光重合型コンポジットレジン^{*}の衝撃引張り破壊計測^{*}新川 和夫^{*1}, 加藤 大^{*2}, 馬田 俊雄^{*1}Fracture Measurement of a Light Cure Composite Resin
under Impact Tensile LoadingKazuo ARAKAWA^{*3}, Masaru KATO and Toshio MADA^{*3} Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University,
6-1 Kasuga-koen, Kasuga-shi, Fukuoka, 816-8580 Japan

The fracture behavior of a light cure composite resin under impact tensile loading was studied using single-edge-cracked specimens. The impact load and displacement were measured with a Piezo sensor and a high-speed extensometer, respectively. The load and displacement diagram, i.e. the external work applied to the specimen was partitioned into three parts: the elastic energy left in the fractured specimen, the nonelastic energy due to viscoplastic deformation and the fracture energy for creating new surfaces. These energies were then determined and correlated with the fracture load. Energy release rates were also evaluated, and the results were discussed.

Key Words: High Polymer Material, Light Cure Composite Resin, Impact Load, Fracture Energy, Elastic Energy, Nonelastic Energy, Fracture Load, External Work, High-Speed Extensometer

1. 結 言

光重合型コンポジットレジン^{*}は、近年、歯科臨床で広く使用される修復材料となっている。これは、この材料が従来の金属性修復材料に比べて、審美性や操作性、さらに健全歯質保全の面で利点を有しているからである。しかしながら強度など力学特性が十分ではなく、き裂やはく離などの欠陥が修復箇所で発生することがある。このような欠陥を生じると、二次う蝕が進行するため、より力学的信頼性の高いコンポジットレジン^{*}の開発、ならびにそれを評価するための研究が求められている。光重合型コンポジットレジン^{*}は、光照射により重合硬化させるため、作製できる試験片寸法には制限がある。したがって、破壊靱性計測法で推奨されている試験片形状を満足させることは容易ではない。このため、種々の試験片形状や試験法が提唱され、静的負荷条件下での破壊計測がなされている⁽¹⁾⁽⁴⁾。一方、通常^{*}の口腔内では、静的ならびに衝撃的な咬合力が作用するため、破壊挙動に及ぼす負荷効果を解明することは重要なことである。しかしながら、コンポジットレジン^{*}の衝撃破壊実験は技術的に容易ではなく、これまでほとんどなされていないのが現状である。

筆者らは、高分子材料の脆性破壊挙動に及ぼす粘性⁽⁵⁾や動的効果⁽⁶⁾⁽²⁶⁾を解明する目的として、静的および衝撃引張り装置の開発を進めてきた⁽²⁷⁾⁽³¹⁾。この装置の特徴は、光ファイバを用いた変位計により、き裂近傍の静的および動的変位が精度良く計測できること、これにより粘弾性変形を含む残留変位が定量的に評価できることである。この装置を用いて、これまでに種々の高分子材料の脆性破壊を計測し、粘性や動的効果が脆性破壊挙動に大きな影響を及ぼすことを示してきた⁽²⁷⁾⁽³¹⁾。さらに筆者らは、提唱した計測手法のコンポジットレジンへの適応性を検討するため、静的破壊実験を行った⁽³²⁾。この実験では2枚のアクリル(PMMA)帯板間にコンポジットレジン^{*}を充填させた片側ノッチ付き引張り試験片を作製した。試験片に作用する荷重と変位より外力仕事、破断直後の残留変位より非弾性エネルギーを求めた。また破断後の飛しょう高さより、試験片内部に蓄積された弾性エネルギーを決定した。これらの値よりコンポジットレジン^{*}の破壊エネルギーを求めた。さらに破面の面積を用いて、エネルギー解放率を求め、破断荷重との対応関係を検討した。また、PMMA単体の試験片との比較検討を行い、静的破壊計測法の適応性を明らかにした。

本研究では、前回と同様に、2枚のPMMA帯板間にコンポジットレジン^{*}を充填させた片側ノッチ付き引張り試験片を作製した。そして、提唱した衝撃破壊計測法のコンポジットレジンへの適応性を検討した。

^{*} 原稿受付 2009年3月2日。^{*1} 正員、九州大学応用力学研究所(☎816-8580 春日市春日公園6-1)。^{*2} 九州大学大学院総合理工学府。

E-mail: k.arakawa@riam.kyushu-u.ac.jp

Fig. 1 Specimen geometries.

2. 試験片および実験方法

2.1 材料および試験片形状 光重合型コンポジットレジンとして、クラレメディカル(株)社製のクリアフィルAP-Xを使用した。この材料は、歯科臨床で一般的に使用されている修復材料である。上述のように、光重合により硬化させるため、作製できる試験片寸法には制限がある。そのため、本研究では、図1(a)に示すような試験片を作製した。この試験片は、2枚のPMMAの帯板間にコンポジットレジンを充填したものであり、引張り試験が容易となる⁽³²⁾。ここでPMMAは、コンポジットレジンと比較的に材料定数が近いこと、また両者の接着性が良好であることから採用した。

試験片の作製法を以下に示す。① 板厚3mm、幅20mm、長さ90mmのPMMA (Sumipex E) 帯板を2枚用意する。② 帯板の端面にボンディング剤 (クリアフィルトリエスボンド: クラレメディカル(株)製) を塗布し、光照射器 (㈱モリタ JETLITE 3000) を用いて硬化させた。③ 2枚の帯板を透明な平板 (板厚5mmのPMMA) 上に載せ、直線になるように型枠で挟み込む。④ 帯板の端面間を10mmに設定し、その間にコンポジットレジンを充填した。⑤ コンポジットレジンを一様に重合させ、試験片の反りを避けるため、下面と上面を交互に8回(5秒4回、その後、10秒4回) 照射した。また型枠から分離後、コンポジットレジンの左右端を10秒照射した。⑥ コンポジットレジンとPMMAの面が同一になるように研磨した。⑦ その後、コンポジットレジンを十分に重合させるため、室温・大気中で24時間放置した。

試験片の片側中央部に切欠きを導入し、その先端部をカミソリで鋭くした。ただし試験片の破断荷重および外力仕事を变化させるため、異なる長さ2~7mmの切欠きを導入した。さらに試験片の上下端には直径6mmの穴をあけ、ピン負荷用とした。また比較検討のため、図1(b)

Fig. 2 Impact tensile loading method.

のようなPMMA試験片を作製した。なお以下では、便宜上、図1(a)をコンポジット試験片と呼ぶ。

2.2 実験方法 図2に衝撃引張り試験法の概略を示す。本研究では、重錘の自由落下を利用した衝撃引張り装置を使用した⁽²⁹⁾⁽³¹⁾。この装置は、①重錘を任意の高さ位置で固定する電磁石、②試験片を固定する軸、③圧縮を引張りに変換する金属棒、④衝撃荷重を計測するためのピエゾセンサから構成されている。

本研究では、重錘として質量10kg、金属棒の上端から重錘までの高さを300mmとした。このとき衝撃時の重錘の速度は約2.4m/sとなる。また金属棒の上端に厚さ3mmのゴムシートを貼付けた。これにより衝撃時に発生する高周波振動を軽減することができる。このピエゾセンサは45kHzの周波数特性を有しており、動的計測が可能である⁽²⁹⁾⁽³¹⁾。

図3に変位計測法の概略を示す。ここでは高速度変位計により、き裂近傍の変位 δ を計測した⁽²⁷⁾⁽³²⁾。この変位計では、光ファイバを試験片に貼り付け、その移動量をPSD (Position Sensing Detector) センサで計測する。センサからの出力波形はアンプで増幅した後、デジタルメモリで記録した。このセンサは約100kHzの応答速度を有しており、静的および動的変位計測に使用可能である⁽²⁷⁾⁽³²⁾。なお高速き裂進展による影響を避けるため、光ファイバを切欠きから2mm離れた上部に貼り付けた。ただしこれによる変位の計測誤差は数%以下であり、実験解析では無視することとした。

3. 実験結果

図2の衝撃引張り試験機を用いると、試験片には静的な初期荷重 P_0 ($=0.13\text{kN}$) が作用し、そのあと衝撃

Fig. 3 Displacement measurement by PSD.

Fig. 4 Dynamic load P' versus time t .

荷重 P が作用する。変位 δ も同様に、初期変位 δ_0 と動的変位 δ' に分けられる。図 4 に P' と時間 t の関係を示す。 P' は t とともに増加し、試験片が破断すると P'_c から急激に低下した。この $P'-t$ 波形から明らかなことは、金属棒の上端に貼付けたゴムシートにより、衝撃時に発生する高周波振動が軽減できたことである。

図 5 に高速度変位計で測定した動的変位 δ' と時間 t の関係を示す。 δ' は t とともに増加し、 δ'_c で急激に低下した。そして、 δ' はその後、減衰を伴いながら振動した。もし大きな非弾性変形が存在するならば、振動中心は上側へシフトするはずである。しかし明確なシフトはみられない。すなわちこの結果は、衝撃荷重の場合には、非弾性変形が小さな値となることを示唆している。なお同様な結果が他の脆性的な高分子材料でも得られている^{(30),(31)}。

衝撃引張り条件下での $P'-\delta'$ 関係を図 4 と 5 の結果から求めた。その $P'-\delta'$ 関係を図 6 に示す。ここで示されていることは、 P' が δ' と共にほぼ直線的に増加していることである。なお図中の E'_e , δ'_e については後述する。

Fig. 5 Dynamic displacement δ' versus time t .

Fig. 6 Dynamic load P' versus displacement δ' .

4. 破壊エネルギー解析

4・1 破壊エネルギーの定義 図 7 に静的な初期荷重 P_0 が作用し、そのあと衝撃荷重 P が作用する場合の荷重 P と変位 δ の関係を示す。ただし δ は試験片中央点の変位を示す。一般に、 $P-\delta$ の勾配は静的と動的荷重では異なっている。しかし本研究では、 P_0 が P_c より十分小さい場合には大きな誤差が生じないものと仮定し、両者の勾配を同一とした。このとき、外力が試験片の半分になす仕事、すなわち外力仕事 U_{ex} は次式で与えられる。

$$U_{ex} = \frac{P_c \delta_c}{2} = \frac{\delta'_c (P_0 + P'_c)^2}{2P'_c} \quad (1)$$

ここで、 $P_c = P_0 + P'_c$, $\delta_c = \delta'_c P_c / P'_c$ である。

本研究では、破壊変形のプロセスが、一般的に、き裂の進展、試験片の破断、それに伴う弾性変形、最後に非弾性変形の残留という順序で生じるものとする。

そして、 U_{ex} が図 7 に示されるように以下の 3 つのエネルギー成分に分離できるものと仮定した⁽²⁷⁾⁽²⁹⁾。

Fig. 7 Load P versus displacement δ with initial load P_0 .

$$U_{\alpha} = E_f + E_e + E_n \quad (2)$$

ここで E_f は全破壊エネルギーの半分を表す。すなわち E_f は、破面 ($2A_s$) の形成に必要な表面エネルギー、き裂から放出される音響エネルギー、き裂周辺の温度上昇に寄与する熱エネルギーなど非可逆的な総エネルギーの半分に対応する。一方、 E_e は試験片に蓄積される弾性的なひずみエネルギー、 E_n は粘性や塑性ひずみなど破断後も試験片に残留する非弾性的なエネルギーに相当する。

本研究では、弾性エネルギー E_e 、非弾性エネルギー E_n を評価するため、以下のことを仮定した。① E_e は試験片が破断すると全て運動エネルギーに変換する。② 動的破壊で生じる除荷過程では粘弾性効果が無視できる⁽²⁾。すなわち、 P_c から破断直後の全変位 δ_c や残留変位 δ_n への変化が弾性的とする (図 7 参照)。③ その結果、次式が成立する。

$$\frac{E_e}{U_{\alpha}} = \frac{(\delta_c - \delta_n)}{\delta_c} \quad (3)$$

$$\frac{E_n}{U_{\alpha}} = \frac{\delta_n}{\delta_c}$$

静的負荷条件下においてコンポジット試験片の E_e/U_{α} 、 E_n/U_{α} 値を計測した⁽³²⁾。その結果、 E_e/U_{α} 、 E_n/U_{α} 値は、破断荷重と共に変化するものの、それぞれの平均値として約 20% と約 48% が得られている。

4・2 非弾性エネルギー E_n 非弾性エネルギー E_n を決定するためには破断直後の試験片の残留変位 δ_n を計測することが必要である。この計測には前述の PSD センサを応用し、破断直後のき裂近傍の変位 δ を求めた (図 3 参照)。衝撃負荷での δ_n 値は以下のように決定した。図 5 の $\delta-t$ 波形で明らかなことは、破断直後の振動中心 (δ_n で表示) が静的な初期変位 $\delta_0 (=0.05\text{mm})$ とほぼ同

Fig. 8 Energy ratio E_e/U_{α} as a function of fracture load P_c .

様となっている。この結果は、破断後の振動中心が初期荷重がない $P=0$ での値に近いこと、すなわち非弾性変形が十分小さな値であることを意味している。同様な結果は他の試験片でも得られた。そのため衝撃負荷条件下では $E_n=0$ を仮定した。

4・3 弾性エネルギー E_e 衝撃負荷装置では、破断時の試験片の運動エネルギーを直接計測することは容易ではない。このため本研究では、弾性エネルギー E_e を以下の方法で評価した (図 5 参照)。① 試験片の破断後の変位波形 δ から 1 周期目と 2 周期目の振幅を求める。② 1, 2 周期目の振幅から減衰を考慮した直線 (破線で表示) を決定する。ただしこの減衰は、負荷軸への応力波の伝ばによるものとする。③ 振幅を結ぶ直線と変位曲線 δ' との交点 δ'_e を求める。④ そして、 δ_e は次式で求めた (図 7 参照)。

$$\delta_e = \frac{\delta'_e (P_0 + P_c)}{P_c} \quad (4)$$

さらに E_e 値は、得られた δ_e を式 (3) に代入して求めた。

図 8 に式 (4) より求めた E_e 値を示す。ここでは E_e と外力仕事の比 E_e/U_{α} を破断荷重 P_c の関数として表示した。なおこの結果は、異なる初期切欠き長さを有するコンポジット試験片 6 本、PMMA 試験片 5 本から得られたものである。ただし、コンポジット試験片では、負荷後に界面はく離やき裂が存在したものはデータから除外した。コンポジット試験片の E_e/U_{α} 値にはバラツキが存在したものの、 P_c が小さいところでは約 81%、比較的高いところでは約 64% が得られており、 P_c と共に減少することが示されている。一方、PMMA の E_e/U_{α} 値は約 73% の一定値を示した。これらの両材料での動的な E_e/U_{α} 値は、静的負荷の場合と比べて、かなり大きな値となっている⁽³²⁾。

Fig. 9 Energy ratio E_f/U_{ex} as a function of fracture load P_c . Fig. 10 Energy release rate G_f as a function of fracture load P_c .

4・4 破壊エネルギー E_f 得られた外力仕事 U_{ex} , 弾性エネルギー E_e , 非弾性エネルギー $E_n=0$ を式(2)に代入することにより E_f 値を求めた. その結果を図9に示す. ここでは E_f と外力仕事の比 E_f/U_{ex} を破断荷重 P_c の関数として表示した. コンポジット試験片の E_f/U_{ex} 値は P_c が小さいところでは約19%, 比較的高いところでは約35%を示した. 一方, PMMAの E_f/U_{ex} 値は, 約27%の一定値を示した. これらの両材料での動的な E_f/U_{ex} 値は, 静的負荷の場合と比べて, 若干小さな値となっている⁽³²⁾.

4・5 エネルギー解放率 G_f エネルギー解放率は, 一般的に外力仕事 U_{ex} を破面の面積 A_s で割ることにより求められている. しかしながら静的負荷条件下で行ったコンポジット試験片の場合には, 破面形成に直接的に寄与しない弾性エネルギー E_e と非弾性エネルギー E_n が比較的に大きくなることが示されている⁽³²⁾. したがって, U_{ex}/A_s でエネルギー解放率を求めると過大に評価されることとなる. 本研究では, 静的負荷の場合と同様に, 破面形成に寄与する破壊エネルギー E_f を式(2)で求めることにより, エネルギー解放率 G_f を次式で評価した⁽³²⁾.

$$G_f = E_f / A_s \quad (5)$$

図10に式(5)から導かれた G_f 値を示す. 両材料において, G_f は一定値でなく, P_c とともに増加した. この G_f と P_c の関係は, 脆性高分子材料における動的応力拡大係数とき裂速度の関係⁽²⁰⁾と定性的に一致する. すなわち図10の結果は, 各試験片におけるき裂速度が同一ではなく, P_c の増加に伴い, き裂速度が大きくなっていることを示唆している. なお両材料では G_f の異なる増加傾向が得られている. これは, 本研究で提案する試験片形状と計測法を用いることにより, 衝撃下におけるコンポジットレジンのエネルギー解放率が定量的に評価できることを示唆している. 図10におけるコンポジットレジンの G_f 値は, 静的負荷の場合と比べて, 小さくなっており,

他の脆性高分子材料と定性的に同様な結果が得られている^{(30),(31)}.

5. 結 言

2枚のPMMA帯板間にコンポジットレジンを充填させた片側ノッチ付き引張り試験片を作製した. そして, 開発した衝撃引張り計測法の適応性を検討した. 試験片に作用する荷重と変位より外力仕事 U_{ex} , 破断直後の変位より弾性エネルギー E_e および非弾性エネルギー E_n を求め, 破壊エネルギー E_f を評価した. さらに破面の面積 A_s を用いて, エネルギー解放率を $G_f = E_f / A_s$ で求め, 破断荷重 P_c との対応関係を調べた. またPMMA試験片と比較検討した. そして以下の結果を得た.

- (1) 衝撃負荷では, コンポジットおよびPMMA試験片の E_n 値はほぼ零となった.
- (2) コンポジット試験片の E_e/U_{ex} 値は, P_c が小さいところでは約81%, 比較的高いところで約64%を示した. 一方, PMMAでは約73%の一定値を示した.
- (3) コンポジット試験片の E_f/U_{ex} 値は, P_c が小さいところでは約19%, 比較的高いところで約35%を示した. 一方, PMMAでは約27%の一定値を示した.
- (4) コンポジットおよびPMMA試験片の G_f 値は P_c とともに増加した. しかし両材料では, 異なる増加傾向がみられた.
- (5) 提唱した試験片形状および衝撃引張り装置を応用して, コンポジットレジンの G_f 値を評価することが可能である.

本研究を行うに当たり, クラレメディカル(株)よりコンポジットレジン等の実験材料を提供して頂いた. また, 同社歯科材料開発部の山口里志氏, 高畑裕祐氏よりコンポジットレジンの使用方法についての助言を頂いた. なお研究費の一部として, 文部科学省教育研究特別経費研究推進(大学間連携)生体バイオマテリア

ル高機能インターフェイス科学推進事業から補助を頂いた。記して謝意を表す。

文 献

- 1) Kovarik, R.E., Ergle, J.W. and Fairhurst, C.W.: *Dental Materials*, Vol. 7 (1991) pp. 166-169.
- 2) Higo, Y., Damri, D., Nunomura, S., Kumada, K., Sawa, N., Hanaoka, K., Teranaka, T. and Iwamoto, T.: *Bio-Medical Materials and Engineering*, Vol. 1 (1991) pp. 223-231.
- 3) Indrani, D.J., Cook, W.D., Televantos, F., Tyas, M.J. and Harcourt, K.: *Dental Materials*, Vol. 11 (1995) pp.201-207.
- 4) Knobloch, L.A., Kerby, R.E., Seghi, R., Berlin, J.S., Clelland, N.: *The Journal of Prosthetic Dentistry*, Vol. 88, No. 3 (2002) pp. 307-313.
- 5) Williams, J.G.: *Fracture Mechanics of Polymers*, Ellis Horwood Limited, (1984).
- 6) Kobayashi, A.S.: *Handbook on Experimental Mechanics*, Prentice-Hall, Inc., New Jersey (1987).
- 7) Ravi-Chandar, K.: *Physical Aspects of Fracture*, Bouchaud, E. et al. editors, Kluwer Academic Publisher, Netherlands, (2001) pp. 323-342.
- 8) Kobayashi, T. and Dally, J.W.: *Fast Fracture and Crack Arrest*, Hahn, G.T. and Kanninen, M.F., editors, ASTM STP, Vol. 627 (1977) pp. 257-273.
- 9) Dally, J.W. and Shukla, A.: *Eng. Fract. Mech.*, Vol. 13 (1980) pp. 807-817.
- 10) Shukla, A. and Nigam, H.: *Eng. Fract. Mech.*, Vol. 25 (1986) pp. 91-102.
- 11) Kobayashi, A.S., Ramulu, M., Dadkhah, M.S., Yang, K.-H., and Kang, B.S.J.: *Int. J. Fract.*, Vol. 30 (1986) pp. 275-285.
- 12) Dally, J.W., Agarwal, R.K. and Sanford, R.J.: *Exp. Mech.*, Vol. 30 (1990) pp. 177-183.
- 13) Theocaris, P.S. and Papadopoulos, G.A.: *Eng. Fract. Mech.*, Vol. 13 (1980) pp. 683-698.
- 14) Kalthoff, J.F.: *Workshop on Dynamic Fracture*, Knauss, W.G. editor, California Institute of Technology, Pasadena (1983) pp. 11-35.
- 15) Knauss, W.G. and Ravi-Chandar, K.: *Int. J. Fract.*, Vol. 27 (1985) pp. 127-143.
- 16) Takahashi, K. and Arakawa, K.: *Exp. Mech.*, Vol. 27 (1987) pp. 195-200.
- 17) Katsamanis, F.G. and Delides, C.G.: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 21 (1988) pp. 79-86.
- 18) Suzuki, S., Homma, H. and Kusaka, R.: *J. Mech. Phys. Solids*, Vol. 36 (1988) pp. 631-653.
- 19) Nishioka, T., Murakami, T., Uchiyama, H., Sakakura, K. and Kittaka, H.: *Eng. Fract. Mech.*, Vol. 39 (1991) pp. 757-767.
- 20) Arakawa, K. and Takahashi, K.: *Int. J. Fract.*, Vol. 48 (1991) pp. 103-114.
- 21) Arakawa, K. and Takahashi, K.: *Int. J. Fract.*, Vol. 48 (1991) pp. 245-259.
- 22) Arakawa, K., Nagoh, D. and Takahashi, K.: *Int. J. Fract.*, Vol. 83 (1997) pp. 305-313.
- 23) Arakawa, K., Nagoh, D. and Takahashi, K.: *Int. J. Fract.*, Vol. 96 (1999) pp. 345-360.
- 24) Arakawa, K., Mada, T. and Takahashi, K.: *Int. J. Fract.*, Vol. 105 (2000) pp. 311-320.
- 25) Arakawa, K. and Mada, T.: *Exp. Mech.*, Vol. 46 (2006) pp. 347-353.
- 26) Arakawa, K., and Mada, T.: *Exp. Mech.*, Vol. 47 (2007) pp. 609-615.
- 27) Arakawa, K., Mada, T., Park, S.D. and Todo, M.: *Polym. Test*, Vol. 25 (2006) pp. 628-634.
- 28) Arakawa, K. and Mada, T.: *Exp. Mech.*, Vol. 47 (2007) pp. 211-216.
- 29) Arakawa, K., Mada, T., Takahashi, J., Todo, M. and Ooka, S.: *J. Mater. Sci.*, Vol. 42 (2007) pp. 8700-8706.
- 30) Arakawa, K., Kato, M., Mada, T., and Todo, M.: *J. Mater. Sci. Japan*, Vol.57 (2008) pp.374-379.
- 31) Arakawa, K., Kato, M. and Mada, T.: *J. JSEM*, Vol. 8 (2008) pp. 422-427.
- 32) Arakawa, K., Kato, M. and Mada, T.: *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A*, Vol.75, No.752 (2009) pp.516-521.