

음향 방출법을 이용한 복합레진-치아 접착 파괴의 시간적 해석

조낙연¹, 임범순^{2,3}, 이인복^{1,3*}

서울대학교 치과대학 치과보존학교실¹, 치과생체재료과학교실², 치학연구소³

Time Domain Analysis of De-Bonding of Composite-Tooth Interface using Acoustic Emission

Nak-Yeon Cho¹, Bum-Sun Lim^{2,3}, In-Bog Lee^{1,3*}

Dept. of Conservative Dentistry¹, Dept. of Dental Biomaterials², School of Dentistry and Dental Research Institute³, Seoul National University, Seoul, 110-749, Korea

(Received: Mar. 22, 2012; Revised: Apr. 9, 2012; Accepted: Apr. 20, 2012)

ABSTRACT

The aim of this study was to evaluate the interfacial debonding behaviors of tooth-composite interface using an acoustic emission (AE) technique and relate it to the polymerization shrinkage kinetics of composites. An AE system was manufactured to detect the acoustic signals which were generated by the debonding at the tooth-composite interface during composite restoration. A class I cavity was prepared on the 14 extracted human premolars and divided into two groups. The prepared teeth in each group were restored with either a methacrylate based Z250 (3M ESPE) composite or a silorane based P90 (3M ESPE) composite. AE signals were measured as a function of time for 4000 s after the initiation of light curing. The polymerization shrinkage and peak shrinkage rate of two composites was measured. The mean AE events number for P90 was lower than that of Z250. AE in Z250 group was detected right after the beginning of light curing, while AE was first initiated 40 s after beginning of light exposure in P90. The polymerization shrinkage of P90 (1.34%) was lower than that of Z250 (2.16%). Peak polymerization shrinkage rate in P90 ($0.25\%s^{-1}$) was also lower than that in Z250 ($0.40\%s^{-1}$), and the time to reach peak shrinkage rate of P90 was longer (3.2 s) than that of Z250 (1.4 s). The lower the shrinkage (rate) and slower polymerization reaction of composites resulted in the lower AE events number. The AE is an effective technique to monitor the debonding kinetics at tooth-composite interface during the composite restoration in real time.

KEY WORDS: acoustic emission, composites, silorane, methacrylate, polymerization shrinkage

서론

치아우식, 파절로 손상된 치아와 심미수복치료에 사용되는 복합레진은 마모저항성 및 파절강도 등 물성의 향상과 더불어 상아질 접착제의 발전과 함께 치질 보존의 중요성이 강조되면서 전치부 뿐만 아니라 구치부에도 그 적

용이 크게 증가하고 있다. 그러나 복합레진의 중합수축은 현재까지 해결되지 않은 복합레진의 가장 큰 단점이다 (Ferracane, 2005; Ende 등, 2009).

복합레진의 중합수축은 van der Waals 힘으로 느슨하게 결합돼 있던 단량체 분자가 중합반응이 진행됨에 따라 공유결합으로 이루어진 고분자 구조로 전환되면서 고분자 내의 단량체 사이의 거리가 줄어드는 결과이다 (Kleverlaan and Feilzer, 2005; Ilie 등, 2007). 중합이 진행됨에 따라 증가된 탄성계수와 함께 중합수축은 치아-수복물 계면에 응력을 유발하여 치아와 복합레진의 접착강도가 불충분할 경우 법랑질 또는 상아질과 복합레진 사이에 미세

* 교신저자 : 서울시 종로구 연건동 28 서울대학교 치과대학 치과보존학교실, 이인복

Tel : 02-2072-3953, E-mail : inboglee@snu.ac.kr

* 이 논문은 2012년도 교육과학기술부의 재원으로 한국 연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2012010147).

틈 (gap)이 형성된다. 미세 틈은 술후 과민증을 유발하고 타액이나 세균 등, 이물질이 수복물과 치질 사이로 침투하여 이차우식 및 치수염의 원인이 될 수 있다 (Neme 등, 2002; Papadogiannis 등, 2009). 중합수축응력을 이겨낼 정도로 치질과의 접착이 완벽하더라도 복합레진 내부의 균열이나 범랑질 미세 파절, 교두굴곡과 같이 인접 치질의 변형이 발생할 수 있어 중합수축은 수복물의 수명을 단축시키고 재수복의 주요한 원인이다(Abbas 등, 2003; Tantbirojn 등, 2004; Lee 등, 2007). 따라서 복합레진 수복재와 치질 사이의 완전한 접착 여부의 평가와 더불어 복합레진의 중합수축응력에 의한 치아/수복재 계면의 파괴역학에 대한 정확한 이해는 성공적인 수복 술식의 확립을 위해 임상적으로 매우 중요하다.

중합수축응력의 측정법으로 tenso-meter법 (Feilzer 등, 1990; Davidson and Feilzer, 1997; Lee 등, 2007; Van Ende 등, 2009), 광탄성법 (Kinomoto 등, 2000), 유한요소분석법 (Versluis 등, 1996), 스트레인게이지법 (Sakaguchi 등, 1991) 등이 사용되어 왔다. 치아/수복재 접착 계면부의 평가 방법으로 인장강도측정법 (Takemori 등, 1993), SEM 관찰법 (Ciuocchi 등, 1997; Edward, 2004), 염료침투법 (dye penetration method, Leevailoj 등, 2001; Neme 등, 2002) 등이 있다. 이러한 연구 방법들은 중합수축응력에 의해 접착 계면의 파괴가 이미 일어난 뒤의 사후 평가에 그치고 있어 광중합이 진행됨에 따라 계면의 균열이 언제, 어느 정도의 빈도로 발생하는지에 대한 시간적 해석이 부족하다.

음향방출 (Acoustic Emission) 이란 고체가 외적 응력에 놓였을 시 재료 내부에서 미세한 손상과 균열, 소성 변형, 파괴가 발생할 때 발생하는 음을 탄성파로 방출하는 현상으로서 탄성파를 재료 혹은 구조물 표면에 장착한 초음파센서로 실시간으로 검출하고 비파괴적으로 평가하는 방법을 음향방출시험법이라 한다. 이 방법은 재료, 기계설비, 공장이나 건축구조물의 안전성 평가에 주로 이용되어 왔고 시간 함수로의 파괴해석이 가능하다. 음향방출

은 재료가 파괴되기 이전부터 작은 변형이나 미세한 균열의 진행 과정에서 발생하기 때문에 음향방출의 발생 경향을 진단하여 재료와 구조물의 결합 및 파괴를 발견하여 예측할 수 있다 (음향방출 계측공학, 2008).

최근 음향방출법을 치아와 복합레진의 계면부의 파괴해석에 적용하여 (구 등, 2009; Liu 등, 2011; Li 등, 2011) 복합레진 수복 시 중합수축에 의해 일어나는 치아-수복재 접착 계면에서 일어나는 균열의 발생 양태를 실시간으로 모니터링하고 중합수축 거동과 비교하여 접착 계면 균열의 발생 기전과 빈도를 시간 함수로 해석하고자 하였다. 이들 연구에 의하면 복합레진의 중합수축 응력과 와동의 C-factor (bonded surface area/unbonded free surface area)가 클수록 음향방출의 횟수도 증가하고 광조사 초기에 주로 접착계면의 파괴가 일어났다. 이러한 음향방출분석을 통해 실제 임상에서 복합레진을 이용한 치아 수복 시 일어나는 접착의 실패나 치아 균열로 인한 치아과민증, 이차우식으로 인한 수복치료의 실패를 미리 예방할 수 있는 최적의 수복 방법을 확립하는데 필요한 정보를 제공할 수 있다. 일반적으로 시중에서 구입할 수 있는 음향방출 측정 및 분석시스템은 수 천 만원에 이른다. 본 연구에서는 이러한 고가의 측정시스템에 의존하지 않고 음향방출 센서와 자체 제작한 신호처리 회로 및 범용 데이터 저장 시스템을 이용하여 음향방출 측정시스템을 구성하였으며 이를 이용하여 복합레진 수복 시 접착계면의 파괴 거동을 시간적으로 분석할 수 있었음을 보고하고자 하였다.

재료 및 방법

1. 음향방출 측정 및 분석

본 실험에 사용된 광중합 복합레진은 메타크릴레이트계 기질의 universal hybrid 복합레진인 Z250 (3M ESPE

Table 1. Composites used in this study.

Composites	Components	Batch No.	Manufacturer
Z250	Bis-GMA, BisEMA, UDMA, TEGDMA, Silane treated ceram	N314584	3M ESPE, St. Paul, MN, USA
P90	3,4-Epoxy-cyclohexyl-cyclopolymethylsiloxane, Bis-3,4-Epoxy-cyclohexylethyl-phenyl-methyl silane, Mixture of Epoxyfunctional Di-and Oligo siloxane by-products, Mixture of Alpha-substituted by-products, Mixture of Epoxy-mono-silanol by products, Silane treated Quartz, Yttrium trifluoride	N327380	3M ESPE

Co., St. Paul, MN, USA)과 silolane계 기질의 복합레진인 Filtek P90 (3M ESPE Co., St. Paul, MN, USA) 이었고, 두 재료의 성분은 Table 1과 같다.

1) 음향방출 측정 장치의 제작

치아와 복합레진의 계면에서 발생하는 음향방출을 감지하고 기록하기 위한 음향방출 측정시스템의 구조는 다음과 같다 (Figure 1). 치아에서 발생한 음파는 glass slide로 이루어진 전도체를 지나 초음파센서 M204A (Rectuson, Sungnam, Korea)로 감지된다. 음파신호는 전기신호로 변환된 후 증폭기를 거쳐 신호처리회로 (Figure 2)로 입력된다. 입력된 고주파 신호는 OP Amp LM 358 (National semiconductor, Santa Clara, CA, USA)과 diode 4148로 구성된 증폭 및 정류회로를 거쳐 양의 신호만이 저항과 콘덴서로 이루어진 저역통과 filter를 통과하여 포락신호 (Enveloped signal)로 변환된다.

잡음을 배제하고 음향방출 신호만을 분리하기 위해 OP Amp와 저항으로 구성된 hysteresis를 가진 Level detector (상방 역치값 0.24 V, 하방 역치값 0 V)를 거쳐 0과 5 V 신호로 이진화 된다. 이진화된 신호는 Schmitt trigger inverter HD74H14P (Renesas Tech Co. San Jose, CA, USA)를 거쳐 5 V 펄스 형태의 신호로 변환되어 Data Acquisition Board USB 6016 (National Instrument Co., Mopac Expwy, Austin, TX, USA)에 내장된 계수기에 입력된다. 계수기에 누적된 음향방출 신호의 발생시간과 누적 수를 데이터 획득 및 분석 소프트웨어 Labview (National Instrument Co.)를 이용하여 파일로 저장하였다.

2) 시편 준비

교정치료를 위하여 발거된 상악 소구치를 chrolamine-T 용액에 보관하였다. 이들 중 수복물이 있거나 치아우

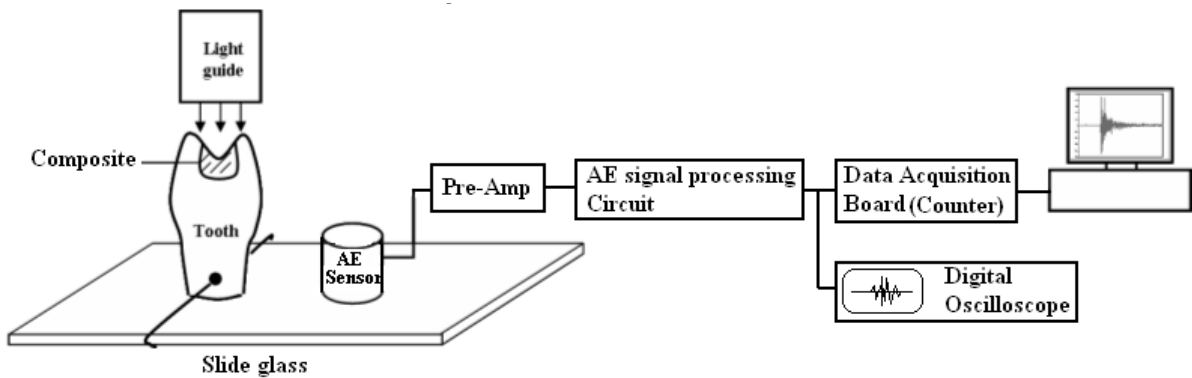


Figure 1. Schematic diagram of AE testing instrument.

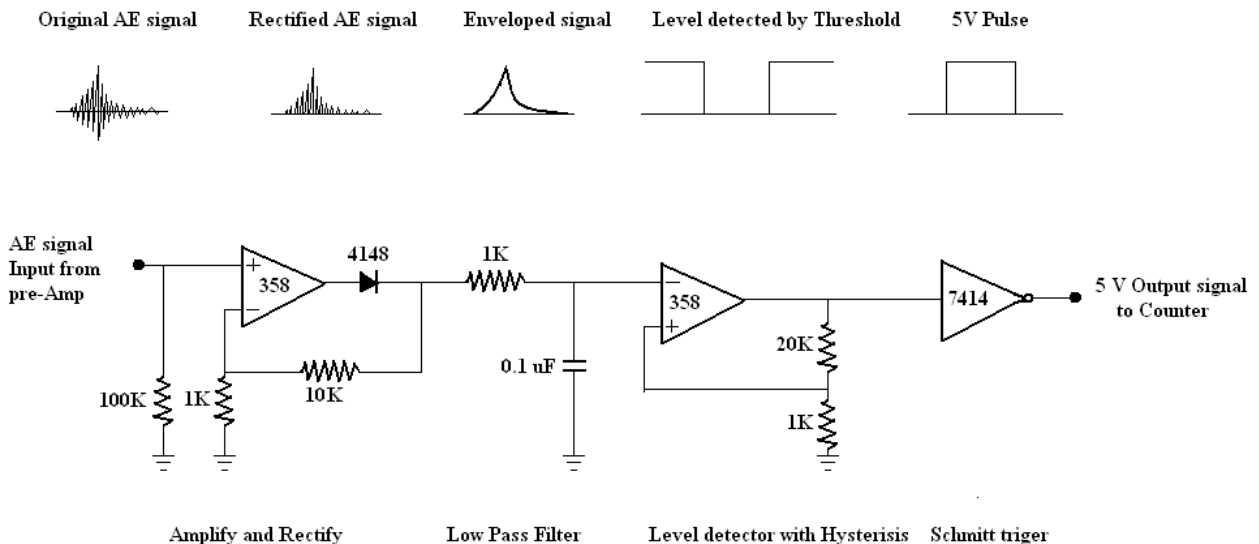


Figure 2. Schematic diagram of the circuit for AE signal processing.

식, 파절, 균열 등의 결함이 있는 치아를 제외하고 크기가 유사한 14 개를 선별하여 실험에 사용하였다.

다이아몬드 버를 이용하여 치아의 CEJ 하방 5 mm의 치근을 수평으로 절제하고 샌드페이퍼 연마지를 이용하여 편평하게 다듬었다. Flat end parallel cylindrical 다이아몬드 버를 이용하여 치아의 교합면에 중심구로부터 2 mm 깊이의 1 급 와동을 형성하였다. 와동의 크기는 근원심 4 mm, 협설측 3 mm의 타원형이 되도록 하였다. 치근의 근원심에 지름 2 mm 가량의 구멍을 형성한 다음 고무줄을 이용하여 slide glass에 고정하고 치아와 slide 경계면에 초음파 신호가 잘 전달되게 하기 위해 grease를 도포하였다 (Figure 1).

치아를 다음과 같이 7 개씩 2 개의 실험군으로 분류하였다.

Z250: 산부식 15초 + 수세 15초 + Scotchbond Multipurpose Primer 도포 후 5초 건조 + Scotchbond Multipurpose Adhesive 도포 후 광중합 10초 + Z250으로 bulk filling

P90: P90 Adhesive System Primer 15초 적용 후 건조하고 광중합 10초 + P90 Adhesive System Bond 적용 후 건조하고 광중합 10초 + P90으로 bulk filling

3) 음향방출의 시간적 측정

치아가 부착된 slide glass를 실험대 위에 놓고 고정된 후 치아와 1 cm 떨어진 위치에 grease를 바르고 음향방출 센서 (M204A, Rectuson, Sungnam, Korea)를 부착하였다. 데이터의 측정 시작과 동시에 광조사기 Elipar Freelight 2 (3M ESPE, St. Paul, MN, USA)를 이용하여 40초간 광조사 하였다 (Figure 1). 광조사 완료 후 치아가 탈수되는 것을 방지하기 위하여 젖은 거즈로 치아를 덮어 습도를 유지하였다. 음향방출은 광조사 시점으로부터 4000초 동안 측정하였다. 사용한 음향방출 센서의 공진 주파수는 200 kHz 이었고 센서로부터 얻어진 신호는 증폭기 (A1002, Rectuson, Sungnam, Korea)를 통해 2500배 증폭된 후 AE signal processing circuit을 통하여 pulse 형태로 이진화된 후 컴퓨터에 저장되었다. 음향방출 신호의 파형 관찰을 위해 디지털오실로스코프 (TDS220, Tektronix, Beaverton, OR, USA)로 파형을 기록하였다. 측정 파라미터는 파형 (wave form), 사상수 (event) 및 사상 발생시간 (event time) 이었다.

2. 복합레진의 중합수축 측정

복합레진의 중합수축을 측정하기 위해 LVDT (linear variable differential transformer)를 이용하여 axial 수축을 계측할 수 있는 장치를 제작하였다 (Figure 3-a). Micrometer (Mitutoyo, Kawasaki, Japan)가 달린 vertical stage (Micro Motion Technology, Bucheon, Korea) 상방에 ± 1 mm 범위에서 $0.1 \mu\text{m}$ 이하의 정밀도로 측정이 가능한 LVDT probe AX-1 (Solartron

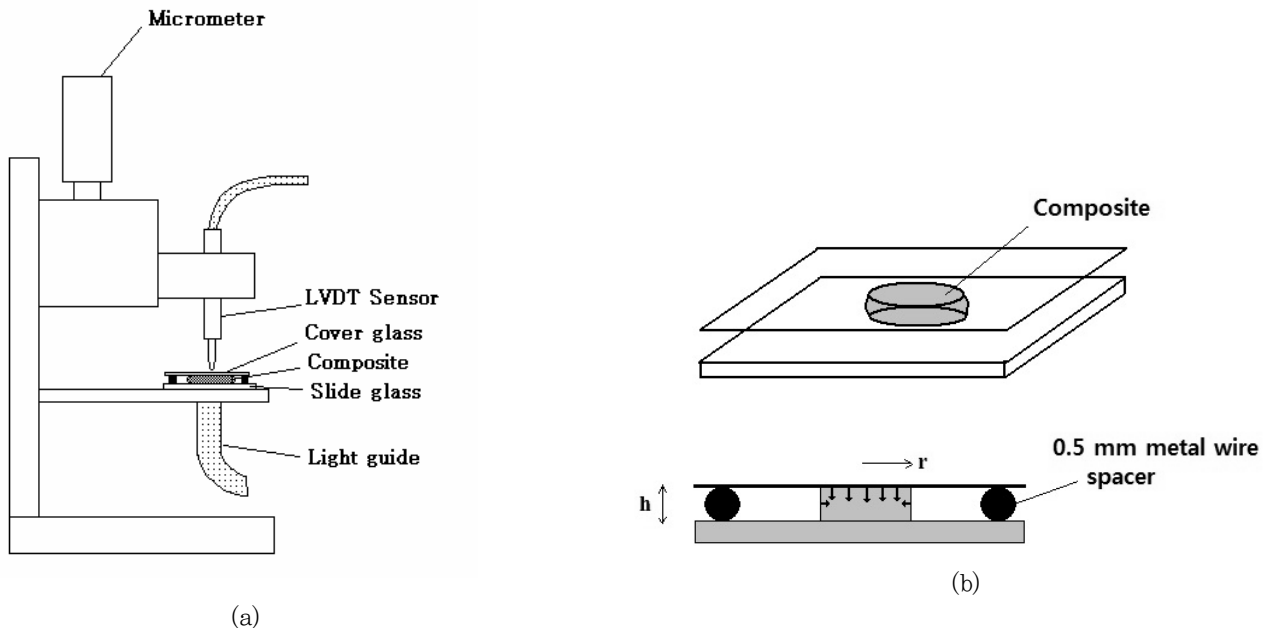


Figure 3. (a) The structure of the instrument for measuring axial shrinkage. (b) The geometry of specimen.

Metrology, West Sussex, UK)을 장착하고 LVDT probe 하방에는 시편을 올려놓을 수 있는 원형의 금속링이 위치한다. 금속링 하방에는 복합레진 시편을 중합시키기 위한 광조사기의 tip 끝이 위치한다.

소량의 (14-15 mm) 복합레진을 slide glass (1×75×25 mm, Marienfeld, Germany) 위에 놓고 flexible cover glass (0.14×18×18 mm, Marienfeld, Germany)로 덮었다. 두 glass plate 사이에 0.5 mm 두께의 금속 와이어를 삽입한 후 cover glass를 다른 slide glass로 눌러 두께 0.5 mm, 지름 6 mm 인 원반 형태의 시편을 만들었다 (Figure 3-b).

준비된 시편을 시료대 위에 올려놓은 후 LVDT probe의 tip 끝을 복합레진 시료가 위치한 cover glass의 중심부 위에 위치시켰다. Vertical stage에 장착된 마이크로미터를 이용하여 LVDT probe의 영점을 맞추었다. 측정 시작 후 광조사 없이 20초 동안 base line을 얻은 후 40

초 동안 광조사 하였다. Axial 중합수축은 $\Delta/(h+\Delta)100$ (%) 로 주어지고 (h: 경화 후 시편 두께, Δ : 측정된 수축량) 총 10분 동안 중합수축을 기록하였다.

Probe의 calibration은 vertical stage에 달려있는 micrometer를 이용하여 출력전압 10 V/mm (10 mV/ μ m)가 되도록 조정하였다. 신호처리 회로와 저역 통과 필터를 거쳐 잡음이 제거된 신호는 National instrument사 (Mopac Expwy, Austin, TX, USA)의 데이터 수집 장치인 PCI-6024를 거쳐 디지털신호로 바뀐 후 같은 회사의 데이터 획득 및 분석 소프트웨어 Labview를 이용하여 파일로 저장되었다. 25 ± 0.5 °C의 실온에서 각 복합레진에 대하여 5회 측정하였다.

통계 분석은 SPSS 11.0 프로그램에서 ANOVA test를 사용하여 비교하였으며 Scheffe test로 95% 유의수준에서 사후 검정하였다.

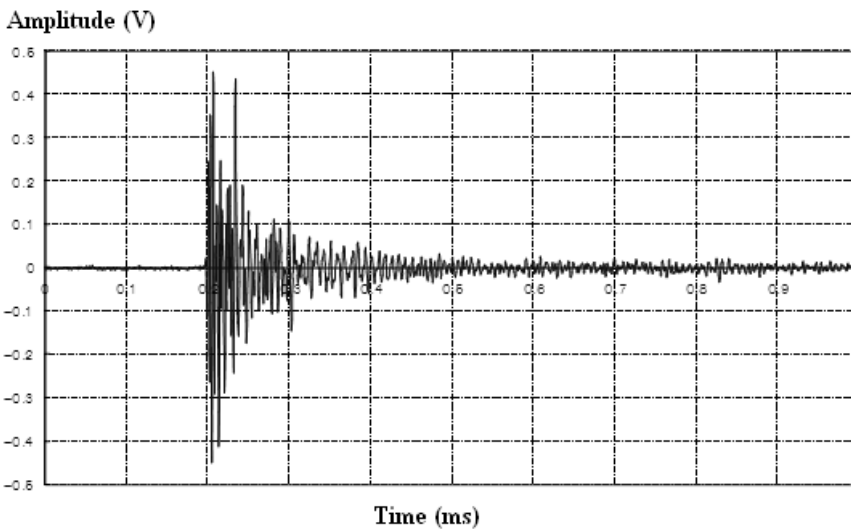


Figure 4. A representative AE signal.

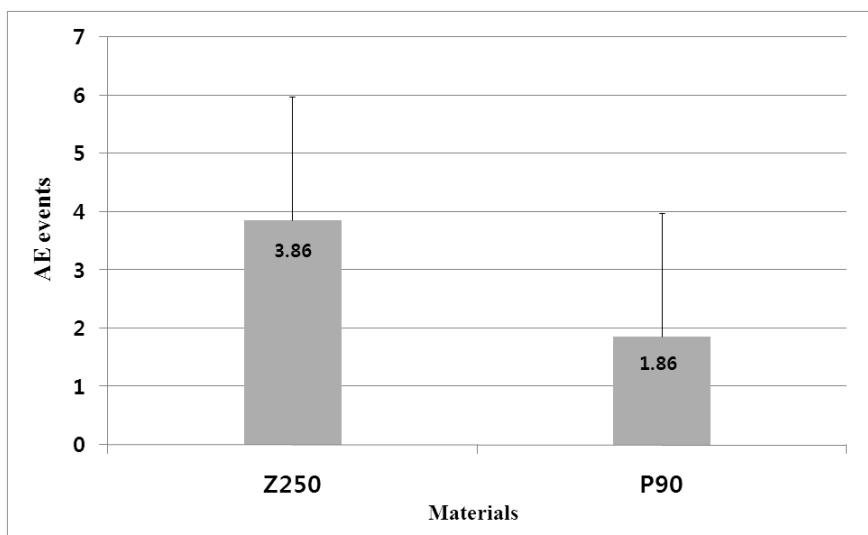


Figure 5. Mean AE events numbers of two groups.

결 과

1. 음향방출 분석

Oscilloscope로 관찰한 광중합형 레진과 치아의 계면에서 검출된 음향방출 신호의 파형은 Figure 4와 같았다. 신호지속시간 2 ms 중 1 ms에 해당하는 부분이며 순간적인 짧은 시간 동안 0.45 V (2500배 증폭된 신호)의 최대 진폭을 갖는 음향방출 신호가 포착되었음을 알 수 있다. 문턱 전압 값을 넘는 파고의 수 (count)는 20이었으며 최대진폭까지 걸린 시간 (Rise time)은 0.006 ms이었다.

두 group의 각 치아 시편의 평균 음향방출 사상수는 Z250이 3.86 (2.12), P90이 1.86 (2.12) 로서 P90의 평균 사상수가 Z250 보다 적었다 ($P < 0.05$, Figure 5).

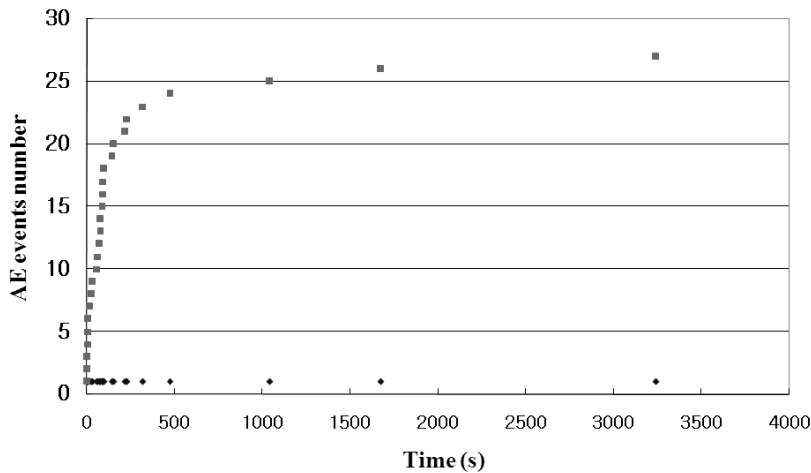
시간의 흐름에 따른 그룹 내 모든 시편의 총 누적 사상수를 Figure 6에 나타냈다. Z250에서는 광중합 후 100초 이내에 음향방출 사상수가 집중되었고 시간이 흐름에 따라 증가율이 감소하는 양상을 보였다. P90에서는 초기에

음향방출 신호가 검출되지 않았으며 40초 이후에 음향방출이 시작되어 5분까지 검출되다가 그 이후 검출되지 않았으나 4000초 가까이에서 다시 신호가 검출되었다.

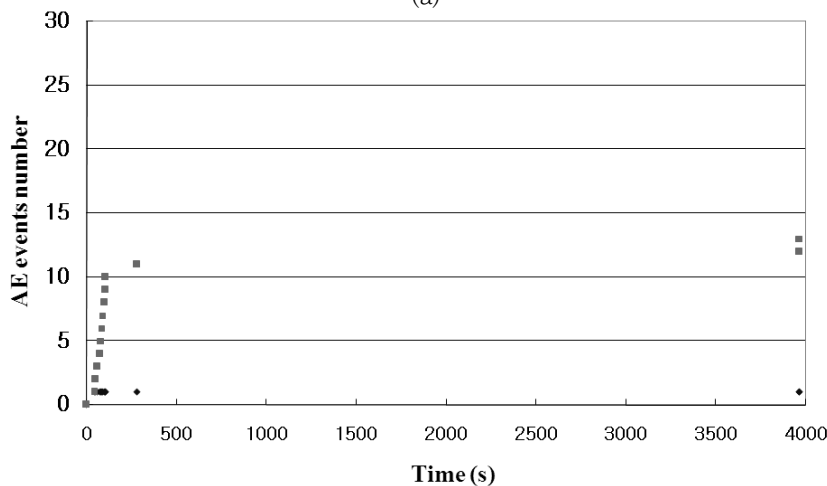
4000초의 실험시간 중 초기 200초 이내에 대부분의 사상이 발생하였으므로 광중합 시작 후 200초까지의 시간대 별 사상수 분포를 Figure 7에 나타내었다. Z250의 경우 10초 이내에 집중을 보이다가 그 이후에는 시간대 별로 비교적 고르게 분포하였다. P90은 40초와 110초 사이에 적은 수의 신호가 고르게 검출되었다.

2. 복합레진의 중합수축

복합레진의 중합 후 10분 동안 시간의 흐름에 따른 선형수축량의 변화는 Figure 8과 같다. 광조사가 시작됨에 따라 급격히 중합수축이 증가하다가 광조사가 끝나기 직전에 어깨 형태를 보인 후, 광조사가 끝난 시점에서 다시 증가하여 광조사 개시 후 60초가 지난 후에는 매우 서서히 중합수축이 증가하였다. Methacrylate 계열인 Z250의

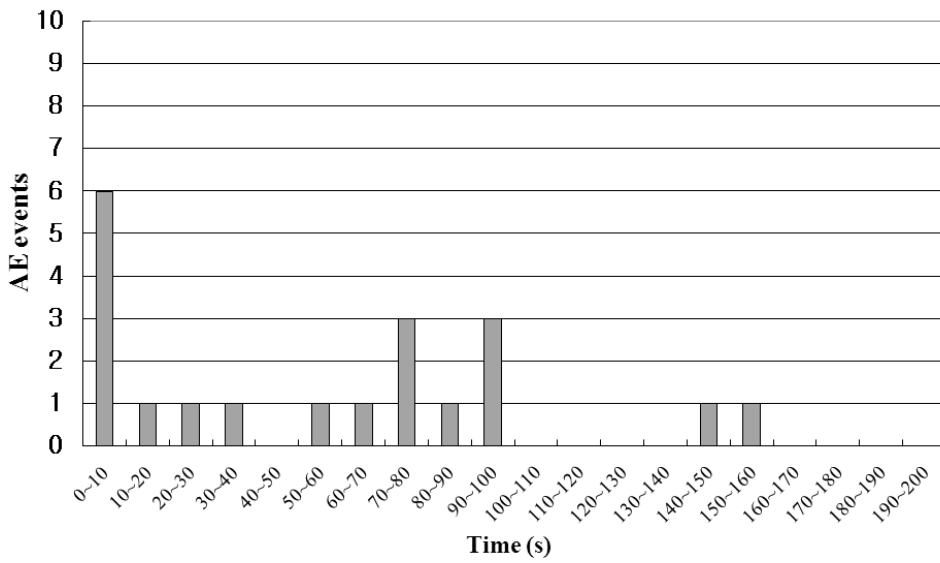


(a)

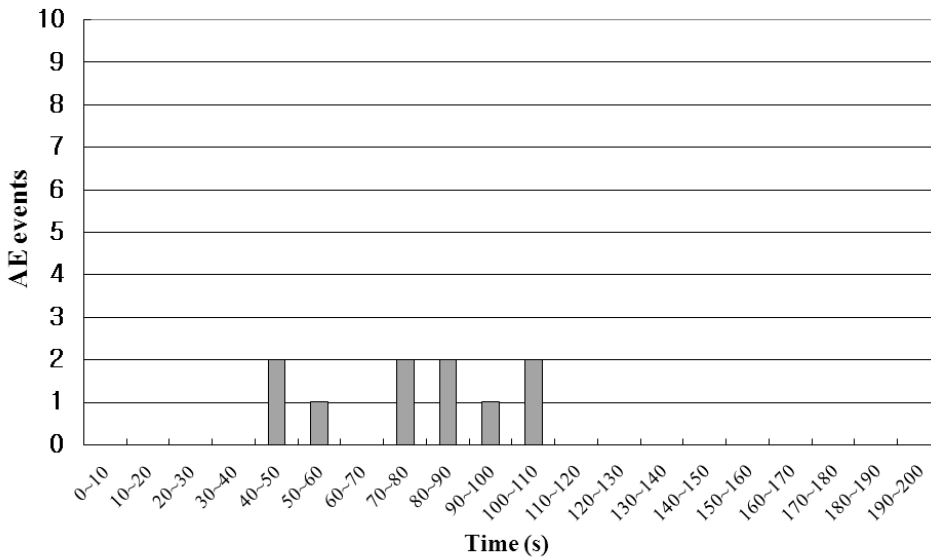


(b)

Figure 6. Total cumulative AE events as a function of time of all specimens in two groups; (a) Z250, (b) P90.



(a)



(b)

Figure 7. AE signal distribution per unit time period for two groups; (a) Z250, (b) P90.

중합수축이 2.16%, Silorane기질인 복합레진 P90의 중합 수축은 1.34%로 P90의 중합수축이 더 작았다 (Figure 8, Table 2).

Figure 8의 그래프를 미분하여 (dVol%/dt) 단위 시간 당 중합 수축률의 변화를 Figure 9에 나타냈다. 최대중합

수축률 (peak shrinkage rate)은 P90이 0.25%^s⁻¹로 Z250 (0.40%^s⁻¹)보다 낮았다 (Table 2). 가장 높은 중합 수축률을 보이는 시점인 최대수축시간 (peak shrinkage time)은 P90이 3.2 초, Z250이 1.4 초 였으며 P90의 최대수축시간이 더 길었다 (Table 2).

Table 2. The measured axial shrinkage (%), peel shrinkage rate (%^s⁻¹) and peak time (s) of composites.

Composites	Axial shrinkage (%)	Peak shrinkage rate (% ^s ⁻¹)	Peak time (s)
Z250	2.16 (0.06)	0.40	1.4
P90	1.34 (0.03)	0.25	3.2

n=5, Numbers in parenthesis are standard deviations.

고찰

본 연구에 사용된 음향방출법은 치과영역에서 복합레진의 filler의 shape, volume fraction 및 size의 차이에 따른 파괴거동의 연구 (Kim 등, 2002), 섬유강화레진에 함유된 fiber의 수와 방향의 차이에 따른 파괴거동의 연구 (Alander 등, 2004; Vallittu 등, 2002), 도재의 initial fracture와 final fracture의 규명 (Ereifej 등, 2008)에 적용된 바 있다. 최근에는 복합레진이 중합되는 동안 치아와 수복재 간의 계면 분리를 감지하기 위한 방법으로 음향방출 신호의 수와 치아-레진 계면의 분리가 명백한 상관관계가 있음이 확인되었다 (구 등, 2009; Liu 등, 2011; Li 등, 2011).

이번 음향방출 시스템의 구축으로 치아-레진의 계면에

서 음향방출 신호를 검출할 수 있었으며 이에 본 연구에서는 methacrylate base 기질의 universal hybrid 복합레진인 Z250과 silolane 기질의 복합레진인 P90을 치아와동에 충전하여 중합하였을 때 치아와 수복재 계면에서 발생하는 균열음을 음향방출법을 이용하여 실시간으로 검출하고 두 재료의 중합수축량을 측정하여 치아와 수복재 접착 계면의 파괴역학 기전을 해석해 보고자 하였다.

예비실험에서 6시간동안 관찰 시 시간이 경과할수록 음향방출신호가 급격하게 증가하였다. 그러나 젖은 거즈를 치아 위에 얹어 탈수를 예방한 이후에는 광중합 개시한 시간 이후 더 이상의 음향방출 신호가 관찰되지 않았다. 따라서 1시간 이후의 급격한 신호의 증가는 치아의 탈수로 인한 균열음으로 판단되었고, 본 실험의 실험시간은 4,000초로 한정하였다.

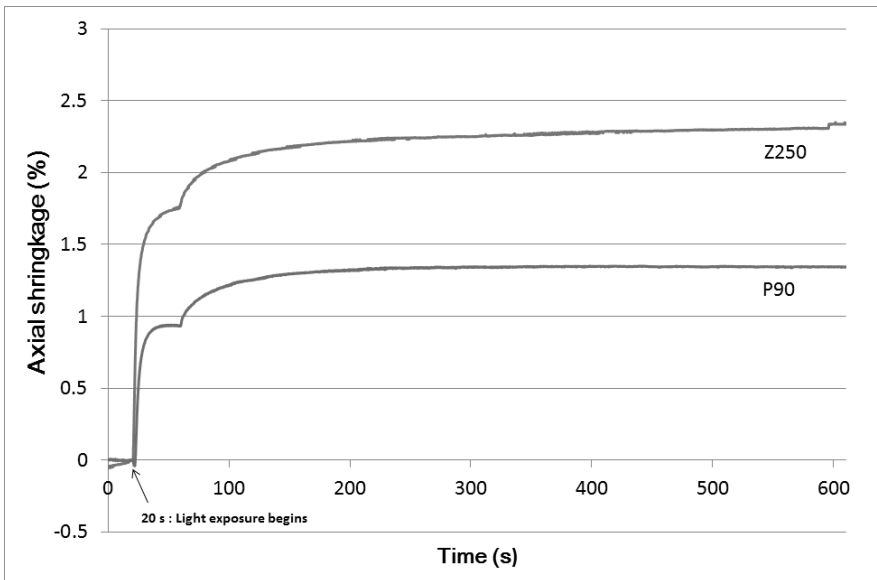


Figure 8. Representative axial shrinkage (%) curves vs time (s) of two composites.

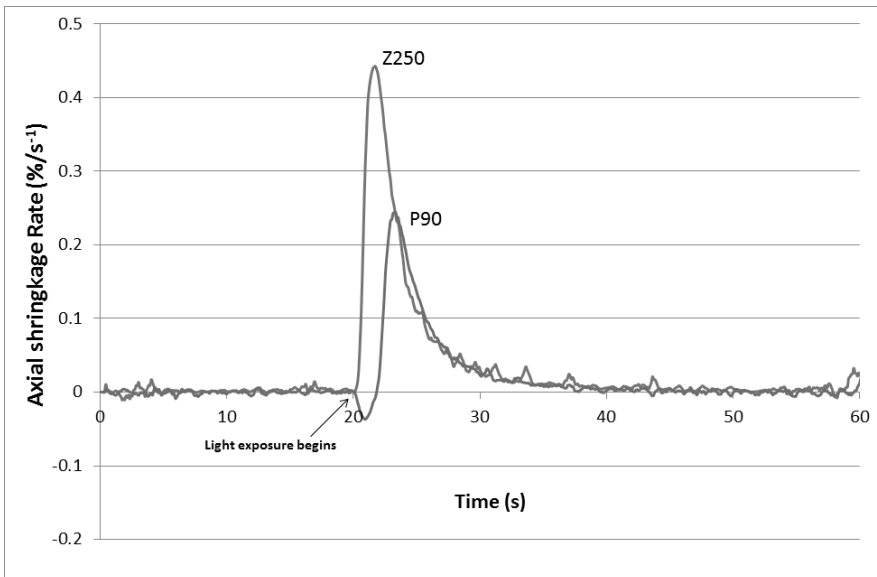


Figure 9. Axial shrinkage rate (%s⁻¹) curves vs time (s) of two composites.

치아와 복합레진 수복물의 계면에서 음향방출신호가 검출되는 원리는 다음과 같이 유추해볼 수 있다. 접착제의 도포 후 외동 내에서 복합레진의 중합이 시작됨에 따라 복합레진의 중합수축과 더불어 중합체 사슬의 생성과 교차결합은 탄성계수를 증가시킨다 (Dauvillier 등, 2000). 불용성의 네트워크가 형성되는 gel point 단계에서 탄성계수가 급속히 증가하여 레진의 탄성한계가 중합수축을 보상하기 위한 가스변형을 허용하지 않게 된다. 이 지점을 넘어서면 부가적인 수축은 레진 내부에 상당한 응력을 발생시키며 레진과 치아 사이의 결합계면에 강한 응력을 유발하게 된다. 따라서 수축하려는 힘이 복합레진과 치아 사이의 결합강도보다 클 경우에 계면분리가 발생하게 되고 이 순간의 충격파가 음향방출신호로 발생하게 되어 초음파센서에 의해 포착될 수 있다. 초기 중합속도가 느린 경우 중합과정에 의해서 성장하는 고분자 사슬의 유동성이 유지되고 재료의 탄성계수가 상대적으로 느리게 증가되어 flow에 의한 stress 해소 능력이 크다는 것을 의미하므로 초기 중합속도와 탄성계수 그리고 중합수축량은 중합수축 응력을 결정하는데 매우 중요하다.

복합레진에서 중합수축 응력의 발생은 레진 단량체의 종류, filler의 종류와 양, filler/matrix 결합과 같은 재료의 조성에 관련된 요소와 중합률과 중합속도, 적용방법 및 중합방법과 같은 중합에 관련된 요소에 의해 좌우된다 (Braga 등, 2005). 특히 레진 기질의 단량체 조성은 gel point와 중합수축 속도 그리고 레진의 중합효율에 큰 영향을 끼치기 때문에 (Alvarez-Gayosso 등, 2004) 중합수축응력을 결정하는데 매우 중요하다.

복합레진의 중합수축과 연관된 문제점을 줄이기 위한 시도의 일환으로 레진 기질 자체의 중합수축이 낮은 복합레진이 개발되었다. 중합과정 중 인접하는 단량체가 서로 결합하면서 분자 사이의 거리가 줄어들어 체적이 감소하는 methacrylate 계열의 복합레진과는 달리 silorane 복합레진은 oxirane ring을 가진 소수성의 siloxane backbone으로 구성되는데, 중합에 관여하는 부위인 oxirane의 ring구조가 열리면서 공간을 확보하게 되고, 이후에 일어나는 화학적 결합에서 유발되는 부피의 감소를 상쇄하게 된다 (Palin 등, 2005). 이러한 “cationic ring opening” 중합 기전으로 낮은 수축률을 보인다고 한다 (Weinmann 등, 2005; Papadogiannis 등, 2009). 또한 silorane은 중합을 개시하기 위하여 충분한 양이온을 형성하는데 많은 시간이 소요되므로 중합반응의 개시가 느리다 (Palin 등, 2005; Ferracane 등, 2005).

광중합형 레진과 치아의 계면에서는 Figure 4에서와 같은 음향방출 신호가 검출되었다. 0.006 ms라는 짧은

시간 동안에 최대 진폭을 보일 정도의 순간적인 발생음을 검출할 수 있다. Figs. 5와 6에서 볼 수 있듯이 P90으로 충전한 실험군의 평균 음향방출 사상수 및 총 누적 사상수가 Z250으로 충전한 실험군보다 적었다. 심지어 P90 group의 7개 치아 중 2개의 치아에서는 어떠한 음향방출 신호도 검출되지 않았다. 시간대 별 분포를 보면 Z250의 경우 광중합 후 100초 이내에 음향방출 사상수가 집중되었고 특히 10초 이내에 집중을 보이다가 그 이후에는 비교적 고르게 분포하였다 (Figs. 6과 7). Z250이 급격한 중합수축을 보이면서 계면 균열의 대부분이 광중합 초기에 발생한 것으로 추측된다. P90의 경우 초기에는 신호가 검출되지 않았으며 40초대에 신호가 시작되어 40초와 110초 사이에 적은 수의 신호가 고르게 검출되었다. P90의 평균 음향방출 사상수가 적었던 것은 P90의 낮은 중합수축률 및 수축률로 인하여 낮은 중합수축응력이 작용하여 치아와 레진 계면의 분리가 적었던 것으로 볼 수 있다. 특히 광조사 시작 후 40초가 경과한 다음 첫 음향방출신호가 발생하였던 점은 느린 반응속도 인해 gel point까지의 시간이 길고 탄성계수가 서서히 증가한 때문으로 추측할 수 있다.

본 연구에서 측정된 P90의 수축률은 1.34 %로 Boaro 등 (2010)이 측정된 1.4 %, Gao 등 (2011)이 측정된 1.2 %, Papadogiannis 등 (2009)이 측정된 1.34 %와 수축률이 유사하였다. Figure 8의 중합수축 곡선은 Figure 6의 총 누적 음향방출 사상수의 곡선과 유사한 패턴을 보였다. 복합레진의 중합수축에 의한 중합수축응력이 접착계면의 파괴를 유발하고 동시에 그 균열음이 포착된 것으로 해석할 수 있다. Figure 9에서 시간에 따른 중합수축률이 광조사 초기에 빠르게 증가하고 감소하는 양상을 볼 수 있다. 중합수축률은 시간에 따라 축적되는 단순한 중합수축량보다 중합수축의 역학적 과정을 더 정확하게 나타내준다 (Papadogiannis 등, 2009). P90의 경우 Z250에 비하여 수축이 늦게 개시되는 것을 알 수 있다. Z250의 경우 1.41초에서, P90의 경우 3.21초에서 최대중합수축률을 보이고 그 이후로 점차 감소하는 양상을 보였다 (Table 2). 최대 중합수축시간이 긴 경우는 중합과정에 의해서 성장하는 고분자 사슬의 유동성이 유지되고 재료의 탄성계수가 상대적으로 느리게 증가되어 flow에 의한 stress 해소 능력이 크다는 것을 의미한다 (Obici 등, 2002). P90은 중합수축률이 낮고 최대수축시간이 길어 중합수축응력을 줄이는데 바람직한 특성을 지녔다고 할 수 있다.

본 연구에서 P90은 self-etch 접착시스템을 사용하고 Z250은 4세대 etch-and-rinse 접착시스템을 사용한 점에 주목해야 한다. 전통적인 etch-and-rinse 접착시스템

이 self-etch 접착시스템보다 법랑질에 높은 결합력을 보인다고 알려져 있다 (De Munck 등, 2005). P90의 화학 조성은 전통적인 methacrylate 계열의 복합레진과는 다르기 때문에 P90은 전용 접착제과 함께 사용하여야 한다. P90용 접착제의 self etching primer는 친수성이며 pH 2.7로서 'ultra-mild'로 분류된다 (Van Ende 등, 2010). Primer의 중합 후 적용되는 접착레진은 소수성의 P90과 적합되기 위하여 소수성의 bifunctional 단량체를 포함하고 있다 (Santini 등, 2008). 본 실험에서 법랑질에 부가적인 산부식을 행하지 않았는데 self-etch system의 법랑질에 대한 낮은 결합력에도 불구하고 Z250에서 보다 P90에서 음향방출신호가 적게 검출되었음은 접착력의 저하보다도 저수축레진에 의한 수축응력의 완화가 더 큰 영향을 미쳤음을 의미한다. Silorane 복합레진은 전통적인 methacrylate 복합레진보다 중합수축이 적기 때문에 치아와 레진 계면에 미치는 응력을 상당히 줄일 수 있고 (Ferracane 등, 2005), 따라서 강한 접착제를 사용할 필요성이 줄어든다고 하였다 (Van Ende 등, 2010).

실험 조건으로 C-factor가 높아 접착에 불리한 Class I 외동과 bulk filling technique을 선택한 것은 음향방출 신호가 많이 검출되어 P90과 Z250의 중합거동의 차이를 극대화하기 위한 것이었다. Class I 외동은 compliance가 작은 외동으로서 중합수축량 뿐만 아니라 탄성계수의 효과가 중합수축응력에 큰 영향을 끼치게 된다 (Min 등, 2010). P90의 경우 낮은 중합수축을 보이므로 탄성계수가 타 복합레진과 유사하다면 수복 후의 중합수축응력도 낮을 것으로 예측되며 이번 실험의 음향방출측정 결과도와 잘 부합되었다. 그러나 silorane의 중합수축량은 작지만 탄성계수가 methacrylate 계열의 복합레진 보다 더 높은 값을 보여 silorane의 최종 중합수축응력이 높았음이 보고 된 바도 있어 (Boaro 등, 2010) 추후 연구에서는 silorane의 탄성계수와 중합수축응력에 대한 분석이 필요할 것이다. 또한 C-factor와 접착제의 종류를 달리하여 음향방출 신호의 차이를 비교해보고 치아와 레진의 계면에 발생한 균열을 SEM 등으로 확인하여 음향방출신호와 의 연관성을 확인해보는 것이 필요할 것이다.

결론

본 연구에서는 methacrylate base 기질의 universal hybrid 복합레진인 Z250과 silolane 기질의 복합레진인 P90을 치아 외동에 충전하여 중합하였을 때 치아와 수복

재 계면에서 발생하는 균열음을 음향방출법을 이용하여 실시간으로 검출하고 두 재료의 중합수축량을 측정하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 음향 방출법을 이용하여 복합레진이 중합되는 동안 치아와 복합레진의 계면 분리를 실시간으로 검출할 수 있었다.
2. Z250보다 P90에서 평균 음향방출 사상수가 적었다. Z250에서 광중합 초기에 음향방출 신호가 발생하기 시작한 것과는 대조적으로 P90에서는 40초 이후에 신호가 발생하기 시작하였다.
3. P90의 중합수축량 (1.34%)이 Z250의 중합수축량 (2.16%) 보다 낮았다.
4. 최대중합수축률은 P90 ($0.25\%s^{-1}$)이 Z250 ($0.40\%s^{-1}$)보다 낮았고 P90의 최대수축시간 (3.2초)은 Z250 (1.4초)과 비교하여 느렸다.

참고문헌

- 구자욱, 최낙삼, Arakawa K (2009). 음향방출법을 이용한 치아/복합레진 수복재의 계면부 파괴해석 한국복합재료학회지 22:45-51.
- 일본비파괴검사협회. 음향방출 계측공학. 구미서관, 2008.
- Abbas G, Fleming GJP, Harrington E, Shortfall AC, Burke FJT (2003). Cuspal movement and micro-leakage in premolar teeth restored with a packable composite cured in bulk or in increments. *J Dent* 31:437-444.
- Alander P, Lassila LVJ, Tezvergil A, Vallittu PK (2004). Acoustic emission analysis of fiber-reinforced composite in flexural testing. *Dent Mater* 20:305-312.
- Alvarez-Gayosso C, Barcelo-Santana F et al (2004). Calculation of contraction rates due to shrinkage in light-cured composites. *Dent Mater* 20:228-235.
- Boaro LC, Goncalves F, Guimaraes TC, Ferracane JL, Versluis A, Braga RR (2010). Polymerization stress, shrinkage and elastic modulus of current low-shrinkage restorative composites. *Dent Mater* 26:1144-1150.
- Braga RR, Ballester RY, Ferracane JL (2005). Factors involved in the development of polymer-

- ization shrinkage stress in resin-composites: A systematic review. *Dent Mater* 21:962-970.
- Ciucchi B, Bouillaguet S, Delaloye M, Holz J (1997). Volume of the internal gap formed under composite restorations in vitro. *J Dent* 25:305-312.
- Dauvillier BS, Feilzer AJ, de Gee AJ, Davidson CL (2000). Viscoelastic parameters of dental restorative materials during setting. *J Dent Res* 79:818-823.
- Davidson CL, Feilzer AJ (1997). Polymerization shrinkage and polymerization shrinkage stress in polymer-based restoratives. *J Dent* 25:435-440.
- De Munck J, Van Landuyt K, Peumans M, Poitevin A, Van Meerbeek B (2005). A critical review of the durability of adhesion to tooth tissue: Methods and results. *J Dent Res* 84:118-132.
- Edward JS (2004). Causes, prevention, and treatment of dentin hypersensitivity. *Compendium* 25:95-106.
- Ereifej N, Silikas N, Watts DC (2008). Initial versus final fracture of metal-free crowns, analyzed via acoustic emission. *Dent Mater* 24:1289-1295.
- Feilzer AJ, De Gee AJ, Davidson CL (1990). Quantitative determination of stress reduction by flow in composite restorations. *Dent Mater* 6:167-171.
- Ferracane JL (2005). Developing a more complete understanding of stresses produced in dental composites during polymerization. *Dent Mater* 21:36-42.
- Gao BT, Lin H, Han JM, Zheng G (2011). Polymerization characteristics, flexural modulus and microleakage evaluation of silorane-based and methacrylate-based composites. *Am J Dent* 24:97-102.
- Ilie N, Jelen E, Clementino-Luedemann T, Hickel R (2007). Low-shrinkage composite for dental application. *Dent Mater J* 26:149-55.
- Kim KH, Okuno O (2002). Microfracture behaviour of composite resins containing irregular-shaped fillers. *J Oral Rehabil* 29:1153-1159.
- Kinomoto Y, Torii M, Takeshige F (2000). Polymerization contraction stress of resin composite restorations in a model class I cavity configuration using photo elastic analysis. *J Esthet Dent* 12:309-319.
- Kleverlaan CJ, Feilzer AJ. Polymerization shrinkage and contraction stress of dental resin composites. *Dent Mater* 2005;21:1150-1157.
- Lee IB, Cho BH, Son HH, Um CM (2006). The effect of consistency, specimen geometry and adhesion on the linear polymerization shrinkage measurement of light cured composites. *Dent Mater* 22:1071-1079.
- Lee MR, Cho BH, Son HH, Um CM, Lee IB (2007). Influence of cavity dimension and restoration methods on the cusp deflection in composite restoration. *Dental Mater* 23:288-295.
- Lee SH, Chang J, Ferracane JL, Lee IB (2007). Influence of instrument compliance and specimen thickness on the polymerization shrinkage stress measurement of light-cured composites. *Dental Mater* 23:1093-1100.
- Leevailoj C, Cochran MA, Matis BA, Moore BK, Platt JA (2001). Microleakage of posterior packable resin composites with and without flowable liners. *Oper Dent* 26:302-307.
- Li H, Li J, Yun X, Liu X, Fok AS (2011). Non-destructive examination of interfacial debonding using acoustic emission. *Dent Mater* 27:964-971.
- Liu X, Li H, Li J, Lu P, Fok AS (2011). An acoustic emission study on interfacial debonding in composite restorations. *Dent Mater* 27:934-941.
- Min SH, Ferracane JL, Lee IB (2010). Effect of shrinkage strain, modulus, and instrument compliance on polymerization shrinkage stress of light-cured composites during the initial curing stage. *Dent Mater* 2010;1024-1033.
- Neme AL, Maxon BB, Pink FE, Aksu MN (2002). Microleakage of class II packable resin composites lined with flowables: An in vitro study. *Oper Dent* 27:600-605.
- Obici AC, Sinhoreti MAC, De Goes MF, Consai S, Sobrinho LC (2002). Effect of the photo-activation method on polymerization shrinkage of restorative composites. *Oper Dent* 27:192-198.
- Palin WM, Fleming GJP, Nathwani H, Burke FJT, Randall RC (2005). In vitro cuspal deflection and microleakage of maxillary premolars restored with novel low-shrink dental composites. *Dent Mater* 21:324-335.
- Papadogiannis D, Kakaboura A, Palaghias G,

- Eliades G (2009). Setting characteristics and cavity adaptation of low-shrinking resin composites. *Dent Mater* 25:1509-1516.
- Sakaguchi RL, Sasik CT, Bunczak MA, Douglas WH (1991). Strain gauge method for measuring polymerization contraction of composite restoratives. *J Dent* 19:312-316.
- Santini A, Miletic V (2008). Comparison of the hybrid layer formed by silorane adhesive, one-step self-etch and etch and rinse systems using confocal micro-Raman spectroscopy and SEM. *J Dent* 36:683-691.
- Takemori T, Chigira H, Itoh K, Hisamitsu H (1993). Factors affecting tensile bond strength of composite to dentin. *Dent Mater* 9:136-138.
- Tantbirojn D, Versluis A, Pintado MR, DeLong R, Douglas WH (2004). Tooth deformation patterns in molars after composite restoration. *Dent Mater* 20:535-542.
- Vallittu PK (2002). Use of woven glass fibers to reinforce a composite veneer. A fracture resistance and acoustic emission study. *J Oral Rehabil* 29:423-429.
- Van Ende A, De Munck J, Mine A, Lambrechts P, Van Meerbeek B (2010). Does a low-shrinking composite induce less stress at the adhesive interface? *Dent Mater* 26:215-222.
- Versluis A, Douglas WH, Cross M, Sakaguchi RL (1996). Does an incremental filling technique reduce polymerization shrinkage stresses? *J Dent Res* 75:871-878.
- Weinmann W, Thalacker C, Guggenberg R (2005). Siloranes in dental composites. *Dent Mater* 21:68-74.