

주입선 및 열처리에 따른 IPS Empress 도재의 미세구조에 관한 연구

원광대학교 치과대학 치과보철학교실

동진근 · 오상천

I. 서 론

심미성이 요구되는 부위의 수복을 위하여 강도와 인성이 우수한 금속 코핑에 치과 도재를 소부시키는 금속-도재관이나 내부의 금속 코핑을 없애고 도재 기질 내에 다량의 보강재를 넣어 물성을 강화시킨 전부도재관이 주로 사용된다¹⁻⁴⁾.

특히 근래에 소개된 새로운 전부도재관들은 도재 내에 알루미늄, 불화운모, 산화지르코늄 그리고 백류석같은 보강재들을 다량으로 혼합하여 강도와 인성을 강화시키고 있으며⁵⁻⁷⁾, 일부는 매우 안정된 임상결과를 보여주고 있다⁸⁻¹⁴⁾.

백류석($K_2O-Al_2O_3-4SiO_2$)은 장석($K_2O-Al_2O_3-6SiO_2$)으로부터 형성되는 포타슘 알루미늄 실리케이트로 높은 열팽창계수를 지니므로 초기에는 도재를 상대적으로 열팽창계수가 높은 주조금속에 적절하게 소부시키기 위해 잔류 열응력(thermal stress)을 최소화시키고 도재의 열팽창계수를 증가시키기 위해 의도적으로 도재에 첨가해 왔으나 최근에는 금속-도재관의 열팽창 조절자로서 역할뿐만 아니라 전부도재관의 도재를 강화시키는 주보강재로써도 활용도가 증가되어 IPS Empress를 포함한 일부 전부도재관에서 주 보강재로 사용되고 있다¹⁵⁻¹⁷⁾.

IPS Empress는 이러한 백류석결정을 주 보강재로 사용하는 대표적인 전부도재관 시스템의 하나

로 일종의 유리-도재계이다^{18,19)}. 유리-도재란 대부분을 차지하는 유리기질 내에 비결정성 상태나 부분적 결정 상태의 백류석이 혼재되어 있다가 조절성 열처리에 의해서 결정성 상태로 변환되는 다결정성 고체(polycrystalline solid)이다²⁰⁻²²⁾. IPS Empress도재는 SiO_2 , Al_2O_3 그리고 K_2O 를 갖는 유리의 조성성분의 결과로 조절된 열처리에 의해서 소량의 백류석($K_2O \cdot Al_2O_3 \cdot 4SiO_2$)이 형성되고¹⁹⁾, 유리기질 내에 이러한 백류석결정들의 분산은 안정된 파절강도를 유도한다^{23,24)}. 따라서 이 재료는 도재와 유리의 독특한 특징들을 모두 보유하며, 두 재료가 섞여 있음으로써 발생하는 장점도 지니게 된다¹⁹⁾.

단일관에 사용되는 IPS Empress는 심미적인 장점과 더불어 안정된 파절강도를 보이므로 In-Ceram과 더불어 오늘날까지 매우 긍정적으로 평가되고 있다^{8-14,25)}. 이 도재가 안정된 파절강도를 보이는 것은 회사에서 미리 잉곳(ingot)상태로 만들기 위한 소결과정에서 형성된 약 40 vol.%의 결정들이 열가압 성형시 용융되어 좁은 주입선을 통과할 때 일어나는 결정들의 재분산과 더불어 최종 수복물의 완성을 위해서 가해지는 몇차례의 열처리에 의한 백류석 강화가 주된 원인이 된다^{23,24)}. 즉 유리기질 내에 백류석결정이 고르게 분산되면 균열편향이 잦아지면서 파절을 위해 더 많은 에너지가 필요하게 되고²⁶⁻²⁸⁾, 몇차례의 열처리에 의해 증가된 백류석

본 논문은 1997년도 한국학술진흥재단의 연구비 지원에 의한 결과임.

결정이 유리기질에 비해 상대적으로 더 높은 열팽창계수를 보유함으로써 냉각시 더욱 빨리 수축되므로 백류석 주변 기질에서 접선방향의 압축응력이 발생되고 이러한 압축응력은 균열에 대한 강한 저항력을 제공하게 된다.

따라서 IPS Empress도재의 물성을 강화시키기 위해서는 주 강화상인 백류석결정 그리고 유리기질 내에 산재되어 있는 백류석 결정과 주위 유리기질간의 미세구조적 관계를 살펴 볼 필요성이 대두된다. 본 연구는 회사에서 제공하는 각 잉곳의 종류에 따른 특징적인 미세구조와 주입선을 달리 하여 압출 성형된 IPS Empress 도재의 백류석 결정의 분산정도 그리고 열처리과정에 따른 백류석과 백류석-기질간의 미세구조 변화를 주사전자현미경(SEM)을 통해 관찰한 결과, 다소의 지견을 얻었기에 보고하는 바이다.

II. 실험재료 및 방법

본 연구를 위해 열가압형 도재인 IPS Empress 도재(Ivoclar com, Liechtenstein)가 사용되었으며, 채색용(staining technique)으로 사용되는 T1 잉곳과 O1 잉곳 그리고 층형성용(layering technique)으로 사용되는 Dentin A2 잉곳을 선택하여, 잉곳의 종류에 따른 미세구조 특성과 주입선의 종류에 따른 유리기질 내에서 백류석결정의 분산 정도 그리고 열처리 과정에 따른 유리기질과 백류석결정의 변화를 파악하기 위하여 시편을 다음과 같이 제작하고 미세구조를 관찰하였다.

1. 잉곳의 종류에 따른 미세구조 파악을 위한 시편 제작

잉곳의 종류에 따른 미세구조를 파악하기 위하여 열가압이나 열처리를 하지 않은 상태의 잉곳을 다이아몬드 휠로 과열을 주의하면서 입방형(3×3×3mm)의 시편을 제작하였다.

2. 주입선과 열처리과정에 따른 미세구조 파악을 위한 시편 제작

1) 주입선 부착 및 시편제작

주입선과 열처리에 따른 도재의 미세구조를 파악하기 위하여 실리콘 주형과 인레이 왁스를 이용하여 입방형 납형(3×3×3mm)을 제작한 후, 각각 단일주입선(직경 2.8 mm, 길이 10mm)과 이중주입선(직경 1.8mm, 길이 10mm)을 부착하였다.

주입선 부착시, 방향과 위치를 일정하게 하기 위해서 이중주입선의 경우에는 면에서 약 30°로 균일하게 부착시켰고, 동일한 조건을 부여하기 위해 단일주입선과 이중주입선을 같은 링에 3개씩 부착시켰다. 또한 주입선의 모든 연결부위는 예리한 각이 남지 않도록 하였으며, 출구가 점점 좁아지는 깔때기 형태가 되지 않도록 주의하여 부착하였다. 매물은 제조회사의 지시에 따라 정량의 분말과 용액으로 약 60초간 진공 혼합하여 매몰하였다. 경화된 매몰재 실린더와 잉곳 그리고 가압에 필요한 alox plunger를 예열 퍼니스(furnace)에 넣어 실온에서 850°C까지 가열하였다. 예열순환이 끝난 후, 예열퍼니스에서 매몰재 실린더를 꺼내 실린더 구멍 안으로 해당 잉곳을 넣고 alox plunger를 그 위에 꽂아, 미리 예열된 압출퍼니스(EP500)에 넣어 압출성형하였다. 자동으로 압출성형이 완료된 매몰재를 꺼내 실온에서 서서히 냉각시킨 후, 2-4 bar의 압력으로 50µm의 polishing bead를 이용하여 매몰재를 제거하였고, 각 시편의 주입선을 잘라내고 다듬어서, 각 3개씩 총 18개의 단일 주입선과 이중주입선의 T1, O1 그리고 Dentin A2 잉곳으로 제작된 입방형 도재시편을 완성하였다.

2) 열처리 과정

채색용 잉곳(T1, O1 ingot)의 열처리는 주입선 종류에 따라 3개씩 분류하여 그 중 하나는 단지 열가압 성형만 하였으며, 다른 하나는 열가압 성형 후 최종수복물 완성을 위해서 필요한 첫 번째 열처리(staining firing(1회))를 시행하였고, 나머지 하나는 이 열처리순환 중 마지막 단계 열처리(staining firing(2회), glazing firing(2회))를 시행하였다(Table 1).

층형성용 잉곳(Dentin A2 ingot)도 주입선 종류에 따라 3개씩 분류하여 그 중 하나는 단지 열가압 성형만 하였고, 다른 하나는 최종수복물 완성을 위해 필요한 열처리 순환 중 첫 번째 열처리(wash firing(1회))를 시행하였으며, 나머지 하나는 이 열처리순환 중 마지막 단계 열처리(wash fir-

Table 1. Classification of specimen according to sprue type and heat treatment

Ingot type	Sprue type	Heat treatment
T1, O1 (Staining technique)	Single	Pressing only
	Double	Pressing+Staining firing(1)
		Pressing+Staining firing(2)+Glazing firing(2)
Dentin A2 (Layering technique)	Single	Pressing only
	Double	Pressing+Wash firing(1)
		Pressing+Wash firing(1)+Incisal firing(1)+Glazing firing(2)

Table 2. Simulated firing schedule of each specimen after pressing

Layering Technique : Dentin ingot	B	t ↑	H	T	V ₁	V ₂
Wash firing	400	60	3	910	580	909
Incisal firing	400	60	1	910	580	909
Glazing firing	400	60	2	890	580	889
Staining Technique: T1, O1 ingot						
Staining firing	400	60	2	850	580	849
Glazing firing	400	60	2	870	580	869

B : stand-by temperature(°C), t ↑ : temperature increase(°C/min), H : holding time(min),
T : pressing temperature(°C), V₁ : vacuum on(°C), V₂ : vacuum out(°C)

ing(1회), incisal firing(1회), glazing firing(2회))를 시행하였다(Table 1).

3. 주사전자현미경을 이용한 미세구조 관찰

모든 시편을 아크릴릭 레진에 포매한 뒤, 시편의 관찰면을 연마기(Metaserv, Buehler Co., England)와 사포를 이용해 1800번까지 연마한 뒤, 최종적으로 0.1 μ m 알루미나 단계까지 고도로 연마하였다. 0.5% 불화수소산을 이용하여 착색용 잉곳(T1, O1 ingot)과 층형성용 잉곳(Dentin A2 ingot)을 각 조건에 맞게 부식시켰고, 표면을 초음파 세척기를 이용하여 세척하였다. 표면을 ion sputter로 gold coating한 후 20kV의 accelerating voltage에서 시편 표면을 주사전자현미경(JSM-T100, Jeol Ltd, Tokyo, Japan)을 통해 주입선 형태와 열처리에 따른 각 시편의 백류석결정 자체의 미세구조와 분포성향 그리고 백류석결정 주위기질의 미세구조를 비교 관찰하고 촬영하였다.

III. 실험성적

1. 잉곳의 종류에 따른 미세구조 특성

열가압성형이나 열처리가 되지 않은 잉곳을 중심으로 잉곳의 종류에 따른 미세구조는 채색용 잉곳(T1, O1 ingot)과 층형성용 잉곳(Dentin A2 ingot) 사이에는 뚜렷한 차이가 있었으나, 채색용 잉곳(T1, O1 ingot)들 간에는 큰 차이가 없었다.

즉 층형성용 잉곳은 채색용 잉곳에 비해 월등히 많은 유리기질을 보였고 결정들의 결집정도가 심해 커다란 결정군들이 여러 곳에서 나타났다. 이들을 고배율($\times 10,000$)로 관찰한 결과, 결정들이 만개되어 속이 터진 석류속에 석류알처럼 보이는 특징적인 소견을 보였다(Fig. 7). 착색용 잉곳인 T1과 O1 잉곳은 기질내에 많은 백류석 결정들이 고르게 분산된 모습을 보였으며, 전체적으로는 큰 차이가 없었으나 T1 잉곳이 O1 잉곳보다 좀더 많은 유리기질을 보였고, 포도송이처럼 생긴 결집된 결정군들이 더 많이 나타났다(Fig. 1).

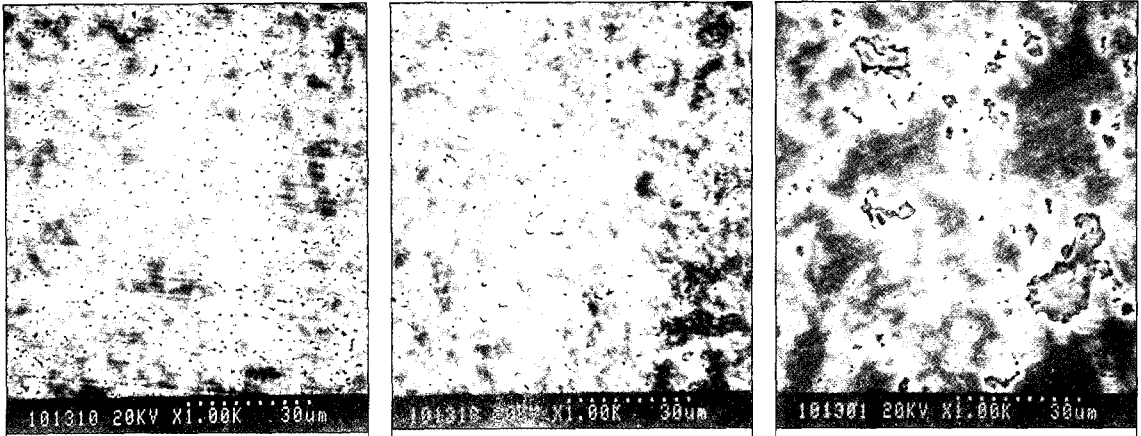


Fig. 1. Scanning electron micrographs of T1(left), O1(middle), and Dentin A2(right) ingot, before pressing. Original magnification $\times 1,000$.

2. 주입선의 종류에 따른 미세구조의 변화

주입선의 종류에 따른 유리기질 내에 백류석 결정들의 분산정도는 모든 경우에서 이중주입선의 경우가 단일주입선의 경우보다 백류석 결정이 더욱 잘 분리되고 분산된 상을 보였다. 특히 결정에 비해 기질이 많고 결정들의 결집형태가 두드러진

Dentin 잉곳에서 이러한 변화가 가장 심하게 나타나 주입선에 따른 결정의 분산정도는 O1, T1, 그리고 Dentin(A2) 잉곳순으로 크게 나타났다(Fig. 2, 3, 4).

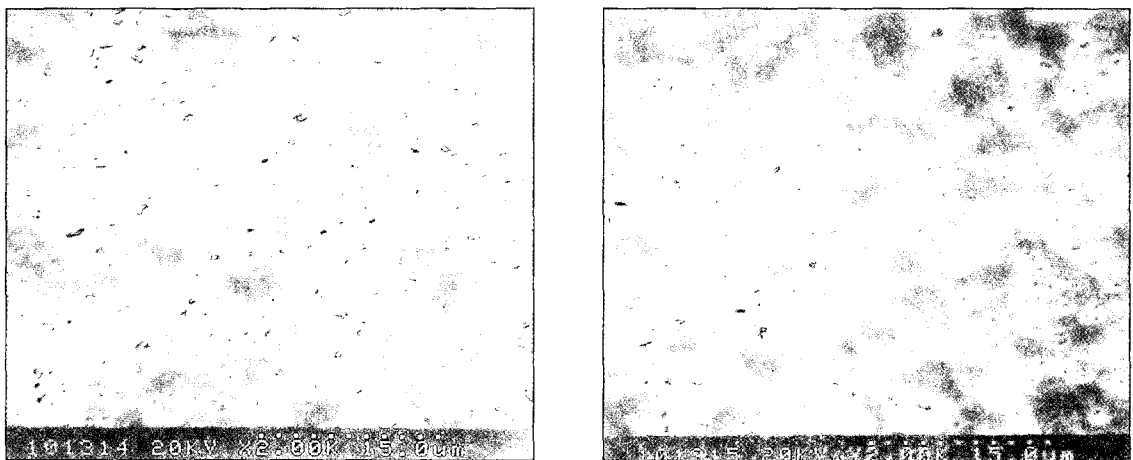


Fig. 2. Scanning electron micrographs of T1 ingot(left: specimen using single sprue, right: specimen using double sprue) according to sprue type. Original magnification $\times 2,000$.

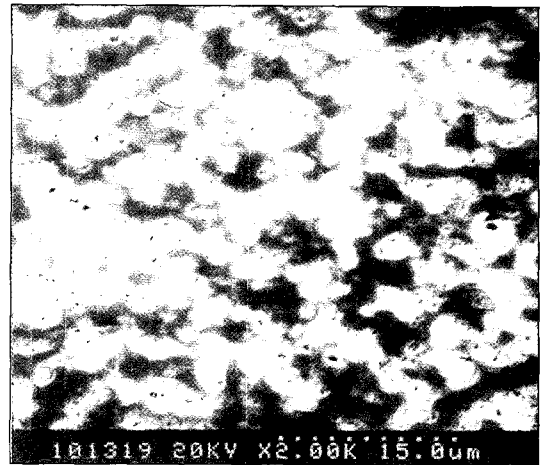
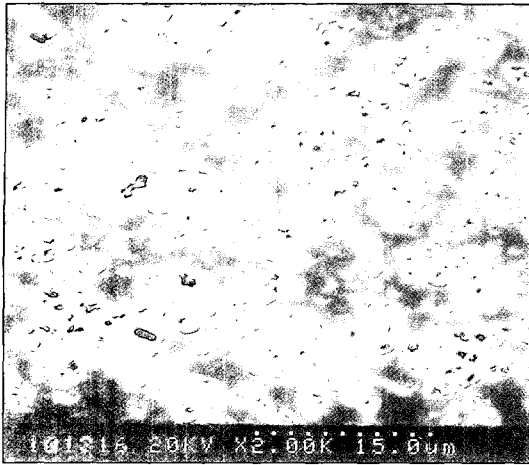


Fig. 3. Scanning electron micrographs of O1 ingot(left: specimen using single sprue, right: specimen using double sprue) according to sprue type. Original magnification $\times 2,000$.

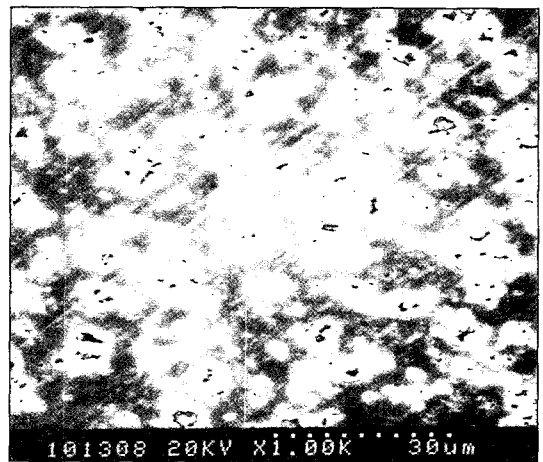
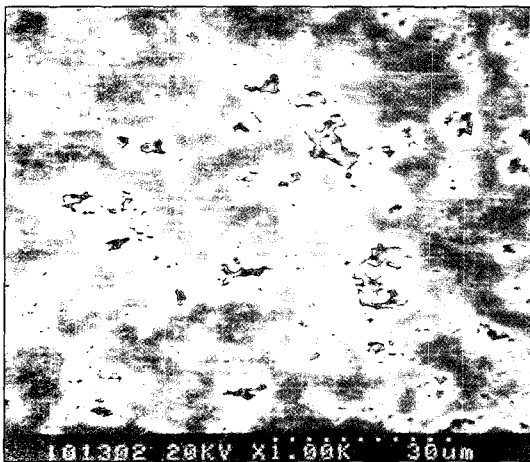


Fig. 4. SEM photographs of Dentin A2 ingot(left: specimen using single sprue, right: specimen using double sprue) according to sprue type. Original magnification $\times 1,000$.

3. 열처리 과정에 따른 미세구조의 변화

모든 잉곳은 비교적 치밀하고 기포나 큰 균열은 없었으나 열처리 과정에 따른 백류석 결정과 유리기질에서 변화는 열처리 횟수가 증가될수록, 즉 열가압 직후에서 첫 단계 열처리한 경우 그리고 마지막 단계의 열처리한 경우로 갈수록 백류석 결정 내부의 조각들이 더욱 작게 분할되었고, 주변의 기질에서도 더 많은 균열들이 생성되는 경향을 보였다(Fig. 5, 6, 7).

4. 단일 백류석결정의 미세구조적 특성

열가압성형된 이후의 시편에서 단일 백류석결정의 내부는 수많은 균열들이 특징적인 방향성을 보이며 조각상을 이루고 있었다. 즉 주균열은 타원형 결정의 긴 직경을 가로지르는 가로 방향으로 굽게 규칙적으로 뻗어 있었으며, 이 사이를 잔 균열들이 불규칙적으로 서로 연결되어 내부는 작은 조각들이 채워져 있는 것처럼 보였다. 백류석 결정의 크기는 $1\mu\text{m}$ 에서 $5\mu\text{m}$ 까지 다양했고 완속된 결정

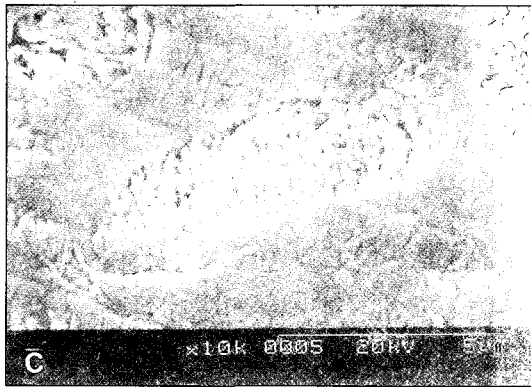
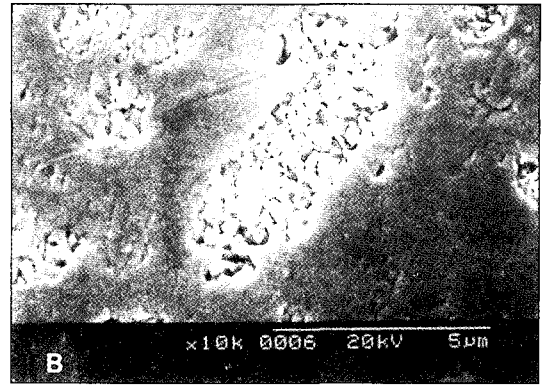
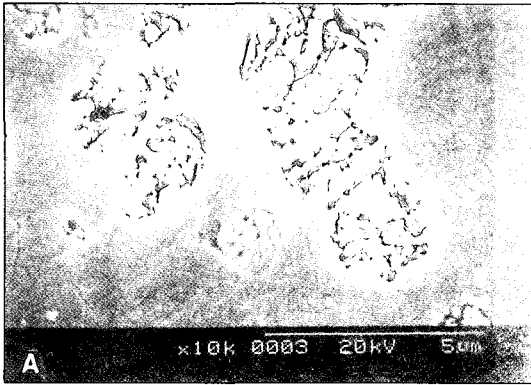


Fig. 5. Scanning electron micrographs of T1 ingot (A: specimen without heat treatment, B: specimen with initial heat treatment, C: specimen with final heat treatment) according to heat treatment after pressing. Original magnification $\times 10,000$.

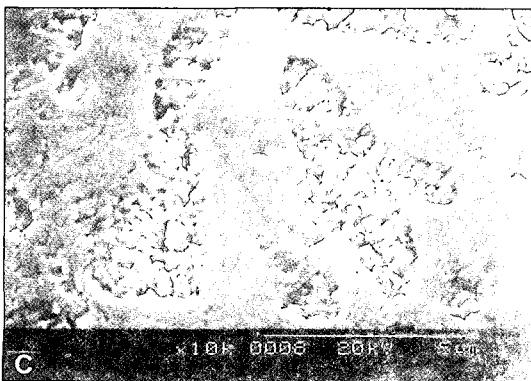
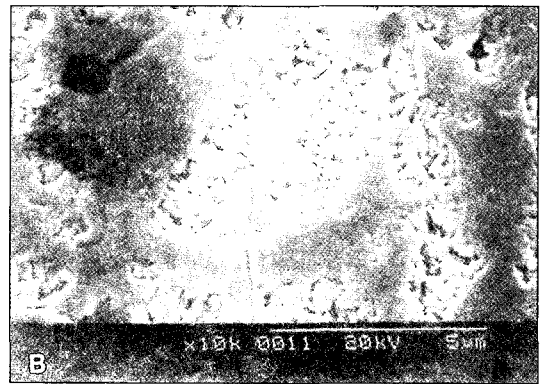
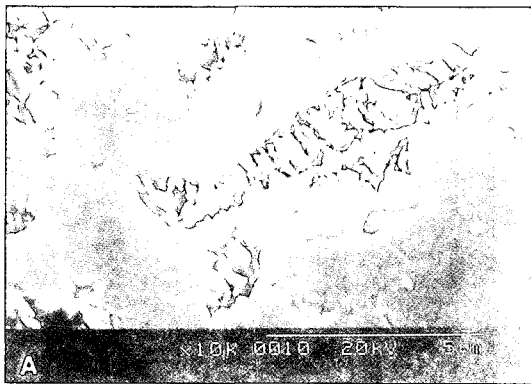


Fig. 6. Scanning electron micrographs of O1 ingot (A: specimen without heat treatment, B: specimen with initial heat treatment, C: specimen with final heat treatment) according to heat treatment after pressing. Original magnification $\times 10,000$.

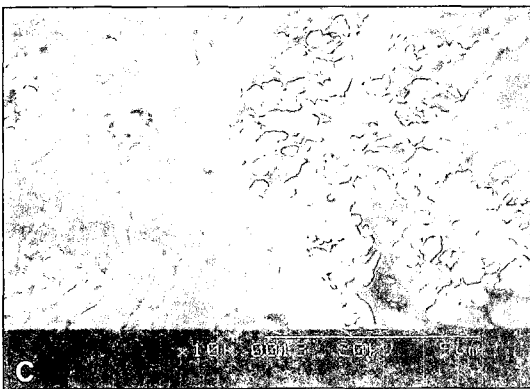
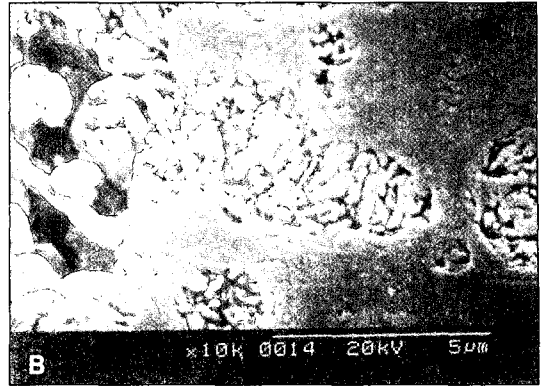
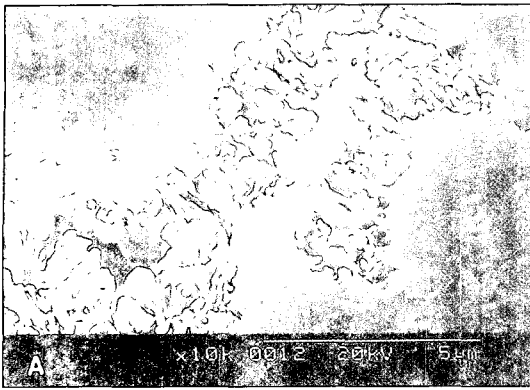


Fig. 7. Scanning electron micrographs of Dentin A2 ingot(A: specimen without heat treatment, B: specimen with initial heat treatment, C: specimen with final heat treatment) according to heat treatment afterpressing. Original magnification $\times 10,000$.

의 크기는 평균 약 $5\mu\text{m}$ 정도였으며, 결정의 모양은 일정한 형태는 없었으나 크기가 작을수록 원형에 가까웠고, 클수록 길다란 타원형 또는 약간 일그러진 길쭉한 원형의 모습이었다(Fig. 5, 6, 7).

IV. 고 찰

세라믹스는 일반적으로 규산염광물인 비금속 무기물질을 소성로에서 인위적으로 열처리하여 만든 고체재료나 제품으로 산소와 같은 비금속 성분과 한 개 이상의 금속 성분으로 결합된 화합물을 의미하며 녹슬지 않는 내식성, 단단한 경질성, 불에 타지 않는 내열성 그리고 원하는 형태로 만들 수 있는 성형성과 더불어 생체에 적합한 생체친화성의 장점을 지닌다²⁹⁾. 이러한 성질 중 특히 기계적 특성은 원자간 화학적 결합과 현미경 수준의 기계적 결합에 의해서 결정되는데 도재는 금속재료나 고분자재료와는 달리 강한 이온결합 및 공유결합으로 되어 있어서 전자나 원자의 움직임이 아주 어렵다. 따라서 이 재료에 응력이 가해지면 원자이동에 필요한 에너지가 균열을 진행시키는 에너지

보다 크기 때문에 변형보다는 파괴가 쉽게 일어난게 되며 따라서 도재는 높은 강도와 아주 낮은 변형을 그리고 잘 깨지는 취성을 나타낸다³⁰⁾.

치과계에서는 이들의 특성을 살리면서 그들의 내구성을 강화하기 위해서 내부에 인성이 강한 금속을 대고 여기에 도재를 소부시키는 금속-도재관의 형태로 전치부는 물론 강한 교합력이 작용하는 구치부까지도 성공적으로 사용해 왔다^{34,31)}. 그러나 이러한 금속-도재관은 내부의 불투명 도재층과 금속코핑 그리고 도재의 최소 두께(약 1mm)를 확보하기 위한 많은 치질 삭제량과 빛이 투과되지 않는 금속코핑으로 인해 변연부의 치은이 변색되며 빛의 반응 양상이 자연치와는 근본적으로 달라 이를 자연스럽게 표현하기 위해서는 고도로 숙련된 기술이 요구되는 등 어려운 점들이 있었다^{32,33)}. 따라서 이를 해결하기 위한 노력들이 계속되었으며³⁴⁾ 1980년대 이후부터 내부의 금속을 없애고 대신에 도재 내부에 보강재를 첨가하여 도재 자체의 물성을 강화시켜 도재만으로 수복물을 제작할 수 있는 방법과 재료들이 제시되었다.

이러한 전부도재관에 주로 활용되는 보강재로는

알루미나, 불화운모, 산화지르코늄 그리고 백류석 같은 재료가 사용되고 있으며⁵⁻⁷⁾, 특히 백류석은 장석의 조화되지 않는 용융을 통해 형성되는 무기질로 초기에는 도재를 주조금속에 적절하게 소부시키기 위해 잔류 열응력을 최소화하고 그들의 열팽창계수를 증가시키기 위한 목적으로 도재 내에 의도적으로 첨가해 왔다. 그러나 최근에는 백류석을 이러한 금속-도재관의 열팽창 조절자로서의 역할 뿐만 아니라 전부도재관의 도재를 강화시키는 보강재로 활용하여 적절한 강도와 탁월한 심미성을 보유하는 전부도재관의 보강재로 활용되고 있다¹⁵⁻¹⁷⁾.

전통적으로 결정화(crystallization)는 맑은 유리를 제작하는 유리공업에서 큰 장애요인이었으나 이러한 표면현상을 적절하게 조절하고 활용함으로써 물성이 강화된 유리-도재의 활용이 가능하게 되었다²⁵⁾. 즉 유리 제조과정에서 무작위로 발생하는 비조절성 결정화는 각기 다른 크기의 결정들의 큰 다양성을 보여주므로 큰 효용성이 없으나, 조절성 결정화는 이러한 산발성의 결정성장과는 달리 결정화중심이 유리기질 전반에서 같은 비율로 형성되고 일정한 크기의 결정을 보유하며 매우 작은 결정의 크기를 보여 주므로 조절된 유리-도재계는 치과수복물 재료로 활용이 매우 크다³⁵⁻³⁷⁾.

IPS Empress 도재는 이러한 성질을 잘 응용한 것으로 유리에서 유리-도재로의 변환은 우선 1600°C 이상에서 기초 유리가 용융되어 식으면서 형태를 이루면서 약 200°C 이하로 서서히 냉각되다가 다시 약 800°C 까지 가열되면서 핵형성(유리화초점)이 이루어지기 시작하고 다시 1200°C 까지 가열되면서 핵형성들이 결정으로 전환되기 시작한다. 이때는 육안으로도 유리와 유리-도재를 구분할 수 있는데, 즉 유리는 투명하나 유리도재는 투명도가 떨어져 흐려 보이는 촘촘한 점들을 볼 수 있다. 이들이 IPS Empress 도재의 주 강화상으로 작용하는 백류석 결정의 원점이 되는 것이다³⁵⁾.

IPS Empress 도재는 다량의 백류석 결정을 함유하고 주입선을 통해 용융된 도재를 치아몰드 내로 주입하게 되는 독특한 제작과정(왁스소환법)을 통해, 균상으로 모여 있던 결정들이 갑자기 좁은 통로의 주입선을 통과하게 되므로 자연스런 기계적 분리, 분산이 이루어지고 이러한 결정의

분산강화에 의해서 도재가 일차적으로 강화되는 특성을 갖게 된다²⁵⁾. 따라서 주입선을 기계적 분산이 잘 일어날 수 있는 형태로 유도하면 더욱더 백류석결정들의 고른 분산과 분리를 유도할 수 있게 된다²⁴⁾. 즉 파절의 진행을 차단하는 것이 도재의 물성을 강화시키는 중요한 요인이 되는데 유리기질 내에 백류석결정들이 고루 퍼지게 되므로 단위 면적 당 밀도가 높아지게 되고 파절이 진행되기 위해서는 더욱더 많은 결정들을 벗겨가야 되므로 이를 위해서는 더 많은 에너지가 필요하게 되어 높은 파절강도를 얻을 수 있게 되는 것이다²³⁻²⁶⁾.

또한 최종보철물 완성을 위해서 가해지는 열처리에 의해서 백류석이 강화되는데¹⁵⁾, 625°C에서 이러한 백류석결정은 정방정(tetragonal)에서 입방정(cubic) 결정격자 형태로 변형이 일어나 단위세포당 약 1.2% 부피팽창을 일으키고³⁶⁾, 따라서 변형온도에서 실온으로 냉각시 다시 약간의 수축변형이 일어나 냉각단계에서 용융된 도재가 고체화되면서 접선방향의 압축응력이 백류석 주위에 형성되고 백류석 내부에서는 방사상 인장응력이 형성되어 초기에는 균형을 이루다가 수축의 마지막 단계에서 미세파절이 백류석 내에서 일어나게 된다. 즉 유리기질보다 상대적으로 높은 열팽창률을 보이는 백류석결정에 의해서 응력을 입자와 기질 사이에 새롭게 형성시키고 이를 상쇄하기 위해 백류석이 twinning되거나 백류석 내부 그리고 주위 기질에서 미세균열이 일어나는 것이다^{23,36-38)}.

본 연구에서도 이러한 균열들을 관찰할 수 있었으며, 특히 단지 열가압 성형만 하고 열처리하지 않은 시편에서도 백류석결정 내부의 균열과 주위 기질에서 일정한 결모양의 미세한 균열들이 관찰되어 열처리없이 단지 열가압과정의 열순환에 의해서도 이미 균열들이 발생되어 있음을 알 수 있었다. 이는 열가압 후 냉각시키는 과정에서 유리기질(8.6×10⁻⁶/°C)과 백류석결정(22.3×10⁻⁶/°C)간의 열팽창계수의 차이³⁹⁾가 주된 원인으로 생각되었으며, 최종 냉각단계에서 백류석 내부의 인장응력이 백류석의 결합력보다 더 커지기 때문인 것으로 사료되었다.

또한 백류석 결정 내부에 주균열들은 일정한 방향성을 갖고 있었으며 주균열들은 타원형 결정의 긴 장축을 직각으로 가로질러서 가로 방향으로 뿐

어 있었다. 이는 기질보다 열팽창계수가 더 큰 백류석결정의 타원형 형태와 관련이 있는 것으로 추측되었다. 즉 열변화에 의한 수축팽창이 장축방향으로 더 크게 진행될 것이고 이러한 체적변화에 의해서 장축의 가로 방향으로 주 균열이 굽게 형성되며, 동시에 주 균열들을 연결하는 작은 균열들이 생성되어 내부에는 여러 조각들로 차 있는 조각상을 이루게 되고, 이러한 조각들은 열처리 횟수가 증가함에 따라 더욱더 여러 조각으로 분리되는 경향을 보이는 것으로 사료되었다. 또한 이러한 균열들은 그 끝이 뾰족하고 일정한 두께를 지니고 있었는데 이러한 균열의 모습이 파절저항력을 높이는데 도움을 줄 수 있을 것으로 사료되었다. 즉 끝이 예리한 파절면이 결정을 깨고 내부로 침범해 들어와 내부의 균열과 연결된다면 갑자기 선단의 반경이 커지게 되어 균열의 진행력을 상쇄시키거나 차단하게 되는데⁴⁰⁾, 취성재료에 예리한 결합이 나타나면 그 선단에서 주어진 응력보다 몇 백배 높은 응력이 균열의 주위로 집중된다는 Inglis이론⁴¹⁾과 파절단이 다수의 미세한 파절과 만나게 되면 파절의 진행이 상쇄된다고 보고한 Bowen의 이론⁴²⁾을 통해서도 유추해 볼 수 있다.

Mackert 등⁴³⁾은 장식도재에서 반복 소성에 따라 유리기질로부터 백류석의 부분적 분리가 일어나는 것으로 보고했으나, 본 연구에서는 IPS Empress의 단일 백류석을 10,000배로 확대하여 관찰한 결과, 백류석결정과 기질 사이에서의 분리는 발견할 수 없었고 오히려 열처리가 반복될수록 백류석결정 주위 기질에서 몇가닥의 결을 이루는 잔 균열들이 생성되는 경향을 보였으며, 이 역시 유리기질과 백류석간의 열팽창계수의 차이에 의해서 발생된 것으로 추측되었다.

따라서 제조회사에서는 착색법에서 적절한 색조가 얻어질 때까지 반복 채색소성이 가능함을 밝히고 있으나, 본 연구 결과에 의하면 열처리의 횟수가 증가함에 따라 백류석결정의 내부와 유리기질에서 균열이 증가되므로 일정한 반복 소성 이후에는 파절강도가 다소 약화될 것으로 판단되며 따라서 열처리 횟수에 따른 IPS Empress도재의 파절강도에 대한 연구도 추후에 필요하리라고 사료되었다.

본 연구와 같이 미세한 구조변화나 결합 상태,

즉 백류석결정 주위의 미세구조와 결정 내부의 미세형태를 고찰하기 위해서는 현미경적 분석이 필요하다. 결정상의 특성을 살펴보기 위해서 일반적으로 0.1-5.0% 불화수소산을 이용해 관찰면을 에칭하고, 에칭액의 농도와 적용시간을 달리해서 결정상과 그들의 미세구조를 관찰하게 되며^{43,45)}, 결정의 크기가 마이크론 단위이므로 주사전자현미경(SEM)이 주로 이용된다⁴⁴⁾. IPS Empress 유리-도재를 hydrofluoric acid, ammonium bifluoride등과 같은 산을 이용해서 표면을 식각시키는 특수한 표면처리를 할 경우, 백류석결정과 주위의 미세구조를 관찰할 수 있게 되는데 hydrofluoric acid는 결정을 선택적으로 용해시키므로 결정의 내부 구조를 관찰하기 위해서는 매우 특별한 주의가 필요하다. 따라서 상이 젖은 모래 위에 주름진 껍질을 갖는 타원형 조개를 살짝 들어낸 것처럼 여러 가로줄의 형태로 나타나는 경우, 이는 백류석결정의 내부 모습이 아니라 결정이 있었던 자리로 결정의 모양과 표면의 형태를 보여 주는 것으로 해석해야 될 것이다⁴⁵⁾.

Nakamoto⁴⁶⁾는 SEM을 통해 IPS Empress ingot의 산 부식된 면을 관찰하여 잉곳의 종류와 에칭 조건에 따른 미세구조 차이를 밝히고, 이를 다른 도재들과 비교한 연구에서 IPS Empress 도재 내 백류석 결정의 형태와 분포가 가압 후에 더욱 분산되고, 특히 코어용 상아질 잉곳보다는 착색용 잉곳인 T1, O1 잉곳에서 더욱 뚜렷하였는데 이는 상아질 잉곳이 결정에 비해 월등히 많은 기질을 함유하고 있기 때문인 것으로 추정하였다. 본 연구를 통해 얻어진 상도 이와 비슷하였는데, 즉 잉곳의 종류에 따른 미세구조는 채색용 잉곳(T1, O1 ingot)과 충형성용 잉곳(Dentin ingot)사이에는 큰 차이가 있었으나, 채색용 잉곳들 간에는 큰 차이가 없었다. 충형성용 잉곳은 채색용 잉곳에 비해 월등히 많은 유리기질을 보유하고 있었고 결정들의 결집정도가 매우 심해 마치 결정들이 만개되어 속이 터진 석류 속에 석류알처럼 보이는 커다란 결정군들이 여러 곳에서 특징적으로 나타났다. 그러나 착색용 잉곳인 T1과 O1 잉곳은 기질 내에 많은 백류석 결정들이 고르게 분산된 모습으로 전체적으로는 큰 차이가 없었으나 T1 잉곳이 O1 잉곳보다 약간 기질이 더 많아 보였고, 결집된

결정들이 더 많아서 포도송이처럼 생긴 결정군들이 더 자주 나타났다. 따라서 주입선에 따른 결정의 분리와 분산 정도는 O1, T1 잉곳 그리고 Dentin 잉곳 순으로 높게 나타나므로, 특히 층형성용 잉곳인 Dentin 잉곳은 가급적 직경이 가늘고 다수의 주입선을 사용하는 것이 물리적으로 유리하리라 사료되었다.

또한 Nakamoto⁴⁶⁾는 그의 연구에서 etchant의 종류나 농도에 따른 영향도 분석하였는데, 0.5% 불화수소산보다는 10% ammonium bifluoride가 결정을 덜 녹이게 되므로 결정을 포함한 내부의 미세구조를 파악하기 위해서는 ammonium bifluoride가 더 유리할 것으로 보고하였으며, 시편 표면은 파절면을 그대로 앓칭해서 관찰하는 것보다는 미세하게 연마된 면을 관찰하는 것이 미세구조를 관찰하는데 더욱 용이한 것으로 보고하였다. 그러나 본 연구 수행 과정에서 그가 제시한 관찰면을 #800까지 사포로 연마하고, 0.5% 불화수소산으로 채색용 잉곳은 180초, 층형성용 잉곳은 300초의 표면처리로는 내부구조가 보이는 단일 백류석의 적절한 상을 얻을 수 없었다. 즉 그가 제시한 0.5% 불화수소산 용액 적용시간이 다소 길어 내부의 백류석결정들이 너무 용해되므로 유리기질 내에 백류석 결정의 분산과 분포양상 관찰에는 무리가 없었으나 고배율($\times 10,000$)에서 단일 백류석결정을 중심으로 한, 내부의 모습을 자세히 관찰하기 위해서는 적절하지 않았다. 따라서 산의 용액을 묽게 하거나 적용시간을 줄여야 할 필요성을 느끼게 되었고, 0.5%의 불화수소산을 여러 시간대로 나누어 살펴본 결과, 적용시간이 채색용 잉곳(T1, O1 ingot)에서는 약 10-15초 그리고 층형성용 잉곳(Dentin ingot)에서는 약 30-35초 사이가 가장 적절한 것으로 사료되었다.

본 연구를 통해 얻어진 결과를 바탕으로 저자들은 유리기질 내에 더 많은 백류석결정의 양과 밀도를 보이는 채색용 잉곳이 층형성용 잉곳보다 더 높은 파절강도²⁰⁾를 나타내는 이유가 여기에 있는 것으로 판단되었으며, 모든 경우에서 단일주입선을 사용할 때보다 이중주입선을 사용한 경우에서 백류석결정의 분리와 분산이 더욱 고르게 이루어진 미세구조상을 얻게 되므로 주조 성형성에 문제를 일으키지 않는 범위 내에서 가급적 가는 주입

선을 다수로 사용하는 것이 더욱 높고 안정된 IPS Empress 도재를 얻을 수 있는 방법이라 사료되며, 특히 층형성용 잉곳일 경우 더욱 그 효과가 클 것으로 판단되었다. 또한 제조사인 Ivoclar사는 적절한 색조를 얻기 위해서 다수의 착색을 위한 열처리가 가능함을 밝히고 있으나 그의 열처리 횟수에 대해서는 명확한 기준점을 제시하고 있지 않은 상황에서 본 연구 결과처럼 열처리 횟수가 증가함에 따라 백류석결정 내부와 유리기질 내에 미세한 균열이 증가된다면 지나친 반복 열처리는 안정된 파절강도 유지를 위해서 피하는 것이 좋을 것으로 사료되었다.

V. 결 론

본 연구는 잉곳 종류에 따른 미세구조 특징과 주입선 형태 그리고 최종수복물의 완성을 위해서 필수적인 열처리 과정이 IPS Empress 도재의 미세구조에 미치는 영향을 알아보고자 수행되었다.

연구재료로는 채색용인 T1, O1 잉곳과 층형성용인 Dentin(A2) 잉곳을 선택하였고, 잉곳 종류에 따른 미세구조 파악을 위해 입방형 조각의 시편을 열가압 하기 전 본래의 잉곳에서 바로 얻었으며, 주입선과 열처리에 따른 영향을 알아보기 위해서는 단지 열가압 성형만 한 경우, 열가압 성형 후 첫 번째 열처리를 시행한 경우 그리고 열가압 성형 후 마지막 단계까지 열처리를 시행한 경우로 나누어 시편을 제작하였다.

준비된 시편들을 아르켈릭 레진에 포매하여 관찰면을 고도로 연마하였으며, 0.5%의 불화수소산으로 적절하게 표면을 처리한 후, 주사전자현미경(SEM)으로 관찰한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 잉곳의 종류에 따른 미세구조는 채색용 잉곳(T1, O1 ingot)과 착색용 잉곳(Dentin A2 ingot)사이에는 큰 차이가 있었으나, 채색용(T1, O1 ingot) 잉곳들 간에는 큰 차이가 없었다. 층형성용 잉곳은 채색용 잉곳에 비해 월등히 많은 유리기질을 보였고 결정들의 결집정도가 매우 심해 만개된 석류알처럼 보이는 커다란 결정군들이 여러 곳에서 특징적으로 나타

났다.

2. 주입선의 종류에 따른 미세구조 변화는 모든 경우에 있어서 이중주입선의 경우가 단일주입선의 경우보다 백류석 결정이 더욱 잘 분리되고 분산된 상을 보였다. 특히 결정에 비해 기질이 많고 결정들의 결집형태가 두드러진 상아질 잉곳에서 이러한 변화가 가장 심하게 나타나 주입선에 따른 결정의 분산정도는 O1, T1, 그리고 Dentin(A2) 잉곳순으로 크게 나타났다.
3. 열처리에 따른 미세구조 변화는 모든 잉곳은 열가압하기 전의 상태에서부터 유리기질과 백류석결정 내부에 균열이 있었으며, 백류석 결정 내부에 많은 조각들은 열처리 횟수가 증가할수록 더욱 작아졌으며, 주변의 기질에서도 더욱 많은 균열들이 생성되는 경향이 있었다.
4. 백류석 결정의 크기는 1 μ m에서 5 μ m까지 다양했고 완속된 결정의 크기는 평균 약 5 μ m 정도였다. 결정의 모양은 크기가 작을수록 원형에 가까웠고, 클수록 길다란 타원형이거나 약간 이글어진 원형의 모습이었다. 백류석결정 내부는 굵은 주 균열들이 타원형 결정의 가로방향으로 뻗어 있었으며, 잔 균열들이 불규칙적으로 이들을 가로고 있어 내부는 작은 조각들로 채워져 있었다.

이상의 연구를 통하여 유리기질 내에 백류석결정의 양과 분산정도를 감안할 때, 더욱더 많은 결정과 높은 밀도로 인하여 채색용(T1, O1) 잉곳이 층형성용(Dentin A2) 잉곳보다 더 높은 파절강도를 나타내고, 이중주입선의 경우가 단일주입선보다 내부의 백류석결정을 더욱 고르게 분산시키므로 재료가 더 균질해 짐으로 해서, 이중주입선을 사용한 도재가 높고 안정된 파괴를 나타낼 것으로 기대되었다. 또한 열처리 횟수가 증가함에 따라 백류석 내부와 유리기질 내에 미세한 균열이 증가되므로 지나친 반복 열처리는 파절강도를 약화시킬 것으로 사료되었다.

참 고 문 헌

1. Johnson DW. Development of dental ceramics. Dent Clin North Am 1985; 29:621-44.
2. Piddock V, Qualtrough, AJE. Dental ceramics - an update. J Dent 1990; 18:227-35.
3. Anusavice KJ. Recent developments in restorative dental ceramics. JADA 1993; 24: 72-84.
4. Kelly JR, Nishimura I, Campbell SD. Ceramics in dentistry: Historical roots and current perspectives. J Prosthet Dent 1996; 75:18-32.
5. Seghi RR. Relative fracture toughness and hardness of new dental ceramics. J Prosthet Dent 1995; 74(2):145-50.
6. Seghi RR, Sorensen JA. Relative flexural strength of six new ceramic materials. Int J Prosthodont 1995; 8:239-246.
7. Denry I, Rosenstiel SF. Phase transformations in feldspathic dental porcelains. In: Bioceramics: materials and applications, Fischman G, Clare A, Hench L, editors. Westerville: The American Ceramic Society, pp. 149-156, 1995.
8. Pröbster L. Survival rate of In-Ceram Restorations. Int J Prosthodont 1993; 6:259-63.
9. Pröbster L. Four year clinical study of glass-infiltrated, sintered alumina crowns. J Oral Rehabil 1996; 23(3):147-51.
10. Studer S, Lehner C, Scherer P. Glass ceramic inlays and onlays made by IPS Empress: First clinical results. J Dent Res 1992; 71:658.
11. Lehner, C.R., Studer, S., Scherer, P. : Full porcelain crowns made by IPS Empress: First clinical results. J Dent Res 1992; 71: 662.
12. Tidehag P, Gunne J. A 2-year clinical follow-up study of IPS-Empress ceramic inlay. Int J Prosthodont 1995; 8:456-460.
13. Lehner CR, Brodbeck U, Studer S, Scherer P. IPS Empress full ceramic crowns: Clinical results after four years: A prospective study, In preparation, 1995.
14. Fradeani M, Aquilano A. Clinical Experience with Empress crowns. Int J Prosthodont 1997; 10:241-247.
15. Mackert JR, Russell CM. Leucite crystallitation

- during processing of a heat-pressed dental ceramic. *Int J Prosthodont* 1966; 9:261-265.
16. Mackert JR Jr, Evans AL. Effect of cooling rate on leucite volume fraction in dental porcelains. *J Dent Res* 1991a; 70:137-139.
 17. Mackert JR Jr, Evans AL. Quantitative x-ray diffraction determination of leucite thermal instability in dental porcelain. *J Am Ceram Soc* 1991b; 74:450-453.
 18. Wohlwend A, Scherer P. The Empress technique: a new technique for the fabrication of full ceramic crowns, inlays, and veneers. (In German). *Quintessenz Zahntech* 1990; 16 : 966-978. (English reprints, 1991)
 19. Holand W, Frank M. Material science of Empress Glass-Ceramics, Ivoclar-Vivadent Report, 10, 3-8, 1994.
 20. Holand W, Frank M, Schweiger M, Rheinberger V. Development of translucent glass-ceramics for dental application, Lecture: 5th Int. Otto Schott Colloquium Jena, 1994.
 21. Stooky SD. Verfahren zur Herstellung kristalliner oder glasigkristalliner Gegenstände, Dtsch, Patent 1045056, 1956.
 22. Chung K, Duh J. Properties of glass-ceramic materials for fixed partial denture construction. *J Oral Rehabilitation* 1996; 23:590-598.
 23. Dong JK, Luthy H, Wohlwend A, Scherer P. Heat-Pressed ceramics : Technology and strength. *Int J Prosthodont* 1992; 5:9-16.
 24. 오상찬, 최대균, 우이형, 최부병. 주입선에 따른 IPS Empress도재의 굽힘강도와 미세구조에 관한 연구. *경희치대논문집* 1997; 19(2):391-418.
 25. Pröbster L. Compressive strength of two modern all-ceramic crowns. *Int J Prosthodont* 1992; 5:409-414.
 26. Mutobe Y, Maruyama T, Kataoka S. In harmony with nature: Esthetic restoration of a nonvital tooth with IPS-Empress all-ceramic material. *QDT* 1997; 83-85.
 27. Green DJ, Hannink RHJ, Swain MV. Transformation Toughening of Ceramics. Boca Raton, FL:CRC Press, 1989: 57-91.
 28. Faber KT, Evans AG. Crack deflection processes. I, II Theory. *Acta Metall* 1983; 31:565-584.
 29. McLean JW. Ceramics in clinical dentistry. *British Dental Journal* 1988; 164.
 30. 이준근. 세라믹스의 기계적 특성, 반도출판사, 1994.
 31. Christensen GJ. The use of porcelain-fused-to-metal restorations in current dental practice: A survey. *J Prosthet Dent* 1986; 56:1-3.
 32. Barghi N, Lorenzana RE. Optimum thickness of opaque and body porcelain. *J Prosthet Dent* 1982; 48:429.
 33. Wohlwend A, Strub JR, Scherer P. Metal ceramic and all-porcelain restorations: current consideration. *Int J Prosthodont* 1989; 2:13-26.
 34. Belles DM, Cronin RJ, Duke ES. Effect of metal design and technique on the marginal characteristics of the collarless metal ceramic restoration. *J Prosthet Dent* 1991; 65:611.
 35. Beham G. IPS Empress: a new ceramic technology. Ivoclar-Vivadent 1990; 6:3-14.
 36. Mackert JR Jr, Butts MB, Fairhurst CW. The effect of the leucite transformation on dental porcelain expansion. *Dent Mater* 1986a; 2:32-36.
 37. Kokubo T. Bioactive glass-ceramics. *J Non-Cryst Sol* 1991; 129:163-173.
 38. Denry IL, Mackert JR Jr, Holloway JA, Rosenstiel SF. Effect of cubic leucite stabilization on the flexural strength of feldspathic dental porcelain. *J Dent Res* 1996; 75(12):1928-1935.
 39. Holand W, Vogel W. Fundamentals of controlled formation of glass-ceramics. International Meeting on New Glass Technology, New Glass Forum, Tokyo, 116-153, 1992.
 40. Stookey SD. Catalyzed crystallization of glass in theory and practice. *Glastechn Ber* 1959; 32K 1-8
 41. Inglis CE. Stress in a plate due to presence of

- cracks and sharp corners. *Trans Inst Nav Archit, London* 1913; 55: 219-241.
42. Bowen KH. *Moderne keramische Werkstoffe, Spektrum der Wissenschaft* 1986; 12: 140-149.
43. Mackert JR Jr, Evans AL. Multiple firing effect on microcrack density in dental porcelain (abstract). *J Dent Res* 1993; 72:263.
44. Edris AA, Jabr AA, Cooley RL, Barghi N. SEM evaluation of etching patterns by three etchants on three porcelains. *J Prosthet Dent* 1990; 64:734-739.
45. Binns D. The chemical and physical properties of dental porcelain. In: *Dental ceramics: Proceedings of the First International Symposium*. McLean JW, editor. Chicago, IL: Quintessence Publishing Co., Inc., pp. 41-82, 1983.
46. Nakamoto H, Sugisawa H, Kawahara K, et al. Microstructure of etched "IPS Empress" heat-pressed ceramics observed by SEM. *J Nihon Univ Sch Dent* 1996; 38(1):31-36.

ABSTRACT

A STUDY ON THE MICROSTRUCTURE OF IPS EMPRESS CERAMICS ACCORDING TO THE HEAT TREATMENT AND SPRUE TYPE

Jin-Keun Dong, Sang-Chun Oh

Department of Prosthodontics, College of Dentistry, Wonkwang University

This study was undertaken to clarify the microstructure of the different IPS Empress ingots by etching and to observe the change of leucite crystal structure according to subsequent heat treatment and the crystal distribution according to sprue types ($\varnothing 2.8\text{mm}$, single sprue; $\varnothing 1.8\text{mm}$, double sprue) by scanning electron microscopy.

IPS Empress T1, O1 ingots used for staining technique, and Dentin(A2) ingots used for layering technique were selected for this study. To observe the microstructures of these ingots before pressing, the specimens were prepared in splinters ($3\times 3\times 3\text{mm}$) taken from the original ingots. And to estimate crystal distribution and microstructural change by sprue type and subsequent heat treatment, the specimens ($3\times 3\times 3\text{mm}$) were heat-pressed through the two types of sprues with different diameters and numbers, and all specimens were fired according to the recommended firing schedule. The observed surface was ground with waterproof papers (#800~#1800) on the grind polisher and was cleaned ultrasonically. All specimen were etched with 0.5% hydrofluoric acid. After etching, the surface was treated by ion sputter coating for SEM observation at an accelerating voltage of 20kV.

In all specimens, the central area of ground surface was observed because there was less difference in microstructure between the peripheral area and the central area.

The results were as follows :

1. In the microstructure according to the ingot type, there was a wide difference between the staining (T1,O1) and layering(Dentin A2) ingots, but there was not a considerable difference between the T1 ingot and the O1 ingot for staining technique.
2. In all specimens, the crystal dispersion of IPS Empress ceramic using double sprue was significantly more scattered than that of IPS Empress ceramic using single sprue. The degree of scattering was strongest in the Dentin(A2) specimen and weakest in the O1 ingot.
3. In the microstructural change according to the subsequent heat treatment, all of ingots had some microcracks in the inside of the leucite crystal and the glass matrix after pressing. The inner splinters of the leucite crystal became smaller, and more microcracks occurred in the glass matrix due to increasing heat treatment times.
4. The size of leucite crystals varied from $1\mu\text{m}$ to $5\mu\text{m}$. The mean size of mature crystals was about $5\mu\text{m}$. The form of the crystal was similar to a circle when it was smaller and similar to an ellipse when it was larger.