

구치부 수복용 복합레진의 파괴특성에 관한 Acoustic Emission 연구

경북대학교 치과대학 치과보존학교실* 및 치과재료학교실

박진훈* · 김교한

I. 서 론

치과임상에서 사용되고 있는 수복용 복합레진은 레진 기질에 filler가 첨가된 일종의 입자강화형 복합재료(particle-reinforced composite)로서, 기존의 수복재료들과 비교할 때 인체에 위해를 끼칠 수 있는 수은을 취급해야 하는 amalgam 합금에 비해서 위생적이며 또한 구강내 자연치아의 색조와 잘 조화되지 않는 금합금에 비해 심미적이라는 잇점 등이 있어 전치부 수복재료로 광범위하게 사용되고 있으며 최근에는 구치부 수복에까지 사용영역이 확대되고 있는 실정이다.

이상적인 수복재료의 요건으로는 치아의 저작기능과 심미성을 충분히 회복시킬 수 있는 물리적 및 화학적 성질을 갖추는 동시에 생물학적인 적합성과 구강내의 환경변화에 따른 내구성 등을 들 수 있다. 그러나 치과용 복합레진에 관한 실험적 또는 임상적 연구 보고들¹⁻⁶⁾에서 복합레진의 물성이 이러한 이상적인 수복재료의 요구조건에는 아직 미흡한 상태임을 알 수 있으며, 또한 복합레진의 물리적 기계적 성질에 영향을 미치는 요소 중 레진기질⁷⁾, 계면결합력⁸⁾, 및 중합반응⁹⁾ 등 내적인자의 개선을 위한 노력으로 다소의 미비점들이 보완되기는 하였으나 아직 파괴^{10, 11)}이나 마모^{12, 13)}에 대한 약한 저항성이 중요한 결점으로 지적되고 있다.

특히 구치부에서는 저작압력에 따른 응력의 집중이 한층 높아지므로 복합레진 수복물의 내구성이 사실상 의문스러운 실정이며, Draughn¹⁴⁾ 및 Asmussen과 Jorgensen⁴⁾은 복합레진이 구강내에서의 반복되는 저작력에 의해 피로한계(fatigue limit)에 도달하게 되면 압축강도보다 낮은 응력에서 파괴현상을 나타

냄을, Lloyd¹⁵⁾는 복합레진이 취성(brittleness) 경향이 강하여 저작압력에 대해서 쉽게 파절되는 불안정 파괴의 특성이 있음을 이미 지적한 바 있다. 그리고 Power¹⁶⁾, Leinfelder¹⁷⁾ 등은 복합레진 수복물의 마모도에 관한 연구보고에서 마모현상이 수복물의 표면에 발생하는 미세균열에 의해서 기시된다고 보고한 점으로 미루어 복합레진 수복물의 내구성 향상을 위해서는 물리적인 강도의 평가보다는 파괴역학적 해석에 따른 연구 접근이 타당함을 알 수 있다.

Griffith¹⁸⁾가 취성역학이론을 통하여 파괴응력은 균열의 진전에 따라 생성되는 파단면의 표면 에너지로 해방(release)된다고 하며 취성 불안정파괴의 조건(G criterion)을 제시한 이래, 취성재료에 관한 파괴역학적 연구방법이 발전 정리되어 균열진전에 의한 파괴개시의 임계치를 임계응력확대계수(critical stress intensity factor, K_{Ic})로 산출하고 이 수치를 평면변형파괴인성(plane strain fracture toughness)으로 규정하여 취성불안정파괴에 대한 재료 고유의 저항성 평가에 사용하게 되었다¹⁹⁾.

치과용 복합레진에 파괴인성(fracture toughness)에 관해서는 Robert 등²⁰⁾이래 몇몇 연구²¹⁻²⁶⁾가 있었으며, filler 함입에 따라 균열진전에 대한 저지효과가 커져서 파괴인성도 증가하는 것으로 보고²⁷⁾되어 있으나, Broutman과 Sahu²⁸⁾는 filler 함량이 일정하고 이상 증가할 경우 filler 입자간의 거리가 지나치게 감소하여 인접 균열간의 상호작용이 일어나 오히려 파괴저항성이 낮아짐을 보고하였으며, Lloyd와 Iannetta²⁹⁾ 등은 파괴인성 시험과 파단면 관찰(fractography)을 통하여 filler 함입에 따른 복합레진의 파괴

* 이 연구는 1991년도 한국과학재단 연구비지원에 의한 결과임(과제번호 : 9134-0607-003-1).

거동을 관찰한 바 있다.

재료의 내부 국소부위에서 응력에 따라 방출되는 탄성파(elastic wave)를 검출 수록하여 분석함으로써 재료 내부의 결함 등을 검사해내는 비파괴검사법의 일종인 Acoustic Emission은 파괴거동의 동적인 과정을 파악할 수 있는 실험법으로서 금속재료부에서 주로 사용되어 왔으나, 최근 공업용 복합재료의 파괴역학적 연구에도 가끔 활용되어 왔다.

저자는 구치부 수복용 복합레진의 파괴저항성을 향상시키기 위해서는 파괴역학적인 방법에 따른 파괴특성의 파악과 이에 기인하는 복합레진의 파괴거동에 대해 보다 명확한 규명이 필요한 것으로 판단하여 구치부 수복에 사용될 수 있는 수종의 복합레진 및 대조군으로 실험 제작한 unfilled type의 광중합형 레진을 대상으로 Acoustic Emission법을 통하여 파괴특성을 분석하고 동시에 파괴인성치를 측정하여 파단면의 주사전자현미경적 관찰상(Fractography)과 비교함으로써 filler 함입에 따른 파괴특성상의 차이를 검토하였기에 그 결과를 보고하는 바이다.

II. 실험재료 및 방법

1. 실험재료

본 실험에는 현재 시판되고 있으며 구치부 수복용으로 사용될 수 있는 복합레진 중 함입된 filler 입자의 크기에 따라 분류하여 macrofilled type 2종, microfilled type 1종, 및 hybrid type 2종을 사용하였으며(Table 1), 대조군으로는 unfilled type의 Bis-GMA계 광중합형 레진을 제작 사용하였는데 그 구성성분은 2, 2-Bis(4-(3-methacryloxy-2-hydroxy proxy) phenyl) propane을 60%, Triethylene-glycol dimethacrylate(Trk-EDMA)를 40%, 그리고 dl-Camphoroquinone와 2-(Dimethylamin) ethyl

methacrylate를 미량씩 첨가하였다.

2. 실험방법

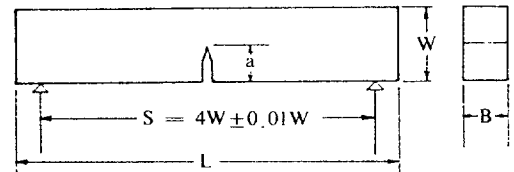
1) Filler 함량 및 파괴인성치 측정

각 복합레진의 filler 함량측정은 국제표준기구에서 제정한 standard ashing test(ISO 4049)의 규격³⁰⁾에 따라 시행하였다.

체적 250mm³의 장방형 시편(2.5mm×5mm×20%)을 광조사가 가능하도록 양면 개방형태로 미리 준비한 금속주형을 이용하여 제작하였으며 주형으로부터 분리시킨 각 시편은 전기소환로에 운반되는 도가니와 함께 전자천평(R200D, Sartorius Co., W. Germany)으로 mg단위의 중량을 측정후 전기소환로(Jelcraft, Jelrus Co., U. S. A.)에 넣어 600°C, 30분간 가열하여 유기성분을 소각, 제거하였다.

그후 도가니에 담은채 deccicator에 위치시킨 후 재차 중량을 측정하여 복합레진내 무기질의 filler 중량비함량을 계산하고 이를 다시 filler 체적비함량으로 환산하였다.

각 복합레진의 파괴인성치 측정은 미국재료시험학회에서 제정한 ASTM - E 399의 규격³¹⁾(Fig. 1)에 따른 single - edge notch (SEN) 형의 3점 굴곡시험법



$$0.45W < a < 0.55W, B = W/2 \pm 0.01W$$

Fig. 1. Single edge notch specimen (ASTM - E 399) (a : notch length=2.5mm, w : specimen width=5.0mm, s : span length=20.0mm, b : specimen thickness=2.5mm).

Table 1. Composite resin materials used in this study

Brand	Code	Manufacturer	Filler type	Batch number
Experimental	EX	self - made	No filler	
Helimolar	HM	Vivadent. Co.	Macrofilled	408302
Clearfil - F II	CF	Kuraray Co.	Macrofilled	53193, 53196
Concise	CC	3M. Co.	Macrofilled	7AC1, 7AB3
Graft - LC	GF	GC. Co.	Hybrid	231282, 271282
P - 50	PF	3M. Co.	Hybrid	8BL4

(3-point bending test)을 이용하였다.

3점 굽곡시험편의 제작을 위한 금속주형은 광조사가 가능하도록 양면 개방형태로 하였고, 시편 중앙에 인위적인 notch를 형성시키기 위해 금속 주형의 하단 중앙에 2.5mm 길이의 면도날을 식립하였으며, 복합레진을 충전한 다음 주형의 아래와 윗면에 두께 1mm의 slide glass를 덮어서 시편의 표면에 공기접촉으로 인한 oxygen inhibition layer가 발생치 않도록 하였다. 광중합형 복합레진의 광조사는 (Visilux II, 3M Co., U. S. A.)를 이용하여 조사거리 5mm로 1회당 30초씩 5회 scanning하는 방법으로 양면을 균일하게 시행하였고, 화학중합형(자가중합형) 복합레진은 제조회사의 지시대로 혼화하여 광조사를 제외한 동일한 방법으로 시편을 제작하였으며 제작된 시편을 37°C 증류수내에 24시간 보관한 후 3점굽곡 시험을 시행하였다.

ASTM - E399에 따른 3-point bending jig를 미리 제작하여 mechanical testing machine(Instron Model - 4200)에 장착한 후 20°C의 실온에서 cross-head speed 0.1mm/min로 시편 상단에 수직하중을 가하여 시편이 파단될 때까지의 하중치를 10kg Max.의 load cell로 측정하고 파괴거동 파악을 위해 X-Y record (D-51P, Riken Denshi Co., Japan)에 기록하였다.

시편의 파단이 끝난 후 각 시편의 두께(B), 폭(W), notch길이(a)를 caliper로 확대경하에서 측정하여 다음의 식(1)에 따라 응력확대계수(stress intensity factor, K_Q)를 산출하였으며, 다음의 식(2)에 따라 검정하여 산출된 응력확대계수(K_Q)의 값이 평면변형상태에서의 Mode - I의 조건인가를 판단한 다음 평면변형파괴인성치(plane strain fracture toughness, K_{Ic})로 취하였다.

$$K_Q = \frac{P_Q S}{B W^{3/2}} \cdot f(a/W) \dots\dots\dots(1)$$

$$B, a \geq 2.5 \left(\frac{K_Q}{\sigma_y} \right)^2 \dots\dots\dots(2)$$

$$f(a/W) = \frac{3(a/W)^{1/2} \{1.99 - (a/W)(1-a/W)\}}{2(1+2a/W)}$$

$$\frac{\{2.15 - 3.93a/W + 2.7a^2/W^2\}}{(1-a/W)^{3/2}}$$

P_Q : peak load of failure(N)

σ_y : yield stress(MPa)

2) Acoustic Emission 측정

파괴인성 시험과 병행하여 3점 굽곡 시험편의 좌우 측면에 Acoustic Emission (이하 AE라 약함) sensor (PAC-50, Physical Acoustic Co., U. S. A.)를 각 1개씩 부착한 후, 하중속도 0.01mm/min로 시편 상단에 수직하중을 가하여 초기방출신호(first arrival)부터 시편의 파단 시점까지의 시편내 균열진전에 따라 방출되는 탄성파를 검출하였다.

사용한 AE sensor는 주파수영역이 200-500 KHz인 공진형이며 내부 증폭율이 52dB인 증폭기가 내장되어 있으며, 검출된 탄성파는 digital signal로 변환됨과 동시에 sensor내에서 1차 증폭되고 다시 preamplifier에서 20dB, main amplifier에서 10dB씩 재차 증폭되어 AE analyzer(PAC-3000/3104, Physical Acoustic Co., U. S. A)에 2개의 채널로 입력시켰다(Fig. 2).

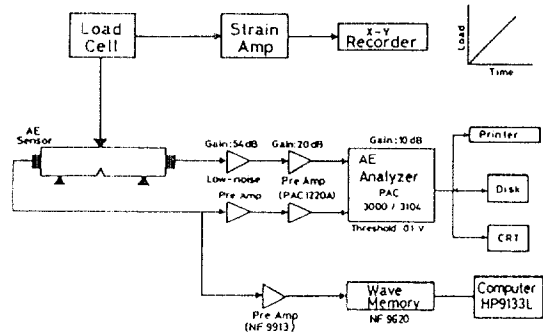


Fig. 2. Block diagram of Acoustic Emission testing procedure.

Side-circuit로 나오는 AE signal은 pre-amplifier (NF 9913)를 통하여 증폭시킨 후 Wave Memory(NF 9620)에 수록하였으며, AE analyzer를 통하여 각 시편의 AE 방출의 정도를 나타내는 사상계수(AE events), AE신호의 크기를 나타내는 진폭분포(amplitude distribution), 에너지분포(energy distribution), AE 누적사상계수, 그리고 파형 특성 등을 관찰하였다.

3) SEM Fractography(파단면의 주사전자현미경적 양상 관찰)

각 시편의 파단면을 ion sputter(E-1092, Hitachi Co.)에서 백금 증착한 후 주사전자현미경(S-450, Hitachi Co., Japan)으로 가속전압 20-25KV로 촬영하여 균열진행 및 계면분리 양상 등을 관찰하였다.

III. 실험성적

1. Filler 함량 및 파괴인성치

실험에 사용된 복합레진의 filler 체적비함량(이하 Vol. %로 약함)은 microfilled type의 Heliomolar (HM)가 42.7 Vol. %, macrofilled type의 Clearfil (CF)과 Concise(CC)가 각각 61.0 및 63.9 Vol. %로, hybrid type의 Graft(GF)와 P-50(PF)가 각각 67.9 및 73.1 Vol. %로 나타나 PF, GF, CC, CF, HM순의 함량을 보였다(Table 2).

각 복합레진의 평면변형파괴인성치(이하 K_{Ic} 로 약함)는 함입된 filler입자의 크기에 따라 비교할 경우 hybrid type의 GF에서 가장 높은 수치를 나타내 1.60 $MPa\sqrt{m}$ 였으며 PF에서는 1.03 $MPa\sqrt{m}$, macrofilled type의 CF 및 CC는 1.42 $MPa\sqrt{m}$ 및 1.31 $MPa\sqrt{m}$ 로, microfilled type의 HM은 0.85 $MPa\sqrt{m}$, unfilled type인 시작레진 EX에서는 0.80 $MPa\sqrt{m}$ 로 가장 적은 수치를 나타내었다(Table 2).

Filler 함량에 따른 각 복합레진의 K_{Ic} 치를 비교한 결과 Fig. 3과 같았으며, unfilled type인 EX를 시작으로 해서 HM, CF, CC, GF의 순으로 filler 함량이 증가함에 따라 파괴인성치도 점차 증가하는 관계를 보이다가 filler 함량이 최대치인 PF에서는 다소 감소하는 경향을 나타내었으며, unfilled type인 EX의 파괴인성치보다 전부 높은 수치의 파괴인성치를 나타낸 점으로 볼 때 filler 함입에 따른 파괴인성의 강화효과를 다소의 차이와 함께 전반적으로 보이고 있다.

Table 2. Filler Volume fractions and fracture toughness values(K_{Ic}) of tested composite resin materials

Brand	Code	Vol. %	$K_{Ic}(MPa\sqrt{m})$
Experimental	EX	0	0.80±0.10
Heliomolar	HM	42.7	0.85±0.11
Clearfil - F II	CF	62.1	1.42±0.08
Concise	CC	63.9	1.31±0.08
Graft - LC	GF	67.9	1.60±0.08
P-50	PF	73.1	1.03±0.06

Significant differences between the each pair of K_{Ic} value except EX and HM, CC and CF at P=0.05 level.

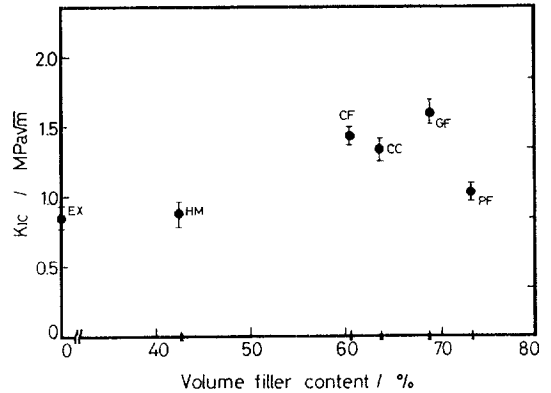


Fig. 3. Relationship between fracture toughness value(K_{Ic}) and filler content(Vol. %) of tested composite resin materials.

2. Acoustic Emission 양상

각 복합레진의 AE측정 결과 중 AE사상계수 - AE강도 분포를 나타낸 도표는 Fig. 4와 같으며, unfilled type의 EX는 AE사상계수의 발생이 거의 없는 양상을 보여서 AE threshold level인 52dB 이상의 영역에서 파단력에 의한 파괴의 결과로 미미한 에너지의 방출이 있었음을 나타내고, microfilled type인 HM도 매우 적은 양의 AE사상 계수를 나타내고 있다.

이에 비해 macrofilled type의 CF와 CC는 많은 수의 AE사상계수를 방출한 결과를 보이고 있는데 이는 균열의 진전에 대한 저저력에 따라 많은 양의 탄성파가 검출된 양상이었다. 또한 hybrid type의 GF와 PF는 macrofilled type에 비해서는 다소 적은 양의 AE사상계수를 나타내었으나, microfilled type에 비해서는 많은 양의 방출량을 보였다.

AE측정 결과 중 시간경과에 따른 파괴에너지의 방출량은 Fig. 5와 같이 time - amplitude 도표로 나타났으며, unfilled type의 EX는 균열진전에 대한 저항력을 거의 나타내지 못하고 급격한 파단양상을 보여서 취성 경향이 강한 레진 matrix의 특성을 잘 나타내고 있다. Microfilled type의 HM 역시 filler 입자에 의한 균열 저지효과를 거의 보이지 않는 취성경향을 보여서 microfilled type 레진의 파괴에 대한 저항력이 미미함을 단적으로 나타내고 있다.

Macrofilled type의 CF와 CC는 일정시간 동안의 큰 강도의 AE를 방출함으로써 macrofiller 즉, 입자의 크기가 클수록 균열진전에 저항하는 효과가 증가됨을

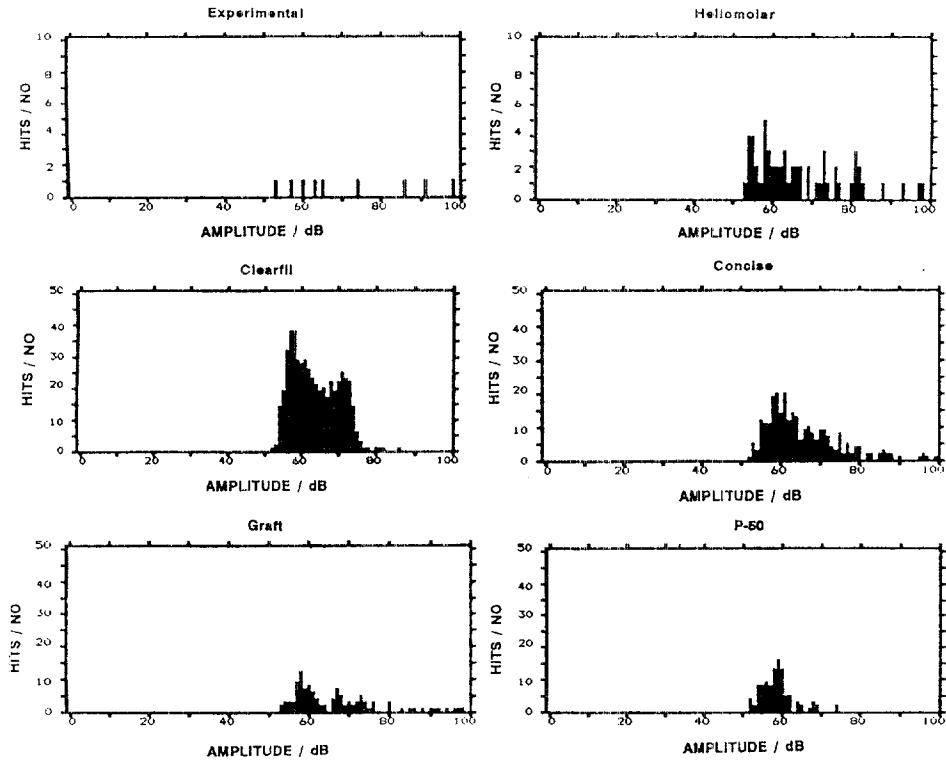


Fig. 4. Acoustic Emission events - amplitude distribution of tested composite resin materials.

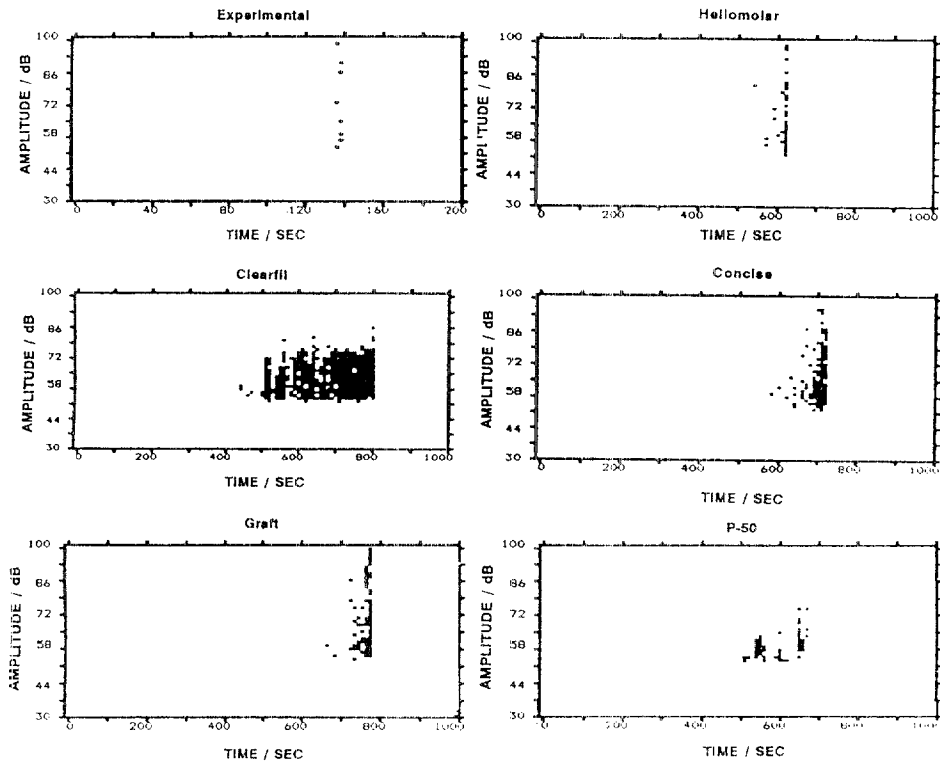
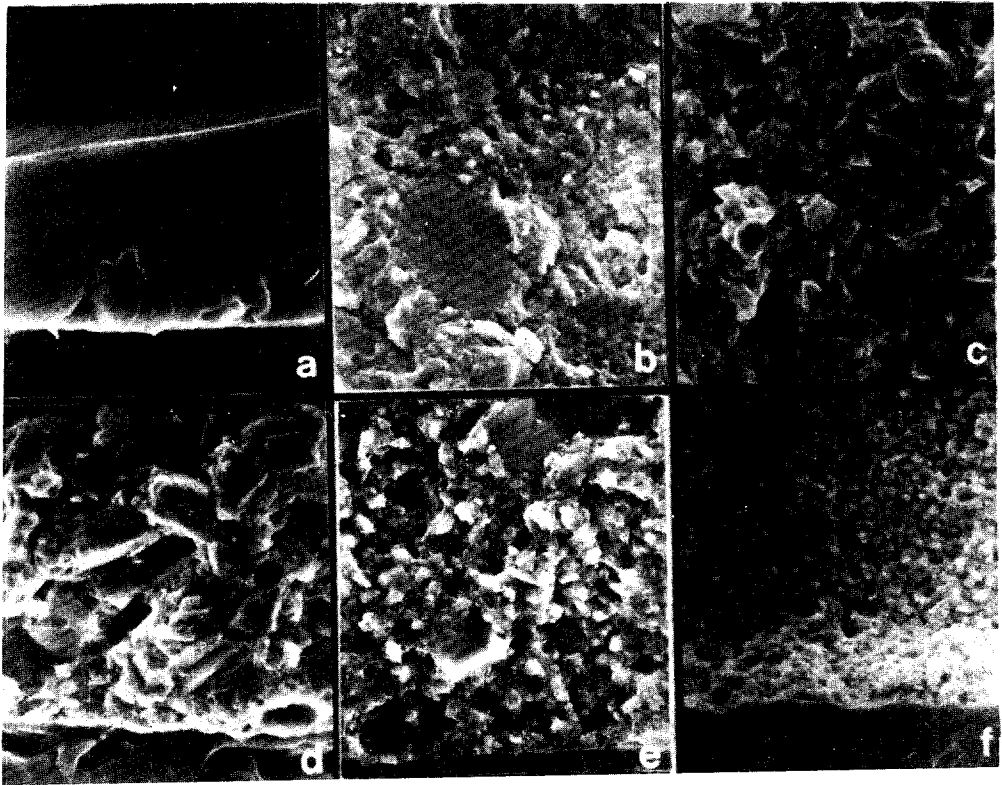


Fig. 5. Time - Acoustic Emission amplitude distribution of tested composite resin materials.



5μ

Fig. 6. Scanning electron fractographs of tested composite resin material shows characteristic features according to each filler type, a : Experimental resin, b : Heliomolar, c : clearfil, d : Concise, e : Graft, f : P-50($\times 1000$).

보이고 있다. Hybrid type에서도 일정량의 AE 에너지가 방출됨을 나타내고는 있으나 PF의 경우는 그 강도나 전체 방출량이 macrofilled type에 비해 현저히 감소된 양상을 보였다. 그러나 전반적으로 filler 입자의 함입에 따른 인성강화효과는 다소의 차이와 함께 나타내고 있다.

3. Fractograph 양상

각 복합레진의 파단면의 전자주사현미경적인 양상은 Fig. 6과 같으며, unfilled type인 EX(a)에서는 레진 matrix 자체가 균열 진전에 대한 저항이 거의 없이 불안정 파괴의 양상을 특징적으로 나타내었으며 특히 취성 불안정파괴의 소견인 river pattern을 보이고 있다.

Microfilled type인 HM(b)에서는 microfiller 입자

가 미세하여 거의 관찰되지 않았으나 prepolymerized particle의 파절이 관찰되며 unfilled type의 EX에 비해서는 다소 불규칙한 파단면을 보이거나 전반적으로 평활한 파단양상을 나타내어 파괴에너지의 방출이 미미하였음을 알 수 있었다.

Macrofilled type의 CF(c)와 CC(d)에서는 macrofiller 입자의 파단양상과 입자와 matrix간의 계면이 분리된 양상을 동시에 보이고 있으며, 불규칙하고 돌출부가 많은 파단면을 나타내어 균열진전에 대한 입자에 의한 저항이 많았음을 보였다.

Hybrid type의 GF(e)에서는 혼합형 입자 중 비교적 큰 직경의 macrofiller 입자가 혼입되어 계면이 분리된 양상을 보이므로 macrofilled type에서와 유사한 파단소견을 나타내었으며 나머지 matrix부위는 HM에서와 유사한 microfilled type의 파단면 소견을

나타내었다. PF(f)에서는 filler의 입자 직경이 비교적 적을 뿐 아니라 macrofilled type에 비해 평활한 파단면을 보였다.

IV. 총괄 및 고안

현재 임상치의학 영역에서 전치 및 구치부의 수복재료로 사용되고 있는 복합레진은 종래의 unfilled acrylic resin에 무기질 filler를 함유시킴으로써 물리적 성질이 강화되었으나 구강내 환경에서 충분한 내구성을 발휘하기에는 균열진전에 대한 취약성이 문제점으로 지적되고 있으며, 이를 극복하기 위해서는 파절과 마모현상에 대한 더 많은 이해와 동시에 복합레진이 단일조성 물질이 아닌 복합재료라는 점을 고려한 기계적 특성의 연구가 요구되고 있다.

파괴인성은 재료의 취성불안정파괴에 대한 저항의 정도를 나타내는 의미로 사용되고 있으며, Griffith¹⁶⁾는 취성재료의 파괴에는 파괴에 따라 새롭게 형성되는 파단면의 표면에너지와 동량의 파괴에너지가 요구되며 이 에너지는 응력 증가에 따라 발생하는 균열 주위의 탄성에너지로부터 공급된다는 취성재료의 파괴와 변형에 관한 이론을 제시하였으며, 이에 따라 재료내의 특정부위에 집중된 응력이 균열의 진전을 통하여 표면 에너지로 해방(release)되는 과정을 파괴현상이라 정의하게 되었다. 또한 균열의 선단에서 계속적인 응력의 집중이 일어나 균열이 최초로 진전되기 시작하는 임계수준을 임계응력확대계수(critical strain energy release rate)라 하고 재료에 따라 고유한 이 수치를 파괴에 저항하는 재료의 강도 즉, 파괴인성으로 규정하였다. 따라서 균열진전에 소모되는 파괴에너지의 양이 증가하면 파괴인성이 증가되어짐을 알 수 있다.

실험 결과에서 나타난 각 복합레진의 filler 함량이 microfilled type에서는 HMdl 42.7%, macrofilled type에서는 CF가 61.0%, CC가 63.9%, 그리고 hybrid type에서는 GF가 67.9%, PF가 73.1%로서 복합레진내에 함유된 입자의 크기에 따라 filler의 첨가한도가 있으며, 특히 치아 와동에 대한 적합성 및 조직의 편이성 등의 한계 때문에 일정정도 이상의 점도를 나타내지 않도록 함입 비율이 조절되어 지는데, 마이크론 단위 이하의 미세입자일수록 동일중량에서도 macrofiller에 비해 입자의 총표면적이 많

으므로 과량의 함유가 어려워진다. 따라서 혼합형의 hybrid type은 macrofiller 사이의 공간에 미세입자를 추가시킴으로써 filler 함량을 어느 한도 이상으로 증가시킬 수 있다.

그러나 본 실험에서 측정된 파괴인성치는 filler 함량이 증가되는 EX, HM, CF, 및 GF 사이에서는 filler 함량이 큰 복합레진일수록 파괴인성치도 크게 나타났으나 CC에서는 다소 감소하였으며, 더욱이 가장 높은 filler 함량을 보인 PF에서는 비교적 낮은 파괴인성치를 보이고 있는데, 이러한 결과는 Lloyd²²⁾의 실험에서도 Filler 함량 66%와 74% 간에서 filler 함량이 증가되었으나 파괴인성은 오히려 감소되었다는 보고내용과 유사한 것으로 생각된다. 복합재료내에서 filler 입자의 첨가에 따른 파괴인성의 강화현상은 취성재료의 파괴이론¹⁶⁾에 의하면 입자가 많이 함유될수록 재료의 파단면 면적이 커지므로 표면에너지로 전환되는 파괴에너지의 양이 증가되는 것에 기인한다. Lange³²⁾ 및 Lange와 Radford³³⁾는 입자의 첨가에 따른 복합재료의 인성 강화기전을 더욱 구체화하여 파괴에너지를 다음의 식(3)로 나타내었다.

$$r = r_0 + F(D) \cdot T/d \dots\dots\dots (3)$$

이때 r는 파괴에너지, r₀는 기질의 파괴에너지, F(D)는 입자의 직경과 관련된 인자, T는 균열선단의 진전거리, 그리고 d는 입자간 거리를 나타내므로 F(D) · T/d의 값이 커질수록 입자의 첨가에 따른 인성강화현상은 증가될 수 있다. 즉, 입자와 관련된 인자만을 생각할 때 입자의 직경이 클수록, 또한 입자간의 거리가 적을수록 r값이 증가되는 것을 알 수 있다. 입자간의 거리를 감소시키기 위해서는 단위 용적내에 많은 양의 filler 입자를 함유시켜야 하며, 따라서 파괴역학적 분석은 중량비함량(weight %)이 아닌 체적비함량(volum %)의 값과 밀접한 관계에 있게 된다. 본 연구에서도 이러한 이유로 filler 중량비함량을 측정한 후 체적비함량으로 환산한 값을 파괴인성치와의 관계 분석에 사용하였다.

본 실험의 결과에서도 입자의 직경이 큰 macrofiller type의 CF와 CC, 그리고 hybrid type의 GF가 microfiller type의 HM에 비해 더 높은 파괴인성치를 보이고 있으며, filler 함량이 높아서 입자간 간격이

상대적으로 감소되어 있을 것으로 추정되는 hybrid type의 GF에서 가장 높은 파괴인성치를 나타내고 있어 위의 Lange의 이론에 상응한다고 판단되나, 같은 macrofilled type의 CF와 CC, 그리고 같은 hybrid type의 GF와 PF 사이에서 filler 함량과는 반대의 파괴인성치를 나타내는 점은 음미해 볼 필요가 있다. 이러한 반대현상이 각 복합레진의 기질조성, 입자의 표면처리 방법 및 입자의 성상에 따른 차이인지를 본 실험의 결과만으로는 명확히 파악할 수는 없지만, Young과 Beaumont³⁴⁾는 silica입자로 강화시킨 epoxy레진의 파괴거동에 관한 연구에서 filler 함량이 일정한도를 넘으면 입자간격의 지나친 감소로 인하여 입자주위의 응력장이 중첩되고 상호작용을 야기하여 파괴에너지의 양이 감소하며 결과적으로 파괴인성이 저하되었음을 보고하였고, Broutman과 Sahu²⁸⁾, Mallik와 Beaumont³⁵⁾ 등도 이와 같은 견해를 나타내고 있다.

Acoustic Emission은 재료 내부의 국소적인 파단이나 변형에 따라 해방되는 에너지 중 일부가 탄성파의 형태로 재료매질을 통하여 방출되는 현상으로, 압전방식의 변환자(sensor)를 피검체의 표면에 부착시켜 탄성과 방출의 정도와 양상 등을 분석함으로써 재료내부의 미세한 파괴나 결함 등을 검출해 내는 비파괴검사법을 AE법³⁶⁾이라 하며, 본 실험에서는 복합레진의 파괴인성에 기인하는 파괴거동을 관찰할 목적으로 AE를 측정하였다.

AE사상계수 - 진폭 분포도(Fig. 4)에서 unfilled type의 시작레진은 noise threshold level인 52dB 이상에서 불과 10개 이내의 사상계수를 나타내고 있으며 그 강도 역시 미미하게 나타나 파단응력에 대해 레진기질이 거의 저항하지 못한 결과를 보이고, microfilled type의 HM에서도 강도가 상대적으로 약한 탄성파를 나타내어 균열진전에 대해 미세입자에 의한 저지효과가 거의 무력함을 시사하고 있다. 이에 비해 macrofilled type의 CF와 CC에서는 AE사상계수가 약 300개 이상으로 나타나 많은 양의 내부 에너지가 방출되었음을 알 수 있으며, 균열전단의 진전에 따라 입자 계면의 분리나 작은 크기의 입자의 파절 등의 현상을 추정해 볼 수 있으며 이러한 양상은 파단면의 주사전자현미경적인 조건에서도 확인되고 있다. AE의 방출특성^{36, 37)}은 크게 나누어서 지속적인 양태의 연속형 파형과 심한 충격 등으로 인한 돌발형

파형으로 구분할 수 있는데 위에서 설명한 바 있는 noise threshold level의 조절에 따라 파형의 진폭이 비교적 큰 돌발형의 방출을 검출할 수도 있으나 피검체의 매질 성상이나 검사방법에 따라서도 검출 파형에 차이가 나타날 수 있다. 따라서 파형의 진폭이 큰 경우는 복합레진내의 입자의 파절이나 응력집중이 강한 부위에서의 입자계면의 급작한 분리현상 등에서 방출될 수 있으며, macrofiller의 거대입자 주위에서 균열이 진행되어 나가는 동안에 입자 표면의 불규칙하고 거친 양상과 거대입자의 주위를 우회하는 균열전단의 bowing현상에 의해서 입자 직경의 증가에 따라 한층 더 높은 에너지를 방출케 되어 비교적 진폭이 큰 파형의 AE 양상을 보이게 된 것으로 사료된다.

시간경과에 따른 AE진폭의 분포도(Fig. 5)에서 시작레진인 EX에서는 실험 초기 140초 부위에서 소규모의 AE가 급격히 방출되었고 microfilled type의 HM에서도 이와 유사한 방출 양상을 보이거나 방출 시간대가 EX에 비해 다소 지연되어 나타났으므로 응력집중에 대한 미량의 저지력이 작용했음을 추정할 수 있으며, macrofilled type의 CF와 CC에서는 약 52dB 내지 86dB 범위의 강도를 가진 AE가 파단시점까지 일정시간동안 지속적으로 방출되고 있으며 파단면 소견에서도 직경 약 5 μ m 크기의 입자들이 소수 파괴된 양상과 이보다 큰 직경의 거대입자에서는 계면이 분리된 양상을 동시에 나타내고 있다. 이는 복합레진 내부에서 응력집중에 따라 균열전단이 진전될 때 일차적으로 filler 입자에 부딪혀서 입자에 의한 pinning 효과가 나타나며 그 다음에는 작은 직경의 입자일 경우 균열이 입자 내부를 통과함으로써 입자가 파단되고 큰 직경일 경우는 입자의 계면을 따라 우회(bowing effect)하게 되어 계면분리의 결과를 나타낸 것으로 판단되며, 이러한 내부의 변화들이 AE특성에 따라 진폭이 다소 큰 돌발형의 파형을 방출케된 것이다. 또한 macrofiller의 입자 중에서 상대적으로 직경이 적은 일명 fine size의 입자들이 파단됨으로써 파괴에너지를 상당량 흡수하여 균열전단의 응력을 완화시켜 파괴인성치를 배가한 결과를 나타낸 것으로 보여서 일종의 micro-rack toughening effect가 작용한 것으로 추정해 볼 수 있다.

복합레진내에 함유된 filler 입자의 함량에 따른

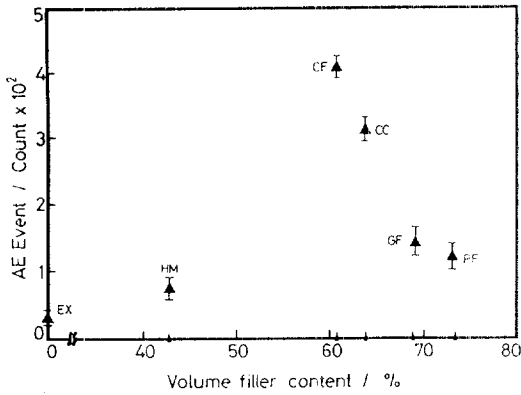


Fig. 7. Relationship between Acoustic Emission event counts and volume filler content of tested composite resin materials.

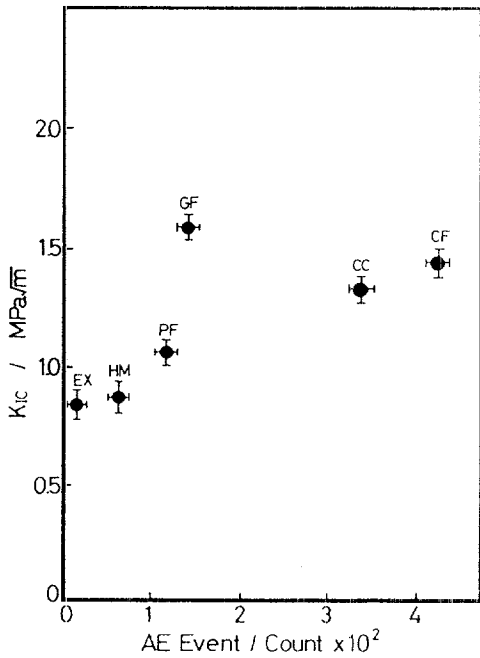


Fig. 8. Relationship between fracture toughness value(K_{1c}) and Acoustic Emission event counts of tested composite resin materials.

AE사상계수의 방출정도는 Fig. 7로 나타났으며, macrofilled type의 CF의 filler 함량 약 60%에서 가장 많은 방출량을 보이고 그 이상의 함량 증가에서는 오히려 AE사상계수가 적게 나타나고 있다. 이러한 관계는 이미 설명한 기타의 요인에 따른 영향도 작

용하였을 것으로 해석할 수도 있으나, 입자함량의 증가에 따른 입자간 간격의 지나친 감소로 인해 재료 내부의 인접균열간에 상호작용이 개입되어 영향을 미친 것으로 해석할 수도 있다. 또한 입자의 형태에 따라서도 균열 양면간의 마찰(slip) 등에 의해 파형 방출특성에 차이가 있음을 고려할 때 동일 함량에서 상이한 형태의 입자를 대상으로, 또는 유사형태에서 함량의 변화에 따른 지속적인 연구가 필요함을 인식할 수 있다.

AE사상계수의 방출량과 각 복합레진에서 측정된 파괴인성의 정도와의 관계를 도표로 나타낸 바 Fig. 8과 같았으며, GF를 제외한 unfilled type의 EX, microfilled type의 HM, macrofilled type의 CC, 및 CF 간에서 파괴인성치가 $0.80 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 로 부터 $1.42 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 사이에서 점차 커질수록 AE사상계수는 약 9에서부터 약 400까지 큰 폭으로 상승하는 관계를 나타내었다. 이러한 관계는 AE사상계수가 파괴에너지의 해방율(G_{1c})에 직접적인 영향을 받으며 에너지 해방율은 다시 파괴인성치의 제곱값에 비례하는 관계이므로 파괴인성치상의 적은 차이가 훨씬 큰 폭의 AE사상계수의 차이를 나타낸 것으로 사료되며, AE사상계수는 파괴인성치에 의해 매우 민감한 영향을 받는다고 한 Evans³⁹⁾의 연구결과와 유사한 양상이었다. 한편, hybrid type의 GF는 본 실험에 사용된 복합레진 중 가장 높은 파괴인성치를 보였으나 AE사상계수는 비교적 적었는데 이는 Fig. 4 및 Fig. 3에 나타난 바와 같이 약 80dB 이상의 비교적 큰 진폭의 AE가 어느 정도 방출된 점으로 미루어 같은 hybrid type의 PF에 비해 직경이 큰 거대입자가 혼입되었다는 것을 시사하며, 이러한 해석은 파단면 소견에서와 정확히 일치하고 있다. 또한 Fig. 3에 나타난 바와 같이 일정한도 이상의 입자함량에서도 다른 복합레진과 달리 더 높은 파괴인성치를 보인 점은 직경이 수십 μm 에 이르는 거대입자가 혼입되어 있을 뿐 아니라, 입자와 기질 간의 계면처리방법에서 통상의 silane coupling 방법이 아닌 graft 방법을 사용하여 계면결합력을 향상시킨 점도 이 결과에 기인했을 것으로 생각된다.

본 실험에서 파단면 소견에 나타난 바와 같이 filler 입자의 대소에 관계없이 다수의 입자표면에서 계면 분리 양상이 보인 것은 계면결합처리가 완전하지 못함을 간접적으로 시사하고 있으며, Agarwal 등³⁹⁾은

복합레진에 외력이 가해지면 레진기질과 입자간의 탄성계수의 차이로 인해 응력은 계면에 집중되고 이때 계면접착력이 클 경우에는 응력의 집중점이 입자의 양극쪽으로 치우치게 되어 균열선단이 bowing 현상을 나타내므로 균열진전에 대한 저항이 증대된다고 하면서 계면접착력이 파괴인성과 밀접한 관계에 있음을 보고하였으나, Troung과 Tyas⁴⁰⁾는 계면접착력이 증대될수록 파괴인성이 높아지나 그 효과는 filler 함량보다는 적었다고 보고하였다.

이상을 총괄해 볼 때 filler 함량과 입자의 크기에 따른 파괴거동이 복합레진의 수복재료로서의 파괴특성에 중요한 변수로 작용함을 알 수 있었으며 이를 토대로 구치부 수복용 복합레진의 내구성 향상을 위해서는 레진기질과 입자간의 계면결합력의 증대 및 레진기질 자체의 중합인자 개선 등에 관한 연구가 계속되어야 할 것으로 사료된다.

V. 결 론

구치부 수복용 복합레진의 내구성을 향상시키기 위해서는 파괴역학적 분석방법에 따른 파괴특성의 파악이 필수적인 것으로 판단하여 각 복합레진의 filler 함량 및 입자의 양상이 파괴거동에 미치는 영향을 관찰하고자, 3점 굴곡시험을 통하여 파괴인성치(K_{IC})를 측정하고 이와 동시에 Acoustic Emission을 통하여 파괴거동의 차이를 분석한 후 파단면의 주사전자현미경적 소견 등과 비교 검토하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 복합레진의 파괴인성치는 unfilled type의 시작레진에 비해 높았으나, $0.85 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 내지 $1.60 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 의 다양한 값을 보였다.
2. 복합레진의 파괴거동은 Acoustic Emission 분석상에서 filler 함량 및 입자 크기에 따라 뚜렷한 차이를 보였으며, Acoustic Emission 방출양상은 파괴특성과 밀접한 관계를 나타내었다.
3. Filler 입자에 의한 파괴거동의 변화는 일정하고 까지의 입자간 거리의 감소와 입자직경의 증가에 따라 균열진전에 대한 저항력이 증대됨을 보였다.
4. 파괴인성치가 클수록 표면에너지로 해방된 파괴응력의 정도를 나타내는 파단면양상이 불규칙하고 거친 소견을 보였다.

REFERENCE

1. Raptis, C. N., Fan, P. L., and Powers, J. M. : Properties of microfilled and visible light - cured composite resins. J. Am. Dent. Assoc., 99 : 631-633, 1979.
2. Harrison, A., and Draughn, R. A. : Abrasive wear, tensile strength, and hardness of dental composite resins - Is there a relationship? J. Prosthet. Dent., 36(4) : 395-398, 1976.
3. Fujii, K., Ginya, K., Arikawa, H., Kanie, T., Jyoshin, K., Inoue, K., Kuroki, K., and Uchiyama, C. : Composite restorative resins. Part 2 Physical and mechanical properties of UV and visible light - activated composite resins. Dent. Mater. J., 5(2) : 252-259, 1986.
4. Asmussen, E., and Jorgensen, K. D. : Fatigue strength of some resinous materials. J. Dent. Res., 90 : 76-79, 1982.
5. Vann, W. F., Barkmeier, W. W., and Mahler, D. B. : Assessing composite resin in primary molars : Four - year findings. J. Dent. Res., 67(5) : 876-879, 1988.
6. Crumpler, D. C., Heymann, H. o., Shugars, D. A., Bayne, S. C., Leinfelder, K. F. : Five - year clinical investigation of one conventional composite and three microfilled resins in anterior teeth. Dent. mater., 4 : 217-222, 1988.
7. Kawaguchi, M., Fukushima, T., and Horibe, T. : Mechanical and physical properties of 2, 2' - Bis(4 - methacryloxypolyethoxyphenyl;) propane polymers. Dent. Mater. J., 62) : 148-155, 1987.
8. Kurata, S., and Yamazaki, N. : Effect of isocyanatosilane coupling agents on silica surface. The journal of Japanese Society for Dental Materials and Devices., 7(5) : 729-735, 1988.
9. McCabe, J. E., and Carrick, T. E. : Output from visible - light activation units and depth of cure of light - activated composites. J. Dent. Res., 68 (11) : 1534-1539, 1989.

10. Loyes, K., Lambrechts, P., Vanherle, G., and Davidson, C. L. : Material development and clinical performance of composite resin. *J. Prosthet. Dent.*, 48(6) : 664-672, 1982.
11. Lambrechts, P., Ameye, C., and Vanherle, G. : Conventional and microfilled composite resins. part II ; Chip fractures. *J. Prosthet. Dent.*, 48 : 527-538, 1982.
12. Wendell, J. I., Vann, W. F. : Wear of composite resin restorations in primary versus permanent molar teeth. *J. Dent. Res.*, 67(1) : 71-74, 1988.
13. Osborne, J. W., Gale, E. N., Ferguson, G. W. : One - year and two - year clinical evaluation of a composite resin vs. amalgam. *J. Prosthet. Dent.*, 30(5) : 795-800, 1973.
14. Draughn, R. A. : Compressive fatigue limits of composite restorative materials. *J. Dent. Res.*, 58(3) : 1093-1096, 1979.
15. Lloyd, C. H. : The fracture toughness of dental composites. II. The environment and temperature dependence of the stress intensification factor(K_{IC}). *J. Oral Rehabil.*, 9 : 133-138, 1982.
16. Powers, J. M., Roberts, J. G., and Craig, R. G. : Surface failure of commercial and experimental restorative resins. *J. Dent. Res.*, 55(3) : 432-436, 1976.
17. Leinfelder, K. F. : Composite resins in posterior teeth. *Dent. Clin. North. Am.*, 25 : 357-364, 1981.
18. Griffith, A. A. : The phenomena of rupture and flow in solids(Philosophical Transactions of Royal Society, 221A : 163-177, 1920). Republished with additional momentary in Transaction of American Society for Metals, Metals Prak, Ohio, pp. 871-887, 1968.
19. Irwin, G. R., and Paris, P. C. : Fundamental aspects of crack growth and fracture. *Fracture, An advanced treatise* edited by Liebowitz, H., Vol. 3, Academic Press, New York, pp. 1-46, 1971.
20. Roberts, J. C., Powers, J. M., and Craig, R. G. : Fracture toughness of composite and unfilled restorative resins. *J. Dent. Res.*, 56(7) : 748-753, 1977.
21. De Groot, R., Van Elst, H. C., and Peters, M. C. R. B. : Fracture mechanics parameters for failure prediction of composite resins. *J. Dent. Res.*, 67(6) : 919-924, 1988.
22. Lloyd, C. H. : Resistance to fracture in posterior composites. *Br. Dent. J.*, 155 : 411-414, 1983.
23. Lloyd, C. H. : The fracture toughness of dental composites. III. The effect of environment upon the stress intensification factor(K_{IC}) after extended storage. *J. Oral Rehabil.*, 11 : 393-398, 1984.
24. Ferracane, J. L., Antonio, R. C., and Matsumoto, H. : Variables affecting the fracture toughness of dental composites. *J. Dent. Res.*, 66(6) : 1140-1145, 1987.
25. Matsumoto, H. : The fracture toughness of composite resins. *The journal of Japanese Society for Dental Materials & Devices.* 7(5) : 756-768, 1988.
26. 박진훈, 민병순, 최호영, 박상진 : 치과용 복합레진의 파괴인성에 관한 실험적 연구. *대한치과보존학회지*, 15(2) : 17-33, 1990.
27. Lloyd, C. H., and Mitchell, L. : The fracture toughness of tooth coloured restorative materials. *J. Oral Rehabil.*, 11 : 257-272, 1984.
28. Broutman, L. J., and Sahu, S. : The effect of interfacial bonding on the toughness of glass filled polymers. *Mater. Sci. Eng.*, 8 : 98-107, 1971.
29. Lloyd, C. H., and Iannetta, R. A. : The fracture toughness of dental composites. *J. Oral Rehabil.*, 11 : 393-398, 1984.
30. ISO 4049 : Resin based dental filling materials, International Organization for Standardization, 1978.
31. ASTM E 399-74 : Standard test method for plain - strain fracture toughness of metallic materials, American National Standards Institute, 1974.

32. Lange, F. F. : Fracture energy and strength behavior of a sodium borosilicate Glass - Al_2O_3 composite system. *J. Am. Cera. Soc.*, 54 : 614-620, 1971.
33. Lange, F. F., and Radford, K. C. : Fracture energy of an epoxy composite system. *J. Mater. Sci.*, 6 : 1197-1203, 1971.
34. Young, R. J., Beaumont, P. W. R. : Failure of brittle polymers by slow crack growth. *J. Mater. Sci.*, 10 : 1343-1350, 1975.
35. Mallick, P. K., and Broutman, L. J. : Mechanical and fracture behaviour of glass bead filled epoxy composites. *Mater. Sci. Eng.*, 18 : 63-73, 1975.
36. 岸輝雄, 志波光晴 : **** 傷* 追*. 丸善株式會社, 東京都, pp. 110-134, 1989.
37. Kim, K. H., and Kishi, T. : Three dimensional AE source location in metals. *Nondestructive testing communication*. 3 : 75-88, 1987.
38. Evans, A. G. : Acoustic Emission sources in brittle solids. *Fundamentals of Acoustic Emission* edited by Ono, D., UCLA, California, pp. 209-227, 1978.
39. Agarwal, B. D., Panizza, G. A., and Broutman, L. J. : Micromechanics analysis of porous and filled ceramic composites. *J. Am. Cera. Soc.*, 54 (12) : 620-624, 1971.
40. Truong, V. T., and Tyas, M. J. : Prediction of in vivo wear in posterior composite resins : a fracture mechanics approach. *Dent. Mater.*, 4 : 318-327, 1988.

ACOUSTIC EMISSION ANALYSIS FOR FRACTURE CHARACTERISTICS OF DENTAL POSTERIOR COMPOSITES

Jin - Hoon Park*, Kyo - Han Kim

Department of Conservative Dentistry & Dental Materials
College of Dentistry, Kyungpook National University*

Dental composite resin is a kind of the particle - reinforced composite material, and is widely used in recent dental restoration of anterior and posterior tooth region. The purpose of this study was to investigate the fracture behaviour according to volume fractions and external findings of the filler particles for better interpretation of the fracture characteristics of posterior dental composite resins by analytic method of fracture mechanics. The plane strain fracture toughness (K_{Ic}) and Acoustic Emission were determined with three - point bending test using the single edge notch specimen according to the ASTM - E399, and its analyzed data was compared with filler volume fractions derived from the standard ashing test and scanning electron fractographs of each specimen including the unfilled experimental resin as a control.

The results were that the value of fracture toughness of the composite resin material was in the range from $0.85 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ to $1.60 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ and was higher than the value of the unfilled experimental resin, and the fracture behaviours derived from Acoustic Emission analysis show prominent differences according to the volume fraction and the size of filler particles used in each composite resin. The degree of resistance against crack propagation seems to be increase and the fractographs demonstrate the high degree of surface roughness and irregularity according with the increase of fracture toughness value.

Key words : Dental composite resins, Fracture characteristics, Filler, Acoustic Emission, Fracture toughness,