

## 필러의 실란처리농도가 복합레진의 특성에 미치는 영향

조태희 · 박상진

경희대학교 대학원 치의학과 치과보존학 전공

ABSTRACT

### INFLUENCES OF SILANE CONCENTRATION FOR FILLER SILANIZATION ON THE PROPERTIES OF COMPOSITES

Tae-Hee Cho, D.M.D., Sang-Jin Park, D.D.S, M.S.D., PhD.

*Department of Conservative Dentistry, Division of Dentistry, Graduate School, Kyung-Hee University*

The purpose of this study was to search the optimal silane concentrations for filler- silanization of seven experimental composites.

Silica filler was a 25micron crushed type. 0.0%, 0.5%, 1.0%, 1.5%, 2.0%, 2.5%, and 3.0% silane( $\gamma$ -methacryloxypropyltrimethoxysilane)were added into silica-filler with weight percentage(wt%). Mixtures (silica filler/silane)were reacted at 60°C for 72hours, and crushed into fine particles those were used as fillers for 7 experimental composites. Monomer was a 3 : 1 mixture of Bis-GMA and TEGDMA containing 0.2% tertiary amine and 0.4% camphoroquinone for light curability. A ratio for mixing the monomer and filler was 75% and 25% respectively. Seven experimental composites was classified with the concentration of silane treated, and the specimen number for each test was 10. Specimens with 6mm diameter and 3mm height dimension for measuring the diametral tensile strength were destroyed with 1mm/min cross-head speed on Instron universal testing machine (No. 4467, USA). Shear bond strength was measured on the specimens bonded to bovine enamel etched with 37% phosphoric acid solution for 1 minute. Fractured surfaces were observed by SEM (Hitachi S-3200, Japan) among that of the highest values measured from each groups.

Following results were obtained:

1. Experimental composites containing silanized filler showed the significantly higher diametral tensile strength and shear bond strength than the composites containing un-silanized fillers(Group1) ( $p<0.05$ ).
2. In silanized filler composite resins(Group 2~7), Diametral tensile strength of Group 3 showed the significantly higher than that of Group 2 and Group 6( $p<0.05$ ).
3. Shear bond strength was higher in Group 3 than that of Group 7 ( $p<0.05$ )in silanized fillers composite resins.
4. Fracture surface was formed in resin matrixes on the specimens from composites containing the fillers treated with 0.5%, 1.0%, and 1.5% silane.

These results mean that the optimal silane concentrations are exist for each filler with its size and surface area, and that 1.0% is a optimal value for concentration to coat the 25 $\mu$ m filler with silane.

## I. 서 론

현재 치과보존수복에 널리 사용되고 있는 복합레진의 구성성분 중 기질부분으로 사용되는 Bis-GMA계 레진은 Bowen<sup>1)</sup>에 의하여 개발된 이래 복합레진의 기질로 사용되었으나 치수자극성, 구강내에서의 내구성 및 경화시의 중합수축, 취약한 표면경도, 내마모성 및 높은 열팽창계수 등의 여러 가지 문제점이 발생되고 있다.

또한 Bis-GMA계 레진 이외에 공중합체로 함께 사용되고 있는 TEGDMA는 복합레진에서 희석제로서 조작성을 향상시키며 경화시간 단축과 수복물의 변연 봉쇄성을 증가시킬 목적으로 첨가되지만, TEGDMA의 양이 증가됨에 따라 수축이 증가되는 단점이 나타나고 있다.

이와 같이 치과용 복합레진수복은 레진기질 자체의 물성만으로는 구강내의 여러 물리적, 화학적인 환경변화에 장기간 노출시 효과적으로 대처하여 유지하기가 힘들다. 즉 구강내에서 습도변화, 착색 및 저작압 등에 노출될 경우, 복합레진 수복물의 외형이 변형되거나 마모, 변연누출, 변색과 파괴가 발생되어 복합레진 수복물의 수명이 감소될 수 있다<sup>2)</sup>. 따라서 임상에 적용시 적절한 강도와 와동 적합성, 표면 연마성 및 치수 자극성 등의 발생하는 문제점을 해결하고자 Knock과 Glenn<sup>3)</sup>은 레진기질에 무기질 필러를 포함시켜 치과용 복합레진을 개발하였다.

더욱이 Phillip<sup>4)</sup>은 레진기질에 무기질 필러 함량을 70% 이상 포함시킬 경우, 물성을 향상시킬 수 있으나 조작성과 연마성에 단점이 나타날 수 있어 필러의 크기를 미세화하여 복합레진에 첨가, 사용하여 와동적합성 향상 및 미세누출 감소등 임상에서의 적용 편리성을 고려할 것을 추천하기에 이르렀다.

그러나 임상에서 물성의 향상이외에도 방사선 조영성 및 심미성 등의 요구조건으로 복합레진에 첨가되는 필러의 형태 및 배합비율은 다양한 형태와 종류를 사용하게 되며, 이에 따라 수복물 자체의 물성과의 관계는 다양하게 나타나게 된다. 즉 무기질의 실리카 필러는 생체적합성과 방사선 불투과성 등이 필요하여 여러 가지 합성 hydroxy-apatite와 barium 등의 필러를 첨가하였는데 이는 또 다른 문제점을 야기하고 있다<sup>5)</sup>. 필러의 개발 당시 필러의 표면 처리없이 레진 기질에 단순첨가하여 사용하였으나, 표면 연마과정이나 저작시 필러의 탈락이 발생되어 활택한 표면의 유지가 어려워져 심미성이 감소되며, 필러가 쉽게 탈락되어 기계적 성질이 취약해지고 물성의 저하도 나타나 수복물의 파괴가 계속되는 단점을 지니게 되었다. 이와 같은 필러의 탈락으로 인한 수복물의 취약성을 필러의 레진기질에 대한 결합력을 강화시켜 해결하고자 하는 시도가 있었다<sup>6)</sup>.

즉 필러는 기질을 이루는 Bis-GMA와 자체적으로 결합하는 능력이 없기 때문에 필러표면을 다공성으로 화학 처리하

여<sup>6,7)</sup> 필러의 표면을 변형시켜 레진기질의 기계적인 결합능을 증가시키는 방법이나<sup>8)</sup>, 필러표면의 유기화, 즉 필러의 표면에 실란(silane)<sup>9)</sup>을 결합시키고 실란의 분자구조 중 methacrylate 부분이 Bis-GMA와 결합되도록 하는 방법을 사용하여 필러의 표면과 레진기질과의 결합을 강화하는 방법이 이용되고 있다<sup>10)</sup>.

이중 필러의 표면을 유기화하는 실란처리방법으로 실란이 레진 기질과 필러사이를 견고하게 결합시키고 있는 경우에는 복합레진 수복물이 응력을 받아 파괴될 경우, 파괴강도에 저항하는 탄력성을 나타내거나<sup>11)</sup>, 파괴가 필러에서 발생하여 파단면이 필러를 지나가기 때문에 복합레진의 강도는 필러의 파괴강도에 근접하게 된다<sup>12)</sup>. 그러나 이와는 반대로 필러와 실란층의 결합이 견고하지 못한 경우에는 실란층 자체가 취약부분으로 작용하여 파단면은 필러와 기질사이에 위치하게 되고 복합레진의 강도는 낮아지게 된다<sup>13,14)</sup>. 따라서 실란이 필러 표면과의 견고한 결합층을 형성하기 위해서는 필러입자의 표면적에 대한 실란의 적절한 농도에 따른 실란의 활성화, 건조 조건 및 사용된 촉매 등이 중요한 요인이다.

이 연구의 목적은 25 $\mu$ m 크기의 분쇄형 실리카 필러입자의 표면처리를 하기 위하여 실란의 농도를 달리하여 복합레진을 제조 후, 그 특성을 비교하여 필러 표면의 실란의 적정 농도를 확인하기 위한 것이다.

## II. 실험재료 및 방법

### 1. 실험재료

25 $\mu$ m의 실리카(Silica, SiO<sub>2</sub>, Junsei, Japan)입자를 7 가지 농도의 실란(silane)으로 처리하였다. 즉 실란은  $\gamma$ -methacryloxypropyltrimethoxy silane (MPTS, Aldrich Chem., USA)을 사용하였으며, 필러의 무게비로 0%, 0.5%, 1.0%, 1.5%, 2.0%, 2.5%, 및 3.0% 농도로 MPTS를 혼합한 후 60 $^{\circ}$ C 온도에서 72시간동안 필러 표면과 반응시켰다.

광중합형 단량체는 Bis-phenol A glycidyl methacrylate(Bis-GMA, Polyscience Chem., USA)와 Triethyleneglycol-dimethacrylate (TEGDMA, Aldrich Chem., USA)를 3 : 1의 비율로 혼합하여 광중합형 단량체로 하였다. 광중합 단량체에는 amine 0.2%와 camphoroquinone 0.4%를 첨가하여 광중합이 가능하도록 하였다.

단량체와 필러의 배합비율은 무게비로 25 : 75로 혼합하여 필러의 실란처리농도에 따른 7가지 실험군의 광중합형 복합레진을 제조하고, 제조된 복합레진은 실험에 사용할 때까지 냉장소에 보관하였다.

## 2. 실험방법

### ① 간접인장강도

미국치과의사협회규격에 준하여 내경 6mm 깊이 3mm의 고무 몰드에 제조된 7개 실험군의 복합레진을 주입 충전후, 상하면을 셀로판지로 덮고 유리판으로 가압하여 평행면이 되도록 하였다. 상하면에 각각 1분씩 광조사하여 레진이 경화후, 고무 몰드로 부터 제거하여 7개 실험군의 복합레진 원판형 시편을 제작하였다. 제작된 복합레진 시편을 37±1℃ 수조내에 24시간 동안 침지후, 강도시험기(Instron No. 4467, USA)에서 분당하중속도 1mm로 압축하중을 가하여 시편이 파괴되는 가장 높은 하중값을 측정한 후, 다음 환산공식에 의거하여 간접인장강도를 구하였다.

$$\text{Diametral Tensile Strength} = \frac{2P}{\pi LD}$$

P=Peak load

L=Length

D=Diameter

7개 실험군당 10개의 시편을 제작하여 측정하였고, 측정된 각 실험군의 10개 측정치를 평균하여 각 실험군의 간접인장강도로 하였으며, 실란의 농도증가에 따른 간접인장강도의 변화를 ANOVA로 분석하였다.

### ② 전단결합강도

소의 하악중절치를 치관부만 절단하여 직경 2.5cm 높이 2cm의 에폭시 레진 블럭(epoxy resin bloc)내에 포매하고, 경조직 연마기(Metaserv, Buehler Co., England)에서 #600번 SiC로 주수하에 연마하여 법랑질을 평활하게 형성하였다. 연마된 법랑질면을 37% 인산수용액으로 1분간 산부식후, 30초간 수세 및 건조하고 내경 3mm 두께 1mm의 금속링(brass mold)을 부착하였다. 금속링내에 복합레진을 주입 충전한 후, 상면을 셀로판지로 덮고 유리판으로 가압하여 평활면을 형성한 다음, 1분간 광조사하여 제작된 7개 실험군의 복합레진을 연마된 법랑질면에 결합시켜 시편을 제작하였다.

결합된 시편은 37±1℃ 수조내에 24시간 침지후 전단결합강도를 측정하였다. 전단결합강도의 측정은 만능강도시험기(Instron Universal Testing Machine, No.4467, USA)에서 접착면에 일치하는 평면을 따라 최대 600kg까지 하중을 분당 1mm의 속도로 가하여 기록기에서 나타나는 최대하중을 결합강도로 측정하였으며, 다음 공식에 의해 각 시편의 전단결합강도는 측정된 7개 실험군당 10개의 측정치를 평균하여 각 실험군의 전단결합강도로 하였다.

$$\text{Shear Bond Strength} = \frac{P}{\pi r^2}$$

P=Peak load

r=Radius

실란농도가 전단결합강도에 영향을 미치는가의 여부는 ANOVA test로 분석하였다.

### ③ 파단면의 관찰

간접인장강도 측정후 시편중 최고강도를 나타낸 시편을 선택하여 파단면을 관찰하기 위하여 전자현미경 관찰용 스텐드(stub)에 부착하고 건조 탈수하여 금이온을 증착하여 주사전자현미경(S-3200, Hitach Co., Japan)에서 20kvp전압으로 100배 내지 3,000배로 관찰하였다.

## Ⅲ. 실험성적

### ① 간접인장강도

간접인장강도는 실란처리를 하지 않은 경우 (0.0%의 실험 1군), 18.89MPa로 매우 낮은 측정값을 나타내었으며, 그밖에 실란 처리한 실험 2군~실험 7군에서는 실란 무처리군(실험 1군)과 비교하여 통계적으로 유의성있는 높은 간접인장강도를 보였다(p<0.05). Table 1은 실험 1군~실험 7군에서의 측정된 간접인장강도의 결과를 요약한 것으로서 실란처리 농도를 증가시켰을 경우, 41.82MPa, 43.59MPa, 42.51MPa, 42.92MPa, 42.14MPa, 및 42.54MPa로 간접인장강도가 변화되는 것을 요약한 결과이며, Fig. 1은 이의 결과를 그림으로 비교한 것이다.

즉 Table 1의 duncan's group을 분석한 결과에서 실란농도 1.0%인 실험 3군에서 간접인장강도가 0.0%의 실험 1군, 0.5%의 실험 2군과 2.5%의 실험 6군에 비해 유의하게 높은 것으로 나타났으며(p<0.05), Table 2의 실험군들간의 간접인장강도에 대한 ANOVA test 결과에서는 p-value가 0.1015인 것으로 나타나, 그 밖의 실란처리 농도에 따른 실험군들간에는 간접인장강도의 변화는 유의차가 없는 것으로 나타났다.

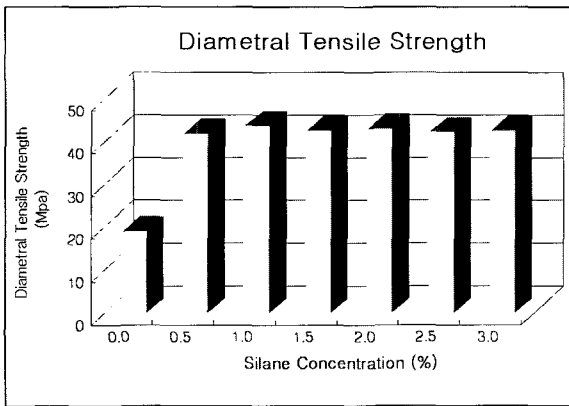
### ② 전단결합강도

Table 3에서 보는 바와같이 우치 법랑질표면과 각 실험군들의 복합레진에서 측정된 전단결합강도 역시 간접인장강도와 마찬가지로 실란처리되지 않은 실험 1군에서 20.02MPa의 가장 낮은 전단결합강도가 나타났으며, 실란처리농도의 증가(실험 2군~실험 7군)에 따라 37.42MPa,

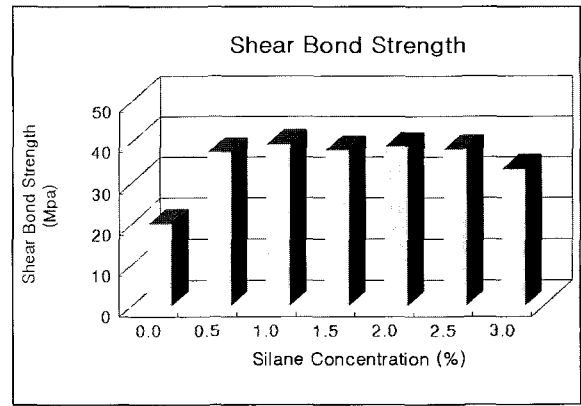
**Table 1.** Diametral Tensile Strengths (MPa)

Group	Silane Concentration(%)	Mean	Standard Deviation	Coefficient of Variance	Duncan's Group
1	0.0	18.89	1.01	5.35	C
2	0.5	41.82	1.62	3.87	B
3	1.0	43.59	1.45	3.33	A
4	1.5	42.51	1.26	2.96	AB
5	2.0	42.92	1.22	2.84	AB
6	2.5	42.14	1.31	3.11	B
7	3.0	42.54	1.01	2.37	AB

※ Duncan's Group means that there is no statistical differences between groups with same letter.



**Fig. 1.** Comparison of diametral tensile strength



**Fig. 2.** Comparison of shear bond strength by silane concentration

**Table 2.** Result of ANOVA Test for Diametral Tensile Strength

Source	D.F.	Sum of Squares	Mean Squares	F Ratio	F Prob.
Between Groups	5	17.2279	3.4456	1.9615	.1015
Within Groups	48	84.3171	1.7566		
Total	53	101.5449			

**Table 3.** Shear Bond Strength (MPa)

Group	Silane Concentration(%)	Mean	Standard Deviation	Coefficient of Variance	Duncan's Group
1	0.0	20.02	2.77	13.84	C
2	0.5	37.42	3.89	10.40	AB
3	1.0	39.37	6.85	17.40	A
4	1.5	37.92	5.10	13.45	AB
5	2.0	38.68	5.46	14.12	AB
6	2.5	38.02	4.91	12.91	AB
7	3.0	33.24	6.45	19.40	B

※ Duncan's Group means that there is no statistical differences between groups with same letter.

Table 4. Result of ANOVA Test for Shear Bond Strength

Source	D.F.	Sum of Squares	Mean Squares	F Ratio	F Prob.
Between Groups	5	211.7315	42.3463	1.3846	.2468
Within Groups	48	1468.0374	30.5841		
Total	53	1679.7690			

39.37MPa, 37.92MPa, 38.68MPa, 38.02MPa, 및 33.24MPa로 변화되는 결과를 나타내고 있다.

Fig. 2에서는 이와 같은 결과를 그림으로 비교한 것이다.

Duncan's group 분석결과에서는 역시 실란 0.1%의 실험 3군에서의 결과가 실란 0.0%의 실험 1군과 실란 3.0%의 실험 7군의 결과에 비하여 통계적으로 유의하게 높은 것으로 나타났다( $p < 0.05$ ). Table 4의 실험군들간의 전단결합강도에 관한 ANOVA test 결과에서는 p-value가 0.2468인 것으로 나타나, 그 밖의 실험군간에는 유의차가 없는 것으로 나타났다.

### ③ 파단면의 관찰

파단면 관찰 결과, 실란처리농도 0.0%의 실험 1군에서는 Fig. 3에 관찰되는 바와 같이 파괴가 필러와 레진기질간 경계부에서 발생되어 필러의 표면에서 노출된 것을 관찰할 수 있었으며, 0.5% 1.0% 1.5% 실험 2군, 3군 및 4군에서는 Fig. 4, Fig. 5, Fig. 6에 나타난 바와 같이 파괴가 레진기질부에서만 일어나 필러의 노출이 표면에서 관찰되지 않았다. 그러나 Fig. 7, Fig. 8, Fig. 9의 2.0% 2.5% 3.0% 실험 5군, 6군 및 7군에서는 부분적으로 파괴상이 필러와 레진기질간 경계부에서 나타나, 필러의 표면이 노출된 것을 관찰할 수 있었다.

## IV. 총괄 및 고안

복합레진의 구성 성분중 필러의 실란처리 효과는 일반적으로 인정되어 왔으나<sup>1,8)</sup>, 처리조건이 각종 특성에 미치는 결과에 대해서는 구체적으로 보고된 바가 없었다. 이 연구의 목적은 필러의 실란처리농도, 온도, 활성화 방법 등이 치과용 복합레진의 특성에 영향을 미칠 것으로 가정하여 이러한 조건들 중에서 1차적으로 필러의 실란처리농도가 복합레진의 간접인장강도와 전단결합강도에 미치는 영향에 관하여 실험하여, 향후 필러의 실란 표면처리에 최적의 실란농도를 구명하여 복합레진의 제조와 임상적용의 지침으로 하고자 하는 것이었다.

더욱이 복합레진에 필러의 첨가는 물리적 및 기계적인 물성을 크게 향상시키고 복합레진을 강하게 할 뿐 아니라 탄력성도 증가시켜 응력에 대한 저항력도 증가시킨다<sup>15)</sup>. 이와

같이 모든 복합레진 기질의 강화는 첨가되는 필러의 표면조건에 따라 달라지며 필러의 크기, 분포, 표면적, 극성, 표면의 수분존재유무<sup>16,17)</sup>, 및 실란처리 유무<sup>11)</sup>등 제반 처리 조건<sup>18)</sup>에 따라 다양한 물리적 성질의 차이로 나타난다. 레진기질은 기본적으로 필러표면을 wet시켜야 하며 과도한 양이 함유되지 않아야 한다.

레진수복물에 하중이 가해질 경우, 복합레진은 기질과 필러의 계면에서 파괴가 발생할 수 있다. 필러의 함량을 아주 미세하고 고밀도로 충전시키고 기질과의 결합이 양호한 상태일 경우 복합레진이 응력을 받더라도 기질내의 균등한 필러의 분산으로 가해지는 응력을 적절히 분산시킬 수 있다고 하였다<sup>9)</sup>. 즉 이러한 필러의 기질내의 균등한 분산은 필러표면의 실란처리로서 효과적으로 대처할 수 있다<sup>13,14)</sup>.

복합레진의 구성성분인 필러의 레진기질과의 결합을 강화시키기 위하여 사용되는 실란 coupling 용액은 필러표면을 유기화하여 유기질 레진 기질과 복합레진의 무기질 필러간에 접착을 향상시켜 기계적 그리고 화학적인 결합을 증가시키는 것으로 알려지고 있다<sup>20)</sup>. 또한 실란용액은 도재수복물의 수리<sup>21)</sup> 혹은 가철성 총의치 또는 부분의치에서 치과용 합금<sup>22)</sup>과 레진 의치상과의 결합을 증가시키기 위하여도 사용되고 있으며<sup>21,23)</sup>, 생체적합성 증진에도 이용되고 있다<sup>5)</sup>. 또 Rosenstiel 등<sup>24)</sup>은 도재 전장관의 수분침투로 인한 파괴에 저항하기 위하여 내수성 방어벽을 형성할 목적으로 fluoroalkylethyl silane을 도재 전장관 내부에 도포하여 stress-corrosion의 발생이 감소되었음을 보고한 바 있다. 또한 May 등<sup>25)</sup>은 매식치아 보철재료로 사용되는 티타늄의 레진가공치아와의 결합을 증진시키기 위하여 티타늄 표면을 air abrasive로 표면 처리 후, 실란을 도포한 군에서 4-META polymethyl methacrylate와의 티타늄간의 전단결합강도가 증가되었음을 보고하였다. 또 Semmelman과 Kulp<sup>26)</sup>, Myerson<sup>27)</sup>은 도재치아의 레진 의치상과의 결합시, 도재치아의 표면을 실란용액으로 처리할 경우, 강력한 결합력을 보고하여 실란효과의 장점에 대하여 보고한 바 있다.

그러나 복합레진수복물의 파괴면에 대한 실란처리효과는 실험에서 확인하지 못하여 복합레진 수복물의 수리시에는 레진표면의 실란처리는 무의미하다고 보고되었다<sup>28-31)</sup>. 이 연구의 결과에서는 필러의 실란처리농도 0.5%부터 3.0%간에 전단결합강도는 전반적으로 통계적 유의차가 확인되

지는 않았다. 그러나 실란 농도 1.0%인 실험 3군에서 간접 인장강도와 전단결합강도는 2.5%인 실험 6군이나 3.0%인 실험 7군과 비교하여 유의성이 있는 양호한 결과를 나타내었다. 이에 대하여 Pludemann<sup>9)</sup>은 실란 0.025~2%의 용액으로 처리시, 필러 표면은 보다 두껍고 균일하게 도포된다고 보고하였으며, 이보다 얇은 층을 형성할 경우, 수분침투가 가능하여 가수분해로 실란 도포층이 제거될 수 있음을 경고한 바 있다<sup>32,33)</sup>. 필러의 실란처리에 대하여<sup>14)</sup> 복합레진의 열팽창계수와 열 안정성을 증가시켜 와동 변연부의 적합성을 증가시켜 2차 우식증을 예방할 수 있음을 관찰하였으며, Paffenbarfger의 2인<sup>34)</sup>은 복합레진의 수분안정성을 증가시켜 필러의 레진기질로부터 탈락을 방지하며 결국 복합레진의 치질과의 접착효과를 향상시키는 결과를 나타내었다고 보고한 바 있다.

한편 실란용액은 복합레진과 일반화학중합형 레진의 결합시에도 적용한 보고<sup>35)</sup>가 있으나 임상에서 이의 적용은 흔하지 않으며 지금까지는 이상의 연구보고와 같이 복합레진의 필러의 표면처리에 실란이 사용되고 있다.

복합레진자체의 치질접착성은 기대할 수 없고 복합레진의 단독수복으로는 외벽 적합성도 임상에서 응용할 수 없다. 따라서 임상에서 이러한 문제점의 개선책으로 산부식법에 따른 결합제의 도포로 접착 수복법을 도입한 방법이 이용되고 있다<sup>36)</sup>.

이 연구의 주사전자현미경 관찰에서 0.5%내지 1.5%까지의 실험 2군~실험 5군까지에서는 필러와 레진기질의 계면이 아닌 레진기질내에서 파괴상이 형성되어 있다. 이는 본 연구에 사용된 필러는 연삭과정으로 제조한 비교적 거대한 25 $\mu$ m의 크기로서 이상적으로 레진 기질내로의 분산이 제한되어 실험 1군의 파괴상에서 거친 표면으로 나타난 것으로 사료되며(Fig. 3), 필러의 실란처리한 실험 2군~실험 7군까지에서는 파괴응력분산이 고루 분포되어 나타나고 있다(Fig. 4~9). 이는 필러의 실란 처리로 인하여 복합레진이 중합시 수축응력이 고루 분산되어 필러입자로부터 멀리 떨어져 높은 간접인장 강도로 나타난 결과로 사료된다.

따라서 이 실험 결과에서 실리카 필러의 실란 처리농도는 1.0%가 적절하며, 적정처리농도가 필러의 입자 크기에 따라서 좌우된다고 할 수 있다.

실란처리의 고농도에 비해 저농도에서 우수한 결과를 나타낸 결과는 실리카 입자표면에 어느 정도로 두꺼운 층의 실란막의 형성여부가 복합레진의 특성에 영향을 미치는 것으로 예상할 수 있다. 따라서 향후 실란의 적정농도는 필러 입자의 크기와 반비례하는 표면적을 고려한 특성을 함께 연구하여야 하며, 적정농도로 실란처리된 필러의 첨가로 인한 복합레진의 중합 수축, 열 팽창계수, 흡수 팽창율, 화학적 성질 및 색조안정성, 치수자극성 및 상아질과의 접착성에 관한 지속적인 연구도 함께 이루어져야 한다.

## V. 결 론

이 연구는 실란의 농도차이에 따라 실리카 필러 입자 표면을 처리하여 7개 실험적 복합레진을 제조하여 물리적 성질과 파괴상을 평가 분석하여 최적의 실란 처리 농도를 구하고자 실험을 실시하였다. 실리카 필러(silica filler)입자는 25 $\mu$ m크기의 분쇄형을 사용하였고, 실리카 필러입자의 무게비로 0.0%, 0.5%, 1.0%, 1.5%, 2.0%, 2.5%, 및 3.0%농도의 실란( $\gamma$ -methacryloxy-propyl-trimethoxysilane)용액을 첨가하여 60 $^{\circ}$ C에서 72시간을 반응시켜 실리카 입자 표면을 실란 처리하였다. 실란 처리된 실리카 입자를 필러로 하고, Bis-GMA와 TEGDMA를 3 : 1 비율로 혼합한 후 amine 0.2%와 camphoroquinone 0.4%를 혼합한 것을 광중합형 단량체로 하였다. 상기의 7가지 실란 농도로 표면 처리된 각 실험군은 필러 75%와 단량체 25%를 혼합하여 7개 실험군의 복합레진을 제조하였다. 간접인장강도 측정용 시편은 직경 6mm, 높이 3mm였고, 측정조건은 인장시험기(Instron No. 4467)에서 분당1mm 하중속도를 사용하였다. 결합강도는 소의 중절치 법랑질을 37% 인산으로 산부식 후, 7개 실험군의 복합레진간의 전단결합강도를 구하였다. 파단면은 간접인장강도 측정된 시편중 각각의 7개 실험군에서 가장 높은 강도를 나타낸 시편의 파단면을 전자현미경으로 관찰하여 파괴상을 평가하였다.

1. 실란처리하지 않은 실험 1군(대조군)에 비해 실란처리된 실험군의 간접인장강도와 전단결합강도는 모두 통계적으로 유의하게 높게 나타났다( $p < 0.05$ ).
2. 실란처리 실험군에서는 간접인장강도는 실란 1.0%의 실험 3군이 0.5%의 실험 2군과 2.5%의 실험 6군에 비하여 높게 나타났다( $p < 0.05$ ).
3. 전단결합강도는 실란처리 1.0%의 실험 3군이 3.0%의 실험 7군과 비교하여 높게 나타났다( $p < 0.05$ ).
4. 실란 처리농도 0.5%, 1.0% 및 1.5%의 실험 2, 3 및 4군에서 파괴는 레진기질내에서 발생되었다.

이상의 결과는 필러의 크기에 따라 최적의 실란처리농도가 존재한다는 것과 25 $\mu$ m 크기의 실리카에 대해서는 1.0%의 실란처리농도가 최적인 것을 의미한다.

## REFERENCES

1. Bowen, RL. : Dental filling material comprising vinyl silane treated fused silica and a binder consisting of the reaction product of bisphenol and glycidyl acrylate, US Patent, 3066: 112, 1962.
2. Moffa, JP., Jenkins, WA, and Hamilton, JC. : The longevity of composite resins for the restoration of posterior teeth, IADR Progt and Abstr 63:199, Abstr No. 253, 1984.
3. Knock, FE. and Glenn, JF. : Dental material and

- method, US Patent, No. 2558139, 1951.
4. Phillips, RW. : Past, present, and future composite resin systems, *Dent Clin North Am*, 25 : 209-239, 1981.
  5. Dupraz, AM., de Wijn, JR., vd Meer, SA., and de Groot, K. : Characterization of silane-treated hydroxyapatite powders for use as filler in biodegradable composites, *J Biomed Mater Res*, 30 : 231-238, 1996.
  6. Bowen, RL. and Reed : Semi-porous reinforcing fillers for composite resins. I. Preparation of provisional glass formulations, *J Dent Res*, 55 : 738-747, 1976.
  7. Bowen, RL. and Reed : Semi-porous reinforcing fillers for composite resins. II. Heat treatment and etching characteristics, *J Dent Res*, 58 : 1493-1508, 1976.
  8. Ehrnford, L. : A method for reinforcing dental composite restorative materials, *Odontol Revy*, 27 : 51-54, 1976.
  9. Plueddeman : Silane coupling agents, New York, London, Plenum Press, 167-205, 1982.
  10. Kwei, TK. : Polymer-filler interaction, Thermodynamic calculations and proposed model, *J Polym Sci*, 3 : 3229-3240, 1965.
  11. Jones, DW., Rizkalla, AS., Sutow, EJ. and Hall, GC. : Effect of silane treatment on elastic modulus and poisson's ratio of experimental composites, *J Dent Res*, 69 : 207-207, 1990.
  12. Bowen, RL. : Properties of silica-reinforced polymer for dental restorations, *J Am Dent Assoc* 66 : 57-64, 1963.
  13. S derholm, KJ. : Degradation of glass filler in experimental composites, *J Dent Res*, 67-1875, 1981.
  14. S derholm, KJ. : Leaking of fillers in dental composites, *J Dent Res*, 62 : 126-130, 1983.
  15. Vallittu, PK. : Curing of a silane coupling agent and its effect on the transverse strength of autopolymerizing polymethylmethacrylate-glass fiber composite, *J Oral Rehabil*, 24 : 124-130, 1997.
  16. Soderholm, KJ. : Influence of silane treatment and filler fraction on thermal expansion of composite resins, *J Dent Res*, 63 : 1321-1326, 1984.
  17. Kalanchandra, S. : Influence of filler on the water sorption of composites, *Dent Mater*, 5 : 283-288, 1989.
  18. Muller, H., Olsson, S., and Soderholm, K.J. : The effect of comonomer composition, silane heating, and filler type on aqueous TEG-DMA leachability in model resin composites, *Eur J Oral Sci*, 105 : 362-368, 1997.
  19. Mohsen, NM. and Craig, RG. : Effect of silanation of fillers on their dispersability by monomer systems, *Oral Rehabil*, 22 : 183-189, 1995.
  20. Sadakane, M., Tada, T., Ide, S., Nakayama, M., Nishiya, N., Utsumi, S., Torii, Y., and Inoue, K. : Effect of additional heat cure on mechanical properties of light-cured composite resins: Part 1 Effect of silane treatment of filler, *Jpn J Conserv Dent*, 35 : 677-684, 1992.
  21. Newburg, R. and Pameijer, CH. : Composite resins bonded to porcelain with silane solution, *J Am Dent Assoc*, 96 : 288-291, 1978.
  22. Kolodney, H., Puckett, A., Kistenmacher, B., Weems, D. : Composite to Silane-coated alloy bond strengths following gypsum invested heat-processing, *J Dent Res*, 71 : 278-278, 1992. # 1376.
  23. Bailey, JH. : Porcelain-to-composite bond strengths using four organosilane materials, *J Prosthet Dent*, 61 : 174-177, 1989.
  24. Rosenstiel, SF., Denry, IL., Zhu, W., Gupta, PK. and Van der Sluys, RA. : Technical Note, Fluoroalkylethyl silane coating as a moisture barrier for dental ceramics, *J Biomedical Mater Research*, 27 : 415-417, 1993.
  25. May, KB., Van Putten, MC., Bow, DA., Lang, BR. : 4-META polymethyl methacrylate shear bond strength to titanium, *Operative Dentistry* 22 : 37-40, 1997.
  26. Semmelman, JO. and Kulp, PR. : Silane bonding porcelain teeth to acrylic: *J Am Dent Assoc*, 76 : 69, 1968.
  27. Myerson, RL. : Effect of silane bonding of acrylic resins to porcelain on porcelain structure, *J Am Dent Assoc*, 78 : 113-117, 1969.
  28. Bouschlicher, MR., Reingardt, JW., Vargas, MA. : Surface treatment techniques for resin composite repair, *Am J Dent*, 10 : 279-283, 1997.
  29. Swift, EJJr., Cloe, BC., and Boyer, DB. : Effect of a silane coupling agent on composite repair strengths, *Am J Dent*, 7 : 200-202, 1994.
  30. Azarbal, P., Boyer, DB., Chan, KC. : The effect of bonding agents on the interfacial bond strength of repaired composites, *Dent Mater*, 2 : 153-155, 1986.
  31. Brosh, T., Pilo, R., Bichacho, N. and Blutstein, R. : Effect of combination of surface treatments and bonding agents on the bond strength of repaired composites, *J Prosthet Dent*, 77 : 122-26, 1997.
  32. Craig, RG., and Dootz, ER. : Effect of mixed silanes on the hydrolytic stability of composites, *J Oral Rehabil*, 23 : 751-756, 1996.
  33. Berry, T., Barghi, N. and Chung, K. : Effect of water storage on the silanization in porcelain repair strength, *J Oral Rehabil*, 26(6) : 459-463, 1999.
  34. Paffenbarger, GC., Nelson, RJ. and Sweeny, WT. : Direct and indirect filling resins: A review of some physical and chemical properties, *J Am Dent Assoc*, 47 : 516-524, 1953.
  35. Matsumura, H., Hisamatsu, N. and Atsuta, M. : Effect of unfilled resins and a silane primer on bonding between layers of a light-activated composite resin veneering material, *J Prosthet Dent*, 73 : 386-391, 1995.
  36. Buonocore, MG. : A simple method of increasing the adhesion of acrylic materials to enamel surfaces, *J Dent Res*, 34 : 849-853, 1955.

### 사진부도 설명

- Fig. 3. SEM view of fractured surface of composite(Group 1) containing 0.0% silane treated filler ( $\times 800$ )  
Fracture occurred between filler and resin-matrix interface.
- Fig. 4. SEM view of fractured surface of composite(Group 2) containing 0.5% silane treated filler ( $\times 800$ )  
Fracture occurred inter-matrix.
- Fig. 5. SEM view of fractured surface of composite(Group 3) containing 1.0% silane treated filler ( $\times 800$ )  
Fracture occurred inter-matrix.
- Fig. 6. SEM view of fractured surface of composite(Group 4) containing 1.5% silane treated filler ( $\times 800$ )  
Fracture occurred inter-matrix.
- Fig. 7. SEM view of fractured surface of composite(Group 5) containing 2.0% silane treated filler ( $\times 800$ )  
Fracture occurred inter-matrix & interface between filler and resin-matrix.
- Fig. 8. SEM view of fractured surface of composite(Group 6) containing 2.5% silane treated filler ( $\times 800$ )  
Fracture occurred inter-matrix & interface between filler and resin-matrix.
- Fig. 9. SEM view of fractured surface of composite(Group 7) containing 3.0% silane treated filler ( $\times 800$ )  
Fracture occurred inter-matrix & interface between filler and resin-matrix.



사진부도 ①

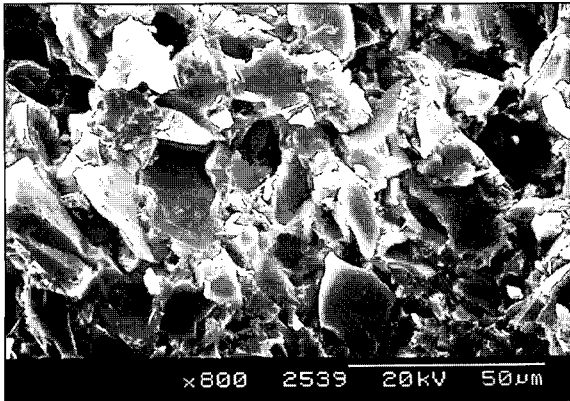


Fig. 3

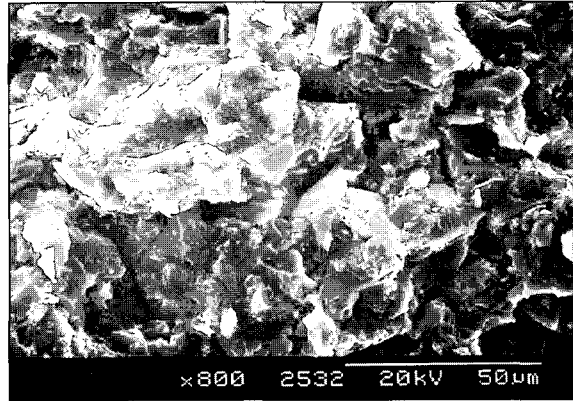


Fig. 4

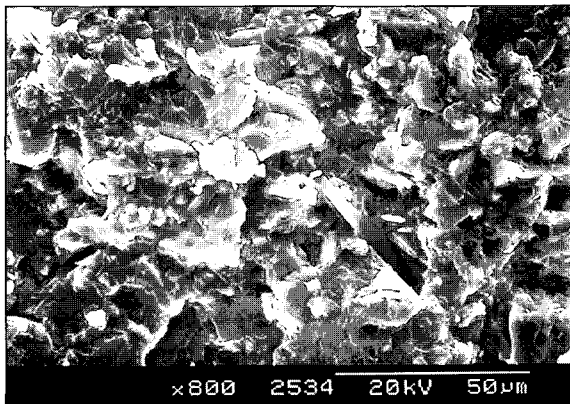


Fig. 5

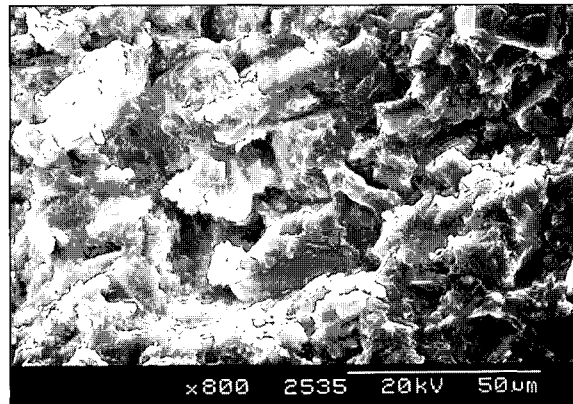


Fig. 6

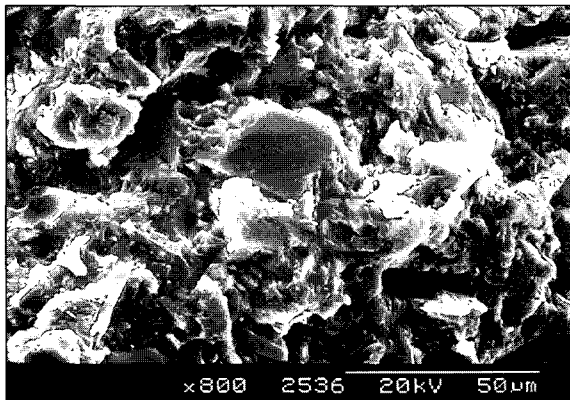


Fig. 7

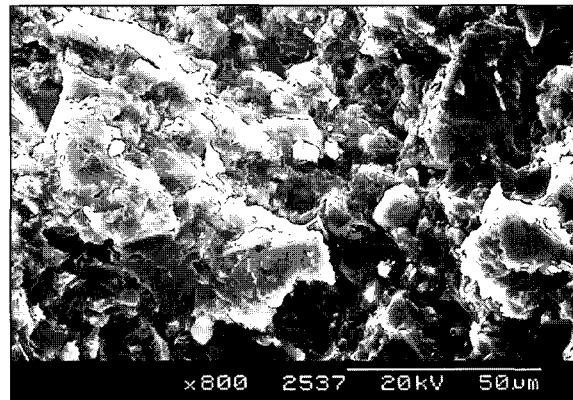


Fig. 8

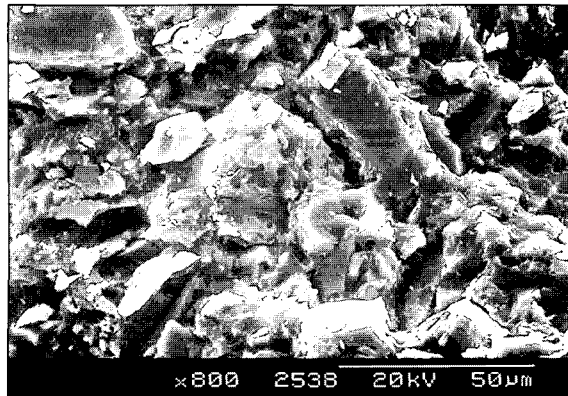


Fig. 9