

# 接着理論の新しい展開

—従来の引張試験による破壊強さに及ぼす  
bonding area (接着領域)の厚さの影響—

若 狭 邦 男

## New Development of Adhesion Theory

— Effect of Thickness of Bonding Area on Fracture Strength  
during Conventional Tensile Test —

Kunio Wakasa

(平成16年9月30日受付)

### 緒 言

歯科領域における象牙質接着強さを評価する方法には二つの方法が知られている。ひとつは shear (せん断) 及び tensile (引張) 試験を行なう従来の試験方法であり<sup>1,2)</sup>, この方法では接着部位を含む試験片自体の強さを評価するので, 著者によれば, 「見かけ」の強さ (apparent fracture strength) として接着強さが測定されると考えられる<sup>1-4)</sup>。二つ目は新しく定義した (以下, 新定義) 試験方法としての micro-tensile bond 試験である<sup>1-14)</sup>。著者は接着理論の新たな展開のためには, 象牙質接着強さを評価する計算モデルを創案することが必要であると提案した。接着界面はレジン/象牙質界面として interface I, II, III の三つの interface を考えて<sup>1-9)</sup>, 界面 II の界面強さを象牙質接着界面の接着強さとした。この界面モデルは resin composite/adhesive resin layer 界面 (以下界面 III とする), adhesive resin layer/hybrid layer 界面 (界面 II), hybrid layer/dentine 界面 (界面 I) の三つから構成されている。

そこで, 従来の試験方法では shear (せん断) 試験

と tensile (引張) 試験が提案され<sup>1)</sup>, 測定値は「見かけ」の強さであり, 新定義 micro-tensile bond 試験 (接着面積を限定した試験方法) では「真」の値 (real fracture strength) が得られる。Wakasa の報告では<sup>3,4)</sup>, 象牙質試験片の接着部の形状に注目して, I-section model と non I-section model の二つに分類された。前者の方法では接着面積 =  $1.0 \times 1.0 \text{ mm}^2$  における接着強さは 60 MPa (平均値)<sup>10)</sup> や 20 MPa (歯頸部接着)<sup>11)</sup> の報告がある) である。後者の non I-section model による方法 (beam 法)<sup>12)</sup> によれば, 20 MPa (平均値) であった。

本研究では bonding area (接着領域) の厚さが破壊強さに及ぼす影響を表現する計算モデルを創案するために, 著者が健全象牙質に対する接着強さを求める方法である新定義 micro-tensile bond 試験評価方法を従来の試験に応用することとした。既報<sup>1-4)</sup> と同様に Tanaka-Mori の方法を応用して<sup>15)</sup>, 1) 従来の方法では接着強さとしてではなくて, 測定される値は破壊強さであるとする, 及び 2) micro-tensile bond 試験方式で用いた定義と計算方法を応用する, という二つの考えに基づいて行うものとする。従って, 従来の試験方法, すなわち引張試験における「見かけ」の強さである破壊強さに及ぼす bonding area の厚さ (0.1 ~ 100 ミクロン) の影響を求める計算モデルを提唱する。

### 材料および方法

#### 1. 試験材料

用いた試験材料は, 既報<sup>1-14)</sup> (従来の試験と 新定義

広島大学大学院医歯薬学総合研究科創生医学専攻 (歯科理工学) (主任: 岡崎正之教授)

本論文の要旨の一部は平成16年度春期第43回日本歯科理工学会学術講演会 (平成16年4月) において発表した。なお, 本稿は著者による『接着理論』(全15章構成) に所収される章のひとつであることを注記する。

micro-tensile bond 試験)と同様に Sano et al の報告に従い、対照とする象牙質は bovine dentine である<sup>10)</sup>。本研究では従来の試験方法 (tensile test, 以下引張試験とする) を用いて、「真」の接着強さではなく、「見かけ」の強さ (破壊強さ) を評価した。

## 2. 引張試験の方法

試験方法は中林<sup>16)</sup>, Pashley et al<sup>17)</sup> や Vargas et al<sup>18)</sup> を参考にして、理論的に計算するための、コンポジットレジン (resin composite), 接着レジン (adhesive resin), 樹脂含浸層 (hybrid layer) を構成する模式図を図1に示す<sup>1-4)</sup>。case 1 (Wide) では象牙質全体を etching し, (a)では象牙質全体を脱灰して, その後一連の接着処理する (従来のように hybrid layer の厚さが大きい。例えば, bonding area 厚さが100ミクロンに相当) ことによって円柱状試験片を得るものであり, (b)では一連の接着処理によって hybrid layer の厚さが極めて小さい場合 (例えば, 同様に 0.1ミクロン) に相当する。case 2 (limited) では接着試験片の直径の大きさに局所的に脱灰して hybrid layer を形成して, その後一連の接着処理することによって円柱状試験片を得たものである。本研究では新定義 micro-tensile bond 試験の場合<sup>2-4)</sup>と同様な表示法であるレジン/象牙質界面 (interface I, II, III) を仮定したので, case 1 についてこれらの表示を従来の方法である引張試験片に応用・表示することにした。

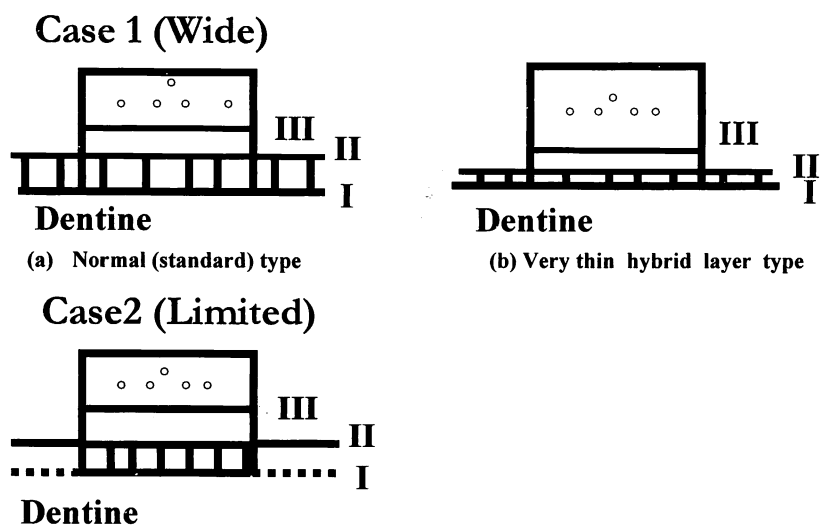


図1 従来の試験, すなわち象牙質接着試験 (引張試験) の試験片の模式図を示す。Case 1 (Wide) では, (a)象牙質全体が脱灰された場合 (bonding area の厚さが厚い場合), (b) その時, bonding area の厚さが薄い場合。case 2 (Limited) では, 象牙質が局所的に脱灰された場合。

## 3. 試験片モデル

### (1) 引張試験片の解析モデル

図2は引張試験モデルの座標を smear layer が完全に除去されている場合について示したものである (smear layer が存在する shear 試験片モデルは若狭によりすでに報告されているので<sup>2)</sup>, 参照すること)。座標軸は x 軸 - z 軸系として, 象牙質の上に bonding area (本研究ではこの領域を接着領域として定義する) という領域を考えるので, hybrid layer を含む bonding area を構成する「composite」を想定することになる。この時, bonding area における, hybrid layer の厚さが極めて小さい時, それを含む bonding area が0.1~100ミクロンまでに変化したときの応力及びその影響について求めることにする。

従って, 外からの力が接着試験片にかかる場合には応力と象牙質の性質, 接着試験片にかかる応力 (計算する応力は平均応力である) を Eshelby's inclusion 問題 (一般には, matrix のなかに弾性率が異なる inclusion が存在している場合, すなわち「composite」を仮定している) を応用する<sup>1-4, 19, 20)</sup>。

### (2) 計算モデル

前節で示したように, 図2に示した引張試験片の大きさをあらかず座標軸を用いて, 応力とひずみの関係を求める計算モデルを求める式は 応力・ひずみ曲線の間係を表わすことになる<sup>1, 2)</sup>。その計算式はすでに報告した式を用いて従来の試験方法における破壊強さを求めることとし, その概略を次節で述べた。

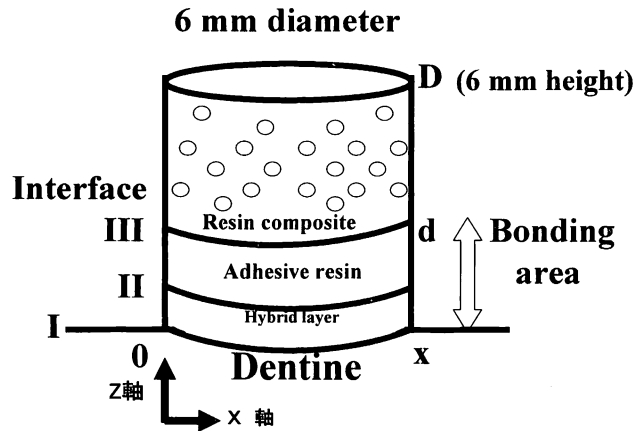


図2 本研究における象牙質接着試験片（引張試験の場合）とその座標軸を示している。詳細は本文を参照のこと。

結果および考察

1. 応力・ひずみ曲線について

図3は引張試験片形状(a)と破壊に至るまでの応力・ひずみ曲線(b)を示したものである。引張試験片の界面（I，II，III）を含む試験片を見ると、応力は界面ではなくて、試験片を構成している resin composite（コンポジットレジンからなる layer）に外からの力がかかることになる。本研究では試験片を構成する個々の layer，すなわち resin composite（ここでは，bis-GMA/TEGDMA 系レジン，シリカフィラー含有量 = 0.625），adhesive resin layer（ここでは bis-GMA/TEGDMA 系レジン）と dentine（ここでは mineralized dentine）の応力・ひずみ関係を，Ikeda et al の文献<sup>21)</sup>を参考に模式図で示した。その結果，界面に microcracks が存在すると，yielding（降伏現象；その

時の値が降伏応力に相当する）に達して破壊に至るけれども，mineralized dentine や resin composite の場合，降伏現象の後，応力とひずみの増加がともなって凝集破壊（cohesive failure）に至る。すなわち，resin matrix のみの変形に比べて高い応力のもとで破壊する。図に示した曲線を見ると，降伏引張応力に達したあと，応力の増加とともに破壊に至る場合と応力一定の場合，その両方とも凝集破壊をとまうものであると考えられる。

2. 従来の試験方法，引張試験における破壊様式

図4では引張試験における破壊様式についての模式図を示す。(a)では界面に存在する microcracks によって界面破壊（interfacial failure）が界面 I で生じて破壊に至る場合を示した。すなわち，図に示したような仮想界面を界面 I に想定することによって引張応力のも

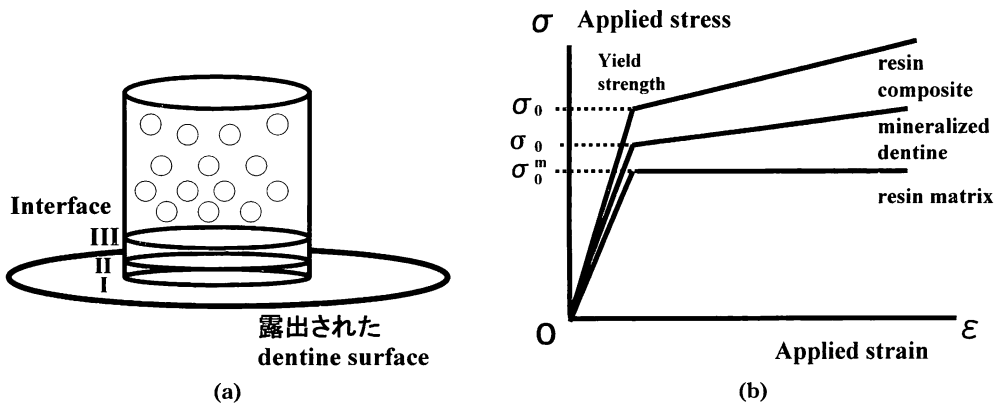


図3 (a)引張試験片形状，及び(b)応力・ひずみ曲線の模式図である。それぞれ，説明は本文に詳細に書かれているので，参照のこと。

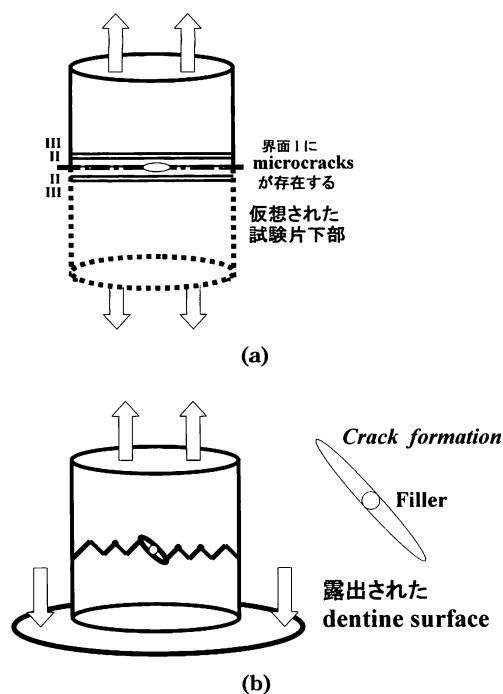


図4 引張試験における破壊様式を示す。(a)界面破壊が界面Iで生じる模式図である。(b)凝集破壊が生じるプロセスの模式図である。

とで界面破壊が生じるものと思われる。(b)では凝集破壊 (cohesive failure) が降伏後の応力とひずみの増加をともなって、最大せん断応力面における最大せん断応力のもとで破壊する、すなわち引張方向と45度の最大せん断応力面に沿って鋸歯状に (ギザギザ状に) 破壊が生じることになる。この場合、破壊の起点が使用したコンジットレジンに含まれる filler (シリカフィラー) の周辺で破壊がはじまることになる。従って、測定された値は「見かけ」の強さであり、「真」の接着強さに相当しないことがわかった。

ここで、micro-tensile 試験による健全象牙質の降伏応力を見ると<sup>14)</sup>、その値が約 100 MPa であり、その値に達した後、破壊に至ることになることを報告している<sup>19,20)</sup>。また、従来の shear 試験や引張試験における破壊強さの値は 2~20 MPa (「見かけ」の値) であるので、象牙質あるいは接着強さよりも極めて小さいことがわかる<sup>1,2)</sup>。つまり、従来の引張試験をおこなった場合、接着過程で導入される欠陥や内部の欠陥のため、得られた破壊強さの値は「見かけ」の強さ<sup>1-9)</sup> であると同時に、hybrid layer の厚さが測定される値への影響が明らかにされないことがわかった。

以上に基づいて、従来の試験方法結果と文献での報告を参考にすると、接着領域 (bonding area) を含む

試験片で測定された値は「見かけ」の強さに相当し、界面上の欠陥を含むと界面破壊のためにその値は小さくなり、また試験片の内部欠陥が存在する場合には「見かけ」の強さ (凝集破壊強さ) であることがわかった。従って、bonding area が変わる時の「見かけ」の強さを計算するモデルを創案することが必要である。

### 3. bonding area の厚さの影響を考慮した場合の応力計算 (計算モデル)

bonding area の厚さは引張試験での計算モデル (直径 6 mm 及び高さ 6 mm ( $D$  とする) の円柱状試験片である) に示したように (図 1, 2, 3 参照), hybrid layer の厚さによって変化すると仮定した。そこで、bonding area の厚さ ( $d$  とする) が 0.1~100 ミクロンまで変化するものと考えている。

#### (1) 計算モデル

本研究では図 2 の引張試験片モデルを用いて、bonding area に相当する部分を「composite」としての変形挙動として求めるので、Wakasa が導入した式を応用して<sup>3,4)</sup>、すでに、次のように平均応力が破壊時の強さ (破壊強さ) として与えられている。

$$\begin{aligned} \langle \tau_L \rangle &= 2^{1/2} (\mu_B \gamma) \cdot \{1 + (\tanh(A_t L) / A_t L) (B' - 1)\} \quad (1) \end{aligned}$$

が導びかれた。ここで、それぞれの定数は

$$\begin{aligned} A_t &= \{2^{1/2} / (Dd)^{1/2}\} \cdot (E_R / E_B)^{1/2} [1 / \ln(D/d)]^{1/2} \quad (2) \end{aligned}$$

であり、 $B' = \tau_0 / \mu_B \gamma$  として与えられた。 $D$  は試験片の高さ (6 mm) であり、 $d$  は bonding area の厚さに相当する。 $\tau_0$  はその時の降伏せん断応力である。 $\mu_B$  は bonding area の剛性率を表わし、 $E$  (弾性率) の添字はそれぞれ resin composite (R) 及び bonding area (B) での値をあらわすこととした。 $\gamma$  は塑性変形 (ひずみ) である。従って、破壊応力を critical stress (臨界応力) を次のように求めることができる。

$$\langle \tau_C \rangle = (2^{1/2}) \langle \tau_L \rangle \quad (3)$$

ここで、 $\tau_1 = 0$ ,  $\tau_2 = (1/2) |\sigma_1 - \sigma_3|$  (絶対値),  $\tau_3 = (1/2) |\sigma_2 - \sigma_1|$  (絶対値) として与えられる。

以上の式を用いるならば、従来の引張試験によって外からの力が接着試験片にかかる時の平均応力を破壊強さ (臨界値) として評価することができる。この時、試験片の bonding area の厚さ ( $d$  として与えられる) を考えることで、その接着領域における破壊応力 (「見かけ」の強さに相当する) に及ぼす bonding area の厚さの影響を明らかにすることができる。

(2) 引張試験の結果

図5, 6 (引張試験の結果) はそれぞれ, 式(1), (2), (3)を用いて計算した値を示したものである。図5は破壊強さ(臨界値)を bonding area (接着領域とする)の厚さ, すなわち1と100 ミクロンの場合, その bonding area の弾性率の変化に対して求めたものである。その結果, 以下のように要約される。

- ① 破壊強さは bonding area の厚さが極めて小さい場合 (1 ミクロン), 100ミクロンでの場合よりも低くなる (bonding area の弾性率が一定の場合)
- ② bonding area の弾性率が大きくなると, その厚さが一定の場合には, 得られた破壊強さの値は増加する

図6では bonding area の厚さが0.1~100ミクロンでの破壊強さを bonding area の弾性率 = 1, 5 GPa で求めた結果 (interfacial strength = 50 MPa),

- ① bonding area の厚さの増加に対して破壊強さは

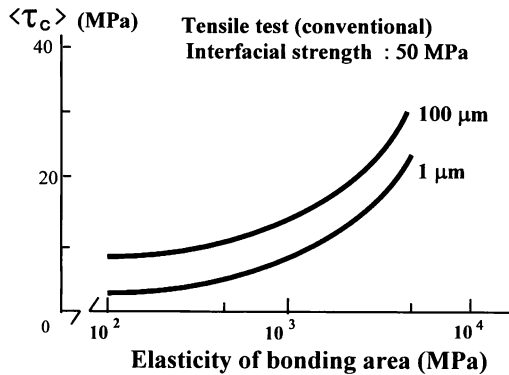


図5 従来の引張試験による破壊強さ(臨界値)を bonding area の厚さ = 1, 100ミクロンについて, bonding area の弾性率に対して求めたものである。

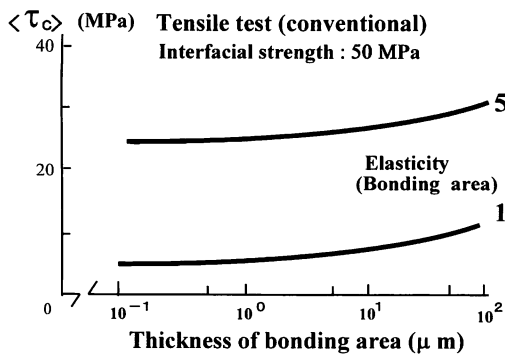


図6 従来の引張試験による破壊強さ(臨界値)を bonding area の厚さが0.1から100ミクロンに変化したとき, bonding area の弾性率 (1, 5 GPa) ごとに求めたものである。

増加した

② 弾性率が5 GPa では, その厚さの増加とともに増加し, 他の値の場合 (1 GPa) に比べて大きいと要約される。従来の試験である引張試験 (図5, 6) では計算される破壊強さ (平均応力で求めた臨界値) が bonding area の厚さや弾性率によって影響されることがわかった。

- (3) 従来の引張試験による破壊強さに及ぼす bonding area の厚さの影響

著者らの研究では<sup>1-9)</sup>, 新定義 micro-tensile bond 試験では「真」の象牙質接着強さが得られ, 界面II (adhesive resin layer/hybrid layer 界面)でのクラック形成に伴う界面破壊が生じて, その時の値が「真」の象牙質接着強さであることを求めた。従来の試験方法(せん断及び引張試験)と micro-tensile bond 試験を比較すると, 前者では界面の強さが測定されなくて, 後者の試験では界面の強さが求められた<sup>1-9)</sup>。

それらの結果(図5, 6)を見ると, bonding area を考慮した試験片を用いて引張試験を行うと, その時の応力は bonding area の厚さや弾性率などに影響されることが判明したことから, その計算モデルは有用であることがわかる。著者が明らかにしたように, micro-tensile bond 試験片と同じ dimension をもつ micro-tensile 試験は象牙質の性質や dentinal tubule の方向と応力・ひずみの挙動が明らかにされる有用な方法である<sup>14)</sup>。また, 従来の試験方法では「真」の接着強さが評価されないけれども, bonding area を考慮することによって試験片全体にかかる応力を計算する計算モデルであることがわかる。また, その時の値は「見かけ」の強さ(破壊強さ)であるので, 「真」の強さを求める方法ではないことを使用にあたって考えておくことが必要である。

従って, 従来の試験方法によって測定された「見かけ」の強さの値が bonding area の性質により影響されることが判明し, 従来の試験方法では, 「真」の象牙質接着強さが得られないことが理論的に求められた。著者らの研究では<sup>19, 20)</sup>, micro-tensile bond 試験における応力・ひずみ曲線を参考にして, 「真」の象牙質接着強さをすでに検討している。界面II (adhesive resin layer/hybrid layer 界面)でのクラック形成に伴う界面破壊が生じて, その時の値が「真」の象牙質接着強さを意味していた。つまり, micro-tensile bond 試験の有用性が明らかになり<sup>1-9, 19, 20)</sup>, 従来の試験方法では応力・ひずみ関係に影響する因子が欠陥のみであることがわかった。今後, bonding area を構成する個々の layer の構造とそれらの諸性質を考慮しているので, 従来の試験方法と新定義 micro-tensile bond 試験における破壊強さ, 接着強さと破壊様式について定義・解析する予定である。

## 結 論

本研究の結果は以下に簡潔に要約される。

(1) 従来の試験方法である引張試験について, bonding area の厚さ (0.1~100ミクロン) が変化した時の応力解析モデルを創案した。そのモデルは 新定義 micro-tensile bond 試験モデルを従来の引張試験に応用したものである。bonding area (接着領域) の厚さを考慮したとき, 破壊強さ (平均応力) が評価される。接着領域を仮定することによって, その応力が bonding area の厚さや弾性率によって影響されることが理論的に明らかにされた。

(2) 界面破壊は小さな応力で生じて, 界面 I (mineralized dentine/hybrid layer interface) 上の欠陥による破壊であることから, 求められる値は「真」の接着強さではなく, 「見かけ」の強さ (破壊強さ) であり, 従来の引張試験では評価されなかった破壊強さに及ぼす bonding area の厚さの影響を理論的に求めることができた。

## 謝 辞

本研究では広島大学歯学部大学院 (当時) 最先端設備「バイオマテリアル複合解析システム」を使用したため, 感謝する。佐野英彦教授 (北海道大学大学院歯学研究科) には, その提唱された試験方法を参考にした共同研究であることを付記して, 感謝する。

## 文 献

- 池田敦治, 若狭邦男: 接着理論の新しい展開—従来の場合, shear 及び tensile 試験—*广大歯誌* **35**, 177-183, 2003.
- 若狭邦男: 接着理論の新しい展開—smear layer の解析—*广大歯誌* **36**, 106-111, 2004.
- Wakasa K: Calculation model of fracture stress during bond test. *J Dent Res* **75**, Abst. No. 1764, 1996.
- Wakasa K: Analytical model of micro-tensile bond strength and factors in dental adhesive systems. *Proceeding of ICCE/9* (San Diego, USA), pp 827-828, 2002.
- 若狭邦男, 吉田靖弘, 池田敦治, 山崎保彦, 福田竜一, 吉岡雅之, 野村雄二, 岡崎正之, 佐野英彦: 象牙質接着システム—脱灰象牙質, 特に collagen fibre 密度の解析 (micro-tensile bond test)—. *歯材器* **18** 特別号 **34**, 229, 1999.
- 若狭邦男: 歯質接着性—象牙質の諸性質と応力解析 (micro-tensile bond test モデル). *接着歯学* **17**, 324-325, 1999.
- 若狭邦男: 歯質接着性—象牙質の諸性質と応力解析 (micro-tensile bond test モデル). *接着歯学* **18**, 308-309, 2000.
- Wakasa K, Shintani H, Matsui A, Yamaki M: Calculation model of fracture stress during bond test. *J Dent Res* **75**, Abst. No. 1764, 1996.
- Wakasa K, Yoshida Y, Ciucchi B, Sano H, Pashley DH: Calculation of stress zone during crack propagation. *J Dent Res* **76**, Abst. No. 1946, 1997.
- Sano H, Shono T, Sonoda H, Takatsu T, Ciucchi B, Carvalho RM, Pashley DH: Relation between surface area for adhesion and tensile bond strength—Evaluation of a micro-tensile bond test. *Dent Mater* **10**, 236-240, 1994.
- Yoshiyama M, Sano H, Ebisu S, Tagami J, Ciucchi B, Carvalho RM, Johnson MH, Pashley DH: Regional strengths of bonding agents to cervical sclerotic root dentin. *J Dent Res* **75**, 1404-1413, 1996.
- Shono Y, Yano J, Ogawa T, Bori K, Kawano N, Terashita M: Regional microtensile bond strengths of newly developed dentin bonding system made to superficial versus root dentin. *Proceedings of ICCE 7*, 803-804, 2003.
- 若狭邦男, 佐野英彦: 歯質接着性—象牙質の諸性質と応力解析 (micro-tensile bond test モデル) その 1. 健全象牙質の弾性変形 *接着歯学* **19**, 94-101, 2001.
- 池田敦治, 若狭邦男: 健全および脱灰象牙質の変形挙動—micro-tensile test による解析—*广大歯誌* **34**, 141-146, 2002.
- Tanaka, K., Mori, T.: The hardening of crystals by non-deforming particles and fibres. *Acta Metallurgica* **18**, 931-941, 1970.
- 中林宣男: 接着界面の象牙質側に生成した樹脂含浸象牙質について. *歯材器* **1**, 78-81, 1982.
- Pashley DH, Sano H, Ciucchi B, Yoshiyama M, Carvalho RM: Adhesion testing of dentin bonding agents. *Dent Mater* **11**, 117-125, 1995.
- Vargas MA, Armstrong SR, Campbell J, Laffoon JE, Van Meerbeek B: Resin-dentin interfacial morphology of a total-etch 3-step adhesive after 4-year water storage. *J Dent Res* **81**, Abst. No. 0188, 2002.
- Wakasa K, Yoshida Y, Nakayama Y, Nakatsuka A, Yamaki M: Stress analysis after yielding at the resin composite/dentine interface. *Computer methods in biomechanics & Biomedical engineering-2*, (ICBN: 905699-206-6), Gordon & Breach Publishers, UK, pp 673-680, 1998.
- Wakasa K: Development of nano evaluation in adhesion theory. *Proceeding of ICCE-11* (Hilton-Head Island, South Carolina, USA), CD-R Proceeding Disc, 2004.
- Ikeda A, Wakasa K: Dynamic properties of dental resin composites by micro tests. *J Mater Sci letters* (to be submitted), 2004.