

유기복합필러를 포함하는 치과용 콤파짓트 레진의 마모거동(제1보)

임정일 · 김교한* · 김석삼**

경북대학교 대학원 기계공학과, *경북대학교 치과대학
**경북대학교 기계공학부

Wear Behaviours of Dental Composite Resins Containing Prepolymerized Particle Fillers (1st Report)

Jing-Ri Ren, Kyo-Han Kim* and Seock Sam Kim**

Graduate School, Department of Mechanical Engineering, Kyungpook National University

*Department of Dental Biomaterials, Kyungpook National University

**Department of Mechanical Engineering, Kyungpook National University

Abstract—The wear characteristics and wear mechanisms of dental composite resins were investigated. Composite resins such as Metafil, Silux Plus, Heliomolar and Palfique Estelite were selected as specimens and contents of filler in specimens in order to evaluate the effect of Prepolymerized Particle Fillers in friction and wear characteristics. Ball on flat wear tester was used for the wear test at room temperature. The friction coefficient of Metafil was quite high relatively, and the wear resistances of Silux Plus and Palfique Estelite were better than that of Metafil and Heliomolar at the same experimental condition. It was found that The main wear mechanism is plastic flow and abrasive wear by failure of filler's bond to the matrix.

Key words—wear mechanism, prepolymerized particle filler, composite resin, dental material.

1. 서 론

구치(臼齒)수복에 있어서 주로 사용되어 왔던 아말감은 수은용출과 심미성 등의 문제로 1970년부터 콤파짓트레진이 개발 되어왔다. 그 이후 기계적 성질과 내마모성의 향상 등으로 인해 콤파짓트레진의 장기간의 임상적용에 대한 양호한 임상성적이 발표되고 있다[1-3]. 최근에는 콤파짓트 레진의 기계적 성질, 연마성, 중합수축, 심미성 등을 향상시키기 위해 필러, 레진, 모노머, 중합개시제, 실레인 커플링제 등에 대한 연구가 다양하게 이루어지고 있다.

교합(咬合)접촉부에서 콤파짓트 레진은 아말감보다 압축강도와 파괴인성 및 내마모성이 낮은 문제점들이 지적되고 있으므로[4] 내마모성의 증가 목적으로 필러의 구상형 초미세입자와 함유량에 대한 관심이 증가되고 있으며 콤파짓트레진의 개선을 위한 재료

과학적 설계들이 진행되고 있다.

구치부의 마모는 교합접촉부와 교합비접촉부의 마모로 나눌 수 있으며, 반복하여 가해지는 교합력 또는 거기에 동반하는 피로, 음식물 등의 마찰이 크게 작용한다. 교합접촉부는 구치와 콤파짓트레진이 직접 접촉하여 마모되는 부위이고 교합비접촉부는 일정한 마모가 진행된 후에 직접적인 접촉 없이 음식물과 같이 마모가 되는 부위이기 때문에 두 부위의 마모량에는 큰 차이가 있고, 같은 구치교합면에서도 마모기구가 다르다.

콤파짓트레진의 내마모성에는 필러의 재질, 형태, 크기, 입도, 분포, 함유농도, 배합방식 및 레진 매트릭스 등이 복합적으로 관여한다[5]. 유기복합필러는 단순히 필러의 함량을 증가시키는 효과뿐만 아니라 유기복합필러 자체의 강도, 유기복합필러와 매트릭스 사이의 결합강도, 유기복합필러의 형태 등도 콤파짓

트레진의 물성에 크게 영향을 미칠 것으로 예상된다.

본 연구에서는 유기복합필러가 콤파짓트레진의 마찰·마모특성에 미치는 영향과 교합접촉부에서 콤파짓트레진의 마모기구를 해석하기 위해 마찰·마모시험기를 제작하여 유기복합필러를 포함하는 콤파짓트레진에 대해 마찰·마모실험을 수행하였다[6]. 또한 각 시험편의 마찰·마모특성에 정성적이고, 정량적인 검토를 하고 주사형 전자현미경(SEM)을 이용하여 조직관찰 등을 통해 콤파짓트레진의 마모면의 마모기구를 규명하고 유기복합필러와 필러함량이 콤파짓트레진의 내마모성에 미치는 영향을 규명하였다.

2. 실험

2-1. 실험장치 및 방법

본 연구에서 사용된 마찰·마모시험기는 치과용 재료로서의 마모상태를 실험적으로 재현하기 위해 선형왕복운동을 하는 실험장치를 자체 제작하여 사용하였다. 본 실험장치의 특성은 미끄럼 속도를 0.1~1,000 mm/sec 범위에서 무단 변속할 수 있으며, 미끄럼거리는 0.2~10 mm까지 조정이 가능하다. 그리고 control timer가 부착되어 있어 실험시간을 0~6000분까지 조정할 수 있기 때문에 임의의 시간 동안 실험이 가능하다. 시험편에 가해지는 하중은 deadweight를 사용하여 1~100 N의 범위에서 임의로 바꿀 수 있으며 마찰·마모실험시에 발생하는 마찰력은 인장 압축로드셀과 indicator를 통해서 증폭되어서 나오는 전압신호를 아날로그/디지털 변환기(PCL812 analog/digital converter)로 변환시켜 컴퓨터에 입력한다. 그 외 온도 조절기를 장착하여 실온~100°C 사이

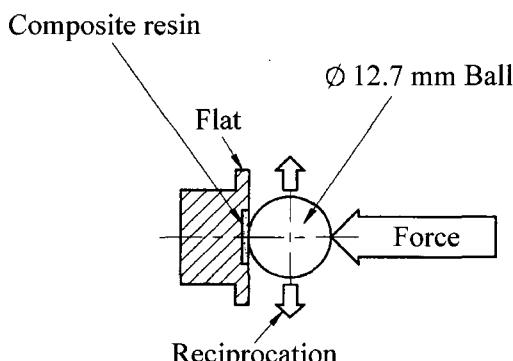


Fig. 1. Schematic illustration of ball on flat wear test.

의 일정 온도에서 마찰·마모실험을 할 수 있으며 마찰력은 200 N까지 측정이 가능하다.

실험방법은 Fig. 1에서 나타낸 바와 같이 평판 위에서 선형왕복운동을 하는 볼에 일정한 하중으로 가압하는 볼 온 평판 마찰계(ball on flat tribometer) 형식을 사용하였다.

본 실험은 상온, 상압, 무윤활상태에서 마찰·마모실험을 수행하였다. 실험순서는 초음파세척→건조→마찰·마멸시험→초음파세척→건조→현미경관찰→표면거칠기측정 순으로 수행하였다.

마찰·마모의 실험조건으로 볼의 왕복 미끄럼속도를 50 mm/min, 미끄럼거리를 2 mm, 하중은 9.8 N으로 일정하게 하였으며, 시험편 접촉부의 최대 헤르쯔압력은 Metafil의 경우 86.2 MPa, Silux Plus의 경우 135.8 MPa, Heliomolar의 경우 119.1 MPa, 또한 Palfique Estelite의 경우는 134.9 MPa였다. 1000사이클마다 표면거칠기 측정기(Mitutoyo, Surf-500)를 사용하여 시험편 트랙부에서 수직되는 두 곳의 단면곡선을 측정하고 그 값을 평균하여 마모부피를 계산하였다. 보다 정확한 마모부피의 측정을 위해 1000사이클마다 볼의 접촉면을 바꾸어 동일한 마모트랙의 기하학적 형상을 유지시키면서 실험을 계속하였다.

그리고 실험수치의 정확성을 위해 모든 실험은 3회이상 반복하여 그 평균치로서 비교하였다.

2-2. 시험편

본 실험에서 사용된 시험편은 콤파짓트 레진 중 분쇄 유기복합필러를 포함하는 Metafil, Silux Plus, Heliomolar, Palfique Estelite 등 4종류의 재료를 선택하여 실험을 수행하였다.

필러의 함유량은 콤파짓트레진의 내마모성에 관여 하므로[7-9] 각 시험편의 필러의 함유량은 ISO No. 4049에 규정된 Standard Ash Method에 의해서 측정하였으며 Table 1에서 중량백분율로 필러의 함유량

Table. 1. Filler fractions of Composite resins containing prepolymerized particle fillers

Brand Name	Filler Vol.% (wt.%)
Metafil	25.7(41.88)
Silux Plus	37.1(55.14)
Heliomolar	41.2(59.31)
Palfique Estelite	51.1(68.55)

을 나타내었다. 시험편의 형상은 Fig. 1에서 나타내었다.

시험편은 Fig. 1과 같은 형상의 지그에 직경이 5 mm, 깊이 1 mm의 흄을 만들고 그 흄에 각 콤팩트레진을 충전하고 슬라이드 글라스로 덮어 광조사기로 30초간 광조사시킨 후 30분간 실온에 방치하고 1차로 SiC연마지 #400 Cw, #600 Cw, #800 Cw의 순서로 연마한 후 37°C의 항온로에서 24시간 경과시켜 제작하였다. 그리고 2차로 연마지 #1000 Cw, #1500 Cw으로 물을 묻혀서 표면조도를 0.1 μmRa로 연마한 후 마찰·마모실험을 수행하였다.

Fig. 2는 콤팩트레진의 연마면의 SEM 사진으로 시험편내부에 포함된 유기복합필러의 형상과 내부에 포함된 필러의 형태와 분포를 나타내고 있다.

Metafil은 30~60 μm의 둥근 형태의 분쇄 유기복합필러와 5~10 μm의 무정형의 분쇄 유기복합필러 그리고 레진 매트릭스에 구상의 필러가 포함된 형태를 나타내었다. 사진에서 알 수 있는 것과 같이 레진 매트릭스에 포함된 구상 필러는 입자의 크기가 0.1~0.2 μm, 분쇄 유기복합필러에 포함된 구상 필리는 이보다 더 작은 0.05 μm 이하의 구상 필러로 구성되어 있음을 알 수 있다. Silux Plus는 5~30 μm의 다양한 크기와 형상의 유기복합필러로 구성되어 있으며 유기복합필러와 레진 매트릭스는

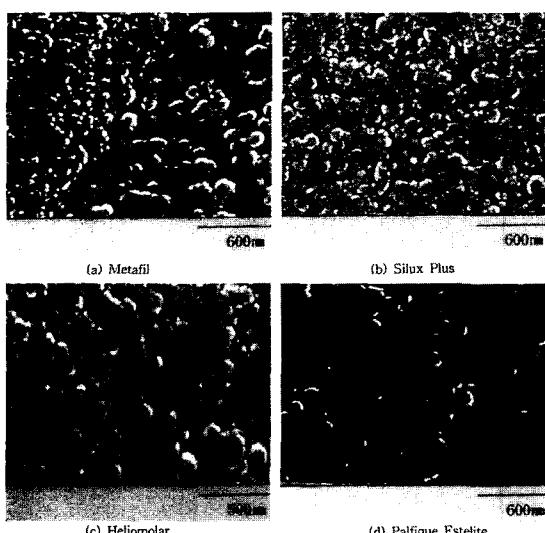


Fig. 2. SEM photographs of ground surface for specimens.

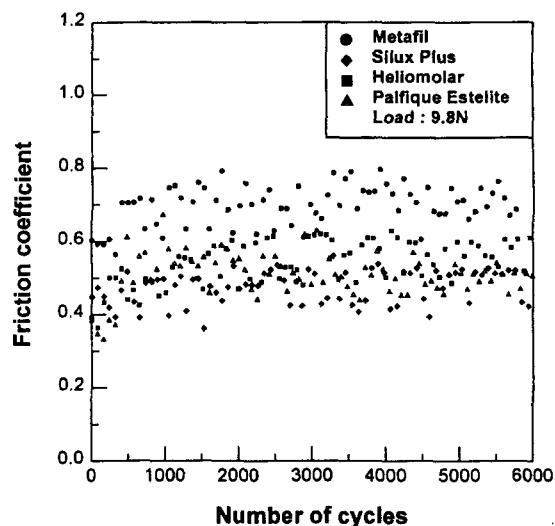


Fig. 3. Friction coefficient of specimens as a function of the number of cycles.

약 0.1~0.2 μm의 구상 필러로 구성되어 있으며, Heliomolar은 30 μm 정도의 둥근 형태의 유기복합필러 일부와 수 μm에서 10 μm 크기의 무정형 유기질복합필러로 이루어져 있고 이를 유기복합필러와 레진 매트릭스는 0.05~0.1 μm 크기의 구상 필러로 구성되어 있으며, Palfique Estelite는 수 μm에서 30 μm 이하의 다양한 크기의 무정형 유기복합필러로 이루어졌고 이를 유기복합필러와 레진 매트릭스는 0.05~0.1 μm 정도의 구상 필러가 구성하고 있음을 알 수 있다.

상대시험편은 마찰·마열과정에서 상대적으로 마열이 되지 않는 직경이 12.7 mm의 질화규소(Si_3N_4) 볼을 선택하였다. 볼의 경도는 Hv 1562로서 콤팩트레진보다 비교적 높은 경도를 가지고 있다. Table 2에서는 각 시험편의 기계적인 특성을 나타내었다.

Table. 2. Mechanical properties of specimens

Brand Name	Vickers hardness, (MPa)	$K_{IC}^*(\text{MPa}\sqrt{\text{m}})$
Metafil	48.18	0.63±0.01
Silux Plus	63.18	0.81±0.07
Heliomolar	54.31	0.84±0.02
Palfique Estelite	71.74	0.85±0.01
Si_3N_4	1562	

3. 실험결과 및 고찰

3-1. 마찰특성

본 실험은 상온, 상압, 무윤활 상태에서 왕복 미끄럼속도를 50 mm/min, 하중은 9.8 N으로 일정하게 하고 마찰·마모실험을 수행하였다.

Fig. 3에서는 사이클 수에 따른 각 시험편의 마찰계수의 분포곡선을 나타내고 있다. 여기서 동일한 조건에서 각 시험편의 마찰계수의 변화는 일정한 것을 알 수 있다.

Fig. 4는 동일한 조건에서 각 시험편의 마찰계수의 평균값을 나타낸 것이다.

Metafil의 평균마찰계수는 0.67으로 다소 크게 나타났다. 이것은 4가지 시험편중에서 경도치가 제일 작은 것으로 상대시편 Si_3N_4 볼과의 경도차에 의한 abrasive wear가 상대적으로 크게 발생하여 마모량의 증가와 표면돌기가 크게 형성되어 마찰계수가 상대적으로 크게 나타나는 것으로 추정된다. 그리고 나머지 시편 Silux Plus, Heliomolar 및 Palfique Estelite의 평균마찰계수는 각각 0.48, 0.52, 0.53으로 나타났다.

3-2. 마모특성

Fig. 5는 사이클 수에 따른 각 시험편의 마모량의 변화를 나타내고 있다. 사이클 수가 증가함에 따라 각 시험편의 마모량의 변화는 증가하는 경향을 나타내었으며 Silux Plus와 Palfique Estelite의 마모량은 Metafil과 Heliomolar보다 낮은 기울기로 증가함을 알 수 있다.

Fig. 6은 비마모율에 대한 비교로서 각 시험편의

내마모성을 나타낸 그림이다. Fig. 6에서 알 수 있는 바와 같이 비마모율의 순서는 Silux Plus < Palfique Estelite < Metafil < Heliomolar 와 같다. 이것은 시험편의 경도치가 비마모율에 크게 영향을 끼칠 수 있다. 또한 필러의 입자 직경이 크면 표면의 피로가 촉진되고 필러와 레진 매트릭스간에 계면이 형성되면서 유기복합필러의 파괴, 필러와 레진 매트릭스와의 경계면의 파괴 등으로 마모량이 증가한다[9-11]. 또한 Table 1과 Table 2에서 나타난 것과 같이 필러의 함량의 증가로 인한 기계적 성질에도 마모량이 영향을 받음을 알 수 있다.

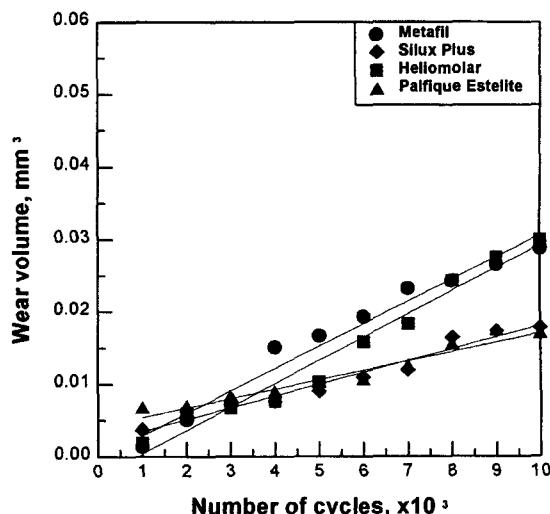


Fig. 5. Variation of wear volume for specimens as number of cycles under 9.8 N.

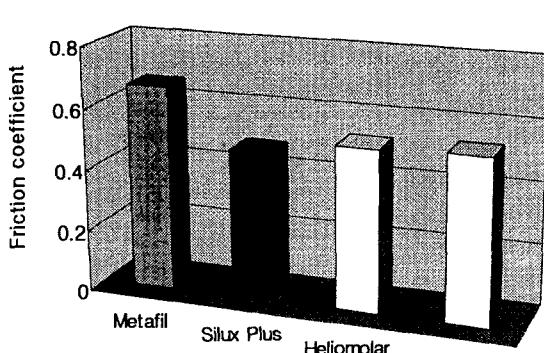


Fig. 4. Average friction coefficient of specimens.

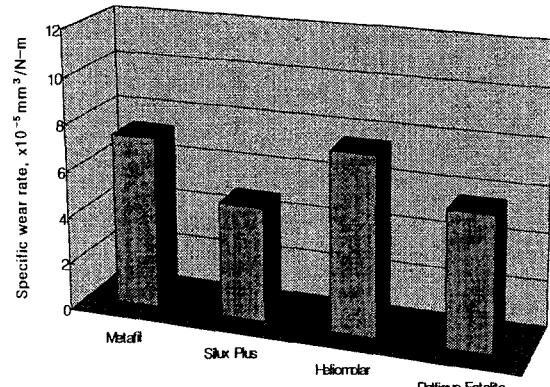


Fig. 6. Variation of specific wear rate for specimens under 9.8 N.

3-3. 마모면의 미시적 관찰

Fig. 7은 9000사이를 실험후(미끄럼거리 36 m)의 각 시험편의 마모면을 주사전자현미경으로 관찰한 것이다.

Fig. 7(a)의 Metafil의 마모면에서는 압축응력과 전단응력의 복합작용으로 접촉부에서의 유기복합필러의 파괴 및 미끄럼 방향에 수직으로 많은 표면균열이 나타나고 있다. 이것은 유기복합필러에 포함된 구상 필러와 레진 매트릭스에 포함된 구상 필러의 입자의 크기차이로 인해 경계면에서 응력집중과 균열의 생성·진전으로 입자들이 탈락되면서 마모가

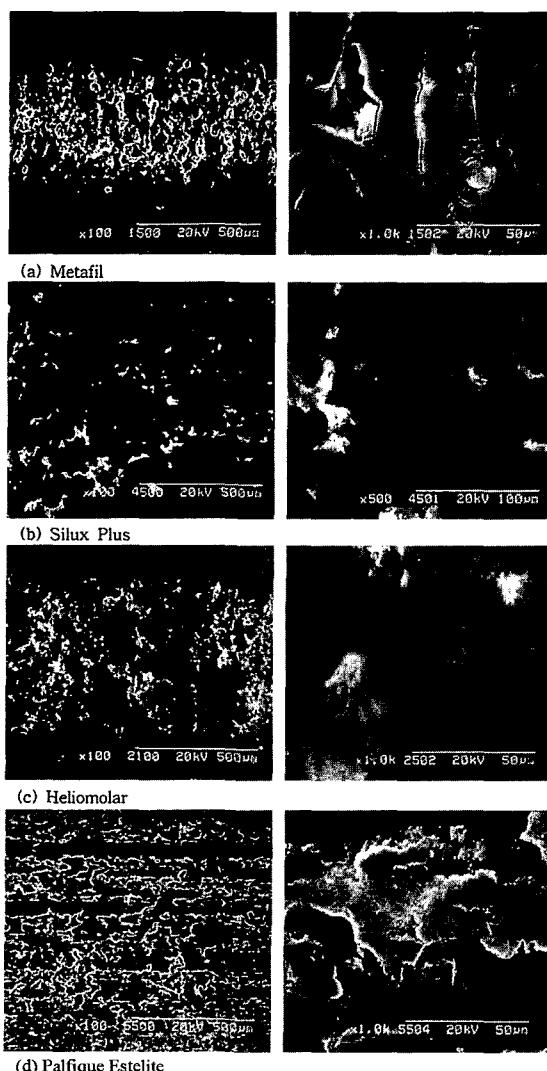


Fig. 7. SEM photographs of worn surface for specimens.

일어남을 알 수 있다.

Fig. 7(b)의 Silux Plus의 마모면에서는 어브레시브 마모면이 선명하게 보이며 표면균열은 선명하게 나타나지 않고 접촉면의 마모입자들이 박편상으로 파괴됨을 알 수 있다. 이것은 유기복합필러에 포함된 구상 필러와 레진 매트릭스, 그 속에 포함된 작은 구상 필러 간의 좋은 결합성으로 필러와 레진 매트릭스가 일체화 되어서 층상으로 마모입자들이 탈락하고 있는 것으로 생각된다. 또한 다양한 크기와 형상의 유기복합필러로 구성되어 있고 많은 함량의 필러로 경도치가 높고 내마모성이 양호하게 나타남을 알 수 있다.

Fig. 7(c)의 Heliomolar의 마모면에서는 유기복합필라와 레진 매트릭스에 함유한 입자들의 탈락이 나타나고 있다. 이것은 유기복합필라와 레진 매트릭스의 결합성과 필라와 레진 매트릭스의 결합성이 낮고 레진 매트릭스가 마모되면서 이를 결합의 박리 등으로 많은 마모 입자들이 탈락되는 것으로 생각된다.

Fig. 7(d)의 Palfique Estelite의 마모면에서는 유기복합필라의 소형변형으로 입자들이 탈락되면서 마모된 상태를 나타내고 있다.

이것은 유기복합필라와 레진 매트릭스에 포함된 구상 필라의 입자 크기는 0.05~0.1 μm 로서 크기가 작고, 유기복합필라와 레진 매트릭스, 필라와 레진 매트릭스와의 좋은 결합성으로 계면강도가 높기 때문에 필라의 결합의 경계면에서의 표면균열은 거의 보이지 않는다.

이상과 같이 본 실험에서 수행된 4종류의 유기복합필라를 포함하는 콤파짓트 레진의 마모기구는 어브레시브 마모와 소성유동임을 알 수 있다.

4. 결 론

유기복합필라를 포함하는 치과용 콤파짓트 레진의 마모거동을 규명하기 위해 분쇄 유기복합필라를 포함하는 Metafil, Silux Plus, Heliomolar, Palfique Estelite의 4종류의 콤파짓트 레진을 제작하여 질화 규소불과의 선형왕복 미끄럼 마찰·마모실험을 상온, 상압, 무윤활 상태에서 수행하고 주사형 전자현미경을 이용한 마모면의 미시적 관찰을 통해 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 각 시험편의 마찰계수는 모두 안정적으로 나타났으며 필라의 함유량이 적고 필라의 입자크기가 다

- 른 Metafil의 마찰계수가 높게 나타났다.
2. 동일한 실험조건에서 필러의 함유량이 많고 경도가 높은 Silux Plus와 Palfique Estelite가 Metafil과 Heliomolar보다 내마모성이 좋게 나타났다.
 3. 각 시험편은 마찰·마모과정에서 압축응력과 왕복전단응력의 복합적인 작용으로 접촉면의 소성유동이 발생하고 유기복합필러가 파괴되고 레진 매트릭스와 그 속에 포함된 구상 필러들의 계면을 따라 표면균열이 생성·전파됨에 따라 어브레이시브 마모가 야기되는 마모기구를 나타냈다.

참고문헌

1. 福島正義, 仲又俊夫, 平田伸明, 佐藤量子, 岡本明, 岩久正明, “化學重合型 コンポジットレジンの磨耗量に関する長期的臨床評價,” 日歯保誌 34, 1-8, 1991.
2. 福島正義, 仲又俊夫, 佃美宏, 湯田純子, 岡本明, 岩久正明, “臼歯用コンポジットレジン修復物の壽命-化學重合型レジンの10年間の観察を通して-,” 日歯保誌 36, 331-340, 1993.
3. 清水建彦, 北野忠則, 井上正義, 小林美保子, 成川公一, 藤井弁次, “臼歯用コンポジットレジン(LITE-FIL P)の12年後の臨床成績,” 日歯保誌 38, 秋季特別號, 73, 1995.
4. Lutz, F., Phillips, R. W., Roulet, J. F., Setcos J. C., “In vivo and in vitro wear of posterior composites,” J. Dent Res 63, 914-920, 1984.
5. 久保至誠, 内藤みゆき, 横田廣彰, 大澤雅博, 松元仁, “コンポジットレジンの摩耗に関する研究,” 日歯保誌 39(2), 492~502, 1996.
6. Wassell, R. W., McCabe, J. F. and Walls, A. W. G., “A Two-body Frictional Wear Test,” J Dent Res 73(9), 1546-1553, 1994.
7. Li, Y., Swartz, M. L., Phillips, R. W., Moor, B. K., Roberts, T. A., “Effect of filler content and size on properties of composites,” J. Dent Res 64, 1396-1401, 1985.
8. Lambrechts PBraem, M. and Vanherle, G., “Evaluation of clinical performance for posterior composite reins and dention adhesives,” Oper Dent Res 12, 53-78, 1987.
9. Suzuki, S., Leinfelder, K. F., Kawai, K., Tsuchitani Y., “Effect of particle variation on wear rates of posterior composites,” Am J. Dent 8, 173-178, 1995.
10. Aziz, R. A. and Harrison, A., “Effect of impact stress on the wear of some restorative materials and enamel,” Dent Mater 3, 9-12, 1988.
11. 堀江恭一, “臼歯用コンポジットレジンの咬耗に関する研究 第2報 臨床評價,” 口病誌, 51, 45-65, 1984.