弾性実験により解析し、界面全体にせん断応力が認められ、荷重部と荷重底部が中央部より増加する傾向であったと報告している。本実験でも荷重部と荷重底部で応力値が高く同様の結果であった。試験片の形態による差は、角棒試験片では荷重が実験モデルの上縁全体に加わっているため荷重点、荷重底部と中心部との応力値の差は小さかった。また、各スライス片での差もあまりなく、部位による応力値の差の少ないせん断応力分布を示した。一方丸棒試験片では荷重点、荷重底部の応力値が大きく、その部位への応力集中が認められた。荷重点を含むスライスの上縁、下縁の応力値が大きく荷重点から左右に離れるに従って応力値が小さくなる傾向を示した。このように、圧縮せん断試験では角棒試験片より丸棒試験片のほうが応力が集中しやすいといえる。このため、丸棒試験片の場合は応力集中を小さくするためには荷重装置の荷重部分は試験片の円周と正確に適合するような半円の切り欠きを付与し、荷重が広い部分で試験片に加わるようにする必要があると思われる。

5. ねじり試験、4点曲げ試験、割裂試験との比較

ねじり試験は、歯科用接着材の接着試験では行われていないが、接着界面に直接荷重を加えることなく接着界面に平行な応力が加えられる方法である。ねじり試験の接着界面の応力分布を同じせん断力を加える圧縮せん断試験と比較するために三次元光弾性実験を行った。ねじり試験では角棒、丸棒試験片ともモデルの中心の応力値が0で、そこから外側にいくに従い同心円状に応力値が大きくなり、モデルの外縁が最も大きく角棒試験片で0.49 kgf/cm²、丸棒試験片で0.52 kgf/cm²を示した。このように、角棒、丸棒試験片とも均等な応力勾配が認められ、モデルの外縁での応力集中の程度は丸棒の圧縮せん断よりも小さく、応力値も等しいためねじり試験は均等なせん断力が加わる試験であると考えられる。中村ら⁹⁾は、同一の試験片を用いて引張、圧縮せん断、ねじり、曲げ割裂試験を行える試験装置を考案している。ねじり試験については、まだ実験は行われていないが、接着試験として有用であると考えられる。

4点曲げ試験は、接着界面の中心軸から上方に圧縮応力、下方に引張応力が加わる試験法である。また、4点曲げでは接着界面には直接荷重を加えないため、接着界面を含む上部荷重点間には均等な最大曲げモーメントが生じる。本実験と同じ条件で応力解析を行った小城ら⁹⁾によると、曲げ試験はモデルの上縁、下縁とも0.5 kgf/cm²、丸棒試験片では上縁、下縁とも0.9 kgf/cm²の最大せん断応力を示し、中心部分では応力値が0となる中立点が認められた。モデルの上縁と下縁では同じ応力値であるが、上縁が圧縮、下縁が引張応力であるため接着系の破壊は引張応力の働く下縁から生じると考えられる。これに対し、引張り試験は、界面全体にほぼ均等な応力が働くため、接着系の破壊の起点は明確にできないと考えられる。4点曲げと引張試験は同じ引張応力により接着系の破壊が生じるが、応力の分布は大きく異なり引張試験では均等な応力分布、4点曲げ試験ではモデル下縁に応力が集中する方法である。

一方、圧縮せん断試験では多少の応力集中がみられるが、試験片全体のずれによる接着系の破壊のためこの試験法も接着系の破壊の起点は明確でないと思われる。

曲げ試験と同様の応力集中を示す試験法として割裂試験があげられる。割裂試験は、接着部の一端に引張荷重を加え接着面に対し直角方向に引きはがすときの接着強さである。割裂試験の応力解析を行った堀川ら¹¹⁾によると、荷重側端面に集中応力が生じると報告しており、そこが起点となり接着系の破壊が起こると考えられる。割裂試験の応力形態は、中立点を境に圧縮応力と引張応力が生じるため4点曲げと似ているが、応力集中の程度は割裂試験のほうが強く、4点曲げよりも集中荷重が働く試験法であるといえる。

V. 結 論

接着試験法の荷重形態の違いによる、破壊のメカニズムを明らかにする目的で、10×10 mmの接着面形態をもつ18-8ステンレス鋼 (SUS 304) の引張り、圧縮せん断、曲げ、割裂試験片を用いて2種の歯科用接着材、パナビア EX (PE) とスーパーボンド C & B (SB) との接着試験を行い、破断後の接着試験法における接着界面の走査型電子顕微鏡による破面解析を行った。さらに接着強度試験として用いられている引張試験、圧縮せん断試験、そしてせん断のみが働くと思われるねじり試験について接着材層の応力分布を三次元光弾性実験により解析、検討した。結果を要約すると次のようになる。

1. 引張応力、せん断応力、曲げ応力、割裂応力による2種の接着材における破壊形態は接着材層内で生じる凝集破壊であった。
2. 走査型電子顕微鏡による破面解析によると、PEで

は引張試験法を除くすべての試験法においてリバーパターンを示す脆性破壊であった。

3. SB では、引張応力と 4 点曲げ応力、圧縮せん断応力で伸長ディンプル、割裂応力と 3 点曲げ応力で引裂きディンプルを持った延性破壊であった。

4. 走査型電子顕微鏡による破面解析により、応力による破折のメカニズムが明らかになった。

5. 光弾性実験の結果、引張試験では界面全体にほぼ均等な応力が分布していた。

6. 圧縮せん断試験では、界面の中央付近が最も応力が小さく、上縁、下縁へいくに従い応力が集中する傾向であった。

7. ねじり試験では、界面の中心は応力が 0 kgf/cm² で外側にいくに従い応力が大きくなった。

稿を終えるに臨み、本研究に種々のご教示・ご協力を頂いた理光研(株)中尾正彦氏に深謝します。また、種々のご助言を頂きました教室員諸兄に感謝の意を表します。

なお、本論文の要旨は、第 10 回日本接着歯学会学術大会 (1992 年 6 月 12, 13 日, 札幌) において発表した。

文 献

- 1) 長谷部伸一, 中村健吾. 接着ブリッジ用 Ni-Cr-Co-Mo 合金の諸性質. 歯材器 5: 773-790, 1986.
- 2) 千葉栄一, 新谷明喜, 横塚繁雄. 引抜き試験法を用いた接着性レジン接着強度に関する研究. 補綴誌 32: 123-136, 1988.
- 3) 西島奉一, 新谷明喜, 横塚繁雄. 接着試験法に関する基礎的研究. 補綴誌 32: 137-150, 1988.
- 4) 岡 邦俊, 中村健吾, 後藤真一. 新しく考案した接着強さ試験法. 接着歯学 6: 69-70, 1988.
- 5) 武田長生, 高橋英登, 新谷明喜. 引抜き試験法を用いた市販鑄造用合金と接着性レジン接着強さ. 接着歯学 7: 17-33, 1989.
- 6) 小城研二, 新谷明喜, 横塚繁雄. 曲げ接着試験法の基礎的研究. 接着歯学 8: 179-200, 1990.
- 7) 朝田文郷, 新谷明喜, 横塚繁雄. 接着強さに及ぼす歯科用接着剤被膜厚さの影響. 接着歯学 8: 201-226, 1990.
- 8) 遠山佳之, 新谷明喜, 横塚繁雄. 歯科用接着剤の接着強さに及ぼす放置時間, 放置温度および被膜厚さの影響. 接着歯学 10: 35-64, 1992.
- 9) 中村健吾, 岡 邦俊. 歯科用接着剤の接着強さ試験法. 歯材器 11: 101-114, 1992.
- 10) 岡 邦俊, 中村健吾. 歯科用接着剤の Ni-Cr 合金に対する接着強さ. 歯材器 11: 115-126, 1992.
- 11) 堀川清一, 小城研二, 新谷明喜ほか. 歯科用接着剤の割裂接着強さ試験法. 歯学 81: 889-906, 1993.
- 12) 千葉栄一, 増川司郎, 亘理 薫ほか. 光弾性実験による引抜き試験法の応力解析. 歯学 75: 1281-1290, 1988.
- 13) 北川英夫, 小寺沢良一. フラクトグラフィ 61-78, 東京: 培風館, 1977.
- 14) 小長井 隆, 新谷明喜, 横塚繁雄. リン酸カルシウム系結晶化ガラスと接着性レジン接着強さ. 歯学 77: 137-150, 1989.