

Methacrylate 기질 복합레진과 Silorane 기질 복합레진의 치아 수복 시 중합수축응력거동

박정훈* · 최낙삼**†

Behavior of Polymerization Shrinkage Stress of Methacrylate-based Composite and Silorane-based Composite during Dental Restoration

Jung-Hoon Park*, Nak-Sam Choi**†

ABSTRACT: Polymerization shrinkage stress analysis of dimethacrylate-based composite (Clearfil AP-X, Kuraray) and silorane-based composite (Filtek P90, 3M ESPE) used for dental composite restorations was performed using strain-gage measurement and FEM analysis. A theoretical equation based on Young's modulus and polymerization shrinkage of the composite resin was proposed to predict the polymerization shrinkage stress. Experimental results showed that the maximum shrinkage stress of Clearfil AP-X was about 2.8 times higher than Filtek P90. FEM analysis agreed with such experimental stress behaviours and showed that the maximum Von-Mises stress appeared near the margin of the filled resin adhered with PMMA ring. The stress concentration at the interface on the specimen surface was higher than that in the interior. The maximum error of shrinkage stress by the theoretical equation was reasonable within 5% in comparison to FEM results under plane stress.

초 록: 치아의 수복에 사용되는 재료인 Methacrylate 기질 복합레진(Clearfil AP-X)과 Silorane 기질 복합레진(Filtek P90)을 대상으로 스트레이인게이지법과 FEM 분석법으로 중합수축응력거동을 분석하였다. 또한 복합레진의 탄성계수와 수축변형률을 중합수축응력과 관계시켜 이론식을 제시하고 이 식의 계산결과와 FEM 분석법의 결과를 비교하였다. 스트레이인 게이지법으로 측정한 결과, 중합수축응력의 최대값은 Clearfil AP-X가 Filtek P90 보다 약 2.8배 높게 나타났다. FEM 분석 결과, Von-Mises 응력은 복합레진 수복재와 PMMA 링사이의 계면부에서 최대로 되었으며 시편표면의 계면부가 내부보다 응력집중이 더 컸음을 알았다. 예측식을 통한 반경 방향의 수축응력은 평면응력상태의 FEM 분석법을 통한 값과 비교하여 오차 5% 이내로 정확했음을 확인하였다.

Key Words: 치아수복(Dental restoration), Methacrylate 기질 복합레진(Methacrylate-based composite resin), Silorane 기질 복합레진(Silorane-based composite resin), 중합수축(Polymerization Shrinkage), 스트레이인 게이지법(Strain-gage method), 유한요소법(Finite element method).

1. 서 론

치과용 복합레진은 용이한 작업성과 뛰어난 심미성으로 치아의 심미수복치료에 많이 사용되고 있다. 이러한 수복

용 복합레진은 광중합 개시제인 캄포퀴논을 함유하고 있어 빛에 의한 중합반응을 일으킨다. 이때, 중합반응에 의한 단량체의 상호 공유결합으로 중합수축이 발생하게 되어 치아와 복합레진사이의 계면 결합 형성의 원인이 된다. 이러

Received 21 October 2014, received in revised form 31 December 2014, accepted 9 February 2015

*Department of Mechanical Engineering, Graduate School, Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

**†Department of Mechanical Engineering, Hanyang University, Gyeonggi-do 426-791, Korea, Corresponding author (E-mail: nschoi@hanyang.ac.kr)

한 결합은 수복재와 치아 사이의 계면에서 결합력보다 중합수축응력이 큰 경우 발생확률이 높다. 발생된 결합으로 인해 시술 받은 환자에게 지각과 민증이 나거나 이물질이 수복물과 치질 사이로 침투하여 이차우식, 치아 파절 등으로 이어져 치아 수명을 현저히 저하시킬 수가 있으므로 복합레진 수복재의 개발 및 이의 중합수축응력과 관련한 연구는 중요하다[1-3].

치아와 복합레진 사이의 계면결합을 예방하고자 중합수축응력이 낮은 특성을 갖는 복합레진이 개발되고 있으며, 이러한 연구의 결과로 “cationic ring opening” 기전으로 중합반응이 일어나는 silorane 계열의 복합레진이 최근에 소개되었다[4]. silorane 계열의 복합레진은 중합에 관여하는 oxirane의 ring 구조가 열리면서 공간을 확보하게 되어 단량체 사이의 결합에서 일어나는 체적의 감소를 일부 상쇄하여, Methacrylate 기질의 복합레진에 비해 중합수축량이 작고 따라서 중합수축응력이 낮게 된다[5]. 하지만, 중합수축응력을 줄이도록 개발된 silorane 계열의 복합레진의 중합수축응력 감소효과는 중합수축 측정방법에 따라 결과가 상이하여 보고된 중합수축측정량 값들을 상호 비교하기에는 어려움이 있다. 이러한 이유로 그 적정성 판단을 내리기에 아직 이르다는 견해도 보고되고 있다[6].

복합레진의 중합수축량을 측정하기 위해 다양한 방법이 이용되어 왔으며, 이 중 dilatometer는 비교적 정확한 복합레진의 중합 수축률을 측정할 수 있는 방법이다[7]. 그러나 수은 등을 이용하여 부피의 변화를 측정하기 때문에 주위의 온도 변화에 대하여 지나치게 민감하게 반응하여 실제 측정에 있어서 어려움을 나타낼 수 있다. 비중을 이용하여 복합레진의 중합 수축률을 측정하기에 진정한 의미에서 복합레진의 중합 수축 부피를 구하는 방법이라 할 수 있겠지만, 복합레진 자체가 물을 흡수하는 성질을 가지고 있어, 이에 대한 영향을 배제할 수 없다. 중합수축량을 측정하는 다른 방법으로 LVDT tranducer를 이용하는 방법이 있다. 이 방법은 레진에 덮개를 놓고 굴곡을 LVDT tranducer를 통해 계측하여 중합수축량을 결정한다. 하지만 표본의 기하학적 형태에 따라 수치가 선형 수축량의 한배에서 세배까지도 측정될 수 있는 불안정성의 문제점을 가지고 있다[8]. 이 밖의 중합수축량을 측정하는 방법으로 Feilzer 등이 고안한 linometer가 있다. 이 방법은 재료간의 상대적인 비교를 위해서 매우 간단하면서 정확한 방법으로 평가되고 있으나[9], 시편을 담는 디스크와 시편 사이에서 발생하는 응력에 의한 영향을 받을 수 있는 한계를 가지고 있다[10].

치아에 작용하는 응력을 분석하기 위해 광탄성법, holography법 그리고 유한요소법등이 사용되고 있다. 탄성체에 힘이 가해졌을 때 광학적으로 일시적인 비등방체로 되어 복굴절을 일으키고, 힘을 제거하면 원상으로 복귀하는 현상을 활용하는 광탄성법은 응력분포를 간접무늬로서

확인할 수 있다. 이 방법은 물체 표면의 응력분포를 확인함에 적합하지만 치아를 대상으로 투과가 어려워 반사를 위해 실제물체에 광탄성 재료를 입혀야 하는 단점이 있다[11]. 응력분석을 위한 다른 방법인 holography 법은 물체의 표면이 거칠지 않아도 측정할 수 있는 장점을 갖으나 표면의 응력분석만이 가능하다는 점이 단점이다[12]. 이 밖에 치아 응력분석을 위한 방법으로 유한요소법이 사용되고 있지만 이는 이론적인 값이므로 실제와는 다르다는 한계를 가지고 있다.

복합레진의 중합반응으로 발생하는 수축응력은 후크의 법칙에 기반하여 중합수축량과 복합레진의 탄성계수에 의해 복합적으로 계산하며, 복합레진의 탄성계수가 높고 중합 수축량이 클수록 수축응력 값은 증가할 것이다. 하지만, 복합레진의 경우 탄성계수의 값이 광조사 후 시간에 따라 비선형적으로 증가하므로 후크의 법칙을 치과용 복합레진에 치아로 직접 적용하기 어려우며 초기 졸상태에서 겔상태로 변화하는 과정의 이해가 필요하다[13].

또한, 복합레진의 자유로운 체적 변화량은 실제 와동(Cavity)의 계면에서 발생하는 중합수축 응력과 크게 다를 수 있다[14]. 이는 복합레진의 중합과정 중 발생하는 응력의 크기와 방향은 와동의 형태에 따라 다르며, 중합속도와 국소적 중합수축의 분포 그리고 경계 조건에 의해 큰 영향을 받기 때문이다. 또한, 이인복 등은 시편 형태가 광중합 복합레진의 중합수축 응력의 측정에 미치는 영향에 대한 연구에서 methacrylate 기질 계열의 레진을 대상으로 측정장치의 compliance가 낮을수록 측정되는 중합수축응력이 높음을 확인하였으며[15], 복합레진의 중합수축응력 측정방법에 있어서 측정 장치의 compliance의 유무 또한, 중요한 변수로 작용하므로 레진의 응력분석 시 고려해야 한다고 하였다[16].

치과용 복합레진의 전체적인 중합수축 과정은 겔 전 단계(Pre-gel phase)와 겔 후 단계(Post-gel phase)의 두 단계로 나눌 수 있으며, 이 중 겔 전 단계에서의 수축은 재료 자체의 흐름성으로 인한 응력상쇄로 실질적인 수축응력이 발생되지 않는 반면, 재료의 강직성이 증가하여 탄성계수를 나타내는 겔 후 단계에서는 수축응력이 발생하게 된다. 본 연구에 사용된 스트레인 게이지법(Strain gage measurement method)은 Sakaguchi 등이 소개한 것으로 겔 후 단계의 복합레진 중합수축응력을 비교적 정확하게 실시간으로 측정하는 방법이다[17].

본 연구에서는 대표적인 치아수복재인 methacrylate 계열의 Clearfil AP-X와 silorane 계열의 Filtek P90 복합레진을 대상으로 스트레인 게이지 법과 FEM을 통해 두 레진의 치아 수복 시 중합수축응력거동을 비교분석하고, 복합레진의 탄성계수와 수축변형률을 중합수축응력과 관계시켜 이론식을 제시하여 이를 FEM의 결과와 비교분석하고자 한다.

2. 실험 방법

2.1 시편링 제작

본 연구를 위해 시편링의 재질은 치과용 레진 중 의치(Denture)의 주성분으로 임상상태의 모사가 가능하고 탄성계수가 일정하다는 장점을 갖는 PMMA(Polymethyl methacrylate) 수지를 사용하였으며, 링형상은 외경 6 mm 높이 2 mm의 원반에 내경 4 mm의 관통형 홀을 가지며, 레이저 가공으로 제작하였다.

2.2 복합레진 종류 및 수복 방법

본 연구에 사용된 복합레진은 Clearfil AP-X(Kuraray, Japan)와 Filtek P90(3M ESPE, USA)의 두 종류이다(Table 1). 복합레진의 수복 방법은 링 시편의 내벽에 마이크로 브러쉬를 사용하여 복합레진 접착제를 충분히 반복 도포한 후 강한 결합강도를 유지할 수 있도록 10 sec 동안 약한 바람을 불어 건조시킨 다음 LED 조사기로 10 sec 동안 광조사를 실시하여 접착제를 부분 중합시킨다. 이후, 시편내부에 복합레진을 충전하여 시편의 윗면까지 채우고 시편 내 수복재의 윗면으로부터 수직으로 20 sec 동안 광조사하여 복합레진에 투과시켰다. LED 광조사기(Morita Pencure, Japan)는 모든 실험에서 시편과의 거리를 2 mm로 일정하게 유지하였다.

2.3 변형률 측정과 링 내면의 중합수축응력 산출

본 연구에서는 시편 원주방향 표면의 변형률 측정을 위하여 시편 표면을 에칠 알코올로 세척 후 Fig. 1과 같이 시

Table 1. Dental composites used in this study

Composite	Resin Matrix	Filler	Manufacturer
Clearfil AP-X	Bis-GMA TEDGMA	3 μm Barium glass, Silica particle (85.5 wt%)	Kuraray
Filtek P90	Silorane	0.01-3.5 μm (average 0.47 μm) quartz parti- cles, yttrium fluoride (76 wt%)	3M ESPE

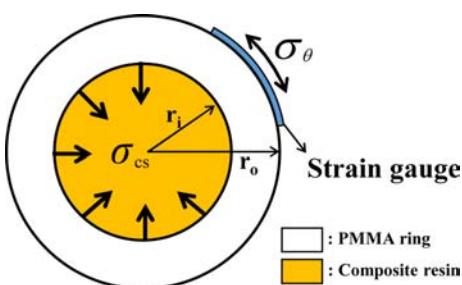


Fig. 1. Schematic geometry of specimen

편 외측의 주방향으로 스트레인 게이지(KFG-1-120-C1-11L1M2R, 1 mm in gauge length, Kyowa, Japan)를 부착하였다. 수복재 수축에 의한 링 외면의 변형률 값은 미소하게 발생하므로 스트레인 게이지의 신호를 스트레인 앰프(DAS-406B, Minebea, Japan)에 연결시켜 증폭하였다. 데이터의 획득은 Labview 8.0을 통하여 90분 동안 전압신호를 0.1초 간격으로 수집하였다.

또한, 링 단면부의 임의 반경(r)에서의 원주응력(σ_θ)은 원주방향 변형률에 비례한다. 따라서 후크의 법칙으로 실험에서 측정된 변형률로부터 링 외면의 원주응력을 구할 수 있다(식 1). 본 연구에서 사용된 링과 같이 시편 반지름에 대한 링 두께의 비가 큰 경우에는 미소체적 요소에 대한 정역학적 평형방정식으로부터 링 내면(r_i)에 수직하게 발생하는 중합수축응력(σ_{cs})과 링 외면의 원주응력(σ_θ) 사이의 관계식을 구할 수 있다(식 2). 시편 내면에 작용하는 수축력에 의해 원주응력은 압축응력으로 작용하므로 충전된 복합레진의 중합수축응력(σ_{cs})은 아래의 식 (3)으로 구해진다.

$$\sigma_\theta = E_s \varepsilon_s \quad (1)$$

$$\sigma_\theta = -\frac{r_i^2 \sigma_{cs}}{r_o^2 - r_i^2} \left(1 + \frac{r_o^2}{r^2} \right) \quad (2)$$

$$\sigma_{cs} = -E_s \varepsilon_s \frac{r_o^2 - r_i^2}{2r_i^2} \quad (3)$$

여기서, E_s 는 PMMA 링의 탄성계수이며 ε_s 는 링 외면의 측정 변형률, r_o 와 r_i 는 각각 링의 외경과 내경이다. 식 (3)에서 음의 부호는 시편 링 내면에 작용하는 수축력에 의해 원주변형률 ε_s 가 압축으로 작용하기 때문에 σ_{cs} 가 인장력으로 작용함을 의미한다.

3. 해석

3.1 링 시편 수복시의 중합수축응력 해석

앞 절에 서술한 시편 링 내면에 작용하는 복합레진의 중합수축응력 σ_{cs} 는 레진의 탄성계수 E_c 와 레진 수축률 ε_r 의 함수로써 다음의 과정을 통해 구할 수 있다.

먼저 수축 전의 복합레진 반경을 r_i 라 하고, Fig. 2(a)와 같이 PMMA 링이 존재하지 않는 경우에서 중합수축만이 발생한 후의 반경을 r_i' 이라 하면, 중합수축으로 인한 변위량 $\Delta r_i (\leq 0)$ 은 식 (4)와 같이 r_i 과 ε_r 의 곱으로 표현할 수 있다.

$$\Delta r_i = r_i \varepsilon_r \quad (4)$$

또한, Fig. 2(b)와 같이 레진의 중합수축발생 시 복합레진과 링사이의 계면에서 접착으로 인한 스프링 반력으로 중합수축력 σ_{cs} 가 발생했을 때의 변위량 $\Delta r_1 (\geq 0)$ 은 아래의 식

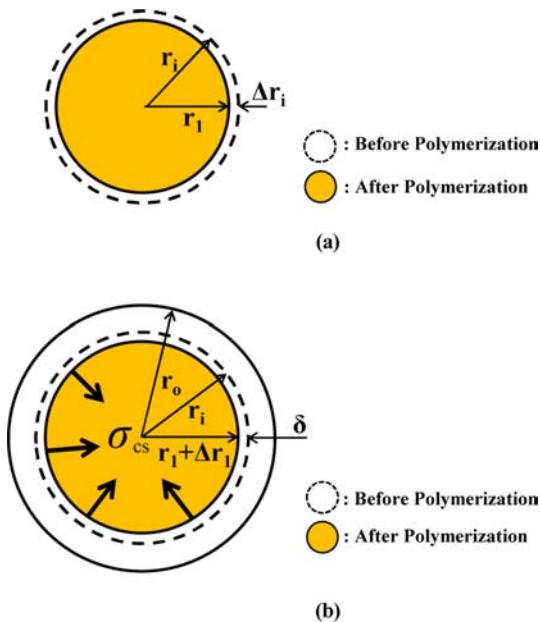


Fig. 2. Polymerization shrinkage of the resin (a) without PMMA ring substrate and (b) with PMMA ring substrate

(5)와 같아 표현된다.

$$\Delta r_i = \left(\frac{1-v_c}{E_c} \right) \sigma_{cs} r_i \quad (5)$$

여기서, v_c 는 복합레진의 푸아송비(Poisson's ratio)이다. 따라서, 기하학적 조건에 의한 레진 가장자리부의 총 변위량 $\delta (\leq 0)$ 는 식 (4)와 (5)로부터 아래의 식 (6)과 같다.

$$\begin{aligned} \delta &= \Delta r_i + \Delta r_1 \\ &= r_i \varepsilon_r + \left(\frac{1-v_c}{E_c} \right) r_i \sigma_{cs} \end{aligned} \quad (6)$$

이 때, 중합수축에 따라 복합레진에 작용하는 반경방향응력은 수축응력 σ_{cs} 와 동일 하며, 복합레진내의 원주의 방향응력과도 같은 된다.

마찬가지로 외부 링의 탄성력이 중합수축량에 미치는 효과를 검토하면, 중합수축의 발생으로 생성되는 반경방향의 총 변위량 δ 는 평면응력조건 하에서 아래의 식 (7)과 같은 표현된다.

$$\delta = \frac{r_i \sigma_{cs}}{\left[1 - \left(\frac{r_o}{r_i} \right)^2 \right] E_s} \left[(1-v_s) + (1+v_s) \left(\frac{r_o}{r_i} \right)^2 \right] \quad (7)$$

여기서, v_s 는 링의 푸아송비, r_o 는 링 외경의 반지름, E_s 는 링의 탄성계수이다. 식 (6)와 식 (7)에서 총 변위량 δ 는 시편 전체의 기하학적인 적합조건에 의해 동일해야 하므로 아래의 식 (8)과 같은 관계를 갖는다.

$$\begin{aligned} r_i \varepsilon_r + \left(\frac{1-v_c}{E_c} \right) r_i \sigma_{cs} \\ = \frac{r_i \sigma_{cs}}{\left[1 - \left(\frac{r_o}{r_i} \right)^2 \right] E_s} \left[(1-v_s) + (1+v_s) \left(\frac{r_o}{r_i} \right)^2 \right] \end{aligned} \quad (8)$$

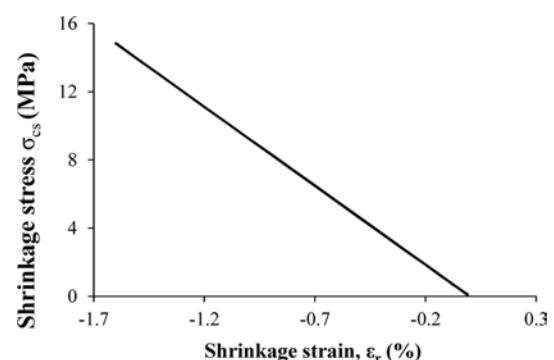
이를 σ_{cs} 로 나타내면 다음 식 (9)과 같다.

$$\sigma_{cs} = \frac{1}{\frac{A}{\varepsilon_s} - \left(\frac{1-v_c}{E_c} \right) \left(1 + \frac{1}{\varepsilon_r} \right)} \quad (9)$$

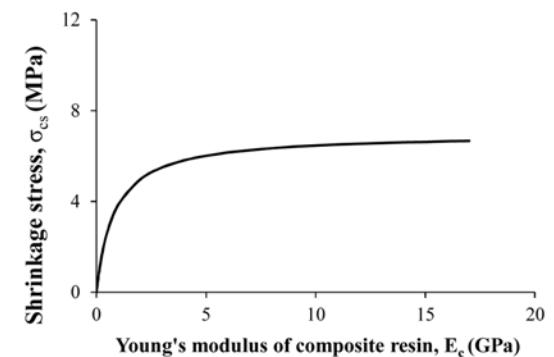
$$A = \frac{(1-v_s) + (1+v_s) \left(\frac{r_o}{r_i} \right)^2}{E_s \left(1 - \left(\frac{r_o}{r_i} \right)^2 \right)} \quad (10)$$

여기서, A 는 식 (10)과 같이 외부 링의 물성치와 기하학적인 값들로 표현되므로 상수로 취급할 수 있으며 본 연구의 경우 $r_o = 3$ mm, $r_i = 2$ mm, FEM의 분석에 사용한 물성치(Table 2)를 기준으로 $A = -0.906(\text{GPa}^{-1})$ 이 된다. 식 (9)로부터 σ_{cs} 는 레진의 탄성계수(E_c)와 수축률(ε_r)의 복합적인 작용으로 결정됨을 알 수 있다.

Fig. 3은 식 (9)에 의해 예측된 중합수축응력(σ_{cs})을 레진



(a)



(b)

Fig. 3. Behaviors of shrinkage stresses calculated by Eq.(9) as a function of (a) according to variable ε_r , (b) according to variable E_c

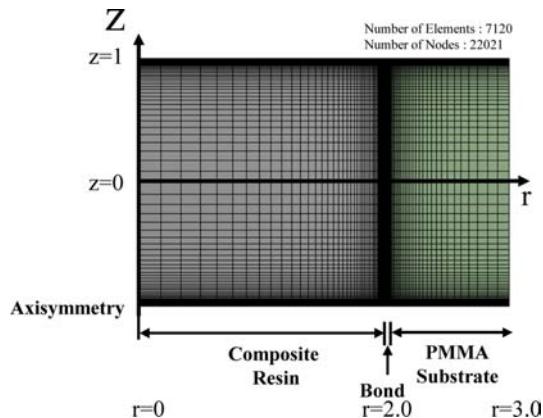


Fig. 4. 2D axisymmetry modeling of a specimen for finite element calculation

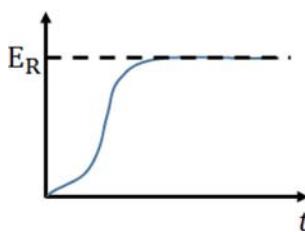


Fig. 5. Changing behavior of Young's modulus of general dental composite resin according to curing time [19]

Table 2. Material properties of composite resin and substrate for calculation

Properties	Clearfil AP-X	Filtek P90	PMMA	Adhesive
Elastic modulus (GPa)	4.2	4.8	3.2	2.1
Poisson's ratio	0.26	0.3	0.3	0.3
Polymerization Shrinkage (vol.%)	-1.9	-0.88	-	-

수축률 ϵ_s 로 써 나타낸 그래프이다. Fig. 5(a)는 $E_c = 4.2$ GPa, Fig. 6(b)는 $\epsilon_s = 0.63\%$ 로 본 연구의 AP-X의 물성치를 기준으로 상수라 가정하여 σ_{cs} 를 예측하였다. Fig. 3(a)의 경우 ϵ_s 의 절대값 크기가 증가함에 따라 선형적으로 σ_{cs} 가 증가하지만, Fig. 3(b)에서와 같이 E_c 가 커짐에 따라 초기에는 급격히 큰 구배를 보이나 일정 값 이상에서부터는 ϵ_s/A 의 값에 수렴하였다. 이는 식 (6)으로부터 총 변위량 δ 가 ϵ_s 의 값이 일정할 때 E_c 가 증가할수록 Δr_2 가 감소하여 레진의 중합수축으로 인한 변형 Δr_1 이 더 지배적이기 때문이다. 또한, 중합수축응력의 수렴 값 ϵ_s/A 는 시편 링의 탄성계수 E_s 와 비례 관계에 있으며, 이는 시편 링의 탄성계수가 증가할 경우, 레진의 중합수축응력이 높게 측정됨을 의미한다. 따라서 FEM 분석에 사용된 물성치(Table 2)를 식 (9)에 대입하여 예측된 PMMA 링 내면에서의 중합수축응력은 P90의 경우 2.79 MPa, AP-X는 5.86 MPa로 예측되었다.

3.2 FEM 응력해석

FEM 분석을 위해 ANSYS 14.5 프로그램을 사용하였으며, 시편을 Fig. 4와 같이 중심축 z를 기준으로 반경방향으로의 재질과 두께는 복합레진 1.97 mm, 본드 0.03 mm, PMMA 기질 1 mm로 모델링 2차원 축대칭으로 모델링 하였다. 서로 다른 재료가 부착된 경계면이나 부재간의 접촉면을 유한 요소로 해석할 때 요소와 요소 사이에 불연속 거동과 역학적인 비선형특성 때문에 적합한 해석이 쉽지 않으므로[18] 본 연구에서는 시편의 표면부와 계면에서의 응력거동을 집중적으로 관찰하고자 계면부위의 요소를 세분화하여 많은 요소를 생성하였다. 여기서, 각 층의 경계조건은 완전접착 조건으로 가정하였다. 하중조건은 복합레진부의 전영역에서 발생하는 중합수축을 모사하기 위하여 선수축량을 열팽창계수로 등가시켜 적용하였다. 치과용 복합레진의 실제 탄성계수(E_c)는 Fig. 5와 같이 초기 졸 상태에서 광중합반응 이후 점차적으로 경화되어 최종 겔 상태에 이르기까지 시간에 따라 비선형적으로 증가하는 경향을 가지므로 FEM의 적용에 어려움이 있다. 따라서, 본 연구에서는 레진 제조사에서 제공한, 완전경화 시 탄성계수 값을 기준으로 1/3로 가정한 탄성계수를 FEM에 적용하여 분석하였다. FEM 분석에 적용한 탄성계수 및 푸아송비, 중합수축률을 Table 2에 기입하였다. 계산에 입력된 중합수축률은 선형수축률(ϵ_s)로써 Table 2의 부피수축률 값의 1/3이다. 모델링된 총 요소 수는 7120개, 절점 수는 22021개이다.

4. 결과 및 고찰

Fig. 6은 AP-X와 P90 복합레진이 충전된 시편의 시간에 따른 레진의 중합수축응력을 나타낸 것이다. 이 그림에서 중합수축응력 σ_{cs} 는 식 (1)의 ϵ_s 를 시편링의 측면에서 측정하고 이 데이터를 식(3)을 통해 σ_{cs} 로 산출한 것이다. 두 실험 모두 약 20 s LED 광조사와 함께 중합발열과 복사열에 의한 레진팽창을 보였으며 이후 약 40 s까지 압축응력거동을

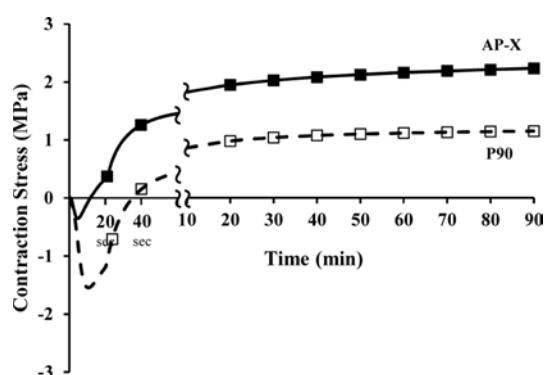


Fig. 6. Behaviors of the contraction stress at the margin measured from the inner surfaces of the substrate during the polymerization contraction in composite restoration

Table 3. Maximum compressive stress levels according to composite resin

Composite	Maximum compressive stress (MPa)	Time at the maximum compression stress (s)
Clearfil AP-X	-0.30	5.2
Filtek P90	-1.45	13.3

Table 4. Maximum contraction stress levels and maximum contraction rates according to composite resin kind

Composite resin	Maximum contraction rate (MPa/s)	Time at the maximum contraction rate (s)	Maximum contraction stress(MPa)
Clearfil AP-X	0.09	21.1	2.64
Filtek P90	0.12	20.9	0.92

보였다. 또한, 수축응력이 20 min 이후에는 아주 서서히 증가하여 거의 일정한 값으로 수렴하는 거동을 보였다.

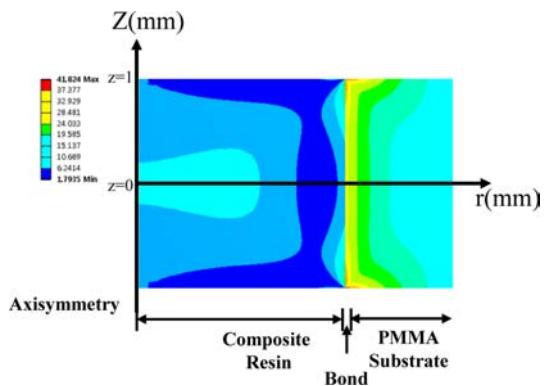
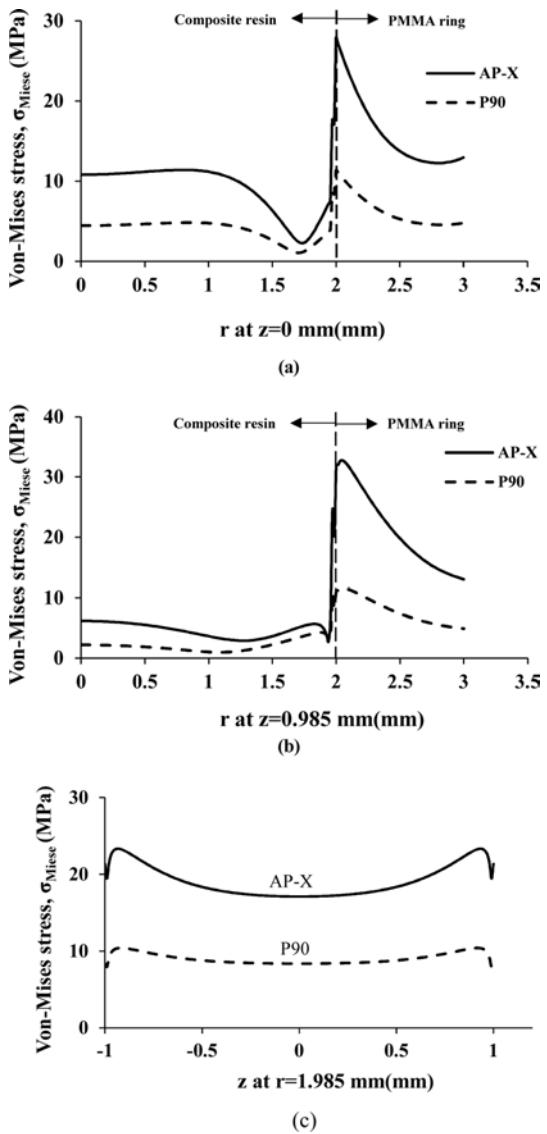
최대압축응력의 경우 Table 3에서와 같이 P90이 1.45 MPa으로 AP-X의 0.30 MPa 보다 4.8배 더 큼을 알 수 있었으며, 이는 초기 졸 상태의 굳기기에 의한 차이로 인하여 발생하는 것으로 사료된다. 또한, 최대압축응력까지 도달한 시간은 P90이 13.3 s로 AP-X의 5.2 s 보다 약 2.56배 더 길게 걸렸으며 이와 같은 현상의 이유는 silorane의 중합과정에 수반되는 양이온의 형성에 어느 정도의 시간이 필요하기 때문이라고 보고되고 있다[20].

한편, 시간에 따른 최대수축응력변화률(contraction rate)은 Table 4와 같이 AP-X의 경우가 0.09 MPa/s으로 P90의 0.12 MPa/s 보다 낮았으나, 최대 수축응력률에 도달하는 시간은 거의 차이가 없었다. 각 레진의 최대수축응력은 AP-X가 P90 보다 약 2.87배 높게 나타났다. 외부에 하중이나 변형이 가해지지 않은 상태에서 AP-X의 탄성계수는 16.8 GPa[21], P90의 탄성계수는 14.4 GPa[22]으로 AP-X의 탄성계수가 약간 더 높으나 Table 2와 같이 AP-X 중합수축량이 P90 보다 약 2배로 커서 약 2.87배로 크게 된 것이다.

Fig. 7은 AP-X의 Von-Mises stress 분포를 FEM 분석으로 가시화한 그림이다. Von-Mises stress (σ_{Mises})는 물체의 각 지점에서의 비틀림 에너지를 나타내는 값으로써 물체의 파괴를 예측하는 응력으로, 아래의 식 (11)와 같이 산출하였다. 본 연구의 경우에는 Fig. 7과 같이 복합레진과 PMMA 링의 경계부에서 σ_{Mises} 가 최대로 나타났다.

$$\sigma_{Mises} = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{(\sigma_x - \sigma_y)^2 + (\sigma_y - \sigma_z)^2 + (\sigma_z - \sigma_x)^2 + 6(\tau_{xy}^2 + \tau_{yz}^2 + \tau_{zx}^2)} \quad (11)$$

Fig. 8(a)은 같이 σ_{Mises} 가 레진의 가장자리부분에서 응력집중되는 양태를 보여주고 있다. $z = 0$ mm의 가운데 면에서(Fig. 8(a)) AP-X의 경우 레진과 링 사이의 경계면에서 최

**Fig. 7.** Von-Mises stress (σ_{Mises}) distribution in the cross-section of a PMMA ring substrate restored by Clearfil AP-X resin**Fig. 8.** Behaviors of Von-Mises stresses (σ_{Mises}) distributed in the composite resin-restored PMMA ring specimen as a function of (a) r at $z = 0$ mm, (b) at $z = 0.985$ mm and (c) z at $r = 1.985$ mm

대값 29.54 MPa이었으며 P90은 최대값 10.86 MPa을 보였다. $z = 0.985 \text{ mm}$ 인 시편 표면부근에서는 AP-X의 경우 경계면에서 최대값 37.04 MPa를 나타냈으며 P90은 최대값 12.28 MPa를 보였다(Fig. 8(b)). 이처럼 경계면에서 σ_{Mises} 가 최대인 이유는 PMMA 링의 탄성계수가 훨씬 크게 설정되었기 때문으로 사료된다. 또한, Fig. 8(c)와 같이 레진과 링의 경계부($r = 1.985 \text{ mm}$)에서 z 방향으로 σ_{Mises} 은 표면부근에서 최대값으로 나타났으며, 시편의 가운데 면($z = 0 \text{ mm}$)에서의 값보다 표면부가 AP-X는 1.3배, P90은 1.2배 더 높았다. 이러한 원인은 레진의 중합수축이 반경방향 뿐만 아

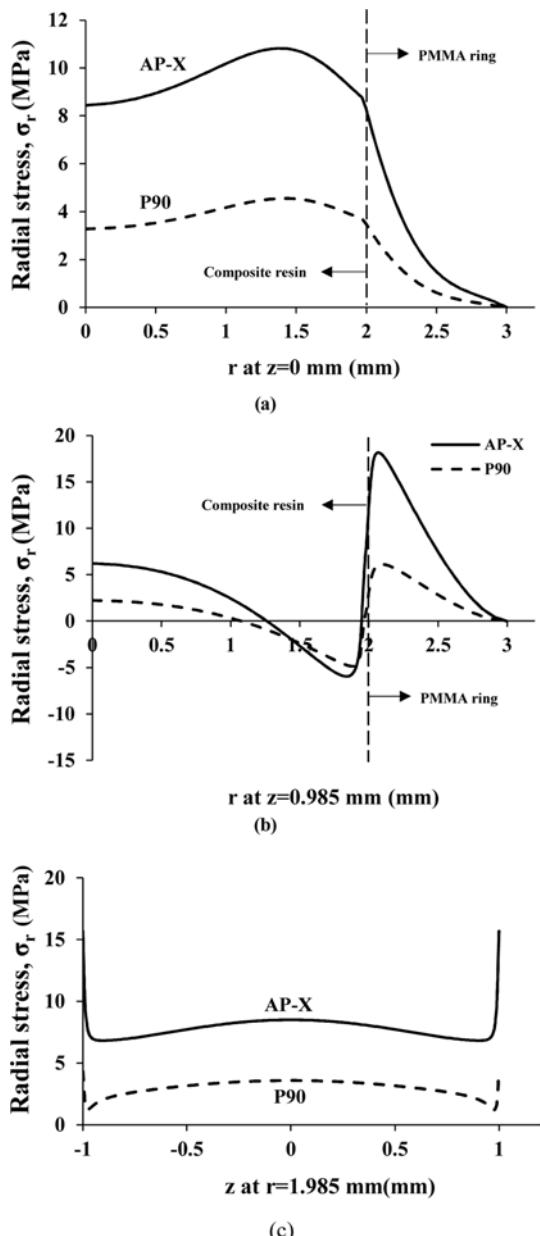


Fig. 9. Behaviors of radial stresses (σ_r) distributed in the composite resin-restored PMMA ring substrate: (a) at $z = 0 \text{ mm}$ (b) at $z = 0.985 \text{ mm}$ and (c) at $r = 1.985 \text{ mm}$

니라 레진의 z 방향으로도 발생하기 때문에 시편의 표면부에서 레진과 링의 경계면근처에서 레진의 높이가 급격히 낮아져 응력집중이 나타났기 때문이다. σ_{Mises} 의 최대값은 AP-X가 32.7 MPa, P90가 11.6 MPa로 AP-X가 P90에 비하여 약 3배 높게 나타났다. 이는 두 레진 간에 탄성계수는 비슷하지만 AP-X의 자연수축률이 2.2배 정도로 커기 때문에 나타난 것이라 사료된다.

Fig. 9는 레진과 링 사이의 경계부에서 복합레진의 중합수축으로 발생되는 반경방향 수직응력(σ_r)의 거동을 나타낸다. Fig. 9(a)는 $z = 0 \text{ mm}$ 에서 σ_r 의 분포를 나타낸 것이다. 두 레진의 탄성물성은 PMMA와 큰 차이를 갖기 때문에 물성이 바뀌는 경계면에서 응력이 불연속을 보였으며, σ_r 의 최대값은 레진과 링 사이의 경계면보다 그 이전 $r = 1.4 \text{ mm}$ 근방에서 AP-X는 9.42 MPa, P90은 4.56 MPa로 나타났다. 이렇게 FEM으로 얻은 σ_r 은 스트레인 케이지법으로 획득한 최대중합수축응력 σ_c 의 측정값 보다 약 3배 크게 나타났다. 이는 FEM의 분석 시 사용된 복합레진의 탄성계수를 최종경화 된 복합레진의 탄성계수의 1/3로 가정하였는데, Fig. 3(b)에서와 같이 탄성계수가 높을수록 σ_r 의 값이 커지므로 가정한 탄성계수의 값이 높았음을 의미한다. 따라서, 각 방법 간의 좀 더 정확한 중합수축응력값의 비교를 위해서는 실제적으로 시간에 따라 변화하는 복합레진의 탄성계수를 반영해야 할 것이다. Fig. 9(b)는 $z = 0.985 \text{ mm}$ 인 시편표면부에서 σ_r 의 거동을 나타내는데, 레진과 링 사이의 경계면에서 급격하게 변동하였다. 또한, 경계면의 안쪽 레진부에서 압축응력이 크게 작용함을 알 수 있다. 이는 복합레진의 전방위적 수축변형시에 z 방향 중합수축에 의해 경계면 근처에서 복합레진시에 높이가 급격히 낮아져 오목한 형상이 된 상태로 반경방향 응력이 형성되었기 때문이다.

표면부의 응력집중효과를 가운데 면과 비교하기 위해 Fig. 9(c)와 같이 레진과 링 사이의 계면부($r = 1.985 \text{ mm}$)에서 z 에 따른 v 의 분포를 그래프로 나타내었다. σ_r 은 표면부 끝단의 응력집중현상으로 시편의 표면에서 최대가 되었다. AP-X의 σ_r 은 가운데 면($z = 0 \text{ mm}$)에서 8.7 MPa, 표면부($z = \pm 0.985 \text{ mm}$)에서 23.6 MPa로 표면이 가운데 면 보다 약 2.7 배 높으며, P90의 경우 가운데 면에서 3.6 MPa, 표면부에서 3.8 MPa로, 표면부가 가운데 면 보다 약 1.1배 높게 나타났다. 이는 레진이 반경방향 뿐만 아니라 z 방향으로도 수축이 발생하여 표면부에서 더 큰 변형이 발생하였고, 이로 인하여 계면 끝단의 급격한 형상변화로 응력집중이 발생했기 때문이라 사료된다. 또한, σ_r 은 AP-X가 P90보다 가운데 면에서 약 2.4배, 표면부에서는 약 6배 더 높았다. 두 복합레진의 자연중합수축률이 AP-X가 P90 보다 약 2.2배 높음을 감안하여도 표면부에서 두 레진 간 반경방향 수축응력의 차이가 가운데 면에 비해 훨씬 더 크게 차이가 났음을 알 수 있다. 이는 표면부에서 AP-X의 응력집중효과가 P90 보다 더 큼을 의미하며 복합레진의 중합수축률이 높을수록

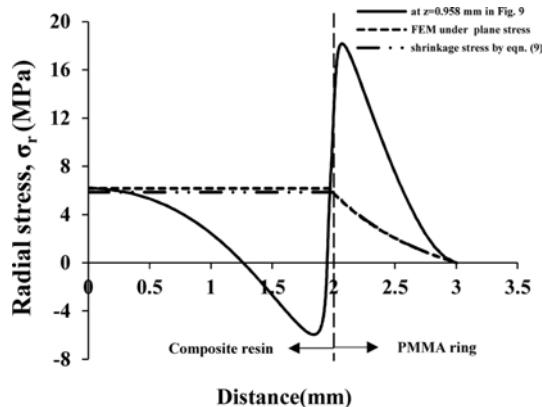


Fig. 10. Behaviors of radial stresses σ_r distributed on the surface of the AP-X composite resin-restored PMMA ring specimen

Table 5. Contraction stresses obtained at the margin of the resin according to different analysis methods

Composite resin	Contraction stress (MPa)		
	Strain gauge	FEM (Plane stress)	Equation (9)
Clearfil AP-X(A)	2.64	6.18	5.86
Filtek P90(B)	0.92	2.87	2.79
Ratio(A/B)	2.87	2.15	2.10

경계면 끝단의 변형 또한 크기 때문이라 사료된다.

Fig. 10은 AP-X에 대하여 식 (9)로부터 예측한 값의 검증을 위하여 FEM 분석법과 비교한 그래프이다. 식 (9)은 평면응력상태를 가정하여 유도되었기 때문에 정확한 비교를 위하여, 평면응력상태를 고려한 FEM 분석을 추가적으로 수행하여 비교하였다. 식 (9)로부터 예측한 σ_r 의 값은 평면응력상태의 FEM 분석으로 구한 값을 기준으로 오차가 -5%로 나타났다. 또한, 평면응력상태로 예측한 값들을 Fig. 9(b)의 σ_r 거동과 비교해보면, 레진의 중심축($r = 0$)에서는 거의 일치하는 값을 보였다. 하지만, 시편의 중심축에서 멀어질수록 Fig. 9(b)의 경우 레진의 z 방향 수축변형이 오목한 형상을 유도하여 시편 중심축으로부터 멀어져 계면부에 까울수록 점점 큰 음(-)과 양(+)의 변동을 보이는 반면 평면응력상태로 가정한 예측값들은 레진의 중심으로부터 링의 안쪽면까지 값이 일정함을 알 수 있다.

스트레인 게이지법과 FEM 분석법 그리고 식 (9)로부터 예측한 3가지 경우에 대한 중합수축응력과 두 레진간의 중합수축응력비를 구하여 Table 5와 같이 정리하였다. 두 레진의 비는 각각 2.87, 2.15, 2.10으로 나타났으며, 이는 AP-X의 자연수축으로 인한 변형률이 P90 보다 약 2.2배 높기 때문에 이와 유사한 값을 보여주는 것으로 사료된다. 한편, 스트레인 게이지법으로 획득한 중합수축응력의 값은 나머지 수치적 방법들로 구한 값과 비교하여 약 30~40% 작게 실측되었다. 이는 이론 및 FEM 분석에 사용된 복합레진의 탄성

계수를 경화된 복합레진의 탄성계수의 1/3로 가정하였기 때문에 수치적분석 시에 더 낮은 평균탄성계수로 설정되어야 함을 보여준다. 여기서, 본 논문에서 제시한 평균탄성계수를 추정하기 위한 예측식(식 9)에 스트레인게이지법으로 측정된 σ_{cs} 를 대입하여 평균탄성계수를 산출한 결과, AP-X와 P90은 각각 497 MPa과 311 MPa으로 최종 경화시 탄성계수의 약 1/30 수준으로 설정해야 할 것으로 사료된다. 각 방법 간의 좀 더 정확한 중합수축응력 값의 비교를 위해서는 실제적으로 시간에 따라 변화하는 복합레진의 탄성계수를 반영하거나, 평균탄성계수는 최종경화 된 복합레진의 탄성계수의 1/30 수준으로 설정해야 할 것으로 추정된다.

4. 결 론

본 연구에서는 methacrylate 계열의 Clearfil AP-X와 silorane 계열의 Filtek P90 복합레진을 대상으로 스트레인 게이지법과 FEM을 활용하여 치아 수복 시 중합수축응력 거동을 분석 및 비교하였다. 또한, 복합레진의 탄성계수와 수축변형률을 중합수축응력과 관계시켜 이론식을 제시하였으며, 이를 FEM의 결과와 비교분석하였다.

스트레인 게이지법으로 측정된 중합수축응력은 두 레진 모두 경화 초기단계에서 중합발열과 복사열로 인한 팽창으로 압축거동을 보였다. 초기 졸상태의 굳기에 의한 차이로 기질-레진 경계면에서 최대 압축응력에 도달하는 평균 시간은 P90이 AP-X보다 2.6배 더 걸렸으며 압축응력의 크기 또한 4.8배 더 높았다. 또한, 중합수축응력은 일정한 값으로 수렴하였으며 최대수축인장응력은 AP-X가 P90에 비하여 약 2.87배 높게 나타났다.

중합수축응력에 대하여 복합레진의 탄성계수 및 수축변형률과 관계시켜 살펴본 결과 레진의 수축변형률과 중합수축응력은 선형비례관계에 있었다. 또한, 복합레진의 탄성계수가 높을수록 중합수축으로 인한 변형이 중합수축응력의 크기에 더 지배적으로 작용하였다.

FEM 분석 결과 최대 Von-Mises 응력은 두 레진의 중합수축률 차이로 AP-X가 P90에 비하여 약 3배 높게 나타났다. 또한, 복합레진과 PMMA 링의 경계면($r = 1.985$ mm)에서 응력집중의 영향으로 시편의 가운데 면($z = 0$ mm) 보다 표면부에서 AP-X는 1.3배, P90은 1.2배 더 높았다. 반경방향의 최대수축응력은 가운데 면에서는 경계부($r = 1.985$ mm) 보다 훨씬 안쪽인 $r = 1.4$ mm에서 최대값을 보였다. 또한, FEM으로 구한 반경방향응력은 스트레인 게이지법으로 측정한 최대중합수축응력의 값 보다 평균 3배 크게 나타났다. 경계면($r = 1.985$ mm)에서 반경방향 수축응력을 분석한 결과 AP-X가 P90보다 표면부에서 약 6배, 가운데 면에서 약 2.4배로 나타났으며, 자연중합수축률이 더 큰 AP-X가 P90보다 응력집중현상이 더 크게 작용함을 알았다.

또한, 본 연구에서 제시한 예측식의 검증을 위하여 평면

응력조건의 FEM 분석 값과 비교한 결과 오차가 5% 이내로 정확했음을 확인하였다.

스트레인 게이지법과 FEM 분석법 그리고 레진의 탄성 계수와 수축변형률로부터 예측한, 3가지 경우의 중합수축 응력을 비교한 결과, 두 레진 사이의 중합수축응력비는 두 레진의 자연수축률의 비와 비슷한 값을 보였다. 또한, 스트레인 게이지법으로 획득한 중합수축응력은 나머지 두 방법들로 얻은 값과 비교하여 약 30~40% 작게 실측되어 직접 비교가 불가능하였으나, 실제적으로 시간에 따라 변화하는 복합레진의 탄성계수를 반영한다면 보다 정확한 비교가 가능할 것이라 사료된다.

후 기

이 논문은 2014년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임 (No.2012R1A2A2A02010147).

REFERCNES

- Bausch, J.R., Lange de, K., and Davidson, C.L., "Clinical Significance of Polymerization Shrinkage of Composite Resins," *The Journal of Prosthetic Dentistry*, Vol. 48, No. 1, 1982, pp. 59-67.
- Kleverlaan, C.J., and Feilzer, A.J., "Polymerization Shrinkage and Contraction Stress of Dental Resin Composites," *Dental Materials*, Vol. 21, No. 12, 2005, pp. 1150-1157.
- Ilie, N., Kunzelmann, K.H., and Hickel, R., "Evaluation of Micro-tensile Bond Strengths of Composite Materials in Comparison to their Polymerization Shrinkage," *Dental Materials*, Vol. 22, No. 7, 2006, pp. 593-601.
- Sano, H., Shono, T., Sonoda, H., Takatsu, T., Ciucchi, B., Carvalho, R., and Pashley, D.H., "Relationship between Surface Area for Adhesion and Tensile Bond Strength-evaluation of a Micro-tensile Bond Test," *Dental Materials*, Vol. 10, No. 4, 1994, pp. 236-240.
- Takemori, T., Chigira, H., Itoh, K., and Hisamitsu, H., "Factors Affecting Tensile Bond Strength of Composite to Dentin," *Dental Materials*, Vol. 9, No. 2, 1993, pp. 136-138.
- Lee, I.B., Park, S.H., Kweon, H.J., Gu, J.W., and Choi, N.S., "Polymerization Shrinkage and Stress of Silorane-based Dental Restorative Composite," *Composites Research*, Vol. 26, No. 3, 2013, pp. 182-188.
- Iga, M., Takeshige, F., Ui, T., Torii, M., and Tsuchitani, Y., "The Relationship between Polymerization Shrinkage Measured by a Modified Dilatometer and the Inorganic Filler Content of Light-cured Composites," *Dental Materials*, Vol. 10, No. 1, 1991, pp. 38-45.
- Feilzer, A.J., de Gee, A.J., and Davidson, C.L. "Increased Wall to Wall Curing Contraction in Thin Bonded Resin Layers" *Journal of Dental Research*, 1989, Vol. 68, No.1, pp. 48-50.
- Park, S.H., Krejci, I., and Lutz, F., "A Comparison of Micro Hardness of Resin Composites Polymerized by Plasma Arc or Conventional Visible Light Curing", *Operative Dentistry*, 2002, Vol. 27, pp. 30-37.
- Chung, Y.C., Min, K.S., Lee, H.H., Cho, K.M., and Cho, Y.B., "A Study of Contraction Shrinkage of Composite Resins and Ormocers with Various Curing Thimes," *Journal of Korean Academy of Conservative Dentistry*, 2003, Vol. 28, No. 4, pp. 326-333.
- Song, S.E., Lim, S.H., Yoon, Y.J., and Kim, K.W., "A Photoelastic Evaluation of Stress Distribution During Distal Movement of Upper Molar," *Korean Journal of Orthodontics*, 2004, Vol. 34, No. 2, pp. 121-129.
- Obici, A.C., Sinhoreti, M.A.C., De Goes, M.F., Consai, S., and Sobrinho, L.C., "Effect of the Photo-activation Method on Polymerization Shrinkage of Restorative Composites," *Operative Dentistry*, Vol. 27, 2002, pp. 192-198.
- Lai, J.H., and Johnson, A.E., 1993, "Measuring Polymerization Shrinkage of Photo-activated Restorative Materials by a Water-filled Dilatometer," *Dental Materials*, Vol. 9, No. 2, pp. 139-143.
- Asmussen, E. and Munksgaard, E. C. 1988, "Bonding of Restorative Resins to Dentine: Status of Dentine Adhesives and Impact on Cavity Design and Filling Techniques," *International Dental Journal*, Vol. 38, No. 2, pp. 97-104.
- Lee, S.H., Chang, J., Ferracane, J., and Lee, I.B., "Influence of Instrument Compliance and Specimen Thickness on the Polymerization Shrinkage Stress Measurement of Light-cured Composites," *Dental Materials*, 2007, Vol. 23, No. 9, pp. 1093-1100.
- Min, S.H., Ferracane, J., and Lee, I.B., "Effect of Shrinkage Strain, Modulus, and Instrument Compliance on Polymerization Shrinkage Stress of Light-cured Composites during the Initial Curing Stage," *Dental Materials*, 2010, Vol. 26, No. 10, pp. 1024-1033.
- Sakaguchi, R.L., Peters, M.C.R.B., Nelson, S.R., Douglas, W.H., and Poort, H.W., "Effects of Polymerization Contraction in Composite Restorations," *Journal of Dentistry*, Vol. 20, No. 3, 1992, pp. 178-182.
- Chung, J.H., and Lim, J.K., "Formulation of an Interface Element and Stiffness Evaluation of an Leaf Spring" *Transactions of the Korean Society of Automotive Engineers*, Vol. 5, No. 6, pp. 141-147.
- Dauvillier, B.S., Feilzer, A.J., De Gee, A.J., and Davidson, C.L., "Visco-elastic Parameters of Dental Restorative Materials during Setting", *Journal of Dental Research*, Vol. 79, No. 3, 2000, pp. 818-823.
- Ryu, S.J., Cheon, J.H., and Min, J.B., "Evaluation of Polymerization Shrinkage Stress in Silorane-based Composites," *Korean Academy of Conservative Dentistry*, Vol. 36, No. 3, 2011, pp. 188-195.
- Addison, O., Marquis, P.M., and Fleming, G.J.P., "Resin Elasticity and the Strengthening of All-ceramic Restorations," *Journal of Dental Research*, Vol. 86, No. 6, pp. 519-523.
- Kikuti, W.Y., Chaves, F.O., Hipolito, V.F., Rodrigues, F.P., and D'Alpino, P.H.P., "Fracture Resistance of Teeth Restored with Different Resin-based Restorative Systems," *Brazilian Oral Research*, Vol. 26, No. 3, pp. 275-281.