

Nanofilled 복합레진의 잔류응력 비교

박정원*

연세대학교 치과대학 보존학교실 영동세브란스 치과병원 보존과

ABSTRACT

COMPARISON OF THE RESIDUAL STRESS OF THE NANOFILLED COMPOSITES

Jeong-won Park*

Department of Conservative Dentistry, College of Dentistry, Yonsei University, Yongdong Severance Hospital

"Residual stress" can be developed during polymerization of the dental composite and it can be remained after this process was completed. The total amount of the force which applied to the composite restoration can be calculated by the sum of external and internal force. For the complete understanding of the restoration failure behavior, these two factors should be considered. In this experiment, I compared the residual stress of the recently developed nanofilled dental composite by ring slitting methods.

The composites used in this study can be categorized in two groups, one is microhybrid type-Z250, as control group, and nanofilled type-Grandio, Filtek Supreme, Ceram-X, as experimental ones. Composite ring was made and marked two reference points on the surface. Then measure the change of the distance between these two points before and after ring slitting. From the distance change, average circumferential residual stress (σ) was calculated. In 10 minutes and 1 hour measurement groups, Filtek Supreme showed higher residual stress than Z250 and Ceram-X. In 24 hour group, Filtek showed higher stress than the other groups.

Following the result of this experiment, nanofilled composite showed similar or higher residual stress than Z250, and when comparing the Z250 and Filtek Supreme, which have quite similar matrix components, Filtek Supreme groups showed higher residual stress. [J Kor Acad Cons Dent 33(5):457-462, 2008]

Key words: Residual stress, Dental composite, Nanofilled composite, Ring slitting method

- Received 2008.7.22., revised 2008.8.12., accepted 2008.8.25-

I. 서 론

복합레진의 중합과정은 수축을 동반하게 되며 이로 인해

* Corresponding Author: Jeong Won Park

Department of Conservative Dentistry College of Dentistry,
Yonsei University Youngdong Severance Hospital
(Former position Department of Conservative Dentistry,
School of Dentistry, Kyungpook National University)
146-92 Dogok-dong Gangnam-gu, Seoul, 135-720, S. Korea
Tel: 82-2-2019-1350 FAX: 82-2-3463-4052
E-mail: pjw@yuhs.ac

치아와 수복물의 계면사이에 응력을 발생시키고^{1,2)} 그 결과 복합레진의 물리적 성질에 영향을 미칠 수 있으며^{3,4)} 변연누출, 슬후 과민증, 이차우식 및 미세 파절과 같은 문제점을 야기할 수 있는 것으로 알려져 있다^{2,6,8)}. 따라서 복합레진의 중합 수축 응력을 줄이기 위한 많은 연구들이 행해져 왔다^{9,15)}.

세라믹 수복물에서 항복강도보다 낮은 외력을 받을 때 파절이 일어나는 원인으로 표면잔류응력을 생각할 수 있다^{16,17)}. 이런 현상은 복합레진에서도 일어날 수 있을 것으로 여겨지며 수복물의 마무리 및 연마과정에서 발생한 결함부위에서부터 시작된 파절이 잔류응력에 의해 더욱 급속히 전

※ 이 연구는 2005년도 경북대학교병원 생명의학연구소 연구비의 지원으로 이루어졌음.

파될 수 있다. 중합수축이 일어난 후 복합 레진 내에는 중합 수축에서 기원한 응력이 내부에 남아있을 수 있는데 이를 "잔류응력"이라 한다¹⁸⁾. 수복물에 가해지는 총힘은 외부에서 가해지는 힘과 내부에 남아있는 응력의 합으로 결정이 되며 수복물의 실패를 이해하기 위해서 이 두 가지 요소가 반드시 고려되어야 한다.

하지만 복합체 (composite)의 경우 기질과 충전재의 서로 다른 두 가지 재료가 섞여 있어 그 분석이 어렵고 각각의 조건에 따라 상이한 결과가 나올 수 있어 잔류응력에 대한 연구가 많지 않은 실정이다. 이를 분석하기 위한 방법으로 strain gage 법, layer removal 법, ring slitting 법 등이 소개되고 있는데 본 연구에서는 ring slitting 법을 변형한 방법으로 복합레진의 잔류응력을 측정하고자 하였다. 이러한 방법은 1997년 Seif 등¹⁹⁾이 두꺼운 파이프에서 실험적 방법과 이론적 방법을 통해 그 효율성을 증명하였고, 이후 얇은 파이프에 적용하여 단순화 시킨 잔류응력 측정 공식을 보고하였다²⁰⁾. 또한 최근에 치과영역에서 치과용 복합레진의 잔류응력을 측정하기 위해 이러한 방법이 쓰여질 수 있음을 보여주었다^{21,22)}.

본 연구에서는 ring slitting 방법을 이용하여 최근 임상에 소개된 나노 충전형 복합레진간의 잔류응력을 비교하고자 하였다.

II. 연구재료 및 방법

대조군으로 microhybrid-type의 혼합형 복합레진인 Z250 (3M ESPE, St. Paul, MN, USA)을 이용하였고 Nanofilled 복합레진으로 Grandio (Voco, Cuxhaven, Germany) Filtek Supreme (3M ESPE, St. Paul, MN, USA), 그리고 Ceram-X (Dentsply/deTrey, GmbH, Konstanz, Germany)를 이용하였다 (Table 1).

금속으로 내경 16.50 mm, 외경 17.83 mm의 복합레진 링을 만들 수 있도록 몰드를 제작하였다 (r/t = 12.9, thin-ring). 여기에 복합레진을 기포가 생기지 않도록 주의깊게 밀어넣고 광조사기 (Triad II, Dentsply, Milford, DE, USA)로 80초간 광중합하였다. 몰드에서 1차 중합된 복합레진 링을 제거하고 80초간 2차 중합을 실시하여 가능한 완전한 중합을 얻을 수 있도록 하였다. 중합된 링을 날카로운 외과용 칼을 이용하여 파절되지 않도록 조심스럽게 제거하고 편평한 면에 위치시킨 후 유성펜으로 칠한 뒤 여기에 약 3 mm 정도 되는 수직선과 수평선을 표시하여 두 개의 기준점을 표시하였다.

이것을 광학현미경 (SMZ-10, Nikon, Tokyo, Japan) 하에 놓고 디지털 카메라 (D70s, Nikon, Tokyo, Japan)로 사진을 촬영하여 절단하기 전의 상을 얻고, 바로 절단하여 (10분 이내) 중합 후 10분 이내, 1시간 후, 24시간 후

Table 1. Characterization of the resin composites tested

Resin Composite (Manufacturer)	Classification	Basic Composition	Particle Size	Filler Loading (vol %)
Z250 (3M Espe)	Microhybrid	Zirconia/Silica filler bis-GMA, bis-EMA, UDMA, TEGDMA	Glass filler 0.19 - 3.3 μm	60.0
Grandio (Voco)	Nanohybrid	Ba-Al-Borosilicate glass filler, silica nanofillers, bis-GMA, TEGDMA	Glass filler: 0.1 - 2.5 μm Nanofillers: 20 - 60 nm	71.4
Ceram-X mono (Dentsply deTrey GmbH)	Nanohybrid	Functionalised silicon dioxide nanofiller, Ba-Al-Borosilicate glass, methacrylate-modified polysiloxane, dimethacrylate resin, methacrylate	Glass filler : 1.1 - 1.5 μm Nanofillers: 2.3 and 10 nm	57.0
Filtek Supreme (3M Espe)	Nanofilled	Zirconia/silica cluster filler, bis-GMA, bis-EMA, UDMA, TEGDMA	Nanofillers: 5 - 20 nm Clusters: 0.6 - 1.4 μm	57.7

bis-GMA, bisphenol glycidyl methacrylate; bis-EMA, bisphenol A polyethylene glycol diether dimethacrylate; UDMA, urethane dimethacrylate, TEGDMA, tetraethyleneglycol dimethacrylate.

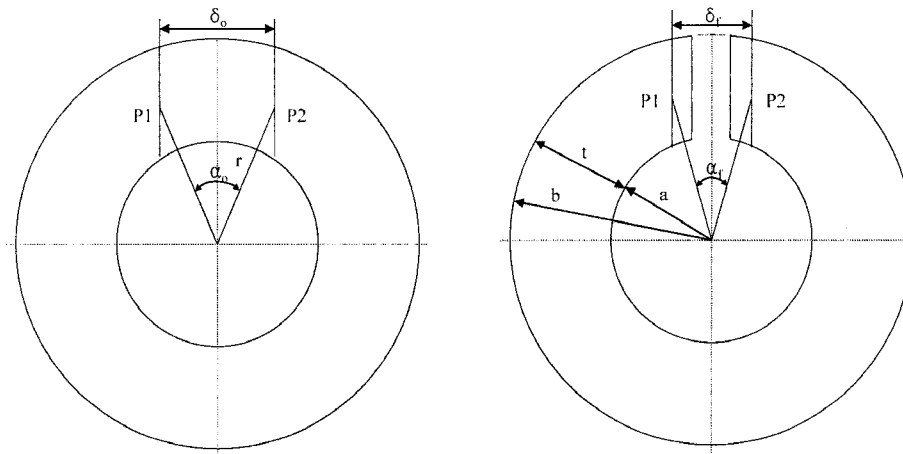


Figure 1. Geometry of the experimental ring before and after slitting.

이미지를 촬영하여 두 기준점간의 거리변화를 영상분석 장치를 통해 측정하였다 (Scion Image Beta 4.02, Scion Co., Frederick, MA, USA).

거리의 변화로부터 아래의 공식을 이용하여 circumferential residual stress (σ_θ)를 계산하였다 (Seif and Short, 2002):

$$\sigma_\theta = -\frac{4M_r}{n} \left[\frac{a^2 b^2}{r^2} \log \frac{b}{a} + b^2 \log \frac{r}{b} + a^2 \log \frac{a}{r} + b^2 - a^2 \right] \quad (1)$$

$$n = (b^2 - a^2)^2 - 4a^2 b^2 (\log(b/a))^2 \quad (2)$$

$$M_r = -\frac{aE}{8\pi} \left[\frac{(b^2 - a^2)^2 - 4a^2 b^2 (\log(b/a))^2}{2(b^2 - a^2)} \right] \quad (3)$$

$$\alpha = \frac{(\delta_o - \delta_r)}{r} \quad (4)$$

- a = inner radius of composite ring
- b = outer radius of composite ring
- r = radius measured at a point of the ring thickness
- Mr = residual moment
- α = change in angle between the two points
- E = elastic modulus of the composite
- δ_o = distance between the two point before cutting
- δ_r = distance between the two point after cutting.

식 (5)를 이용하여 average circumferential residual stress (σ_{ave})를 계산하였다.

$$\sigma_{ave} = (|\sigma_{in}| + |\sigma_{out}|) / 2 \quad (5)$$

- σ_{in} : residual stress when r = a
- σ_{out} : residual stress when r = b

잔류응력값은 일변량분석법과 Tukey's test ($\ll 0.05$)를 이용하여 통계적으로 분석하였다.

III. 결 과

측정된 평균 circumferential residual stress값은 Table 2에 나와 있다.

링을 절단한 후 나타나는 잔류응력은 링 절단 후 시간이 경과함에 따라 증가하는 값을 보여주고 있다.

10분 경과한 군과 1시간 경과 후 측정된 군에서는 Filtek Supreme이 Z250이나 Ceram-X보다 높은 잔류응력을 보여주었고, 24시간 경과한 군에서는 Filtek Supreme이 나머지 군보다 높은 잔류응력을 보여주었다.

IV. 총괄 및 고안

이전의 연구에서 링을 이용한 방법이 복합레진에서 비교적 간단하게 잔류응력을 측정할 수 있는 방법이 될 수 있음을 보여주었다^{21,22)}. 본 실험에서는 이러한 방법을 이용하여 최근 소개되고 있는 나노충전형 복합레진의 잔류응력을 비

Table 2. Measured circumferential residual stress (σ_{ave}) value and elastic modulus of test materials

	Z250	Grandio	Ceram-X	Filtek Supreme
Elastic modulus	11.5 GPa	16.4 GPa	6.9 GPa	11.7 GPa
10 min (σ_{ave})	0.56 ± 0.38 ^b	1.24 ± 0.41 ^{ab}	0.87 ± 0.20 ^b	1.76 ± 0.69 ^a
1 hr (σ_{ave})	0.94 ± 0.42 ^b	1.65 ± 0.57 ^{ab}	1.26 ± 0.29 ^b	2.37 ± 0.64 ^a
24 hr (σ_{ave})	1.41 ± 0.65 ^b	2.41 ± 0.94 ^b	2.01 ± 0.51 ^b	3.60 ± 0.84 ^a

σ_{ave} means average circumferential residual stress of composite ring.

Same superscript in the same row means statistically not different ($p < 0.05$).

교하였다.

이전의 연구에 의하면 링을 이용한 잔류응력의 측정에서 잔류응력 값은 재료의 탄성계수와 밀접한 연관을 가지고 있는 것으로 보고되었다. 하지만 본 실험의 결과에 의하면 Z250의 경우 탄성계수 값이 11.5 GPa로 Ceram-X의 6.9 GPa보다 높음에도 불구하고 나타나는 잔류응력은 Ceram-X에서 더 높게 나타났다. 이것은 재료의 충전재의 함량이 Ceram-X에서 적고, microfiller가 차지하는 비율은 상대적으로 더 적기 때문에 나타난 결과로 생각된다. 반대로 Grandio의 경우 충전재의 비율이 10%이상 높기 때문에 높은 탄성계수 값을 보여주고 있으며, 잔류응력도 같은 nanohybrid 타입인 Ceram-X보다 높게 나타난 것으로 보인다. Ceram-X와 Filtek Supreme의 경우 57%의 충전재 함량을 가지지만 Filtek Supreme이 더 높은 탄성계수와 잔류응력 값을 보여주고 있다.

위에 언급한 요소 외에 중합수축 양, 기질의 조성, 중합 속도, 충전재의 silane처리 방법 등에 의해 중합수축 응력 및 잔류응력의 발생에 영향을 미칠 수 있고, 또한 복합레진에 남아있는 잔류응력의 해소과정에도 영향을 미칠 수 있다. 따라서 이러한 요소에 대한 체계적인 추가적인 연구가 필요하다.

본 실험에서는 초기의 thick-walled 링 대신 thin-walled 링을 이용하였고, 이전의 실험이 중합 직후 절단한 군과 중합후 24시간 경과후 절단한 군을 비교하였으나, 재료간에 차이를 비교하기에는 10분 후 절단하는 것이 더 적합한 것으로 보여²⁹⁾ 10 분 후 절단한 조건만 시험하였다.

본 실험에서 나노 충전재를 사용한 군과 그렇지 않은 군간에 특별한 차이는 보이지 않았으며, Z250과 Filtek Supreme의 경우 유사한 기질과 충전재 성분을 가지고 있지만 잔류응력에서는 큰 차이를 보이고 있었다. 이는 결국 충전재의 표면 처리 및 입자크기에 의한 차이로 보이며²⁹⁾ 나노크기의 원형 충전재를 사용한 Filtek Supreme이 중합과정 중 더 많은 잔류응력이 발생한 것으로 사료된다. 하지만 이러한 결과는 이전의 실험에서 Heliomolar와 Z100간에

잔류응력의 차이가 입자의 형태에 기인한 것으로 보인다고 했던 보고²²⁾와는 다른 결과를 보이므로 이에 대한 검증이 필요하다. 나노 충전재를 함유한 복합레진은 nanohybrid와 nanofilled로 구별할 수 있는데 nanohybrid의 경우 충전재의 함량을 높여 중합 수축을 줄일 수 있다고 제조사에서 주장하지만 Grandio에서 볼 수 있듯이 충전재의 양을 늘리면 탄성계수가 같이 상승하여 잔류응력 측면에서는 동반하여 상승하는 결과를 보여주었다.

본 실험의 결과에 의하면 나노충진재를 함유한 복합레진이 제조사가 주장하는 것처럼 중합수축과 중합수축 응력의 측면에서 기존의 미세입자형 복합레진보다 유리한 결과를 보여주지 못하고 있으며, Filtek Supreme의 경우 오히려 높은 잔류응력을 보여주었다. 따라서 임상에서 재료의 선택 시에는 이러한 부분을 고려하여 재료의 파절에 대한 측면을 염두에 두어야 할 것으로 보인다.

참고문헌

1. Versluis A, Tantbirojn D, Douglas WH. Distribution of transient properties during polymerization of a light-initiated restorative composite. *Dent Mater* 20:543-553, 2004.
2. Versluis A, Tantbirojn D, Pintado MR, DeLong R, Douglas WH. Residual shrinkage stress distributions in molars after composite restoration. *Dent Mater* 20:554-564, 2004.
3. Toschi F, Melandri C, Pinasco P, Roncari E, Guicciardi S, de Portu G. Influence of residual stresses on the wear behavior of alumina/alumina-zirconia laminated composites. *J Am Ceram Soc* 86:1547-1553, 2003.
4. Whittle AJ, Burford RP, Hoffman MJ. Influence of Residual Stress on the Relationship Between Pipe Pressure and C-Ring Tests. *Polym Eng Sci* 40:2311-2316, 2000.
5. Choi KK, Ryu GJ, Choi SM, Lee MJ, Park SJ, Ferracane JL. Effects of cavity configuration on composite restoration. *Oper Dent* 29:462-469, 2004.
6. Davidson CL, de Gee AJ, Feilzer AJ. The competition between the composite-dentin bond strength and the polymerization contraction stress. *J Dent Res* 63:1396-1399, 1984.

7. Eick JD, Welch FH. Polymerization shrinkage of posterior composite resins and its possible influence on post-operative sensitivity. *Quintessence Int* 17:103-111, 1986.
8. Ferracane JL, Mitchem JC. Relationship between composite contraction stress and leakage in Class V cavities. *Am J Dent* 16:239-243, 2003.
9. Alkhiary YM, Morgano SM, Giordano RA. Effect of acid hydrolysis and mechanical polishing on surface residual stresses of low-fusing dental ceramics. *J Prosthet Dent* 90:133-142, 2003.
10. Taskonak B, Mecholsky Jr JJ, Anusavice KJ. Residual stresses in bilayer dental ceramics. *Biomaterials* 26:3235-3241, 2005.
11. Kemp-Scholte CK, Davidson CL. Complete marginal seal of class V resin composite restorations effected by increased flexibility. *J Dent Res* 69:1240-1243, 1990.
12. Uno S, Asmussen E. Marginal adaptation of a restorative resin polymerized at reduced rate. *Scand J Dent Res* 99:440-444, 1991.
13. Condon JR, Ferracane JL. Reduction of composite contraction stress through non-bonded microfiller particles. *Dent Mater* 14:256-260, 1998.
14. Yoshikawa T, Burrow MF, Tagami J. The effects of bonding system and light curing method on reducing stress of different C-factor cavities. *J Adhes Dent* 3:177-183, 2001.
15. Braga RR, Hilton TJ, Ferracane JL. Contraction stress of flowable composite materials and their efficacy as stress-relieving layers. *J Am Dent Assoc* 134:721-728, 2003.
16. Ferracane JL. Developing a more complete understanding of stresses produced in dental composites during polymerization. *Dent Mater* 21:36-42, 2005.
17. Witzer MF, Calheiros FC, Goncalves F, Kawano Y, Braga RR. Influence of photoactivation method on conversion, mechanical properties, degradation in ethanol and contraction stress of resin-based materials. *J Dent* 33:773-779, 2005.
18. Lu J. Introduction. In: Handbook of measurement of residual stress. Lu J editor. Lilburn, GA: The Fairmont press Inc. pp. 1-4, 1996.
19. Seif MA, Kishawy HA, Hassan MA. Residual stresses in plastic pipes by laser speckle technique. *J Test Eval* 25:465-470, 1997.
20. Seif MA, Short SR. Determination of residual stresses in thin-walled composite cylinders. *Exp Techniques* 26:43-46, 2002.
21. Park JW, Ferracane JL. Measuring the residual stress in dental composites using a ring slitting method. *Dent Mater* 21:882-889, 2005.
22. Park JW, Ferracane JL. Residual stress in composites with the thin-ring-slitting approach. *J Dent Res* 85:945-949, 2006.
23. Kim KH, Ong JL, Okuno O. The effect of filler loading and morphology on the mechanical properties of contemporary composites. *J Prosthet Dent* 87:642-649, 2002.

국문초록

Nanofilled 복합레진의 잔류응력 비교

박정원*

연세대학교 치과대학 보존학교실 영동세브란스 치과병원 보존과

중합수축이 일어난 후 복합 레진 내에는 중합수축에서 기원한 응력이 내부에 남아있을 수 있는데 이를 "잔류응력"이라 한다. 수복물에 가해지는 총힘은 외부에서 가해지는 힘과 내부에 남아있는 응력의 합으로 결정이 되며 수복물의 실패를 이해하기 위해서 이 두가지 요소가 반드시 고려되어야 한다. 본 연구에서는 ring slitting 방법을 이용하여 최근 임상에 소개된 나노충진형 복합레진간의 잔류응력을 비교하였다.

실험에 사용한 복합레진은 대조군으로 microhybrid-type인 Z250과 nanofiller를 함유한 Grandio, Filtek Supreme, Ceram-X 를 이용하여 복합레진 링을 제작하고 2개의 기준점을 표시한 후 이 사이의 거리를 링 절단 전과 후에 각각 측정하여 거리 변화를 측정하였다. 거리의 변화로부터 average circumferential residual stress (σ)를 계산하였다. 10분과 1시간 경과 후 측정된 군에서는 Filtek Supreme이 Z250이나 Ceram-X보다 높은 잔류응력을 보여주었고, 24시간 경과한 군에서는 Filtek Supreme이 나머지 군보다 높은 잔류응력을 보여주었다.

본 실험 결과에 의하면 nanofiller를 함유한 복합레진의 잔류응력은 대조군으로 사용한 Z250보다 높거나 같은 값을 나타냈으며 거의 비슷한 기질조성을 가진 Z250과 Filtek Supreme을 비교했을 때 Filtek supreme이 모든 측정시간대에서 높은 잔류응력을 보여주었다.

주요단어 : 잔류응력, 복합레진, 나노필러