

# Color Stability of Bulk-Fill Resin Composites after Immersion in Different Media

Sungkyoon Kang, Jihyun Song

*Department of Pediatric Dentistry, College of Dentistry, Wonkwang University*

## Abstract

The aim of this study was to evaluate the color stability of bulk-fill and conventional resin composites with respect to different storage media and thickness of composites.

Filtek™ Z250 and Filtek™ Z350XT were evaluated as conventional resin composites. Filtek™ Bulk-fill Posterior Restorative and Tetric® N-Ceram Bulk Fill were evaluated as bulk-fill resin composites.

CIE L\*a\*b\* values of baseline were measured after 24 hours of storage in distilled water, and each resin composite group was divided into three subgroups and stored in distilled water, red wine, and coffee media respectively. Again after 1, 7 and 28 days of immersion, color changes ( $\Delta E^*$ ) were calculated using the CIE L\*a\*b\* values.

The greatest  $\Delta E^*$  was observed in red wine for all resin composites, and the mean color changes were ranked in the increasing order of distilled water, coffee, red wine. Filtek™ Z350XT exhibited the greatest color change in all media, followed by Filtek™ Bulk-fill Posterior Restorative. Filtek™ Z250 and Tetric® N-Ceram Bulk Fill followed with similar mean color change values. According to the 2 different thicknesses of 2 mm and 4 mm of bulk-fill resin composites, there was no thickness-related difference on color changes.

**Key words :** Color stability, Bulk-fill resin composites, Restorative materials

## I. 서 론

복합레진은 사용의 편리성과 우수한 심미성, 그리고 향상된 물성과 치아와의 접착 능력으로 환자의 심미적 요구를 만족시킬 수 있는 수복재로 널리 사용되어 왔고, 기존의 filler와 단량체를 지속적으로 개선하며 물리-화학적 성질을 향상시켰다[1]. 최근 소개된 개선된 성질의 복합레진 중 한 종류가 bulk-fill 복합레진이다. Bulk-fill 복합레진은 최적화된 단량체의 혼합과 나노기술을 이용한 filler 구성, 그리고 제조사의 차별화된 광중합 개시제의 사용과 복합레진의 광투과율 개선을 통해 최대 4 - 5 mm까지 bulk-filling이 가능해졌다[2]. 일반적으로 복합레진은 최대 2 mm의 두

께로 적층 충전을 시행할 것이 권장되나, 적층 수복은 추가적인 시간이 소요되고 적층 과정 사이에 수분에 의한 오염이나 기포가 형성될 가능성이 있다. Bulk-fill 복합레진은 이와 같은 불필요한 적층에 소요되는 시간을 단축하여 술자의 편의성과 함께, 적은 중합수축과 우수한 와동 적합성의 장점을 내세우고 있다[3,4].

복합레진의 중요한 성질 중 하나가 색조안정성이다. 수복재는 구내의 여러 외인성, 내인성 요인에 의해 색조변화가 일어난다[5]. 복합레진의 심한 색조변화는 수복물의 심미적 측면에서 수명을 다하게 하여 교체의 원인이 된다. 환자의 심미적 요구가 증가함에 따라 구치부의 수복물에서도 복합레진이 우수한 색조안정성을 유지하는 것이 점차 중요해졌다[6,7].

Corresponding author : Jihyun Song

Department of Pediatric Dentistry, Daejeon Dental Hospital, Wonkwang University, 77, Dunsan-ro, Daejeon, 35233, Korea

Tel: +82-42-366-1197 / Fax: +82-42-366-1115 / E-mail: amistad@wonkwang.ac.kr

Received July 12, 2019 / Revised August 21, 2019 / Accepted August 19, 2019

저점도 bulk-fill 복합레진의 경우, 상방에 전통적인 복합레진을 적층하여 사용할 것이 권고되었다[1,3]. 그러나 최근에는 강도를 개선하여 구치부 교합면에 직접 수복이 가능하도록 제조사에서 명시한 고점도의 bulk-fill 복합레진이 시중에 소개되었다. 이에 따라 교합면 수복에 사용되는 bulk-fill 복합레진에서는 색조안정성이 그 수명을 결정하는 중요한 요소이다[7-10]. 그럼에도 불구하고 그간의 연구들은 bulk-fill 복합레진의 이장재로서의 성질에 국한된 것이 많아 심미성에 관한 연구는 적었다. 또한, bulk-fill 복합레진 제품 중 상방에 추가적인 전통적인 복합레진의 적층이 필요한 제품과, 교합면에 직접 수복할 수 있는 고점도의 bulk-fill 복합레진 제품을 혼재하여 비교한 경우가 많았고[11-15], bulk-filling시 두께에 따른 색조안정성을 평가한 경우 또한 드물었다[8].

이번 연구에서는 교합면에 직접 수복이 가능하다고 명시된 bulk-fill 복합레진을 대상으로 다양한 용액에 침전시킨 뒤, 전통적인 복합레진과 색조변화를 비교하고, bulk-fill 복합레진 시편의 두께에 따른 색조변화를 평가하고자 한다.

## II. 연구 재료 및 방법

### 1. 연구 재료

#### 1) 복합레진 및 침전 용액

전통적인 복합레진으로 Filtek™ Z250 (Z250, 3M ESPE, St Paul, MN, USA)과 Filtek™ Z350XT (Z350, 3M ESPE, St Paul, MN, USA)

를 사용하였고, bulk-fill 복합레진으로 제조사에서 교합면 수복을 명시한 제품으로 Filtek™ Bulk-fill Posterior Restorative (FBP, 3M ESPE, St Paul, MN, USA)와 Tetric® N-Ceram Bulk Fill (TNB, Ivoclar Vivadent, Schaan, Liechtenstein)을 선정하였다. Z250, Z350, FBP는 A2 Shade를 사용하였고, TNB는 제조사의 색조 표기법에 따라 A2 Shade와 유사한 IVA Shade를 사용하였다. 연구에 사용된 각 복합레진의 종류와 성분은 아래 표와 같다(Table 1). 각 복합레진 시편들은 증류수, 레드와인(Vivid Tinto, Orense, Spain), 커피(Georgia Original, Coca-cola company, Yangsan, Korea)에 침전시켰다.

#### 2) 측정 장비

색조변화는 색도계(Colorimeter, ZE2000, Nippon Denshoku, Tokyo, Japan)를 사용하여 측정하였다.

### 2. 연구 방법

#### 1) 시편 제작

복합레진 시편을 제작하기 위한 원기둥형 실리콘 주형을 제작하였다. 실리콘 주형은 내부 지름 8 mm, 두께 2 mm인 주형과 내부 지름 8 mm, 두께 4 mm인 주형으로 제작하였다. 시편 제작을 위해 광학 유리판 위에 polyethylene strip을 놓고 그 위에 실리콘 주형을 위치시킨 뒤 주형 내부에 복합레진을 bulk-filling하여 채워 넣었다. 그 상방에 다시 polyethylene strip을 위치시키고, 광학 유리판으로 가압하며 1000 mW/cm<sup>2</sup> 출력의 LED 광

**Table 1.** Compositions of resin composites used in this study

| Products (Code)                               | Manufacturer, Shade   | Matrix   | Filler  | Filler content (vol% / wt%) |
|---|-----------------------|--|---|-----------------------------|
| Filtek™ Z250 (Z250)                           | 3M ESPE, A2           | Bis-GMA<br>UDMA<br>Bis-EMA                     | Zirconia / silica   | 82 / 60                     |
| Filtek™ Z350XT (Z350)                         | 3M ESPE, A2           | Bis-GMA<br>UDMA<br>Bis-EMA<br>TEGDMA<br>PEGDMA | Aggregated zirconia / silica cluster filler<br>Non-agglomerated / non-aggregated zirconia filler                          | 78.5 / 63.3                 |
| Filtek™ Bulk-fill Posterior Restorative (FBP) | 3M ESPE, A2           | AUDMA<br>AFM<br>UDMA<br>DDDMA                  | Aggregated zirconia / silica cluster filler<br>Non-agglomerated / non-aggregated zirconia filler<br>Ytterbium trifluoride | 76.5 / 58.4                 |
| Tetric® N-Ceram Bulk Fill (TNB)               | Ivoclar Vivadent, IVA | Bis-GMA<br>UDMA<br>Bis-EMA                     | Barium glass<br>Ytterbium trifluoride   | 75-77 / 53-55               |

Bis-GMA (bisphenol A glycidyl dimethacrylate), UDMA (urethane dimethacrylate), Bis-EMA (etoxyated bisphenol A glycol dimethacrylate), TEGDMA (triethylene glycol dimethacrylate), PEGDMA (polyethylene glycol dimethacrylate), AUDMA (aromatic urethane dimethacrylate), AFM (addition fragmentation monomer), DDDMA (1,12-dodecane dimethacrylate)

중합기(Elipar™ FreeLight 2, 3M ESPE, St Paul, MN, USA)를 이용하여 40초간 광중합을 시행하였다. 전통적인 복합레진인 Z250, Z350은 지름 8 mm, 두께 2 mm의 시편을 각 15개씩 제작하였다. Bulk-fill 복합레진인 FBP와 TNB는 지름 8 mm, 두께 2 mm인 시편(FBP 2 mm, TNB 2 mm)과, 지름 8 mm, 두께 4 mm인 시편(FBP 4 mm, TNB 4 mm)을 각 15개씩 제작하였다.

2) 색조변화 측정

복합레진 시편은 색도계를 사용하여 국제 조명 위원회에서 제시하는 CIE L\*a\*b\* 색 공간을 기준으로 색조 측정이 시행되었다. 색도계는 매 측정 전에 제조사의 표준백판(L\* = 97.6481, a\* = -0.6626, b\* = 1.3447)을 이용하여 영점 조정을 시행하였고, 각 시편의 중앙에 6 mm 지름의 렌즈를 위치시킨 뒤, CIE 표준 측정 주광인 D65 광원으로 설정하여 10° 관찰자 각도로 시편 당 4회의 반복 측정을 시행하여 그 평균값을 기록하였다.

모든 시편은 제작 직후 증류수에 침전시켜 37°C의 항온수조에 보관하였고 24시간 뒤에 기준점의 CIE L\*a\*b\*값을 측정하였다. 이후 각 복합레진별 15개의 시편은 3군으로 나누어 각각 증류수, 레드와인, 커피 용액에 침전시켜 37°C의 항온수조에 보관하였다. 모든 용액은 매일 1번씩 교체하였고, 침전 1, 7, 28일에 색조 측정을 시행하여 시편별 CIE L\*a\*b\*값을 기록하였다. 시편의 색조변화는 해당 시점의 CIE L\*a\*b\*값과 기준점의 CIE L\*a\*b\*

값의 차이(ΔL\*, Δa\*, Δb\*)를 이용하여 색차(ΔE\*)를 다음의 공식을 통해 산출하여 확인하였다:  $\Delta E^* = \{(\Delta L^*)^2 + (\Delta a^*)^2 + (\Delta b^*)^2\}^{1/2}$

복합레진 종류별 색조변화의 차이는 두께 2 mm인 시편들을 대상으로 수집된 ΔE\*를 비교하여 분석하였다. Bulk-fill 복합레진은 두께 2 mm인 시편과 두께 4 mm인 시편의 ΔE\*를 비교하여 두께에 따른 색조변화의 차이를 분석하였다. 선행 연구에 따라, 육안으로 확인 가능한 색조변화의 역치 수준은 ΔE\* > 3.3으로 설정하였다[16].

3) 통계 분석

통계 분석은 IBM SPSS 18.0 (SPSS Inc, Chicago, IL, USA)을 이용하였다. Kolmogorov-Smirnov, Shapiro-Wilk 정규성 검정을 시행하였으며, 복합레진 종류와 침전 용액에 따른 ΔE\*값의 분석은 One-way ANOVA와 사후 검정으로 Duncan test를 실시했다. Bulk-fill 복합레진 시편의 두께별 색조변화는 Mann-Whitney's U test를 실시했다.

Ⅲ. 연구 성적

증류수(DW), 레드와인(RW), 커피(BC)에 침전시킨 각 시편별 색차(ΔE\*)를 이용하여, 각 복합레진의 종류와 침전 용액의 종류에 따른 색조변화를 비교분석하였다(Table 2).

Table 2. Mean and standard deviations of ΔE\* at different time intervals and immersion media

| Immersion media      | Products       | Mean ± SD of ΔE* (n = 5)      |                                |                                |
|----------------------|----------------|-------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|
|                      |                | 1day                          | 7days                          | 28days                         |
| Distilled water (DW) | Z250           | 0.79 ± 0.35 <sup>bB</sup>     | 0.95 ± 0.54 <sup>b,BC</sup>    | 1.08 ± 0.52 <sup>bd,BC</sup>   |
|                      | Z350           | 1.66 ± 0.63 <sup>acd,BC</sup> | 1.80 ± 0.90 <sup>ac,BC</sup>   | 1.95 ± 0.48 <sup>ac,BC</sup>   |
|                      | FBP            | 0.95 ± 0.54 <sup>bB</sup>     | 0.75 ± 0.21 <sup>b,BC</sup>    | 1.21 ± 0.41 <sup>b,BC</sup>    |
|                      | TNB            | 0.57 ± 0.16 <sup>bB</sup>     | 1.17 ± 0.32 <sup>BC</sup>      | 1.82 ± 0.45 <sup>ac,BC</sup>   |
|                      | <i>p</i> value | 0.010                         | 0.048                          | 0.021                          |
| Red wine (RW)        | Z250           | 6.42 ± 2.77 <sup>AC</sup>     | 19.89 ± 3.92 <sup>bcd,AC</sup> | 27.17 ± 3.41 <sup>bc,AC</sup>  |
|                      | Z350           | 10.85 ± 2.70 <sup>AC</sup>    | 37.73 ± 2.69 <sup>acd,AC</sup> | 43.68 ± 1.58 <sup>acd,AC</sup> |
|                      | FBP            | 10.75 ± 4.90 <sup>AC</sup>    | 30.16 ± 3.07 <sup>abd,AC</sup> | 36.75 ± 1.37 <sup>abd,AC</sup> |
|                      | TNB            | 7.32 ± 3.11 <sup>AC</sup>     | 24.95 ± 3.05 <sup>abc,AC</sup> | 29.14 ± 1.48 <sup>bc,AC</sup>  |
|                      | <i>p</i> value | 0.130                         | 0.000                          | 0.000                          |
| Coffee (BC)          | Z250           | 2.09 ± 0.87 <sup>bB</sup>     | 5.01 ± 0.83 <sup>bc,AB</sup>   | 7.90 ± 0.95 <sup>bcd,AB</sup>  |
|                      | Z350           | 6.36 ± 1.73 <sup>acd,AB</sup> | 14.06 ± 1.89 <sup>acd,AB</sup> | 20.43 ± 0.97 <sup>acd,AB</sup> |
|                      | FBP            | 2.94 ± 1.59 <sup>bB</sup>     | 7.06 ± 1.29 <sup>abd,AB</sup>  | 10.01 ± 1.17 <sup>abd,AB</sup> |
|                      | TNB            | 1.31 ± 0.34 <sup>bB</sup>     | 4.19 ± 0.44 <sup>bc,AB</sup>   | 6.09 ± 0.82 <sup>abc,AB</sup>  |
|                      | <i>p</i> value | 0.000                         | 0.000                          | 0.000                          |

*p* value from One-way ANOVA

a, b, c, A, B, C : The superscript lowercase letters of the mean ΔE\* values indicate statistically significant differences between resin composites (a = Z250, b = Z350, c = FBP, d = TNB) and the superscript uppercase letters indicate statistically significant differences between immersion media (A = DW, B = RW, C = BC) by the Duncan test as post-hoc test.

1. 각 복합레진별 색조변화( $\Delta E^*$ )

1) Z250

Z250은 침전 1일에 레드와인에서 유의하게 큰 색조변화를 나타냈다( $p = 0.001$ ). 침전 7일, 28일에 레드와인, 커피, 증류수 순서로 큰 색조변화를 나타냈으며, 통계적으로 유의하였다( $p = 0.000$ ). 이때,  $\Delta E^* > 3.3$ 을 육안으로 확인 가능한 색조변화의 역치로 보았을 때, 레드와인에서는 침전 1일부터 육안으로 확인 가능한 색조변화를 나타냈으며, 커피에서는 침전 7일부터 육안으로 확인 가능한 색조변화를 나타냈다.

2) Z350

Z350은 침전 1일부터 모든 측정 시기에 레드와인, 커피, 증류수 순서로 큰 색조변화를 보이며 통계적으로 유의하였다( $p = 0.000$ ). 이때, 침전 1일부터 레드와인과 커피에서  $\Delta E^* > 3.3$ 의 육안으로 확인 가능한 색조변화가 관찰되었다.

3) FBP

2 mm 두께로 제작한 FBP 시편(FBP 2 mm)을 이용하여 색조변화를 분석하였다. FBP는 침전 1일에 레드와인에서 유의하게 큰 색조변화를 나타냈다( $p = 0.001$ ). 침전 7일, 28일에 레드와인, 커피, 증류수 순서로 큰 색조변화를 나타냈으며, 통계적으로 유의하였다( $p = 0.000$ ). 레드와인에서는 침전 1일부터  $\Delta E^* > 3.3$ 의 육안으로 확인 가능한 색조변화를 나타냈으며, 커피에서는 침전 7일부터 육안으로 확인 가능한 색조변화를 나타냈다.

4) TNB

2 mm 두께로 제작한 TNB 시편(TNB 2 mm)을 이용하여 색조변화를 분석하였다. TNB는 침전 1일에 레드와인에서 유의하게 큰 색조변화를 나타냈다( $p = 0.001$ ). 침전 7일, 28일에 레드와인, 커피, 증류수 순서로 큰 색조변화를 나타냈으며, 통계적으로 유의하였다( $p = 0.000$ ). 레드와인에서는 침전 1일부터  $\Delta E^* > 3.3$ 의 육안으로 확인 가능한 색조변화를 나타냈으며, 커피에서는 침전

7일부터 육안으로 확인 가능한 색조변화를 나타냈다.

2. 각 침전 용액별 색조변화( $\Delta E^*$ )

1) 증류수

증류수에 침전시킨 1, 7, 28일에 모두 Z350에서 가장 큰 색조변화를 나타냈다( $p < 0.05$ ). 그러나 침전 28일까지 Z250, Z350, FBP, TNB 모든 복합레진에서  $\Delta E^* < 3.3$ 으로 육안으로 확인 가능한 수준의 색조변화는 없었다.

2) 레드와인

레드와인에 침전시킨 7일에는 Z350이 가장 큰 색조변화를 나타내고, 그 뒤로 FBP, TNB, Z250의 순서로 유의한 큰 색조변화를 보였다( $p = 0.000$ ). 침전 28일에는 Z350이 가장 큰 색조변화를 보였고, 그 다음은 FBP였다( $p = 0.000$ ). 그 뒤로 TNB와 Z250가 유사한 수준의 색조변화를 나타냈다( $p = 0.165$ ). 침전 1일부터 모든 복합레진에서  $\Delta E^* > 3.3$ 의 육안으로 확인 가능한 수준의 색조변화가 나타났다.

3) 커피

커피에 침전시킨 1, 7, 28일에 모두 Z350은 가장 큰 색조변화를 나타냈다( $p < 0.05$ ). 침전 28일에는 Z350, FBP, Z250, TNB의 순서로 큰 색조변화를 나타냈다( $p = 0.000$ ). 침전 1일에 Z350만  $\Delta E^* > 3.3$ 의 육안으로 확인 가능한 수준의 색조변화가 나타났으나, 침전 7일부터 모든 복합레진에서  $\Delta E^* > 3.3$ 의 육안으로 확인 가능한 수준의 색조변화가 나타났다.

3. Bulk-fill 복합레진의 시편 두께별 색조변화( $\Delta E^*$ )

1) FBP

이번 연구에서는 2 mm 두께와 4 mm 두께로 제작한 FBP 복합레진 시편(FBP 2 mm, FBP 4 mm)을 대상으로 여러 용액에 침전시킨 뒤 시간에 따른 색조변화를 분석하였다(Table 3). 증류수,

**Table 3.** Mean and standard deviations of  $\Delta E^*$  of FBP 2 mm and FBP 4 mm after immersion in different media

| Time   | DW                                |             |           | RW           |              |           | BC           |              |           |
|--------|-----------------------------------|-------------|-----------|--------------|--------------|-----------|--------------|--------------|-----------|
|        | Mean (SD) of $\Delta E^*$ (n = 5) |             |           |              |              |           |              |              |           |
|        | FBP 2 mm                          | FBP 4 mm    | $p$ value | FBP 2 mm     | FBP 4 mm     | $p$ value | FBP 2 mm     | FBP 4 mm     | $p$ value |
| 1day   | 0.95 (0.54)                       | 0.45 (0.25) | 0.076     | 10.75 (4.90) | 13.09 (4.94) | 0.754     | 2.94 (1.59)  | 3.97 (2.60)  | 0.175     |
| 7days  | 0.75 (0.21)                       | 0.98 (0.59) | 0.754     | 30.16 (3.07) | 31.17 (1.48) | 0.465     | 7.06 (1.29)  | 7.82 (2.48)  | 0.754     |
| 28days | 1.21 (0.41)                       | 1.16 (0.68) | 0.132     | 36.75 (1.37) | 35.43 (1.10) | 0.117     | 10.01 (1.17) | 11.59 (3.14) | 0.465     |

$p$  value from Mann-Whitney's U test

레드와인, 커피에서 1, 7, 28일의 모든 측정값에서 FBP 2 mm와 FBP 4 mm 사이의 통계적으로 유의한 색조변화의 차이가 관찰되지 않았다( $p > 0.05$ ).

2) TNB

TNB 복합레진 시편(TNB 2 mm, TNB 4 mm)을 대상으로 색조변화를 분석하였다(Table 4). 증류수와 커피에서는 침전 1, 7, 28일의 모든 측정값에서 TNB 2 mm와 TNB 4 mm 사이의 통계적으로 유의한 색조변화의 차이가 관찰되지 않았다( $p > 0.05$ ). 레드와인에서는 침전 28일에 TNB 2 mm에서 TNB 4 mm보다 큰 색조변화가 나타났다( $p = 0.032$ ). 그러나 레드와인에서도 그 외 모든 측정값에서 TNB 2 mm와 TNB 4 mm 사이의 통계적으로 유의한 색조변화의 차이는 관찰되지 않았다( $p > 0.05$ ).

IV. 총괄 및 고찰

복합레진의 임상적인 사용에 있어서 수명을 결정하는 중요한 특성중 하나가 색조안정성이다[5,6]. 이 연구에서는 bulk-fill 복합레진을 증류수, 레드와인, 커피에 침전시킨 뒤 색조안정성 평가를 시행하였으며, 색조안정성이 임상적으로 심미적 의의를 갖는 교합면 직접 수복이 가능하다고 명시된 고점도의 bulk-fill 복합레진과 전통적인 복합레진을 대상으로 비교하였다. 복합레진은 모두 동일한 조건하에 2 mm 두께로 시편을 제작하여 색조안정성을 평가하였기 때문에 시편의 두께나 적층 방법에 따른 차이를 배제하고, 오직 복합레진의 종류에 따른 색조안정성을 평가할 수 있었다. 또한, bulk-fill 복합레진은 2 mm 두께와 4 mm 두께의 시편을 각각 제작하여 색조변화를 비교하여, 실제 임상에서 bulk-fill 복합레진을 4 mm까지 한번에 bulk-filling하여 사용했을 때 색조안정성에 영향을 주는지를 평가하였다.

사람이 색을 인식할 때는 광원의 종류, 빛의 산란, 관찰자의 각도 등 여러 요인이 영향을 준다[16]. 이 연구에서는 색도계를 이용하여 정량화된 D65 조명아래 10°의 관찰자 각도로 색조 측정을 시행하여 표준화된 CIE L\*a\*b\* 색 공간을 기준으로 색조 측

정을 시행하였다. 또한, 측정의 오차를 줄이기 위해 매 측정 전에 제조사의 표준백판을 이용한 영점 조정을 시행하였다. 측정된 CIE L\*a\*b\* 값을 기준으로 복합레진의 침전 시간에 따른  $\Delta E^*$  값을 도출하여 색조변화에 대한 비교분석을 시행하였다. 선행 연구에 따르면,  $\Delta E^*$ 가 1보다 작은 수준의 색조변화는 사람의 눈으로 분간이 불가능하며,  $\Delta E^*$ 가 1보다 크고 3.3보다는 작은 수준의 색조변화는 숙련된 전문가들은 인지할 수 있으나 임상적으로는 분간이 힘든 정도이다. 따라서 임상적으로는  $\Delta E^*$ 가 3.3보다 클 때를 육안으로 확인 가능한 수준의 역치로 나타내며, 임상적으로 허용 가능하지 않은 정도의 색조변화로 여긴다[16]. 이 연구에서도 육안으로 확인 가능한 색조변화의 역치 수준을  $\Delta E^* > 3.3$ 으로 설정하였다.

복합레진의 색조변화는 외인성, 내인성 요인에 의해 야기된다. 외인성 요인으로 자외선, 열, 물, 그리고 음료나 음식에 존재하는 변색 인자의 흡착과 흡수 등이 있고, 내인성 요인으로는 복합레진의 구성 성분인 기질, filler, 광중합 개시제 등이 있다[5]. 이 연구에서는 여러 용액에 침전시킨 복합레진 시편의 색조 측정에 앞서 표면에 흡착된 외인성 변색 물질들로 인한 측정의 오차를 줄이고자 매 측정에 앞서 초음파 세척을 시행하였다[11].

이 연구에서 여러 침전 용액의 종류에 따른 색조변화를 비교한 결과, 모든 복합레진에서 레드와인, 커피, 증류수 순으로 큰 색조변화를 보였다( $p < 0.05$ ). 기존의 복합레진의 색조변화와 관련된 연구들에서도 본 연구 결과와 같이, 레드와인에 침전시킨 경우에 복합레진은 큰 색조변화를 나타냈다[5,7,10,17,18]. Baruticigi[7]은 에탄올이 복합레진의 기질을 붕괴시켜 표면을 거칠게 만들고 변색 인자들이 내부로 흡수되도록 하여 색조변화를 야기한다고 하였다. 이 연구에서도 에탄올 성분이 포함된 레드와인에 침전시킨 모든 복합레진이 침전 1일부터  $\Delta E^* > 3.3$ 의 육안으로 확인 가능한 수준의 큰 색조변화를 나타내며, 가장 큰 색조변화를 나타냈다.

커피도 복합레진의 색조변화를 일으키는 요인 중 하나로, 이는 커피의 색소 성분 때문이다. Um[19]에 따르면, 커피는 극성의 노란 색소를 포함하며 높은 극성부위가 먼저 내부로 침투하고,

Table 4. Mean and standard deviations of  $\Delta E^*$  of TNB 2 mm and TNB 4 mm after immersion in different media

| Time   | DW          |             |           | RW                                |              |           | BC          |             |           |
|--------|-------------|-------------|-----------|-----------------------------------|--------------|-----------|-------------|-------------|-----------|
|        | TNB 2 mm    | TNB 4 mm    | $p$ value | Mean (SD) of $\Delta E^*$ (n = 5) |              |           | TNB 2 mm    | TNB 4 mm    | $p$ value |
|        |             |             |           | TNB 2 mm                          | TNB 4 mm     | $p$ value |             |             |           |
| 1day   | 0.57 (0.16) | 0.64 (0.30) | 0.917     | 7.32 (3.11)                       | 10.48 (3.64) | 0.175     | 1.31 (0.34) | 1.54 (0.34) | 0.347     |
| 7days  | 1.17 (0.32) | 1.39 (0.76) | 0.754     | 24.95 (3.05)                      | 25.15 (2.04) | 0.602     | 4.19 (0.44) | 4.65 (0.84) | 0.347     |
| 28days | 1.82 (0.45) | 2.46 (0.87) | 0.175     | 29.14 (1.48)                      | 27.30 (0.78) | 0.028     | 6.09 (0.82) | 7.17 (0.76) | 0.117     |

$p$  value from Mann-Whitney's U test

낮은 극성부위를 천천히 내부로 용출시키면서 지속적인 색조변화를 야기한다. Ertas[17]는 이때 복합레진의 구성 성분이 극성 색소와 화학적으로 구조적 친화성이 높다면, 투과성과 흡수성이 증가하여 색조변화가 심화된다고 하였다. 정기적인 커피 섭취자는 1일 평균 3.2잔의 커피를 섭취하며, 커피 1잔의 평균 섭취 시간은 15분이었다. 따라서, 생체의 연구에서 24시간의 침전시간은 정기적인 커피 섭취자의 약 1개월간의 커피 섭취와 유사했다[17]. 이 연구에서는 커피에 침전시킨 모든 복합레진에서 침전 7일부터  $\Delta E^* > 3.3$ 의 육안으로 확인 가능한 수준의 색조변화가 관찰되었다.

이 연구에서 증류수, 레드와인, 커피의 모든 침전 용액에서 Z350이 가장 큰 색조변화를 나타냈으며, 그 다음은 FBP였다. Z250과 TNB는 비교적 적은 유사한 수준의 색조변화를 나타냈다. 이러한 복합레진별 색조안정성의 차이는 복합레진의 내인성 요인이 영향을 줄 수 있으며, 그 대표적인 요인이 복합레진의 구성 성분인 기질, filler, 광중합 개시제다[5].

복합레진의 색조안정성은 기질의 소수성과 직접적인 연관이 있다. 복합레진의 기질이 친수성이 클수록 수분과 함께 다른 변색 요인들을 내부로 흡수할 수 있고, 수분의 흡수는 내부 미세균열을 야기하여 변색 요인들을 filler와 기질 사이에 침투시키며 내인성 변색을 야기한다. 따라서 복합레진은 색조안정성의 측면에서, 소수성 기질을 포함하는 것이 안정적이다[18,20-22].

복합레진의 기질 중 triethylene glycol dimethacrylate (TEGDMA)는 bisphenol A glycidyl dimethacrylate (Bis-GMA), etoxylated bisphenol A glycol dimethacrylate (Bis-EMA), urethane dimethacrylate (UDMA) 등과 비교했을 때 높은 흡수성을 지니고 있다. Bis-GMA 기반의 복합레진에 TEGDMA를 1%만 첨가해도 수분 흡수가 2배가량 증가했다는 연구결과에서도 나타나듯[23], TEGDMA를 기질로 포함하는 복합레진은 색조변화에 취약하다[7,18,20]. 기질 내 TEGDMA를 부분적으로 UDMA로 대체하였을 때 색조안정성이 개선될 수 있다[23]. 이번 연구에서도 TEGDMA를 기질로 포함하고 있는 Z350이 가장 큰 색조변화를 나타냈다. UDMA 기반의 AUDMA등을 기질로 포함하는 FBP는 그 다음으로 큰 색조변화를 나타냈다. Bis-EMA가 TEGDMA, UDMA, Bis-GMA보다 소수성의 성질을 갖기 때문에[21,24], Bis-GMA, UDMA와 함께 Bis-EMA를 포함하고 있는 Z250과 TNB는 비교적 적은 색조변화를 보였다.

Filler는 복합레진 내부까지 수분을 흡수시키지는 못하지만, 표면에 수분을 흡착시키는 역할을 한다. 흡착 이후 색조변화는 수분을 내부로 흡수시키는 복합레진의 기질의 역할이 크다[25]. 복합레진 표면이 여러 외인성 요인에 의해 용해되면 Filler의 기질과의 결합이 약화되어 탈락할 수 있고, 해당 부위의 미세 균열과

빈 공간을 형성한다. 이러한 미세 균열과 기질과 filler 사이의 미세 간극은 기질 내부로 수분 흡수를 증가시키고, 복합레진의 붕괴를 점차 촉진시키며 색조변화의 원인이 된다[5,8,14].

이번 연구는 고점도의 복합레진을 대상으로 하여 복합레진의 filler 함량과 구성에 큰 차이가 없어, filler가 주는 영향은 적을 것이다[11,25]. 이 연구에 포함된 복합레진들의 filler 성분 중 ytterbium trifluoride은 특이적으로 bulk-fill 복합레진인 FBP와 TNB에만 첨가되어 있었다. Ytterbium trifluoride는 주로 방사선 불투과성을 부여하기 위해 첨가하는데, 선행 연구들에서 소수성 성질을 지니며, 강도나 물성에 영향을 주지 않는다고 밝혀진 바 있어[26], 이로 인한 색조안정성의 영향은 적을 것이다.

색조안정성에 영향을 주는 또 다른 요인으로 복합레진의 광중합 개시제가 있다. 대부분의 복합레진은 camphorquinone (CQ)과 amine 복합 광중합 시스템을 이용하지만, 2,4,6-trimethylbenzoyldiphenylphosphine oxide (TPO)와 CQ 복합 광중합 시스템을 이용하기도 한다[27]. TPO와 CQ를 함께 포함하는 복합 광중합 시스템의 경우 두 종류의 광중합 개시제가 서로 다른 자유 라디칼 부위에서 중합을 시작하여 빠르게 중합을 진행하고, 이러한 중합 과정에서 비롯된 구조적 차이는 TPO를 포함하는 복합레진이 CQ 단독 복합레진보다 우수한 색조안정성을 갖게 한다[28]. 또한, CQ는 화학구조상 안정상태의 chromophore를 포함하고 있다. 이는 복합레진이 노란 변색을 일으키는 원인이 되기 때문에, CQ의 함량이 커질수록 복합레진의 변색도 심화될 수 있다[29]. 이번 연구에서 Z250, Z350, FBP는 CQ 단독의 광중합 개시제를 이용하나, TNB는 제조사에서 자체적으로 개발한 광중합 개시제인 "Ivocerin"과 lucirin TPO를 함께 첨가하고 있다. 이번 연구에서도 TNB는 CQ 단독 광중합 개시제를 이용한 다른 복합레진과 비교했을 때, 비교적 우수한 색조안정성을 나타냈다. TNB는 TPO와 CQ 복합 광중합 개시제를 사용함으로써 높은 중합률로 변색 저항성이 증가했고, Ivocerin과 lucirin TPO가 첨가되어 CQ의 함량이 낮아지며 CQ 자체의 변색이 감소했을 것이다[29,30].

이 연구에서는 FBP와 TNB 모두 시편의 두께에 따른 bulk-fill 복합레진의 색조변화의 통계적으로 유의한 차이가 없었다( $p > 0.05$ ). TNB의 레드와인 침전 28일에만 TNB 2 mm에서 TNB 4 mm보다 큰 색조변화를 나타냈는데( $p = 0.032$ ), 이때  $\Delta E^*$  평균값의 차이는 매우 근소하여 실험상의 오차로 생각된다. Shamszadeh[8]는 TNB를 대상으로 두께 2 mm와 4 mm 시편을 만들어 커피에 28일간 침전시켜 비교한 결과 4 mm 두께의 시편에서 더 큰 색조변화를 보였고, bulk-fill 복합레진에서 중합 깊이가 4 mm에 도달하지 못하여 미중합 단량체들이 색조변화를 일으켰다고 하였다. 이는 이번 연구 결과와는 상반되는데, 해당 연구에서는 할

로겐 광중합기를 이용하여 40초간 중합하여 시편을 제작한 반면, 이번 연구에서는 1000 mW/cm<sup>2</sup>의 강도의 고출력 LED 광중합기를 이용하여 40초간 충분한 광중합을 시행하는 방식으로 시편을 제작하였기 때문에[28,31], 시편의 두께에 따른 색조변화의 차이가 감소했을 것으로 생각된다.

Kim[12]의 연구에서 TNB를 4 mm 두께로 bulk-filling하여 중합한 시편을 대상으로 하방의 강도를 중합 표면 상방의 강도와 비교했을 때, 그 비율이 모두 80% 이상으로 중합률과 강도가 임상적으로 허용 가능한 수준임을 밝혔다. Benetti[32]의 연구에서 bulk-fill 복합레진을 대상으로 중합 수축 정도와 대구치에 2급 와동 수복을 시행한 뒤 간극 형성을 평가하였을 때, TNB를 포함한 고점도 bulk-fill 복합레진은 전통적인 복합레진과 비교하여 중합 수축과 간극 형성 정도에 차이가 없었다. 앞서 연구들과 이번 연구의 색조안정성에 대한 연구를 종합하여 고려했을 때, bulk-fill 복합레진인 FBP와 TNB는 임상적으로 교합면에 직접 수복이 가능할 것으로 생각된다.

그러나, 이 연구는 생체외에서 시행되었으며, 구내에서는 복합레진과 광중합기가 평균 7 mm 이상의 거리를 두고 중합을 시행하며, 이에 따라 복합레진까지 전달되는 광중합기의 강도가 감소하며 불충분한 중합이 될 수 있다는 점을 고려해야 할 것이다[30]. 또한, 이번 연구에서는 복합레진 시편을 용액에 지속적으로 침전시킨 상태로 색조변화를 측정하여, 실제 구내의 타액에 의한 자정작용이나 잇솔질과 같은 세정작용을 고려하지 않았다는 한계가 있다. 위와 같은 구내의 다양한 요소들을 고려한 추가적인 장기간의 실험이 필요할 것으로 생각된다.

## V. 결 론

이 연구의 한계에도 불구하고, 침전 용액은 복합레진의 색조변화에 영향을 주었으며, 침전 용액에 따른 색조변화는 레드와인, 커피, 증류수 순서로 크게 나타났다. 레드와인에 침전시킨 모든 복합레진에서 침전 1일부터  $\Delta E^* > 3.3$ 의 육안으로 확인 가능한 수준의 색조변화를 나타냈으며, 커피에서는 침전 7일부터 모든 복합레진에서 육안으로 확인 가능한 수준의 색조변화를 나타냈다. 증류수에서는 육안으로 확인 가능한 수준의 색조변화는 존재하지 않았다.

Z350이 모든 침전 용액에서 가장 큰 색조변화를 나타냈고, bulk-fill 복합레진은 색조변화는 그보다 적었다. Bulk-fill 복합레진에서 시편의 두께에 따른 색조변화의 차이는 나타나지 않았다. 따라서, 색조안정성의 측면에서 bulk-fill 복합레진인 FBP와 TNB는 심미적으로 교합면 수복에 사용 가능할 것이다.

## References

1. Ilie N, Bucuta S, Draenert M : Bulk-fill resin-based composites: an in vitro assessment of their mechanical performance. *Oper Dent*, 38:618-625, 2013.
2. Kalliecharan D, Germscheid W, Labrie D, *et al.* : Shrinkage stress kinetics of Bulk Fill resin-based composites at tooth temperature and long time. *Dent Mater*, 32:1322-1331, 2016.
3. Czasch P, Ilie N : In vitro comparison of mechanical properties and degree of cure of bulk fill composites. *Clin Oral Investig*, 17:227-235, 2013.
4. Al-Ahdal K, Ilie N, Silikas N, Watts DC : Polymerization kinetics and impact of post polymerization on the degree of conversion of bulk-fill resin-composite at clinically relevant depth. *Dent Mater*, 31:1207-1213, 2015.
5. Barutcigil Ç, Yildiz M : Intrinsic and extrinsic discoloration of dimethacrylate and silorane based composites. *J Dent*, 40:57-63, 2012.
6. Deligeorgi V, Mjör IA, Wilson NH : An overview of reasons for the placement and replacement of restorations. *Prim Dent Care*, 8:5-11, 2001.
7. Barutcigil Ç, Barutcigil K, Yilmaz B, *et al.* : Color of bulk-fill composite resin restorative materials. *J Esthet Restor Dent*, 30:3-8, 2018.
8. Shamszadeh S, Sheikh-Al-Eslamian SM, Panahandeh N, *et al.* : Color stability of the bulk-fill composite resins with different thickness in response to coffee/water immersion. *Int J Dent*, 2016:7186140, 2016.
9. Seok U, Kim J, Kim K, Kim J : Comparison of mechanical properties between bulk-fill and conventional composite resin. *J Korean Acad Pediatric Dent*, 43:427-434, 2016.
10. Yun J, Jung JH, Chang HS : Color evaluation of low viscosity bulk-fill resin with composite resin capping layer. *J Dent Rehabil Appl Sci*, 31:294-300, 2015.
11. Son YJ, Hyun HK, Jang KT, *et al.* : Color stability of new silorane based composite resin: an in vitro spectrophotometric study. *J Korean Acad Pediatric Dent*, 37:73-81, 2010.
12. Kim EH, Jung KH, Park JK, *et al.* : Effect of resin thickness on the microhardness and optical properties of bulk-fill resin composites. *Restor Dent Endod*, 40:128-135, 2015.
13. Reem AA : Optical and surface properties of different bulk-fill resin composites after storage in different media. *J Am Sci*, 11:249-254, 2015.

14. Tanthanuch S, Kukiattrakoon B, Kochatung A, *et al.* : Surface changes of various bulk-fill resin-based composites after exposure to different food-simulating liquid and beverages. *J Esthet Restor Dent*, 30:126-135, 2018.
15. Koc-Vural U, Baltacioglu I, Altinci P : Color stability of bulk-fill and incremental-fill resin-based composites polished with aluminum-oxide impregnated disks. *Restor Dent Endod*, 42:118-124, 2017.
16. Yap AU, Sim CP, Loh WL, Teo JH : Human-eye versus computerized color matching. *Oper Dent*, 24:358-363, 1999.
17. Ertaş E, Güler AU, Güler E, *et al.* : Color stability of resin composites after immersion in different drinks. *Dent Mater J*, 25:371-376, 2006.
18. Ugur E, Alev OK, Meltem ME, *et al.* : Color stability of bulk-fill composites immersed in different drinks. *Color Res Appl*, 43:1-9, 2018.
19. Um CM, Ruyter IE : Staining of resin-based veneering materials with coffee and tea. *Quintessence Int*, 22:377-386, 1991.
20. Muhammet K, Sezer D : Evaluation of color stability and surface roughness of bulk-fill resin composites and nanocomposites. *Meandros Med Dent J*, 18:199-205, 2017.
21. Villalta P, Lu H, Powers JM, *et al.* : Effects of staining and bleaching on color change of dental composite resins. *J Prosthet Dent*, 95:137-142, 2006.
22. Tekçe N, Tuncer S, Baydemir C, *et al.* : The effect of different drinks on the color stability of different restorative materials after one month. *Restor Dent Endod*, 40:255-261, 2015.
23. Kalachandra S, Turner DT : Water sorption of polymethacrylate networks: bis-GMA/TEGDM copolymers. *J Biomed Mater Res*, 21:329-338, 1987.
24. Gajewski VE, Pfeifer CS, Braga RR, *et al.* : Monomers used in resin composites: degree of conversion, mechanical properties and water sorption/solubility. *Braz Dent J*, 23:508-514, 2012.
25. Dietschi D, Campanile G, Holz J, Meyer JM : Comparison of the color stability of ten new-generation composites: an in vitro study. *Dent Mater*, 10:353-362, 1994.
26. Collares FM, Ogliari FA, Samuel SM, *et al.* : Ytterbium trifluoride as a radiopaque agent for dental cements. *Int Endod J*, 43:792-797, 2010.
27. Manojlovic D, Dramićanin MD, Miletic V, *et al.* : Effect of resin and photoinitiator on color, translucency and color stability of conventional and low-shrinkage model composites. *Dent Mater*, 32:183-191, 2016.
28. Arikawa H, Takahashi H, Kanie T, Ban S : Effect of various visible light photoinitiators on the polymerization and color of light-activated resins. *Dent Mater J*, 28:454-460, 2009.
29. Albuquerque PP, Moreira AD, Schneider LF, *et al.* : Color stability, conversion, water sorption and solubility of dental composites formulated with different photoinitiator systems. *J Dent*, 3:67-72, 2013.
30. Ilie N, KeBler A, Durner J : Influence of various irradiation processes on the mechanical properties and polymerisation kinetics of bulk-fill resin based composites. *J Dent*, 41:695-702, 2013.
31. Yap AU, Soh MS : Curing efficacy of a new generation high-power LED lamp. *Oper Dent*, 30:758-763, 2005.
32. Benetti AR, Havandrup-Pedersen C, Pallesen U, *et al.* : Bulk-fill resin composites: polymerization contraction, depth of cure, and gap formation. *Oper Dent*, 40:190-200, 2015.



국문초록

## 다양한 용액에 따른 Bulk-fill 복합레진의 색조안정성 평가

강성균 전공의 · 송지현 교수

*원광대학교 치과대학 소아치과학교실*

이 연구의 목적은 bulk-fill 복합레진과 전통적인 복합레진을 대상으로 다양한 용액과 시편의 두께에 따른 색조안정성의 차이를 평가하는 것이다.

전통적인 복합레진으로 Filtek™ Z250, Filtek™ Z350XT와, bulk-fill 복합레진으로 Filtek™ Bulk-fill Posterior Restorative, Tetric® N-Ceram Bulk Fill이 사용되었다. 각 복합레진 시편은 3개의 군으로 나누어 각각 증류수, 레드와인, 커피 용액에 침전시킨 뒤, 침전 1, 7, 28일에 색조 측정을 시행하여 각 시점과 초기 기준점의 CIE L\*a\*b\*값의 색차( $\Delta E^*$ )가 계산되었다.

모든 복합레진은 레드와인에서 가장 큰 색조변화가 나타났으며, 그 다음은 커피, 증류수 순서였다. Filtek™ Z350XT는 모든 용액에서 가장 큰 색조변화를 나타냈고, 다음은 Filtek™ Bulk-fill Posterior Restorative였다. 그 뒤로는 Filtek™ Z250과 Tetric® N-Ceram Bulk Fill이 유사한 수준의 색조변화를 나타냈다. Bulk-fill 복합레진에서 2 mm와 4 mm인 시편의 두께에 따른 색조변화의 차이는 나타나지 않았다.