

## 기질레진과 필러가 UTMA계 광중합형 복합레진의 파괴인성에 미치는 영향

안연실 · 황수진 · 배태성\* · 이광원

전북대학교 치과대학 치과보존학교실, 치과재료학교실\* 및 구강생체과학연구소

### ABSTRACT

#### EFFECT OF RESIN AND FILLER TYPE ON THE FRACTURE TOUGHNESS OF UTMA-BASED LIGHT-CURED COMPOSITES

Yun-Sil Ahn, Su-Jin Hwang, Tae-Sung Bae\*, Kwang-Won Lee

*Departments of Conservative Dentistry, Dental Materials\* and Institute for Oral Bioscience, College of Dentistry, Chonbuk National University*

This study was performed to evaluate the effect of resin and filler type on the fracture toughness of light-activated composites. Experimental composites were prepared using urethane tetramethacrylate(UTMA) and bisphenol glycidylmethacrylate(Bis-GMA) monomers and five different types of silica fillers. Fracture toughness was measured by a single edge V-notched beam(SEVNB) method, which was discussed from ASTM E399-78. Rectangular bars of 2.5×5×26mm were prepared with experimental composites and a notch about 2.25mm deep was carved at the center of the long axis of the specimen using a dental diamond disk driven by a dental micro engine. The flexural test was carried out at a crosshead speed of 0.05mm/min and fracture surfaces were observed under scanning electron microscope.

The results obtained were summarized as follows:

1. The fracture toughness values of UTMA-based composites were relatively higher than those of Bis-GMA-based composites.
2. The highest fracture toughness value was observed in the UTMA-based composite containing the 1.5µm-spherical fillers.
3. Aging in the distilled water at 37°C for 10 days showed the increase of fracture toughness, which was severer in the Bis-GMA-based composites than those of UTMA-based composites.
4. The AE amplitude occurring during the fracture toughness tests was the highest at the point of macroscopic fracture.

### 1. 서 론

구강환경 중에서 일어나는 수복물의 파괴는 과도한 외력이 작용하거나 열화(degradation)로 인해 재료의 외력에 대한 저항력이 감소될 때 일어나며, 이 과정은 보통 재료 내부의 기공, 불완전한 결합계면 및 잔류응력 등의 영향을 받게 된다. 외력이 지속적으로 작용할 때 시간경과에 따라 점진적으로 일어나는 열화는 수복재의 파괴를 야기하는 균열의 개시와 성장으로 이어질 수 있으므로 파괴특성을 평가하기 위해서는 파괴에 대한 저항성의 크기를 표시하는 파괴인

성의 측정이 요구된다<sup>1</sup>.

평면변형의 조건에서 치과용 복합레진의 파괴인성을 측정하기 위해 single-edge notched beam 법, compact tension 법, chevron notch를 형성한 short rod 법과 short bar 법, double torsion 법 등이 적용되어 왔다<sup>2,3</sup>. ASTM E399<sup>4</sup>에서는 single-edge notched beam 법과 compact tension 법에 관하여 규정하고 있으며, 어느 경우에도 파괴는 피로에 의해 도입된 예비균열로부터 균열이 진전되어 일어나야 한다고 규정하고 있다. Double torsion 법에서는 시험중에 생성된 최초의 균열이 계속되는 균열진전에 이용되

므로 예비균열을 생성하는 절차가 필요하지 않으며, chevron notch를 이용하는 short rod 법이나 short bar 법에서는 예비균열로 작용하는 안정한 균열영역을 산출하는 것이 가능하므로 예비균열을 형성할 필요가 없지만, 정확한 크기와 형상을 갖는 노치를 만드는 것이 용이하지 않으며, 파괴를 지배하는 균열이 상대적으로 무딘 chevron notch로부터 진전될 것인가 하는 것이 의문이라고 하였다.

복합레진은 취성이 커서 시편에 피로균열을 만드는 것이 용이하지 않기 때문에 이 과정이 거의 수반되지 못하였다. Ferracane 등<sup>1)</sup>, Kovarik과 Fairhurst<sup>2)</sup>는 형태가 무딘 V-notch의 선단에 피로균열을 삽입하는 대신에 면도칼로 예리한 균열을 형성했을 때 파괴인성치가 저하된다고 하였고, Fujishima와 Ferracane<sup>3)</sup>은 single-edge notched beam 법이 compact tension 법보다 균열선단의 예리한 정도에 더 민감하게 영향을 받는다고 하였다. Kovarik과 Fairhurst<sup>2)</sup>, Kovarik 등<sup>4)</sup>, Zhao 등<sup>5)</sup>은 파괴인성치는 동일한 재료에 대해서도 시험방법에 따라 큰 차이를 보인다고 하였고, Fujishima와 Ferracane<sup>3)</sup>은 복합레진의 파괴인성은 short-rod 법으로 측정할 경우에 가장 높고, compact tension이나 double torsion 법으로 측정할 경우에 가장 낮게 나타났다고 하였다.

복합레진의 기계적 성질은 모노머와 필러의 구성 및 중합 방법에 크게 의존한다. Dulik 등<sup>6)</sup>은 bisphenol glycidyl-methacrylate(Bis-GMA) 레진의 점도 감소를 위해 혼합하는 희석제의 양이 증가할수록 모노머의 경화시간, 강도, 수분흡수 및 열팽창계수와 같은 물성이 크게 영향을 받는다고 하였고, Asmussen<sup>7)</sup>, Brauer 등<sup>8)</sup>은 희석제의 양이 증가함에 따라 레진의 중합수축이 증가된다고 하였다. Kawaguchi 등<sup>9)</sup>은 urethane dimethacrylate(UDMA) 레진의 중심골격구조의 수정으로 인한 모노머의 화학적 구조변화가 복합레진의 물성에 크게 영향을 미친다고 하였고, 또한 Kawaguchi 등<sup>9)</sup>은 중심골격구조가 다른 urethane tetramethacrylate(UTMA) 레진과 Bis-GMA 레진을 모노머로 사용하였을 때 Bis-GMA 계보다 UTMA 계 복합레진의 강성이 더 높게 나타났다고 하였다. 최 등<sup>10)</sup>은 중심골격구조에 6개의 methylene group을 갖는 UTMA 레진을 모노머로 사용하였을 때 Bis-GMA 계보다 UTMA 계 복합

레진의 압축강도가 더 높게 나타났다고 하였고, Yamaga 등<sup>11)</sup>은 복합레진의 강도와 파괴인성이 UDMA 계보다 UTMA 계에서 더 높게 나타났다고 하였다.

본 연구에서는 기질레진과 필러가 복합레진의 파괴인성에 미치는 영향을 평가하기 위해 UTMA 계와 Bis-GMA 계 모노머에 5종류의 실리카 필러를 첨가하여 복합레진을 제조한 다음 single-edge notched beam 법을 적용하여 파괴인성의 변화를 조사하였다.

## II. 재료 및 방법

### 1. 복합레진의 제조

모노머로는 6개의 methylene group의 2, 2, 1 위치에 3개의 methylene group을 중심골격구조에 포함하는 urethane tetramethacrylate(UTMA) 계의 bis(1,3-dimethacryloyloxy propyl)-2, 2, 4-trimethylhexamethylene dicarbamate(Negami Chemical Industrial Co., Ltd., Japan)을 실험군으로 사용하였고, bisphenol glycidyl methacrylate(Bis-GMA) 계의 2, 2-bis[4-(3-methacryloyloxy-2-hydroxypropoxy) phenyl] propane(Shinnakamura Chemical Co., Japan)을 대조군으로 사용하였다. 기질레진을 제조하기 위해 각각의 모노머에 희석제로 methyleneglycol dimethacrylate(TEGDMA; Negami Chemical Industrial Co., Ltd., Japan)를 각각 50/50mol%로 혼합한 다음, 광중합 개시제 comphorquinone(Tokyo Chemical Co., Ltd., Japan)을 0.5wt%, 환원제 2-(Dimethylamino) ethyl methacrylate (N,N-DMAEMA, Tokyo Chemical Co., Ltd., Japan)를 0.5wt% 첨가하였다(Table 1). Fig. 1은 본 연구에서 사용한 UTMA와 Bis-GMA 계의 모노머 및 희석제로 사용한 TEGDMA의 분자구조를 나타낸 것이다.

복합레진을 제조하기 위해 필러로는  $\gamma$ -methacryloyloxy propyl trimethoxy silane( $\gamma$ -MPTS)으로 처리된 5종류의 실리카 필러(Tatsumori Ltd., Japan)를 사용하였다(Table 2). 필러의 배합량은 UTMA 계 모노머에 필러를 첨가하여 유발혼합을 행하였을 때 최대의 함량을 보일 때를

**Table 1.** Monomers used in this study

Materials	Batch No.	Manufacturer
2,2-bis[4-(3-methacryloyloxy-2-hydroxypropoxy)phenyl] propane(Bis-GMA)	1213D	Shinnakamura Chemical
bis(1,3-dimethacryloyloxy propyl)-2,2,4-trimethylhexamethylene dicarbamate(UTMA)	SH-560	Negami Chemical
Triethyleneglycol dicarbamate(TEGDMA)	01231	Negami Chemical
Comphorquinone(CQ)	C0014	Tokyo Chemical
2-(dimethylamino)ethylmethacrylate(N,N-DMAEMA)	M0082	Tokyo Chemical

**Table 2.** Fillers used in this study

Filler type	Batch No.	Filler size ( $\mu\text{m}$ )	Manufacturer
Crushed quartz	CRS-A	0.5	Tatsumori Ltd.
	CRS-B	0.5	Tatsumori Ltd.
Crushed silica	CRS-2105	6.9	Tatsumori Ltd.
	CRS-C	0.5	Tatsumori Ltd.
Spherical silica	CRS-1405	1.5	Tatsumori Ltd.

기준으로 하였으며, Bis-GMA 계 레진에 대해서도 UTMA 계 레진에서와 동일한 양을 첨가하였다. 시험제조한 복합레진을 모노머와 필러의 종류에 따라 분류하여 Table 3에 표시하였다. 기질레진과 필러 사이의 젖음을 촉진하고 제조과정에서 혼입된 레진 내부의 기포를 제거하기 위해 온도 50℃, 진공 1기압의 조건에서 10분간 유지하였으며, 균일한 반죽상태로 만들기 위해 유발혼합과 진공오븐 처리를 2회 반복하였다. 준비한 복합레진은 시편을 제작할 때까지 빛이 차단된 플라스틱 용기 내에 보관하였다.

## 2. 파괴인성의 측정

파괴인성은 ASTM E399-78에 근거하여 SENB(Single Edge Notched Beam) 법을 적용하여 측정하였다. 2.5×5×26mm의 공간이 형성된 분할형의 테프론제 몰드에 폴리 에스테르 필름을 깔고서 준비한 복합레진 페이스트를 약간 넘치도록 채워 넣었으며, 이어서 폴리 에스테르 필름과 유리 판을 덮고서 압력을 가하여 여분의 레진을 제거하였다. 광중합은 12V, 120W의 할로젠 램프를 광원으로 하는 광조사기(Caulk, MAX)를 이용하여 시편의 상부와 하부의 각각 3위치에서 20초씩 총 120초간의 광중합을 시행하였다. V 노치는 기공용의 전기엔진(Sae shin machining Co.)을 장착한 이송장치(Fig. 2)에 시편을 고정 한 다음 직경 22mm×두께 0.15mm의 diamond disk(Shofu Inc., 62UTD, Japan)를 이용하여 약 15,000rpm의 원주속도에서 시편의 높이 W와 노치 깊이 a의 비(a/W)가 0.5가 되도록 형성하였다. 준비한 시편은 구강환경에서의 시효처리가 파괴인성에 미치는 영향을 평가하기 위해 2개의 군으로 분류하였다. 하나의 군은 37℃의 증류수 중에서 10일간 침적 처리를 행하였고, 나머지 군은 비교를 위해 23℃의 건조기 내에서 10일간 건조처리를 행하였다. 파괴인성을 측정하기 위해 재료시험기(Instron, Model 4204)에 지점간의 거리가 20mm인 굽힘장치를 고정 한 다음 crosshead speed 0.05mm/min에서 파괴인성시험을 행하였으며, 파절 양상을 평가하기 위해 파면을 주사전자현미경(Hitachi, S-4000)으로 관찰하였다. Fig. 3는 파괴인성시험용 시편의 각 부분의 치수와 지점간의 거리를 나타낸 것이다.

**Table 3.** Experimental composites of each group

Code	Monomer	Filler
UC1	UTMA/TEGDMA	0.5 $\mu\text{m}$ -crushed quartz
BC1	Bis-GMA/TEGDMA	
UC2	UTMA/TEGDMA	0.5 $\mu\text{m}$ -crushed silica
BC2	Bis-GMA/TEGDMA	
UC3	UTMA/TEGDMA	6.9 $\mu\text{m}$ -crushed silica
BC3	Bis-GMA/TEGDMA	
US1	UTMA/TEGDMA	0.5 $\mu\text{m}$ -spherical silica
BS1	Bis-GMA/TEGDMA	
US2	UTMA/TEGDMA	1.5 $\mu\text{m}$ -spherical silica
BS2	Bis-GMA/TEGDMA	

파괴인성시험 과정에서 균열의 발생과 진전에 관한 정보를 얻기 위해 AE(acoustic emission)를 계측하였다. AE 분석장비(Locan AT, Physical Acoustic Co., U.S.A.)에 50~1,000kHz의 넓은 주파수 범위의 감지가 가능한 압전 형변환기(piezoelectric transducer : PZT)를 결선하였으며, 시편의 크기가 AE 센서에 비해 작은 관계로 센서는 시험 지그 상에 부착하였다. 감지된 신호는 40dB로 증폭한 다음 noise 제거를 위해 100~1,200kHz의 bandpass filtering을 하였으며, AE analyzer에 입력후 다시 40dB로 증폭시키고 100~1200kHz의 filtering을 한 다음 디지털 신호로 변환하여 처리하였다. 시험에 채택된 AE 신호는 AE activity 특성인 AE Hits와 AE intensity 특성인 AE amplitude를 분석하였다.

시험이 완료된 후 측정용 현미경(Union Optical Co. Ltd.)을 이용하여 파면상의 중앙부와 좌우 끝의 3위치에서 노치의 깊이를 측정하여 이들의 평균치로부터 초기균열길이(a)를 구하였으며, 파괴인성  $K_{Ic}$ 는 아래의 식 (1)을 적용하여 계산하였다<sup>1)</sup>.

$$K_{Ic} = \frac{PS}{BW} f(\alpha) \quad (1)$$

$$f(\alpha) = \frac{3\alpha [1.99 - \alpha(1-\alpha)(2.15 - 3.93\alpha + 2.7\alpha^2)]}{2(1+2\alpha)(1-\alpha)} \quad (2)$$

여기에서,  $\alpha = a/W$ 이고, B는 시편의 폭, W는 시편의 높이, S는 지점간의 거리, P는 최대하중을 나타낸다.

측정된 결과의 통계적 분석을 위해 분산분석을 행한 다음 Tukey 다중범위검증법에 의해 각 군간의 차이를 비교하였으며, 대조군과 시험군 사이의 비교를 위해 t-test를 행하였다.

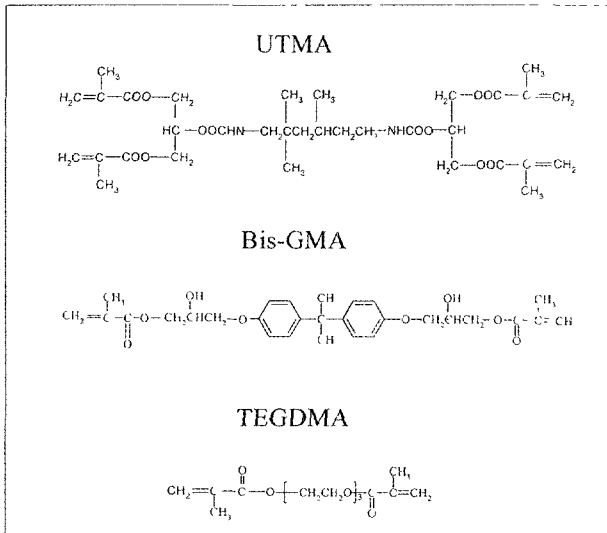


Fig. 1. Structural formulas of monomers

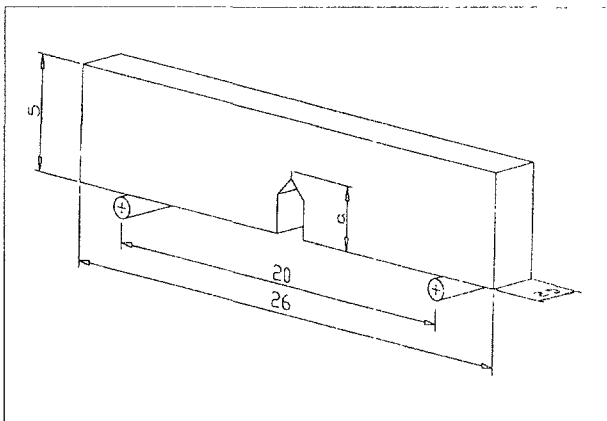


Fig. 3. Specimen geometry for the determination of fracture toughness by the single-edge notched beam method

### III. 결 과

Fig. 4는 UTMA 계 모노머를 기질로 하는 복합레진의 필러의 형상과 크기에 따른 파괴인성의 변화를 도시한 것이고, Table 4는 그의 결과치를 표시한 것이다. KIC의 값은 필러의 함량이 가장 높게 나타난 평균입경 1.5 $\mu\text{m}$ 의 구상실리카를 포함하는 US2군에서 1.54MPa·m<sup>1/2</sup>으로 최대치를 보였고, 평균입경 0.5 $\mu\text{m}$ 의 US1군이 1.10MPa·m<sup>1/2</sup>으로 최소치를 보였으며, UC1군, UC2군, US1군과 UC3군, US2군 사이에서 통계학적으로 유의한 차이를 보였다(p<0.05). 모든 군에서 10일간의 수중침적후 파괴인성이 증가되는 경향을 보였지만, 통계학적으로 유의한 차이를 보이지는 않았다(p>0.05)

Fig. 5는 Bis-GMA 계 모노머를 기질로 하는 복합레진의 필러의 형상과 크기에 따른 파괴인성의 변화를 도시한 것이

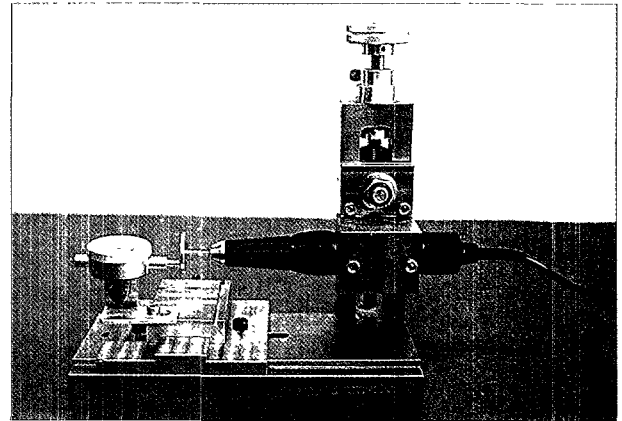


Fig. 2. Device to form the V-notch in specimen

고, Table 5는 그의 결과치를 표시한 것이다 KIC의 값은 평균입경 1.5 $\mu\text{m}$ 의 구상실리카를 포함하는 BS2군에서 1.40MPa·m<sup>1/2</sup>으로 최대치를 보였고, 평균입경 0.5 $\mu\text{m}$ 의 BS1군이 0.97MPa·m<sup>1/2</sup>으로 최소치를 보였으며, BC1군, BC2군, BS1군과 BC3군, BS2군 사이에서 통계학적으로 유의한 차이를 보였다(p<0.05). 모든 군에서 10일간의 수중침적후 파괴인성이 증가되는 경향을 보였으며, BC1군, BC2군 및 BS1군에서는 건조처리군과 수중침적군 사이에서 통계학적으로 유의한 차이를 보였다(p<0.05) 또한 UTMA 계와 Bis-GMA 계 복합레진의 비교 결과, UTMA 계 복합레진이 Bis-GMA 계에 비해 파괴인성이 높게 나타나는 경향을 보였다.

Fig. 6과 Fig. 7은 각각 분쇄 실리카와 구상 실리카를 필러로 하는 UTMA 계 복합레진의 파괴인성시험 과정에서 발생된 AE hits와 AE amplitude를 도시한 것이다. AE 신호는 시험의 전반부보다는 후반부에 다수 검출되어 시험의 거시적 균열전파에 의한 파괴거동과 일치되는 양상을 보였다. 파괴인성이 증가할수록 AE hits가 증가하는 경향을 보였으며, AE amplitude는 파괴가 일어나는 시점에 가장 높은 진폭을 보였다

Fig. 8은 UTMA 계 모노머를 기질로하는 복합레진에서 파괴인성과 AE의 평균진폭의 관계를 도시한 것으로, 파괴인성이 증가할수록 AE intensity의 특성인 AE의 평균진폭이 높게 나타나는 경향을 보였다.

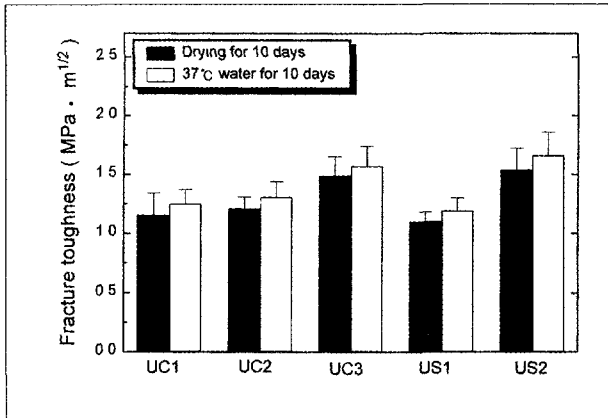
Fig. 9과 Fig. 10은 각각 분쇄 실리카와 구상 실리카를 필러로 하는 UTMA계 복합레진의 파괴인성시험 후의 파면에 대한 주사전자현미경 사진이다. 필러의 입경이 증가할수록 거친 파면이 형성되는 양상을 보였으며, 균열은 레진 및 레진과 필러의 계면을 따라서 진전되는 양상을 보였다. 파면상의 노출된 필러에 부분적으로 레진이 부착되어 있는 것으로부터 레진과 필러 사이의 화학적 결합을 확인할 수 있었지만, 필러의 평균입경이 감소함에 따라 컷팅이 불명해지

**Table 4.** Filler content and fracture toughness values of UTMA-based composites

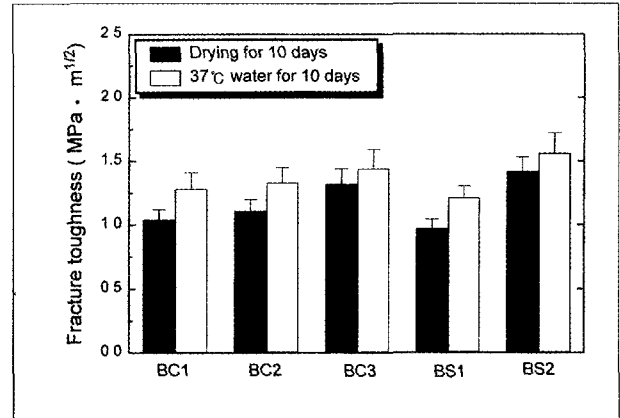
Specimen code	Filler content (wt%)	Fracture toughness ( $\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ )	
		Drying (10 days)	Aging in water (10 days)
		UC1	56.0
UC2	65.4	1.21±0.10	1.31±0.13
UC3	74.6	1.49±0.16	1.57±0.17
US1	78.0	1.10±0.08	1.19±0.11
US2	84.5	1.54±0.18	1.66±0.20

**Table 5.** Filler content and fracture toughness values of Bis-GMA-based composites

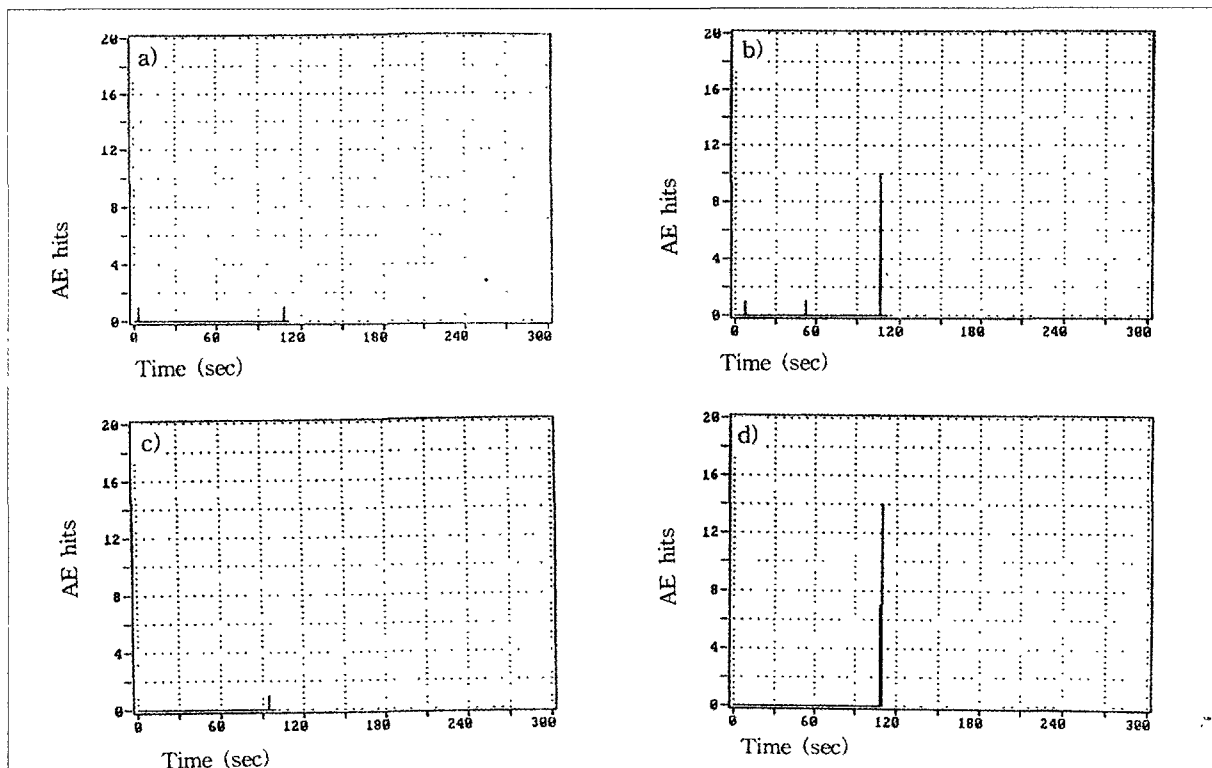
Specimen code	Filler content (wt%)	Fracture toughness ( $\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ )	
		Drying (10 days)	Aging in water (10 days)
		BC1	56.0
BC2	65.4	1.11±0.09	1.33±0.12
BC3	74.6	1.32±0.12	1.44±0.15
BS1	78.0	0.97±0.07	1.21±0.09
BS2	84.5	1.42±0.11	1.56±0.16



**Fig. 4.** Relationship between fracture toughness and filler types of UTMA-based composites.

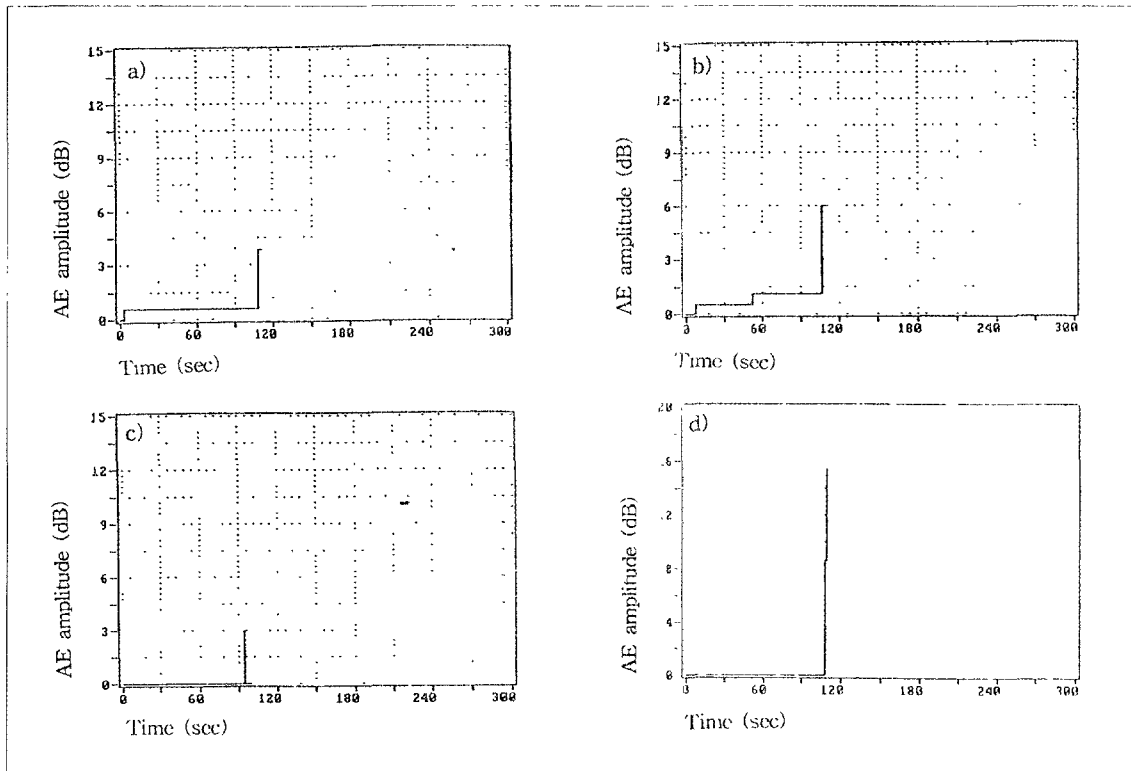


**Fig. 5.** Relationship between fracture toughness and filler types of Bis-GMA-based composites.

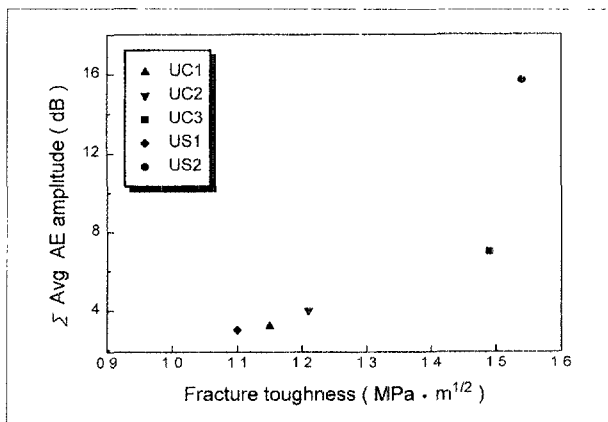


**Fig. 6.** Graph of AE hits vs loading time for the fracture toughness tests.

a) 0.5µm-crushed silica    b) 6.9µm-crushed silica    c) 0.5µm-spherical silica    d) 1.5µm-spherical silica



**Fig. 7.** Graph of AE amplitude vs loading time for the fracture toughness tests.  
 a) 0.5 $\mu$ m-crushed silica    b) 6.9 $\mu$ m-crushed silica    c) 0.5 $\mu$ m-spherical silica    d) 1.5 $\mu$ m-spherical silica



**Fig. 8.** Relationship between AE amplitude and fracture toughness of UTMA-based composites.

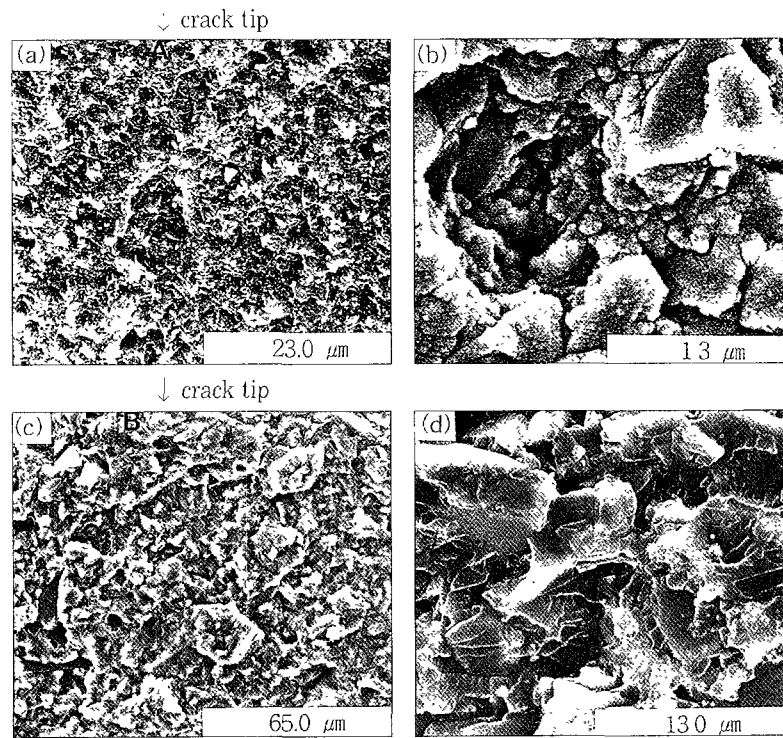
는 경향을 보였다.

#### IV. 고 찰

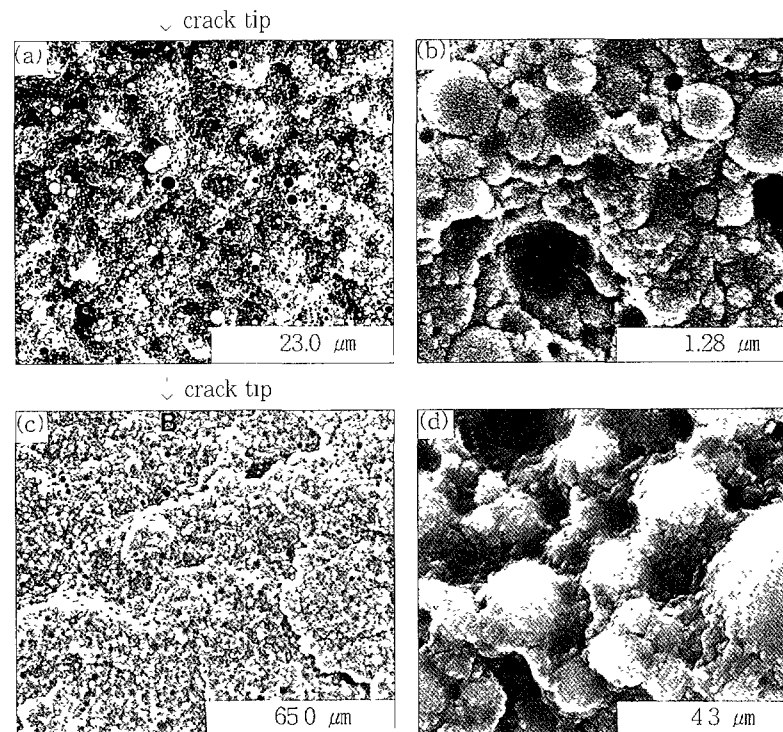
복합레진은 레진기질, 분산상인 강화필러 및 이들 두상을 결합시키는 결합제로 구성되며, 레진과 필러의 제조 및 배합기술의 진보로 인해 물성이 크게 개선되면서 복합레진이

전지부는 물론 구치부 수복용 재료로서 빈번하게 적용되고 있지만, 강도<sup>9,10</sup>와 내마모성<sup>9</sup>이 낮은 것이 단점으로 지적되어 왔다.

복합레진은 레진과 필러로 이루어진 불균일한 구조이며, 필러의 고밀도 충전으로 인해 높은 취성을 나타내므로 재료 내의 결함부에 미세균열이 생성될 경우 파절강도의 저하가 일어날 수 있다. 결함이나 균열은 자연적으로 생성되기도 하지만 사용중에 발생할 수도 있으며, 어떤 경우에도 재료를 약화시키므로 허용한계보다 낮은 응력상태에서 파괴가 일어날 수 있다. 결함이 강도에 민감하게 영향을 미치는 취성재료는 결함부에서의 응력집중으로 인해 외형이 변화되지 않은 상태에서 돌연 불안정 파괴가 일어나므로 파괴 특성을 이해하기 위해서는 파괴인성의 측정이 요구된다. 파괴인성은 재료내의 미세결합에서 비롯된 균열이 빠르게 성장하여 불안정 파괴를 일으킬 때의 응력확대계수로 표시하며, 취성재료에서는 파괴에 대한 저항성의 크기를 표시하는 유용한 기준으로 활용되고 있다. 파괴인성의 측정시에 연성이 큰 금속재료는 시편에 피로균열을 삽입하는 방식으로 표준화 되어있다. 그러나, 세라믹 재료나 복합레진과 같이 취성이 큰 재료는 시편에 피로균열을 만드는 것이 용이하지 않기 때문에 다양한 측정방법이 적용되고 있지만 국제적으로 표준화된 방법은 마련되어 있지 않은 실정이다<sup>11</sup>.



**Fig. 9.** Typical fractographs of UTMA-based composites with crushed silica after fracture toughness tests.  
 a) 0.5 $\mu\text{m}$ -crushed silica    b) magnification of position A    c) 6.9 $\mu\text{m}$ -crushed silica    d) magnification of position B



**Fig. 10.** Typical fractographs of UTMA-based composites with spherical silica after fracture toughness tests.  
 a) 0.5 $\mu\text{m}$ -spherical silica    b) magnification of position A    c) 1.5 $\mu\text{m}$ -spherical silica    d) magnification of position B

취성재료의 파괴인성을 측정하기 위해 파괴역학적 시편을 이용하는 방법, 컴플라이언스(compliance)법, 압자압입법 등이 적용되고 있다<sup>19)</sup>. 파괴역학적 시편을 이용하는 large crack model은 균열의 크기가 미세조직의 입자에 비해서 크기 때문에 균열진전을 제어하는 것이 용이하지 않다. 컴플라이언스법은 노치를 만든 후 이 노치로부터 인성적인 균열성장을 유도하여 파괴인성을 측정하는 방법으로, 날카로운 예비균열을 이용하여 파괴인성을 구하면서도 예비균열을 형성하는 과정이 없다는 것이 특징이다. 압자압입법은 시편의 형상에 구애를 받지 않고 한 개의 작은 시편으로도 반복측정이 가능하지만, 시료의 입자 크기가 작고 균열이 잘 발달될 수 있는 경우에만 적용이 가능하다.

파괴인성은 동일한 재료에 대해서도 시편의 두께, 하중속도 및 온도에 따라서 차이를 나타내며, 이 중에서 시편 두께의 영향이 가장 크다. 측정된 파괴인성치가 시편의 두께에 관계없이 일정한 값을 갖기 위해서는  $b)2.5(K_{Ic}/\sigma_{ys})$ 의 관계를 만족해야 한다<sup>20)</sup>. 여기에서,  $K_{Ic}$ 는 균열면이 인상을 받는 경우의 파괴인성 이고,  $\sigma_{ys}$ 는 0.2% 항복강도이다. Fujishima 등<sup>21)</sup>은 시판되는 복합레진의 항복강도는 35~80MPa을 보였으며, 이 결과를 이용하여 계산한 두께의 최소값은 microfill 형 복합레진( $\sigma_{ys}=35\text{MPa}$ )의 경우에 2mm로 나타났다고 하였다. 본 연구에서 적용된 single-edge notched beam 법에서는 시편의 두께를 2.5mm로 하였으므로 시편 두께가 파괴인성치에 미치는 영향은 미소할 것으로 생각된다.

복합레진의 파괴인성은 모노머와 필러의 구성 및 중합방법에 크게 의존한다. Kawaguchi 등<sup>22)</sup>은 Bis-GMA 계보다 UTMA 계 모노머를 기질로 하는 복합레진의 강성이 더 높게 나타났다고 하였고, Yamaga 등<sup>23)</sup>은 UDMA 계보다 UTMA 계 모노머를 기질로 하는 복합레진의 경도와 파괴인성이 더 높게 나타났다고 하였다. Zhao 등<sup>24)</sup>, Drummond<sup>25)</sup>는 레진에 strontium glass와 colloidal silica를 필러를 첨가하여 복합레진을 제조함으로써 굽힘강도, 탄성계수 및 파괴인성이 증가를 보였다고 하였고, Fujishima와 Ferracane<sup>26)</sup>은 복합레진의 파괴인성은 hybrid 형 복합레진이 microfill 형 복합레진에 비해 높게 나타났다고 하였다. Miyazaki 등<sup>27)</sup>은 광조사 에너지가 동일한 경우에는 파괴인성과 굽힘강도가 광조사 조건에 따라 변화를 보이지 않았다고 하였고, Cook<sup>28)</sup>, Ferracane과 Condon<sup>29)</sup>, Ferracane 등<sup>30)</sup>은 중합후의 열처리로 복합레진의 굽힘강도와 파괴인성이 개선되었다고 하였다. Tyas<sup>31)</sup>는 Goldman<sup>32)</sup>의 파괴인성에 대한 자료를 검토한 다음 파괴인성이 낮을수록 미세균열 성장에 기인한 surface chipping이나 bulk fracture가 더 잘 일어난다고 하였고, Lambrechts와 Vanherle<sup>33)</sup>은 재래형 복합레진에 비해 파괴인성이 낮은 microfine 형 복합레진으로 절단면의 수복을

할 경우 chipping이 빈번하게 일어날 수 있다고 하였다. 본 연구에서 UTMA 계와 Bis-GMA 계의 모노머에 5종류의 실리카 필러를 첨가하여 복합레진을 제조한 다음 single-edge notched beam 법에 의해 파괴인성의 변화를 조사한 결과, 모노머에 따라서는 Bis-GMA 계보다 UTMA 계 모노머를 기질로 하는 복합레진에서 파괴인성이 더 높게 나타났고 필러에 따라서는 형상이 동일한 경우 입자의 크기가 감소에 따라 파괴인성이 저하되는 경향을 보였다. Bis-GMA 계보다 UTMA 계 모노머를 기질로 하는 복합레진에서 파괴인성이 더 높게 나타난 것은 2개의 methacryloyl기를 갖는 Bis-GMA 계의 모노머 보다 4개의 methacryloyl기를 갖는 UTMA 계의 모노머를 사용할 때 기질내에 고밀도의 가교구조가 형성되기 때문으로 생각된다. 또한 필러의 형상과 크기에 따른 파괴인성의 변화는, Fig. 9와 Fig. 10의 파면으로부터 미루어 알 수 있듯이, 필러의 입경이 작은 경우에는 기질내에 생성된 균열이 벽면을 따라서 빠르게 성장하여 파괴가 일어나지만, 필러의 입경이 큰 경우에는 분산된 입자에 의한 crack deflection과 crack bridging 및 균열의 전파과정에서 형성된 거친 요철면 사이의 맞물림과 마찰작용으로 균열성장이 억제되기 때문으로 생각된다. 파괴인성시험 중에 발생하는 AE의 거동은 파괴인성시험의 전반부보다는 후반부에 다수 검출되고 AE amplitude가 파괴가 일어나는 시점에 가장 높게 나타나는 것으로부터 UTMA 계 복합레진의 파괴는 균열진전이 시작되며 순간적으로 일어나는 양상을 보였다.

복합레진 수복에는 레진이 갖는 극성으로 인해 기질내에서 수분을 흡수하므로 수중에서의 시효처리가 파괴인성에 미치는 영향에 관해서는 많은 연구가 이루어져 왔다. 기질레진내로 흡수된 수분은 레진과 필러의 계면에서 작용할 수도 있고<sup>34)</sup>, 무기필러나 기질레진의 성질<sup>35)</sup>에 영향을 미쳐서 파괴인성의 변화를 초래할 수 있다. Lloyd와 Iannetta<sup>36)</sup>는 수중에서의 시효처리 시간에 따라 1시간이 경과했을 때는 파괴인성치가 거의 변화를 보이지 않았지만 7일이 경과한 후에는 증가를 보였다고 하였고, Pillar 등<sup>37)</sup>은 수중에서 7일간의 시효처리한 군이 1개월과 6개월간 시효처리한 군에 비해 파괴인성치가 높게 나타났다고 하였는데, Lloyd 등은 시효처리로 인한 파괴인성의 변화는 수분흡수<sup>38)</sup> 인한 기소성의 증가에서 기인한다고 가정하였다. Ferracane과 Condon<sup>39)</sup>은 복합레진의 수중침식시 비중합된 모노머나 올리고머의 침식이 빠르게 일어나며 고분자의 기질내로 수분이 확산되므로 물성의 변화가 일어난다고 하였고, Indrani 등<sup>40)</sup>은 37°C의 증류수 중에서 6주간의 시효처리를 행하였을 때 심한 수분흡수를 보이는 처음 2주 동안 파괴인성치가 큰 폭으로 증가하지만, 이후 시간경과에 따라 완만한 감소를 보인다고 하였다. Ferracane 등<sup>41)</sup>은 중합후의 열처리로 복합레진의 굽힘강도와 파괴인성이 증가되며,



수중에서의 시효처리시 단계간에 걸쳐서는 상승효과가 지속되지만, 수분흡수로 인해 기질레진의 변질이 일어남에 따라 그 효과가 상실된다고 하였고, Drummond<sup>25)</sup>는 수중에서의 시효처리시 처음 6개월간 굽힘강도와 파괴인성 등의 기계적 성질변화가 심하게 나타나는데, 이는 복합레진 내부로 수분이 흡수됨에 따라 실란결합의 가수분해가 일어나고 레진의 고분자 구조 사이에서 국부적인 응력이 발생하기 때문이라고 하였다. 본 연구에서 복합레진의 수중침적 결과 UTMA 계와 Bis-GMA 계 복합레진 공히 파괴인성의 증가를 보였으며, 파괴인성의 증가가 UTMA 계보다 Bis-GMA 계 복합레진에서 더 높게 나타났는데, 이는 수분흡수가 UTMA 계 모노머 보다 Bis-GMA 계 모노머에서 더 심하게 일어났기 때문으로 생각된다.

## V. 결 론

본 연구에서는 기질레진과 필러가 광중합형 복합레진의 파괴인성에 미치는 영향을 평가하기 위해 UTMA 계와 Bis-GMA 계 모노머에 5종류의 실리카 필러를 첨가하여 복합레진을 제조한 다음 single-edge notched beam 법을 적용하여 파괴인성을 측정하였고, 파괴인성시험 중에 발생하는 AE 거동을 조사한 결과, 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 파괴인성치는 UTMA계 복합레진이 Bis-GMA계 복합레진에 비해 더 높게 나타나는 경향을 보였다.
2. 파괴인성치는 평균입径 1.5 $\mu$ m의 구상 실리카 필러를 포함하는 UTMA 계 복합레진에서 가장 높게 나타났다.
3. 37 $^{\circ}$ C 증류수 중에서 10일간의 시효처리시 파괴인성의 증가를 나타냈으며, 시효처리로 인한 파괴인성의 증가는 UTMA계 보다 Bis-GMA계 복합레진에서 더 높게 나타났다.
4. UTMA 계 복합레진의 파괴인성시험중에 발생하는 AE amplitude는 파괴가 일어나는 시점에 가장 높게 나타나는 경향을 보였다.

## 참 고 문 헌

1. Zhao D, Botsis J, Drummond JL : Fracture studies of selected dental restorative composites. *Dent Mater* 13 : 198-207, 1997.
2. Fujishima A, Ferracane JL : Comparison of four modes of fracture toughness testing for dental composites. *Dent Mater* 12 : 38-43, 1996
3. Uctashi S, Harrington E, Wilson HJ : the fracture resistance of dental materials. *J Oral Rehabil* 22:877-886, 1995.
4. ASTM E399-83 : Standard test method for plane-strain fracture toughness of metallic materials, 1983
5. Evans EG : A simple method for evaluating slow crack growth in brittle materials. *Int J Frac* 9:269-275, 1973.
6. Ferracane JL, Antonio RC, Matsumoto H : Variable affect-

- ing the fracture toughness of dental composites. *J Dent Res* 66:1140-1145, 1987
7. Kovarik RE, Fairhurst CW : Effect of Griffith precracks on measurement of composite fracture toughness. *Dent Mater* 9:222-228, 1993
8. Kovarik RE, Ergle JW, Fairhurst CW : A comparison of methods used to measure fracture toughness of resin composites. *J Dent Res* 70 :345, Abstr No 637, 1991
9. Duilk D, Bernier R, Brauer GM : Effect of diluent monomer on the physical properties of Bis-GMA composites. *J Dent Res* 60 :983-989, 1981
10. Asmussen E : Composite restorative resins, composition versus wall-to wall polymerization contraction. *Acta Odont Scand* 33 :337-344, 1975
11. Brauer GM, Duilk DM, Hughes HN, Dermannk, Rupp NW : Marginal adaption of Bis-GMA based composites containing various diluents. *J Dent Res* 60:1966-1971, 1981
12. Kawaguchi M, Fukushima T, Horibe T : Mechanical properties and cure depth of UDMA-based composite resins. *J Dent Mater* 9:265-270, 1990
13. Kawaguchi M, Fukushima T, Horibe T, Watanabe T : Mechanical properties and curing depth of urethane tetramethacrylate-based composite resins. *J Dent Mater* 9:762-766, 1990
14. 최규형, 원대희, 이민호, 배태성 : 광중합형 복합레진의 압축강도에 미치는 레진과 필러의 영향. *대한의용생체공학회지* 18:1-8, 1997
15. Yamaga T, Sato Y, Akagawa Y, Taira M, Wakasa K, Yamaki M : Hardness and fracture toughness of four commercial visible light-cured composite resin veneering materials. *J Oral Rehabil* 22:857-863, 1995
16. Powers JM, Fan PL, Marcotte M : In vitro accelerated aging of composite and a sealant. *J Dent Res* 60:1672-1677, 1981
17. Tyas MJ : Correlation between fracture properties and clinical performance of composite resins in Class IV cavities. *Aust Dent J* 35:46-49, 1990
18. S derholm KJ : Degradation of glass filler in experimental composites. *J Dent Res* 60:1867-1875, 1981.
19. Troung VT, Tyas MJ : Prediction of in vivo wear in posterior composite resins : A fracture mechanics approach. *Dent Mater* 4:318-327, 1988
20. 고영무, 김정남, 김광만, 김교한, 김형일, 박영준, 배태성, 임호남, 조혜원, 최기열 : 치과재료학. 둘째판, 군자출판사 43-78, 1998
21. 배성인, 한민수 : 파괴역학 실험법 원장출판사 73-127, 1992.
22. 박명학, 한동민 : 세라믹스의 파괴이동 및 평가 분석. *요업재료의 과학과 기술* 7:63-67, 1992.
23. 西田俊彦, 安田榮一 編著 : セラミックスの力學的的特性評價 日刊工業新聞社, 1985.
24. Fujishima A, Miyazaki T, Aoyama M, Suzuki E, Miyaji T : Fracture toughness and fracture behavior of composite resins for posterior restorative materials. *J Jpn Conserv Dent* 34 :45-53, 1991b
25. Drummond JL, Botsis J, Zhao D, Samyn J : Fracture properties of aged and post-processed dental composites. *Eur J Oral Sci* 106:661-666, 1998
26. Miyazaki M, Oshida Y, Moore BK, Onose H : Effect of light exposure on fracture toughness and flexural strength of light-cured composites. *Dent Mater* 12:328-332, 1996.
27. Cook WD : Fracture and structure of highly crosslinked polymer composites. *J Appl Polym Sci* 42 :1259-1269, 1991
28. Ferracane JL, et al. : Post-cure heat treatments for composites : Properties and fractography. *Dent Mater* 8:290-295, 1992.

- 29 Ferracane JL, Hopkin JK, Conden JR Properties of heat-treated composites after aging in water Dent Mater 11 354-358, 1995.
- 30 Tyas MJ Correlation between fracture properties and clinical performance of composite resins in Class IV cavities, Aust Dent J 35 46-49, 1990
- 31 Goldman M Fracture properties of composite resin and glass ionomer cement dental restorative materials J Biomed Mater Res 19:771-783, 1985
- 32 Lambrechts P, Vanherle G Structural evidences of the microfilled composites J Biomed Mater Res 17 249-260, 1983
- 33 Chen TM, Brauer GM Solvent effects on bonding organosilane to silica surfaces. J Dent Res 61 1439-1443, 1982.
- 34 배태성, 김태조, 김효성 광중합형 수복용 복합레진의 기계적 성질에 미치는 수중침적과 thermal cycling의 영향 대한의용생체 공학회지 17:327-335, 1996
- 35 박성현, 채민수, 이주형, 김태조, 배태성 광중합형 수복용 복합레진의 인장강도에 미치는 thermal cycling과 시표처리의 영향, 대한치과기재학회지 25 29-35, 1998
- 36 Lloyd CH, Iannetta RV The fracture toughness of dental composites The development of strength and fracture toughness J Oral Rehabil 9:55-66, 1982
- 37 Pilliar RM, Smith DC, Mano B Fracture toughness of dental composites determined using short-rod fracture toughness test J Dent Res 65:1308-1314, 1986
- 38 Ibrahim DJ, et al, Tyas MJ, Harcourt JK Fracture toughness of water-aged composite restorative materials Dent Mater 11 201-207, 1995
- 39 Lloyd CH The fracture toughness of dental composites The environmental and temperature dependence of the stress intensity factor (KIC) J Oral Rehabil 9 133-138, 1982
- 40 Ferracane JL, Condon JR Rate of elution of leachable components from composite Dent Mater 6 282-287, 1990