

# 치과용 아말감의 파절에 관한 연구

서울대학교 치과대학 보존학교실

허 현 도 · 엄 정 문

## - 목 차 -

- I. 서 론
- II. 실험재료 및 실험방법
- III. 실험성적
- IV. 총괄 및 고안
- V. 결 론
- 참고문헌
- 영문초록
- 사진부도

## I. 서 론

치과용 아말감은 가장 많이 사용되고 있는 충전 재료로서 1826년 프랑스에서 처음 사용한 이래 재료의 개선으로 1926년 A. D. A 규격 No. 1으로 채택되었으며 물리적 성질을 증진시키기 위한 합금입자의 미세화로 1961년 Probst등<sup>1)</sup>에 의해 구상아말감이 제조되었다. 1963년 Innes와 Youdelis등<sup>2)</sup>은 중래 합금조성과는 상이한 銅의 함량이 높은 Dispersalloy를 개발하였다. 이것은 절삭형인 Ag-Sn 합금입자와 구상형인 Ag-Cu공정합금입자의 혼합체이다. 1974년 Asgar<sup>3)</sup>는 Ag-Sn-Cu로 구성된 단일조성의 고동아말감을 개발하기에 이르렀다. 이러한 고동아말감에서는 아말감의 성분중에서 가장 취약한  $\gamma_2$ 상이 없음이 Mahler<sup>4)</sup>, Sarkar<sup>5)</sup>등에 의해 증명되었으며 또한 Mahler<sup>6)</sup>, Osborne등<sup>7)</sup>은 중래의 아말감에 비해 변연부파절이 적음을 관찰하였다.

치과용 아말감은 임상에서 많이 사용되고 있지만 파절, 2차 우식, 변색 및 부식 등에 의해 임상적인 실패를 가져오는 예가 많은데 이는 대부분부

적절한 외동형성과 잘못된 재료조작에 기인하지만 Nagai등<sup>8)</sup>은 실패원인을 아말감 자체의 고유 성질에서 찾으려고 하였다.

Healey<sup>9)</sup>, Seino등<sup>10)</sup>은 아말감 충전의 주된 실패요인으로 파절을 들고 있으며 이는 아말감의 인장강도가 약한데 주로 기인한다고 설명할 수 있다<sup>11)</sup>.

이러한 아말감의 파절양상에 대하여 1965년 Asgar등<sup>12)</sup>은 저동아말감을 대상으로 bending stress에 의한 균열전파를 관찰하였으며 Younis등<sup>13)</sup>은 고동아말감에 대하여 연구하였고 Sutfin등<sup>14)</sup>은 파절된 면을 중심으로 관찰 분석하였다. 한편 Espevike<sup>15)</sup>은 파절시의 강도와 변형율을 측정하였고 Ooki등<sup>16)</sup>은 구강내에서 사용중에 생긴 아말감의 파절면을 관찰한 바 있다.

이에 저자는 수종의 치과용 아말감을 대상으로 파절이 시작될 때 나타난 균열을 주사전자현미경 및 Electron probe microanalyzer로 관찰 분석하여 파절양상을 비교하고 미세구조가 파절에 미치는 영향에 대하여 연구한 바 있어 다소의 지견을 얻었기에 이에 보고하는 바이다.

## II. 실험재료 및 실험방법

**실험재료** : 본 실험에 사용된 합금의 종류와 구성 성분, 입자형태 등은 table 1과 같다.

**시편제작** : table 1에 있는 수은과 합금비를 천평으로 정확히 정량하여 mechanical amalgamator (Campmaster, S. S. White)로 연화한 후 직경 4mm, 높이 12mm의 금속주형에 주입하고 주형직경에 해당하는 원주형 Condenser를 적합시켜 10ton capacity, Instron universal testing machine (Model-1125) 으로서 분당 1mm의 하중속도로 120kg의 하중을 가해

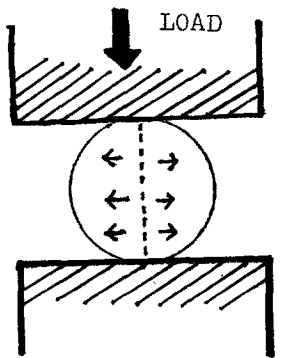
\* 본 논문은 1983年度 서울대학교병원 임상연구비로 이루어진 것임.

Table 1. Selected Amalgam Alloys

Alloy	Manufacturer	Mercury to Alloy ratio	Major Elements			Particle Shape
			Ag	Sn	Cu	
Caulk 20th Century Regular	L.D. Caulk Co.	53.5%	68-70	26-28	2-4	Irregular
Caulk Spherical	L.D. Caulk Co.	46.2	68-70	26-28	2-4	Sphere
Dispersalloy	Johnson & Johnson	50.0	72 68-70	0 26-28	28 2-4	Sphere (1/3) Irregular (2/3)
Tytin	S.S. White	43.0	60	27	13	Sphere

응축시켰다. 응축시킨 원주형 시편을 금속주형에서 제거하여 실온에서 1주일간 방치한 후 시편연마를 위해 acrylic resin에 매몰하고 시편상부를 emery paper #100에서 #1200까지 연마하고 0.06 $\mu$  Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 부유용액을 사용해서 연마천위에서 최종 연마하였다. 연마후 시편을 acrylic resin에서 제거하였다.

**파절방법**: 연마한 시편을 diametral tensile test시와 같은 방법으로 Instron testing machine에 위치시키고 0.05mm/min의 하중속도로 하중을 가하면서 recording graph에서 곡선이 하강하는 순간 하중을 멈추었다. 시편상부에 나타난 균열상을 주사전자현미경(JSM-35)을 이용하여 관찰하고 EPMA(electron probe microanalyzer)로 아말감의 성분인 Ag, Sn, Hg, Cu, Zn의 특성 X-ray image를 관찰하여 보다 정확한 상을 분석하였다.



The arrows indicate the direction of the tensile stress.

Diametral Tensile Test

### III. 실험 성적

**절삭형 아말감 (Fig. 1)**: Fig. 1 - A는 시편의 중심부, 1 - B는 외곽부위에 나타난 균열상이다. 불규칙한 모양의  $\gamma$ 상이 보이고 주위  $\gamma_1$ 기질내에 많

은  $\gamma_2$ 상이 섬모양으로 존재하고 있음을 관찰할 수 있었다. 균열은 공공(void),  $\gamma_2$ 상,  $\gamma_1$ 상을 통과하며 큰 크기의  $\gamma$ 입자를 피하지만 예리한 돌출부위는 그대로 통과하고 있다. 시편의 외곽부위에서는 또 다른 균열의 가지(branch)가  $\gamma$ 상 내부를 통과하고 있는 것이 관찰되었다.

**구상아말감 (Fig. 2, 3)**: 구상의  $\gamma$ 상과  $\chi$ 상,  $\gamma_2$ 상 등이 보이며 구상아말감에서는 절삭형 아말감에 비해  $\chi$ 기질의 양이 적었다. EPMA에서 개개 원소의 X-ray image는, 해당원소가 있을 경우 흰점으로 나타나고 그의 감광되지 않는 부분은 해당 원소가 존재하지 않는 것을 의미한다. 중심부에서의 균열은  $\gamma$ 상과  $\chi$ 기질과의 경계부,  $\gamma_2$ 상, void 등을 통과하였으며 (Fig. 2) 외곽부위에서는 균열이  $\gamma$ 상 내부도 통과함이 관찰되었다. (Fig. 3)

**고동아말감의 Dispersalloy (Fig. 4, 5)**: 절삭형 합금입자 (Ag-Sn)와 구상형 분산입자 (Ag-Cu)가 혼합된 상을 보이며  $\gamma_2$ 상은 관찰되지 않았다. 또한 Ag-Cu구상입자주위에 Cu-Sn으로 구성된 reaction ring이 형성되어 있다. 시편의 중심부 (Fig. 4)와 외곽부위 (Fig. 5)에서 균열 양상은 별다른 차이를 보이지 않았다. 균열은 절삭형 입자 (Ag-Sn) 내를 통과하는 반면 분산입자 (Ag-Cu)에서는 reaction ring과 주위기질과의 경계부를 통과하고 있음이 관찰되었다.

**고동아말감의 Tytin (Fig. 6, 7)**: 다양한 크기의 Ag-Cu-Sn으로 구성된 구상입자와 주위 기질 (Ag-Hg)로 구성되어 있고 그 경계부는 모호하다.  $\gamma_2$ 상은 보이지 않으며 구상입자표면에 형성된  $\eta$ (Cu<sub>6</sub>Sn<sub>5</sub>) 결정들이 망상구조로 기질내에 매몰되어 있음을 관찰할 수 있었다. 균열은 시편의 중심부 (Fig. 6)와 외곽부위 (Fig. 7)에서 별다른 차이를 나타내

지 않았으며 미반응합금입자주위의  $\eta(\text{Cu}_6\text{Sn}_5)$  결정들 사이의 기질을 통하여 입자내부를 통과하였다.

#### IV. 총괄 및 고안

본 실험에서 인장응력으로 균열을 만들지 않고 diametral tensile test 방법으로 시험한 이유는, 아말감은 매우 brittle한 재료이기 때문에 인장시편을 grip에 장착시 파절이 오기 때문이다. 또한 diametral tensile test 방법은 연마면위에 나타난 균열을 관찰하기에 용이한 것으로 생각된다. 균열을 관찰할 때 시편의 중심부와 외곽부위로 나누어 관찰한 이유는, 처음에는 압축하중에 수직방향으로 동일한 인장응력이 작용하지만 하중이 증가함에 따라 시편이 약간의 변형을 일으키게 되므로 외곽부위에서는 압축응력을 추가로 받기 때문이다.

치과용 아말감은 구조 및 조성이 서로 다른 여러 종류의 상으로 구성되어 있으므로 아말감의 물리적 성질은 각각의 상의 특성 및 상호간의 관계에 밀접한 영향을 받게 된다. 각 상의 인장강도를 보면  $\gamma$  상이  $170\text{MN}/\text{m}^2$ 으로 가장 높고  $\gamma_2$  상이 그 다음으로  $30\text{MN}/\text{m}^2$ ,  $\gamma_1$  상은  $20\text{MN}/\text{m}^2$ 으로 가장 낮은 강도를 가진다<sup>10)</sup> Takatsu 등<sup>17, 18)</sup>은 각 상의 미세경도를 측정했는데 저동아말감의 경우  $\gamma$  상이 가장 높은 경도치를 보이는 반면  $\gamma_2$  상은 가장 낮은 경도치를 나타내었으며 고동아말감의 경우 dispersed 아말감에서는 분산입자주위에 형성된 reaction ring이  $\epsilon(\text{Cu}_6\text{Sn}_5)$  상 다음으로 높은 경도치를 보이고 단일조성형에서는  $\eta(\text{Cu}_6\text{Sn}_5)$  상이 가장 높은 경도치를 갖는 상임을 관찰하였다.

재래식 절삭형 아말감의 균열양상을 보면 강도나 강도가 가장 높은  $\gamma$  상이 파절에 저항을 가진다는 것을 알 수 있다. 구상아말감에서는  $\gamma$  입자와  $\gamma_1$  기질과의 경계부를 통과하는 균열을 보였는데 더 큰 응력이 작용한 외곽부위에서는  $\gamma$  상 내부를 통과하는 양상도 관찰되었다. Asgar<sup>12)</sup>, Sutfin<sup>14)</sup> 등은  $\gamma$  기질 내에서 입계간균열전파 (intergranular crack propagation)를 관찰하였지만 본 실험에서는 시편을 etching시키지 않았으므로 명확한 결정입계 (grain boundary)는 보이지 않았다. 한편 Sutfin 등<sup>14)</sup>은 파절면을 관찰하여 구상아말감에서는 기질과 합금입자간에 결합력이 우수하다고 제안했지만 Espevik<sup>15)</sup>은 구상입자와 기질사이의 급격한 경계부를 이루고 있으므로 응력집중이 일어나 이 경계부로 균열이 전파된다고 하였다. 본 실험에서는 Espevik의 연구결

과와 일치하는 균열상이 관찰되었다.

고동아말감에서는, 강도나 강도가 낮으며 전기화학적으로도 취약하다고 밝혀진  $\gamma_2$  상이 없으며 대신  $\eta(\text{Cu}_6\text{Sn}_5)$  상이 형성되는 것이 특징이다. 분산형 고동아말감인 Dispersalloy 아말감에서 균열은 분산입자 (Ag-Cu) 주위에 형성된 reaction ring ( $\gamma$  상)을 피하여 전파되었다. Takatsu 등<sup>17, 18)</sup>의 연구에 의하면 분산입자 (Ag-Cu)는  $\gamma(\text{Ag-Sn})$  상보다 약간 낮은 경도치를 보이지만 분산입자 주위에 형성된 reaction ring은 Ag-Cu 상과 Ag-Sn 상보다 훨씬 높은 경도를 가진다. 따라서 균열은 강도가 높은 reaction ring을 피하여 전파되었는데 이러한 reaction ring은 분산강화아말감의 물리적 성질에 크게 기여할 것으로 추측된다. 그런데 재래식 절삭형 아말감의 경우에는 균열이  $\gamma$  입자를 피하는 반면 Dispersalloy 아말감에 있는  $\gamma$  입자는 균열이 통과하였다. 이는 재래식 절삭형 아말감에서 보다 더 큰 하중에서 Dispersalloy 아말감의 균열이 발생되어 전파되기 때문인 것으로 사료된다.

단일조성 고동아말감인 Tytin 아말감에서는  $\eta(\text{Cu}_6\text{Sn}_5)$ 가 Dispersalloy 아말감에서와는 달리 연속된 층을 이루지 않고 합금입자주위에 개별적인 불연속성의 결정형태로 형성되는데 Okabe 등<sup>19)</sup>은 단일조성의 경우 dissolution-precipitation 이전에 의해  $\eta$  상이 형성된다고 하였다. Tytin 아말감에서의 균열은 이와 같이 연속된 층을 이루고 있지 않은  $\eta$  결정입자사이의  $\gamma$  기질을 통과하며 Takatsu<sup>17, 18)</sup> 등이 밝힌바와 같이 강도가 가장 높은  $\eta$  결정들이 망상구조를 하고 있기 때문에 입자와 기질과의 경계부를 통과하지 못하고 비교적 강도가 낮은 합금입자 내부를 통과하는 것으로 사료된다. Okabe<sup>20)</sup>, Mitchell 등<sup>21)</sup>은, 고동아말감에서의 기질내 균열전파는 재래식 아말감에서 관찰되는 결정입계간 분리 (intergranular separation)와 아울러  $\gamma$  결정의劈開 (Cleavage)로서도 전파됨을 관찰하였으며 이는 고동아말감의 높은 강도와 관련이 있다고 밝혔다.

한편 아말감의 취약점으로 알려진 변연파절의 기전은 많은 논란의 대상이 되어왔다. Jorgensen<sup>22)</sup>은 부식에 의한 아말감의 팽창으로 와연으로부터 아말감이 돌출되어 저작압에 의해 파피된다고 하였고, Mahler 등<sup>6)</sup>은 아말감의 creep 성질로 설명하고 있으며 Mateer 등<sup>23)</sup>은 부식피로 (corrosion fatigue)에 의한 변연의 기계적인 약화로 파절이 일어난다고 하였다.

이상과 같은 실험적인 파절의 연구결과와 실제 구

강내에서 사용중에 생긴 파절양상이 서로 일치하는지는 확실하지 않다. 하지만 실험적인 파절과 미세구조와의 관련성에 대한 연구는 각 상의 특성 및 상호간의 관계를 파악하는데 큰 도움을 줄 것으로 사료된다.

## V. 결 론

재래식 저동아말감 합금인 절삭형과 구상형, 그리고 분산형 고통아말감합금인 Dispersalloy와 단일형 고통아말감 합금인 Tytin을 수은과 반응시켜 원주형 시편을 제작한 후 0.05mm/min의 하중속도로 diametral tensile test와 같은 방법으로 하중을 가하여 생긴 균열을 주사전자현미경, EPMA로 관찰 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 절삭형 저동아말감에서 균열은 공공(voids),  $\gamma_2$ 상,  $\gamma$ 상을 통과하며 비교적 큰 크기의  $\gamma$ 입자를 피하지만 예리한 돌출부에서는  $\gamma$ 입자내를 통과하였다.
2. 구상형 저동아말감에서는 공공,  $\gamma_2$ 상,  $\gamma$ 상 그리고  $\gamma$ 입자와 주위기질과의 경계부를 통과하고 보다 큰 응력이 작용하는 부위에서는  $\gamma$ 입자내를 통과하는 균열을 보였다.
3. 분산형 고통아말감(Dispersalloy)에서 균열은  $\gamma(\text{Ag-Sn})$  입자내를 통과하는 반면 분산입자( $\text{Ag-Cu}$ )에서는 reaction ring과 주위 기질과의 경계부를 통과하였다.
4. 단일조성고동아말감(Tytin)에서는 균열이 합금입자주위에 형성된  $\eta(\text{Cu}_3\text{Sn}_2)$  결정들 사이의 기질을 통하여 합금입자내부를 통과하였다.

## - REFERENCES -

1. Probst, R.L. et al.: Atomizing nozzle and pouring cap assembly for manufacture of metal powder. US patent No. 2968062, Granted Jan. 17, 1961.
2. Innes, D.B.K., Youdelis, W.V.: Dispersion strengthened amalgams. J. Can Dent Assoc 29:587, 1963.
3. Asgar, K.: Amalgam alloy with a single composition behavior similar to Dispersalloy. J. Dent Res 53 (special issue); 60 abstract No. 23, 1974.
4. Mahler, D.B., Adney, J.D. and Eysden, J.V.: Quantitative microprobe analysis of amalgam. J. Dent Res 54:218, 1975.
5. Sarkar, N.K. and Greener, E.H.: Absence of the gamma-2 phase in amalgams with high copper concentration. J. Dent Res 51:1511, 1972.
6. Mahler, D.B., Terklar, L.G., Eysden, J.V. and Reisbeck, M.H.: Marginal fracture vs. mechanical properties of amalgam. J. Dent Res 49:1452, 1970.
7. Osborne, J.W., Swartz, M.L., Gale, E.N. and Philips, R.W.: Clinical performance of ten amalgam alloys. J. Dent Res; AADR program and abstracts of papers, No. 250, 1977.
8. Nagai, K., Ohashi, M. and Miyazu, H.: Studies on spherical amalgam alloy in the light of dental technology. J. Nihon Univ. Dent 8:149-185, 1966.
9. Healey, H.J. and Phillips, R.W.: Clinical study of amalgam failure. J. Dent Res 28: 439-446, 1949.
10. Seino, S.: Clinical observations on the amalgam fillings in school children as an early precaution against the dental caries. J. Japan Res Soc Dent Mat. and Appl. 15:25-33, 1966.
11. Williams, D.F. and Cunningham, J.: Materials in clinical dentistry. Oxford Univ., Press, 1979.
12. Asgar, K. and Sutfin, L.: Brittle fracture of dental amalgam. J. Dent Res 44:977-988, 1965.
13. Younis, D., Asgar, K. and Powers, J.M.: Initiation of cracks in dental amalgam. J. Dent Res 54:1133-1137, 1975.
14. Sutfin, L.V. and Ogilvie, R.E.: Fracture of dental amalgam; scanning electron microscope study. J. Dent Res 49:1159-1165, 1970.
15. Espevik, S.: Stress/strain behavior of dental amalgam. Acta Odontol scand 36, 103-111,

1977.

16. Ooki, T., Ogawa, T., Nagao, M. and Kozono, Y.: Fracture of dental amalgam, Part 2; Variation of fracture with applied load. J. Japan Res Soc Dent Oper 24:667-673, 1981.
17. Takatsu, T., Iwaku, M., and Fusayama, T.: Structure and effects of non-gamma-2 amalgam. J. Dent Res 56:40-45, 1977.
18. Takatsu, T., Ikeda, T., Higashi, C., Iwaku, M. and Fusayama, T.: Structure and hardness of four types of amalgam. Bull Tokyo Med Dent Univ., 24:73-80, 1977.
19. Okabe, T., Mitchell, M.B., Wright, A.H. and Fairhurst, C.W.: A study of high copper amalgams. I. a comparison of amalgamation on high copper alloy tablets. J. Dent Res Vol. 57 July-Aug, 759, 1978.
20. Okabe, T., Mitchell, M.B., Butts, M.B. and Fairhurst, C.W.: Amalgamation reaction of Dispersalloy and high copper single composition alloys. J. Dent Res 56, special issue B, paper 378, 1977.
21. Mitchell, R.J., Handerson, C.L. and Okabe, T.: Effects of strain rates on amalgam fracture. J. Dent Res AADR program and abstracts No. 450, 1980.
22. Jorgensen, K.D.: Mechanism of marginal fracture of amalgam fillings. Acta Odontol Scand 23:347, Aug, 1965.
23. Mateer, R.S., and Reitz, C.D.: Corrosion of amalgam restorations. J. Dent Res 49:399 March-April, 1970.

# A STUDY ON THE FRACTURE OF DENTAL AMALGAM

Hyeon Do Huh, Chung Moon Um

*Dept. of College of Dentistry, Seoul National University.*

..... > ABSTRACT < .....

It was the purpose of this study to investigate the fracture mode of dental amalgam by observing the crack propagation, and to relate this to the microstructure of the amalgam.

Caulk 20th Century Regular, Caulk Spherical, Dispersalloy, and Tytin amalgam alloys were used for this study.

After each amalgam alloy and Hg measured exactly by the balance was triturated by the mechanical amalgamator (Capmaster, S.S. White), the triturated mass was inserted into the cylindrical metal mold which was 4 mm in diameter and 12 mm in height and was pressed by the Instron Universal Testing Machine at the speed of 1mm/min with 120Kg. The specimen removed from the mold was stored in the room temperature for a week. This specimen was polished with the emery papers from #100 to #200 and finally on the polishing cloth with  $0.06\mu\text{Al}_2\text{O}_3$  powder suspended in water.

The specimen was placed on the Instron testing machine in the method similar to the diametral tensile test and loaded at the crosshead speed of 0.05mm/min. The load was stopped short of fracture. The cracks on the polished surface of specimen was examined with scanning electron microscope (JSM-35) and analyzed by EPMA (Electron probe microanalyzer).

The following results were obtained.

1. In low copper lathe-cut amalgam, the crack went through the voids and  $\gamma_2$  phase, through the  $\gamma_1$  phase around the  $\gamma$  particles.
2. In low copper spherical amalgam, it was observed that the crack passed through the  $\gamma_2$  and  $\gamma_1$  phase, and through the boundary between the  $\gamma_1$  and  $\gamma$  phase.
3. In high copper dispersant (Dispersalloy) amalgam, the crack was found to propagate at the interface between the  $\gamma_1$  matrix and reaction ring around the dispersant (Ag-Cu) particles, and to pass through the Ag-Sn particles.
4. In high copper single composition (Tytin) amalgam, the crack went through the  $\gamma_1$  matrix between  $\eta$  crystals, and through the unreacted alloy particle (core).

.....

논문 사진 부도 ①

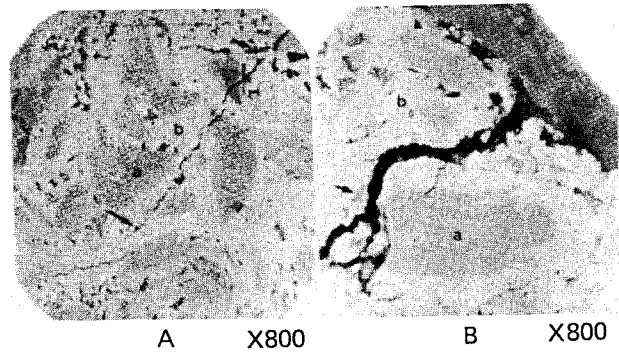


Fig. 1. Crack in Lathe-cut Amalgam.  
 a.  $\gamma$  phase  
 b.  $\gamma_1$  phase  
 short arrow  $\gamma_2$  phase  
 long arrow. void

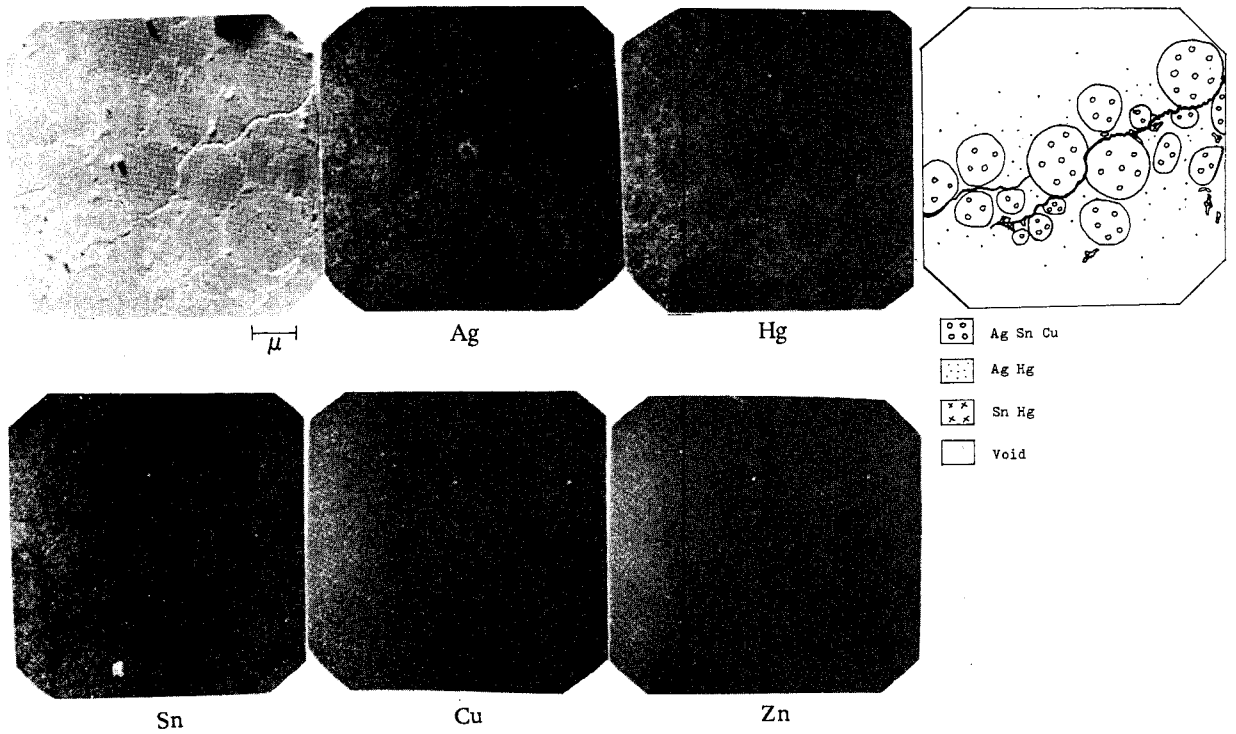


Fig. 2. Crack in Spherical Amalgam (center)

논문 사진 부도 ②

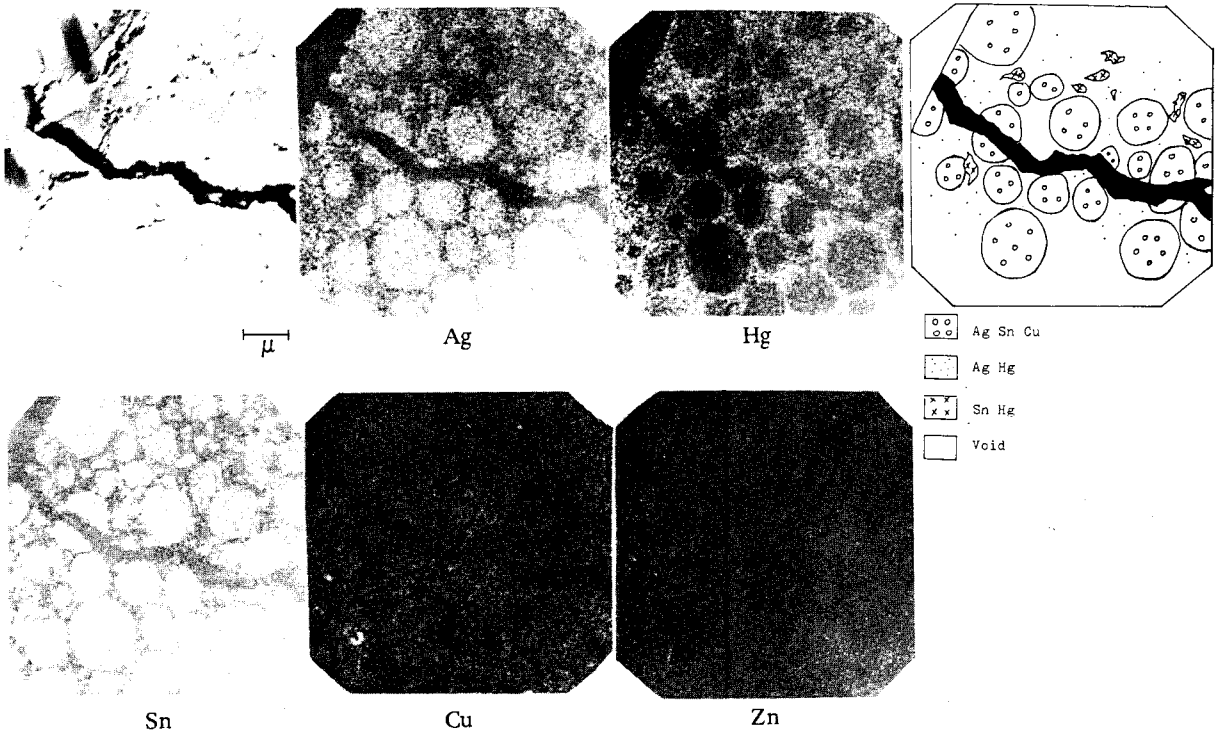


Fig. 3. Crack in Spherical Amalgam (outer)

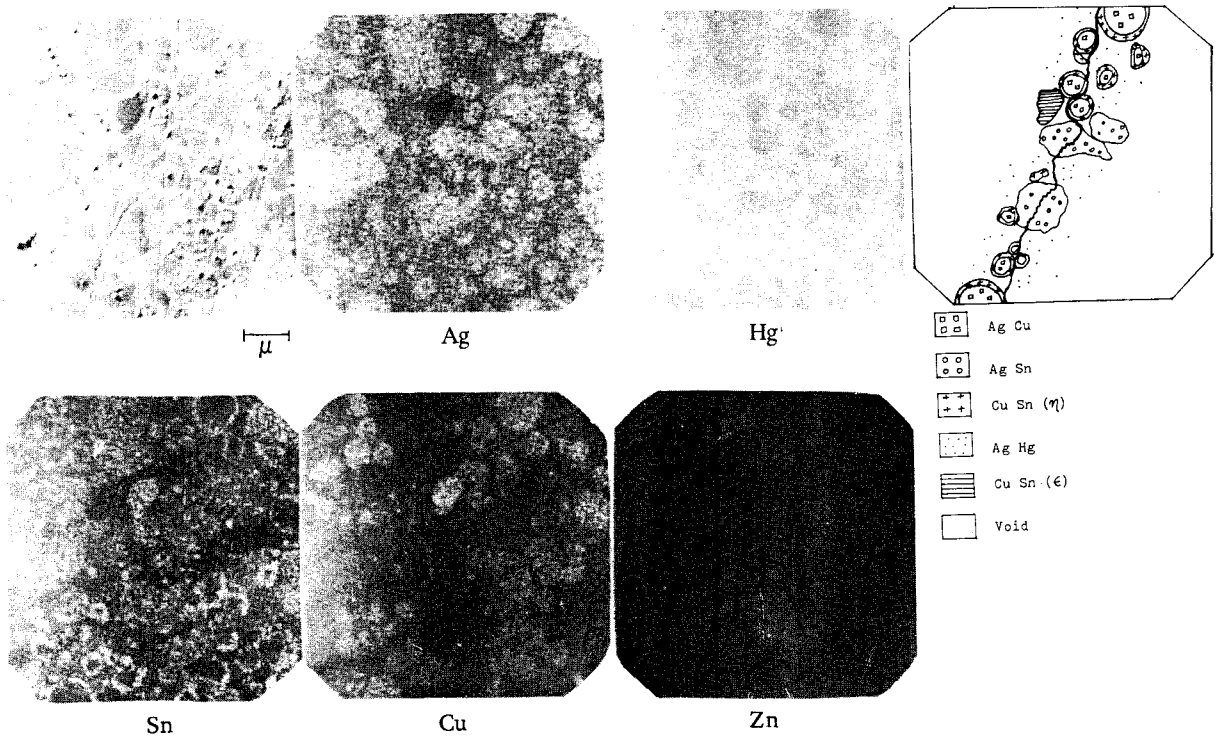


Fig. 4. Crack in Dispersalloy Amalgam (center)



논문 사진 부도 ③

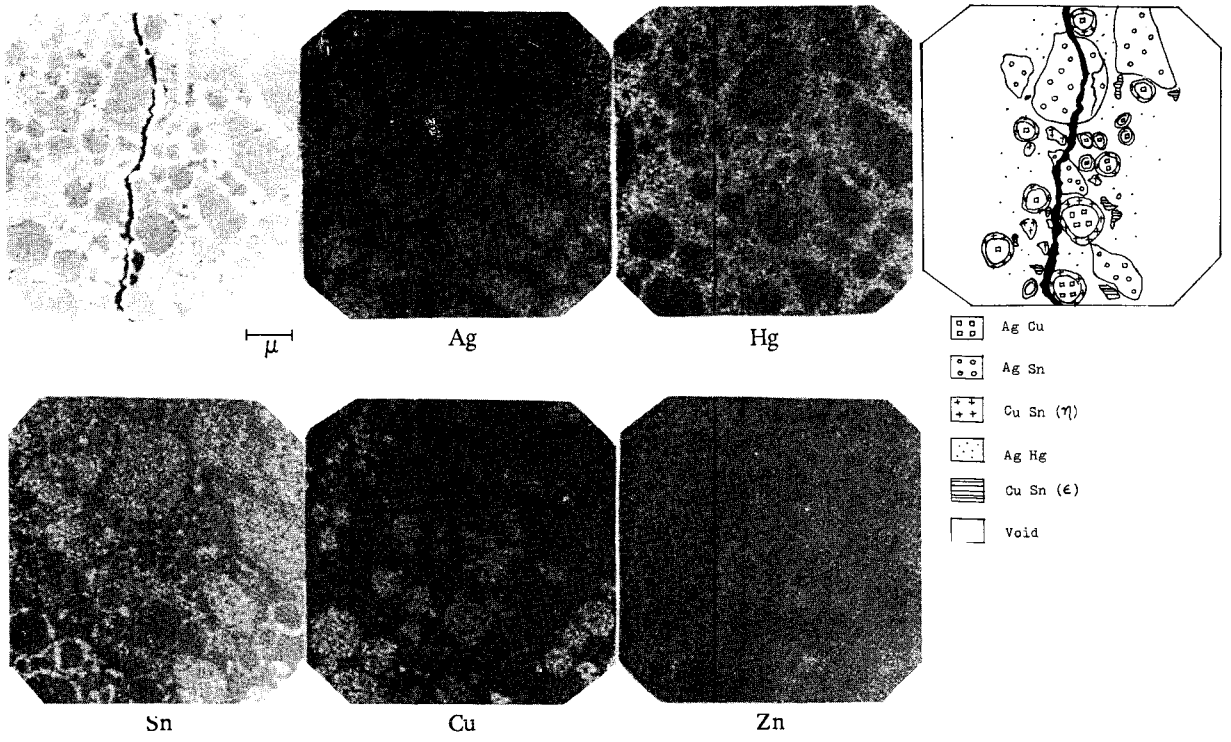


Fig. 5. Crack in Dispersalloy Amalgam (outer)

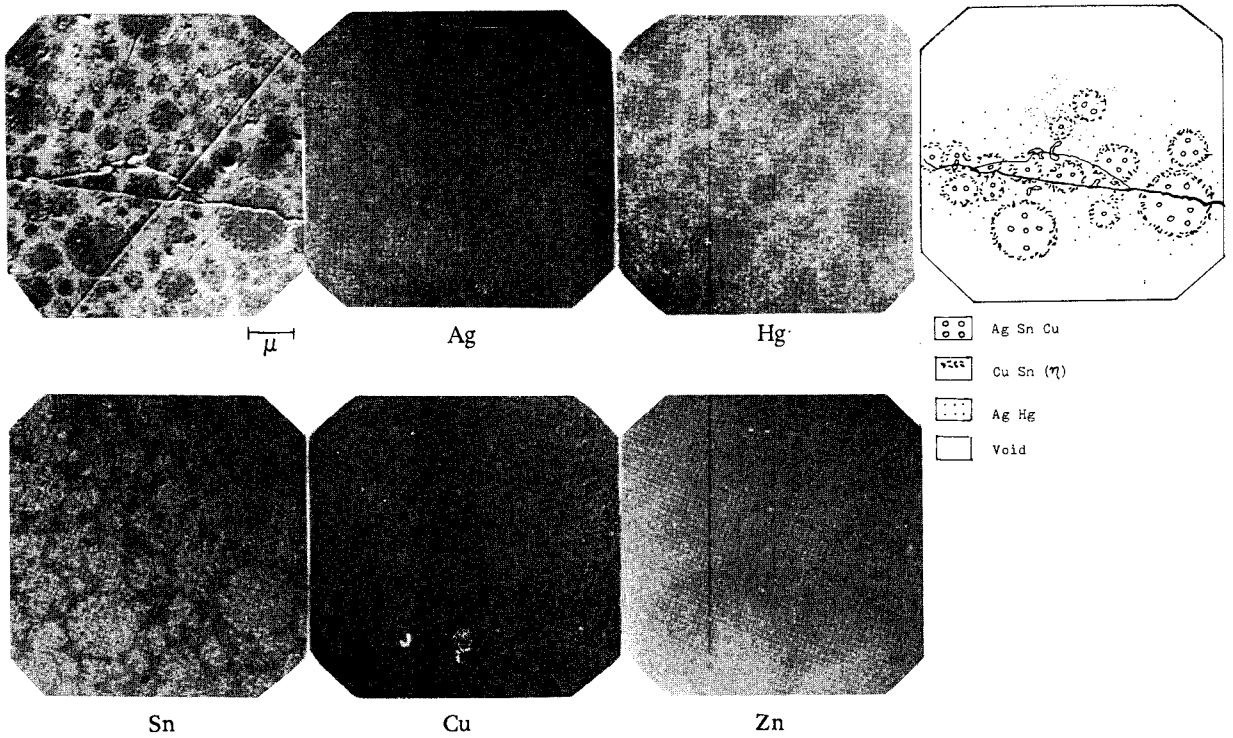


Fig. 6. Crack in Tytin Amalgam (center)

논문 사진 부도 ④

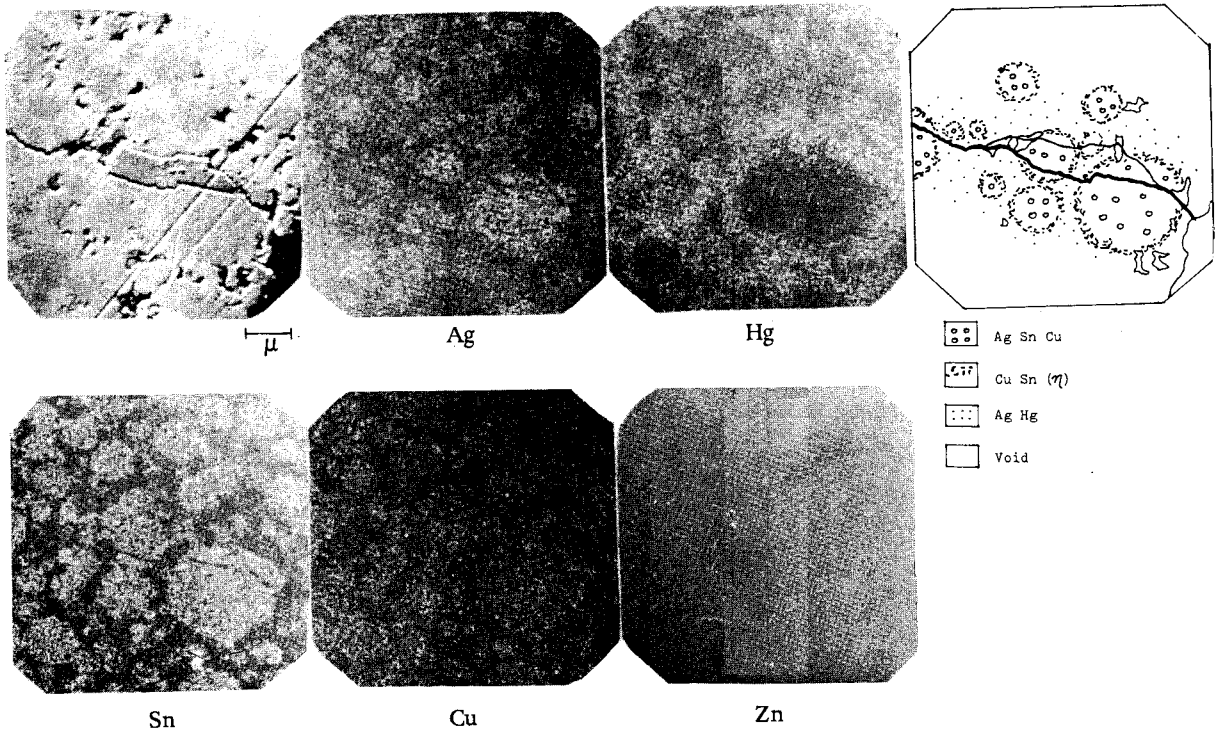


Fig. 7. Crack in Tytin Amalgam (outer)