

## 特輯

## 치과용 심미수복재료로서의 복합재료

김승수\*, 이재락, 신병철, 이병민, 재갈중권

## 1. 서론

치아는 세 개의 층으로 구성되어 있는데, 그 가장 바깥인 음식물과 직접 접촉하는 부분은 단단한 무기질인 수산화아파타이트(hydroxyapatite,  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ )로 된 법랑질층(enamel), 안쪽에는 수산화아파타이트와 단백질 섬유질인 콜라겐의 복합재료로 이루어진 상아질층(dentin), 그 가장 안쪽에는 신경조직이 들어 있는 치수(dental pulp)로 구성되어 있다. 이 치아는 무엇보다도 우리들의 건강과 생활에 매우 밀접한 관계가 있어 건강을 유지하는데 필요한 식사와 의사소통시 말을 하는데 필수적인 역할을 한다. 즉 치아는 우리들이 매일 먹는 음식물이 잘 소화될 수 있도록 잘게 씹고 씹는 역할을 하고 있어 치아가 사고나 충치 등으로 손상을 입었을 때 소화기 장애를 일으키기 쉽다. 또한 치아는 눈, 코 등과 함께 사람의 첫인상을 결정하는데 큰 몫을 차지한다. 따라서 근래 와서 치아의 심미적 기능을 향상시킨 복합재료를 소재로 한 치과재료들이 임상에 널리 적용되고 있다.

치아가 질병이나 손상을 입었을 때 치료에 사용되는 치과용 재료로는 아말감, 금, 세라믹, 복합재료, 고분자 재료 등과 같이 다양한 재료들이 사용되고 있다. 이중 복합재료는 글래스 아이오노머(glass ionomer), 레진 아이오노머(resin ionomer), 복합레진(composite resin) 등과 같은 수복재료로 주로 사용되고 있는데 본 총설에서는 이들 치과용 복합재료에 관하여 주로 소개하고자 한다.

## 2. 치과용 복합재료의 화학적 성질

치과용 수복재료로 사용되는 복합재료는 액상이나 퍼피상의 재료가 구강 내에서 치질과 유사한 고체로 변할 수 있는 재료가 사용되고 있다. 이러한 변환은 일반적으로

산염기 반응, 중합반응, 석출반응 등과 같은 세 가지 기전에 의해 이루어진다. 산염기 반응은 무기염과 유기기산 또는 고분자산 사이의 반응에 의한 염(salt)생성반응이 주로 이용되고 중합반응은 가교반응이 가능한 탄소-탄소 이중결합이 2개이상인 단량체가 이용되고 있으며 석출반응은 액체가 용매의 소실에 의하여 고체로 되는 과정을 응용하는데 주로 표면코팅제에 응용되고 있다.

## 3. 글래스 아이오노머

1800년대 중반 아말감, 금 및 도재 수복제의 발달은 이들을 고정시키기 위한 치과용 시멘트의 발달을 촉진시켰다. 1855년 Sorel에 의해 최초의 대중적 치과용 시멘트인 Zinc oxychloride cement가 소개되었고 1873년 최초로 치아 색상의 충전재인 실리케이트 시멘트가 소개되었다. 그 뒤 수십 년간 새로운 재료가 개발되지 않다가 1963년 영국의 Dennis Smith에 의해 글래스 아이오노모(glass ionomer)의 모체가 되는 금속 산화물과 산성 수용성 중합체의 반응에 의하여 경화되는 최초의 고분자 전해질 시멘트(polyelectrolyte cement)가 개발되었다.

글래스 아이오노머는 치아 수복재(restorative), 접촉제(cement), 이장재(liner), 전색제(sealant) 등과 다른 수복물 하방의 베이스로 사용된다. 이 글래스 아이오노머는 글래스(glass) 필러, 이온성 고분자(ionic polymer) 기질, 경화촉진제 등의 혼합에 의하여 산염기 반응이 일어나 경화되어 만들어진다. 글래스 필러는 전형적으로 석영, 알루미나, 빙정석, 형석, 불화알루미늄, 인산 알루미늄 등을 1100-1300°C 온도에서 40-150분간 가열하여 용융한 다음, 물 속에 급냉하고 보울밀 분쇄를 통하여 만들어진다. 대표적인 글래스 필러의 성분은 무게비로 15.7-20.1% 불화칼슘, 35.2-41.9% 이산화규소, 20.1-28.6% 산화알루미늄, 3.8-12.1% 인산 알루미늄

\* 한국화학연구원 화학소재연구부, 교신저자(E-mail:sskim@pado.kriict.re.kr)

미늄, 1.6-8.9% 불화 알루미늄, 4.1-9.3% 불화나트륨을 함유하고 충치를 예방하는 불소는 재료의 무게대비 약 20%를 함유하고 있다. 수복재료로 사용되는 글래스 필러의 입자 크기는 약 45 $\mu$ m이고 접착제로 사용되는 것은 20 $\mu$ m이하의 필러가 사용된다. 아이오노머 기질은 아크릴산(acrylic acid)과 이타콘산(itaconic acid)의 공중합체, 아크릴산, 푸마르산(fumaric acid), 말레산(maleic acid)의 공중합체 등과 같은 폴리아크릴릭산이 주로 사용된다. 기존의 아이오노머 기질은 35-65% 수용액상으로 되어 있으나 저장 안정성 향상을 위해 동결건조나 진공건조하여 분말상으로 글래스 필러에 혼합하여 사용 중에 물을 혼합하여 사용하도록 된 것도 상용화되어 있다. 아이오노머 기질의 음전하를 띤 다중산(polyacid) 사슬과 양전하를 띤 치아면의 칼슘 이온이 상호 결합하여 기존의 아연 및 실리케이트 시멘트에 비해 우수한 접착력을 나타낸다. 또한 다중산은 수소결합을 형성하고 치질의 콜라겐 및 칼슘, 카르복시기, 인산염 등 무기성분과 이온교환과정을 거쳐 치질과 수복재 간에 화학적 결합이 일어나는 것으로 알려져 있다. 경화촉진제는 살리실산(salicylic acid), 구연산(citric acid), 타르타르산(tartaric acid) 등의 저분자량의 유기산들이 사용되는데 이들 중 광학입체이성질체인 D-타르타르산이 가장 효과적이다. 이 경화촉진제는 글래스 필러로부터 알루미늄, 칼슘이온 등을 원활히 녹여냄으로써 경화반응을 촉진시킨다.

글래스 아이오노머의 경화반응은 이온용출단계(ion leaching phase), 하이드로겔 기질단계(hydrogel matrix phase) 및 다중염겔단계(polysalt gel phase) 등 3단계로 나눌 수 있다(그림 1). 이온용출단계는 글래스 분말과 아이오노머 용액을 처음 혼합하면서 발생한다. 다중산과 타르타르산의 수소이온이 글래스 분말 표면으로부터 알루미늄 및 칼슘이온을 방출되게 하여 초기에는 불소이온과 반응하여  $CaF_2$ ,  $AlF_2$ ,  $AlF_2^-$  등과 같은 불안정한 불화 착물을 형성한다. 반응이 계속됨에 따라 이들 착물은 깨져 금속이온과 아이오노머 기질과 반응하여 보다 안정한 착물을 형성한다. 혼합 후 5-10분 후에 일어나는 하이드로겔 단계에는 초기 경화가 된다. 이 단계에서는 양전하를 띤 칼슘이온이 더욱 신속히 방출되어 음전하를 띤 다중산과 반응하여 이온성 가교를 형성한다. 이 하이드로겔 단계에서는 수용성 고분자인 다중산 사슬의 운동성이 감소하여 아이오노머 기질의 초기 겔화가 일어난다. 글래스 아이오노머의 최종 경화에 이르는 다중염겔 단계는 수개월간 지속된다. 상대적으로 방출속도 느린 알루미늄 이온이 미반응된 글래스 필러 주위를 둘러싸는 다중염 하이드로겔의 형성을 도우면서 기질은 더욱 숙성된다.

글래스 아이오노머는 우수한 불소유리성에 의한 충치예방, 상아질과 비슷한 열팽창계수, 낮은 경화수축률, 법랑질 및 상아질에 대한 우수한 접착력, 높은 압축강도 등의 장점이 있다. 그러나 낮은 마모저항성, 낮은 인장강도, 긴 경화시간 등의 문제점이 있어 아말감과 같은 금속물질을 도입한 글래스-금속 아이오노머, 금속분말과 글래스 필러를 함유한 도성합금-아이오노머 등이 개발되어 임상실험이 행해지고 있다.

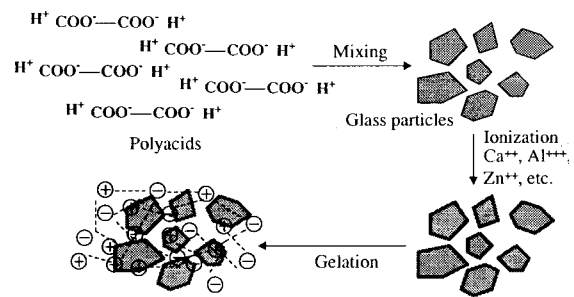


그림 1 글래스 아이오노머의 경화과정.

#### 4. 레진-아이오노머

전통적 글래스 아이오노머는 경화 초기동안에 수분의 건조와 수화에 매우 민감하여 취급하기 까다롭고 강도가 낮은 단점이 있다. 또한 글래스 아이오노머는 적절히 조작되지 않으면 불투명해지고 심미성이 결여되는 문제점이 있다. 이와 같은 전통적인 글래스 아이오노머의 문제점을 해결하기 위하여 이들 재료에 빛이나 화학적으로 중합되는 레진성분이 첨가되었다. 이렇게 함으로써 개발된 재료를 레진-아이오노머라고 하는데 전통적 글래스 아이오노머에 비해 초기 심미성이 증가되었고 인장강도, 파절인성, 접착력 등과 같은 물리적 성질이 개선되었으며 빛에 의하여 중합되므로 희망하는 시기에 중합을 시킬 수 있고 건조 및 수화의 문제점이 적은 이점이 있다.

전통적 글래스 아이오노머와 레진-아이오노머를 비교할 때 주요한 차이점은 경화기전에 있다. 전통적 글래스 아이오노머는 다중산과 금속이온간의 산-염기반응에 의하여 경화되므로 그림 2와 같이 경화체의 고분자 기질이 가교되지 않은 상태로 존재한다. 반면 레진-아이오노머는 다중산의 카르복시기 일부가 HEMA(2-hydroxyethyl methacrylate)로 에스테르화 반응된 메타크릴레이트기로 대체되어 있는 다중

산과 이 메타크릴레이트기와 반응할 수 있고 수용성인 HEMA 단량체를 사용함으로써 경화 중에 그림 2와 같이 다중산 사이에 자유라디칼 반응에 의해 가교반응이 일어난다. 이 가교반응은 camphoroquinone과 같은 광개시제 또는 BPO(Benzoyl peroxide)와 같은 화학중합형 개시제를 사용함으로써 빛이나 자가적인 화학적 중합에 의하여 일어난다. 따라서 레진-아이오노머는 다중산의 산성기와 금속이온 사이에 일어나는 산-염기반응 및 광 또는 화학적 중합에 의하여 경화되는 복합적인 경화기전을 가지게 된다.

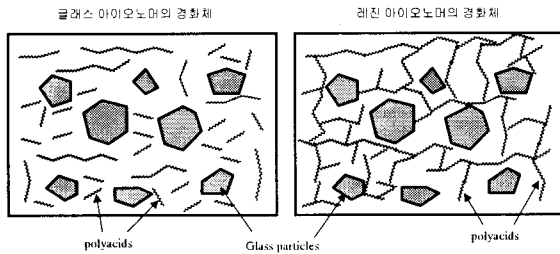


그림 2 글래스 아이오노머 및 레진 아이오노머 경화체의 비교.

## 5. 콤포머

글래스 아이오노머와 복합레진 사이의 범위 내에서 산-염기 반응과 자유라디칼 반응의 경화기전 중 자유라디칼 반응의 비율을 높여 초기에는 산-염기반응에 의해 경화가 되지 않는 재료를 폴리산 강화형 콤포지트 레진이라고 하며 흔히 콤포머라고 불리어진다. 이 콤포머는 글래스 아이오노머나 레진-아이오노머와는 달리 빛이 없는 곳에서는 경화되지 않고 사용 후 얼마동안은 산-염기반응을 하지 않기 때문에 치아와 결합하지 않는다. 이와 같은 재료에는 물을 함유하지 않은 무수 형태의 Caulk사의 Dyract, Vivadent사의 Compoglass, Bisco사의 Resinomer 등이 있고 물을 함유하고 있는 하이드로 콤포머(hydro-compomer)로 불리어지는 종류에는 Caulk사의 Advance 등이 있다.

한편 글래스 아이오노머에 사용되는 필러는 함유하고 있으나 다중산을 함유하고 있지 않아 산-염기 경화반응이 일어나지 않는 재료도 사용되고 있는데 이를 아이오노머 변형 레진(ionomer modified resin) 또는 불소함유 콤포지트 레진(fluoride containing composite resin)이라 한다. 이들의 예로는 Den-Mat사의 Geristore가 있다.

## 6. 복합레진

치과용 고분자재료의 시초는 1940년대에 독일인 화학자에 의하여 개발된 자가중합형 아크릴릭 레진이다. 이는 3급 아민을 사용함으로써 MMA(methyl methacrylate)의 benzoyl peroxide(BPO)에 의한 중합개시를 상온에서 일어날 수 있게 한 것이 특징이다. 그러나 이 재료의 가장 큰 문제는 중합수축, 색조불안정성, 낮은 탄성, 높은 열팽창, 치질과의 결합력 부족 등이 있다. 중합수축은 상아질 우식의 높은 유발을 초래하는 누출 및 박테리아의 침입을 야기하는데 현재까지도 여전히 문제점으로 남아 있다. 이 아크릴릭 레진에 무기물 필러를 함유시키므로써 중합수축의 감소 및 기계적 성질의 개선의 효과를 가져 왔으나 이 재료는 수복재료로는 아직 부적합하고 주로 의치상용 재료로 사용되고 있다.

복합레진(composite resin)은 직접형 수복재인 MMA 레진을 개선하기 위하여 다양한 무기물 필러를 사용하여 물성을 강화시킨 치과용 레진이다. 1959년 Cadurit(Espe)가 치과용으로 처음 개발되었는데 이는 MMA를 유리로 강화시킨 epimine계 수복재이다. Bis-GMA (2,2-bis-[4(2-hydroxy 3-methacryloxy-propyloxy)-phenyl]-propane)레진은 3M에 의하여 최초로 상용화된 복합레진 수복재료, 중합수축을 크게 개선시켰으며 색상안정성도 우수하여 최근에도 널리 사용되고 있다.

복합레진은 4가지 주요 구성요소로 이루어져 있는데, 대개 dimethacrylate 레진을 함유하고 있는 기질상(matrix phase), 화학물질 또는 빛에 의하여 활성화되는 중합개시제(polymerization initiators), 무기물 필러와 색소로 이루어진 입자의 분산상(dispersed phase), 기질을 무기필러 입자에 부착시켜주는 연결상(coupling phase) 등으로 이루어져 있다.

복합레진의 기질상은 탄소-탄소 이중결합을 2개 가지고 있어 삼차원적으로 가교가 될 수 있는 dimethacrylates 레진으로 구성되어 있는데 가장 보편적으로 사용되고 있는 레진은 bisphenol-A와 glycidyl methacrylate 사이의 반응에 의하여 합성된 Bis-GMA으로서 1962년 Bowen에 의하여 처음으로 소개되었다(그림 3-(a)). 이 Bis-GMA는 점성이 높아 레진 기질을 강하게 하는 장점이 있으나 필러의 함입을 어렵게 한다. 따라서 필러 함입을 가능하게 하기 위해 점성을 낮추기 위한 TEGDMA(triethyleneglycol dimethacrylate, 그림 3-(c))와 같은 낮은 분자량의 레진과 혼합하여 사용된다. 또 다른 복합재료의 대표적인 기질상은 1974년 Foster와 Walker에 의하여 소개된 urethane dimethacrylate가 있다(그림 3-(b)). 이 레진은 점도가 대체로 낮아 점도를 낮추기

위한 낮은 분자량의 단량체의 첨가 없이도 필러함입이 가능한 장점이 있다. 그러나 깨지기 쉽고 Bis-GMA에 비해 중합수축이 큰 단점이 있다. 이들 외에도 urethane과 Bis-GMA의 복합체, tricyclodimethacrylate resin 등이 복합레진의 기질로 사용되고 있다.

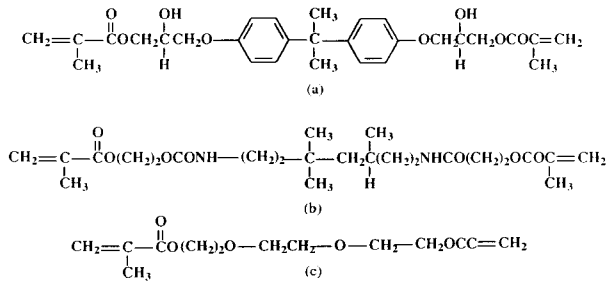


그림 3 복합레진에 사용되는 dimethacrylates 레진 (a) Bis-GMA (2,2-bis-[4(2-hydroxy3-methacryloxy-propyloxy)-phenyl]-propane); (b) urethane resin; (c) TEGDMA(triethyleneglycol dimethacrylate).

복합레진의 중합반응은 자유 라디칼 반응에 의하여 개시되는데 자유 라디칼의 생성은 4가지 다른 방법을 통해 이루어진다: 1) 열활성 시스템에서는 열에 의해 BPO가 분해되어 자유 라디칼을 형성한다; 2) 화학활성 시스템에서는 BPO를 활성화하는 3차 아민과 BPO를 혼합함으로써 중합이 개시된다; 3) 자외선활성 시스템에서는 365nm 자외선 광원이 benzoin methyl ether를 3차 아민없이 자유 라디칼로 나누게 하여 중합을 개시하게 한다; 4) 가시광선 중합에서는 468±20nm 광원이 camphoroquinone이나 다른 diketone을 triplet 상태로 활성화시켜 N,N-dimethylaminoethyl methacrylate와 같은 지방족 3차 아민과 상호작용케 하여 자유 라디칼 반응을 개시시킨다.

복합레진의 연결상은 레진기질과 필러입자를 서로 결합시키는 데 도움을 주기 위하여 사용된다. 전형적인 복합레진에서는 기질재료와 필러입자가 화학적으로 매우 달라 그들 사이에 화학적인 어떠한 결합도 존재하지 않아 계면간에 접착력이 낮아 강도가 약한 문제점이 있다. 따라서 기질재료와 필러입자 사이에 화학적 결합이 일어날 수 있도록 실란기가 있는 단량체를 무기입자에 처리하는 방법을 사용함으로써 기질과 필러 사이의 결합을 강하게 하고 복합재료 표면으로부터 필러입자의 점차적 소실을 방지한다. Union Carbide사의 3-methacryloyloxypropyl trimethoxysilane이 복합레진의 연결상으로 사용되는 대표적인 결합제이다.

복합레진의 분산상인 무기필러에는 결정성 수정,

pyrolytic silica, lithium aluminum silicate, barium aluminum silicate, strontium aluminum silicate 등과 같은 유리입자가 주로 사용되고 있다. 이 무기물 필러는 복합레진의 체적안정성, 강도 등을 향상시키는 작용을 한다.

대부분의 복합레진은 레진 기질이 유사하기 때문에 사용되는 필러의 형태에 의해 일반적으로 분류된다. 거대 입자형 복합레진(macrofilled composites)은 비교적 큰 무기질의 석영이나 유리 입자를 사용한다. 초기에는 15-100μm의 입자를 사용하였지만, 근래에는 1.0μm이하의 입자를 사용한다. 거대 입자형 복합레진은 표면의 필러 입자가 소실되면 표면이 매우 거칠어지므로 연마가 어려운 단점이 있으나 입자의 크기를 줄이면 어느 정도 해소된다. 미세 입자형 복합레진(microfilled composites)은 연마성이 우수한 수복재를 얻기 위하여 만들어졌다. 이는 0.04μm 크기의 pyrogenic silica 입자를 함유하고 있다. 이들 입자는 크기가 작기 때문에 표면적이 매우 커져 고농도로 다량 넣기가 힘들므로 특수한 방법들이 고안되었다. 즉 실리카 미세 입자를 소결(sintering), 침전(precipitation), 응축(condensation)과 같은 방법으로 압축시켜 덩어리 형태로 만든 다음, 레진 기질에 혼합한다. 이 레진 기질과 필러의 혼합체를 가열 중합하여 블록을 만든 다음, 갈아 1-200μm의 입자형태로 만들어 사용한다. 이 때 대부분의 입자는 평균 30-65μm 정도의 크기를 가진다. 이 미세 입자형 복합레진은 가중화된 필러로 구성되어 있어 필러와 주변의 기질상이 상호 혼합될 수 없어 약한 결합을 하므로 수복재 표면으로부터 필러가 소실되는 단점을 가지고 있다. 집괴양 미세 입자형 복합레진(agglomerated microfills)은 0.04μm 크기의 실리카 입자들을 0.07-0.2μm 크기의 알갱이 형태로 뭉친 집괴양 미세 입자들을 필러로 사용한다. 이들 미세 입자들은 용융점보다 약간 낮은 온도로 가열하여 서로 뭉치게 하는 소결과정을 거쳐 만들어진다. 응축양 미세 입자형 복합레진(condensed microfills)은 미세 입자들을 응축시켜 만든 응축양 미세 입자를 필러로 사용한다. 혼합형 복합레진(blended composites)은 거대 입자, 미세 입자 및 가중화된 레진 입자들의 혼합 필러를 사용한다. 혼성 복합레진(hybrid composites)은 거대 입자와 미세 입자를 혼합하여 사용함으로써 두 가지 복합레진의 성질을 공유한다. 이는 가중화된 레진 입자가 없다는 점에서 혼합형 복합레진과 다르다. 이러한 수복재는 필러 함량이 높아 입자간 응력 전달이 잘 되므로 다른 수복재에 비해 물성이 우수한 장점이 있다. 즉 작은 크기의 미세 입자가 기질에 첨가됨에 따라 필러 함량이 증가하고 이에 따라 입자간 거리가 좁아져 입자들의 교합력을 상호 전달하게 만들므로 상대적으로 강도가

약한 레진 기질이 응력을 덜 받게 된다. 이처럼 개량된 비립자 강화형은 복합레진의 응력을 감당할 수 있는 능력을 크게 증진시키며 수복재를 단단하게 만드는 역할을 한다. 소립자형 혼성 복합레진(small particle hybrids)은 평균 1-5  $\mu\text{m}$ 의 거대 입자형과 다량(7-15%)의 미세 입자를 함유하고 있는 복합레진을 말한다. 이 복합레진은 작은 필러 입자가 표면에서 소실되더라도 작게 깨인 부위만 남기므로 표면 평활도 및 마모 저항성이 우수한 장점이 있다. 이 외에도 소형 거대입자 함유 혼성 복합레진(minifilled hybrids), 필러 다함량 혼성 복합레진(heavily filled hybrids) 등 여러 종류의 복합레진이 사용되고 있다.

거대 입자로 채워진 초기 복합레진은 마모와 형태 소실로 인해 수복 3-5년 후부터 실패하기 시작된 반면, 새로운 미세 입자형 복합레진은 수복물 파절로 인해 수복 5-9년 후부터 실패하기 시작하므로 상대적으로 수명이 연장되었다. 다양한 크기의 필러 입자들이 다량 함유된 필러 다함량 복합레진은 마모 및 파절 저항력이 우수하지만 대체적으로 투박하고 심미성이 떨어지는 단점을 가지고 있다. 따라서 현재 수복재로 사용되고 있는 복합레진은 어느 것도 이상적인 것은 없다.

## 7. 결론

이상적인 치과용 수복물은 치아와의 접착력이 우수하여야 하고 잔존 치아의 색상과 영구적으로 조화되어야 하며 치아와 연조직에 대해 생물학적으로 적합하고 조작이 용이하면서 치아의 모양 및 기능과 조화를 이루어야 한다. 따라서 치과용 수복재 개발에 관한 연구에서는 범랑질과 상아질에서의 접착성, 표면 평활성, 색 안정성, 마모 저항성 내마모성, 파절 저항성, 변연 적합성, 치수조직에의 비자극성, 우식 억제능, 수복의 편의성, 보완수리의 가능성 등이 고려되어야 한다.

## 감사의 글

본 연구는 보건복지부 보건의료기술연구개발사업(01-PJ1-PG4-01PT05-0008)의 지원에 의하여 수행되었는바 이에 감사드립니다.

## 참고문헌

- 1) Wilson AD, McLean JW, *Glass-ionomer cement*. Quintessence Publishing Co., Inc., Chicago, U.S.A., 1988.
- 2) Crisp S, Wilson AD, "Reactions in glass ionomer cements,"

1. *Decomposition of the powder. J Dent Res*, 53, 1414-1419, 1974.
- 3) Crisp S, Pringuer MA, "Reactions in glass ionomer cements," *An infrared spectroscopic study. J Dent Res*, 53, 1414-1419, 1974.
- 4) Simmons J, "The miracle mixture glass ionomer and alloy powder," *Tex. Dent. J.* October 6-12, 1983.
- 5) Croll TP, Phillips RW, "Glass ionomer-silver cermet restorations for primary teeth," *Quintessence Int.* 17, 607. 1986.
- 6) Taleghani M, Leinfelder KF, "Evaluation of a new glass ionomer cement with silver as a core build-up under a cast restoration," *Quintessence Int* 19, 19-28, 1988.
- 7) Burgess JO and Summit JB "Advances in Glass Ionomer Materials," *Esthe. Dent. Update*, 4, 54-58, 1993.
- 8) Hotz P, McLean JW, Seed I and Wilson AD, "The bonding of glass ionomer cements to metal and tooth substrates," *Brit. Dent. J.* 142 41-47, 1977.
- 9) Glenn JF, "Composition and properties of unfilled and composite resin restorative materials in smith DC willams DF," *Biocompatibility of dental Materials*, Vol. III, C.R.C. Press, Boca Raton, pp. 97-130, 1982.
- 10) Ruyter IE, "Monomer systems and polymerization. in posterior composite resin dental restorative materials," *Vanherle & Smith eds.*, pp. 109-135, Utrecht, The Netherlands, P Szulo Publishing.
- 11) Li Y, Swartz ML, Phillips RW, Moore BK, Roberts TA, "Effect of filler content and size on properties of composites," *Dent Mat* 64, 1396-1401, 1985.
- 12) Braem M, Lambrechts, P, Van Doren V, Vanherle G, "The impact of composite structure on its elastic response," *J Dent Res* 65, 648-653, 1986.
- 13) Shintani H, Inoue T, Yamaki M, "Analysis of camphorquinone in visible light cured composite resins," *Dent Mat* 1, 14-126, 1985.
- 14) Loeys K, Lambrechts P, Vanherle G, Davidson D, "Material development and clinical performance of composite resin systems," *J Prosth Dent* 48, 664-671, 1982.
- 15) Papadogianis Y, Boyer D, Lukes R, "Creep of conventional and microfill dental composites," *J Biomatrical Mat Res* 18, 15-14, 1984.
- 16) Braem M, Lambrechts, P, Van Doren V, Vanherle G, "The impact of composite structure on its elastic response," *J Dent Res* 65, 648-653, 1986.